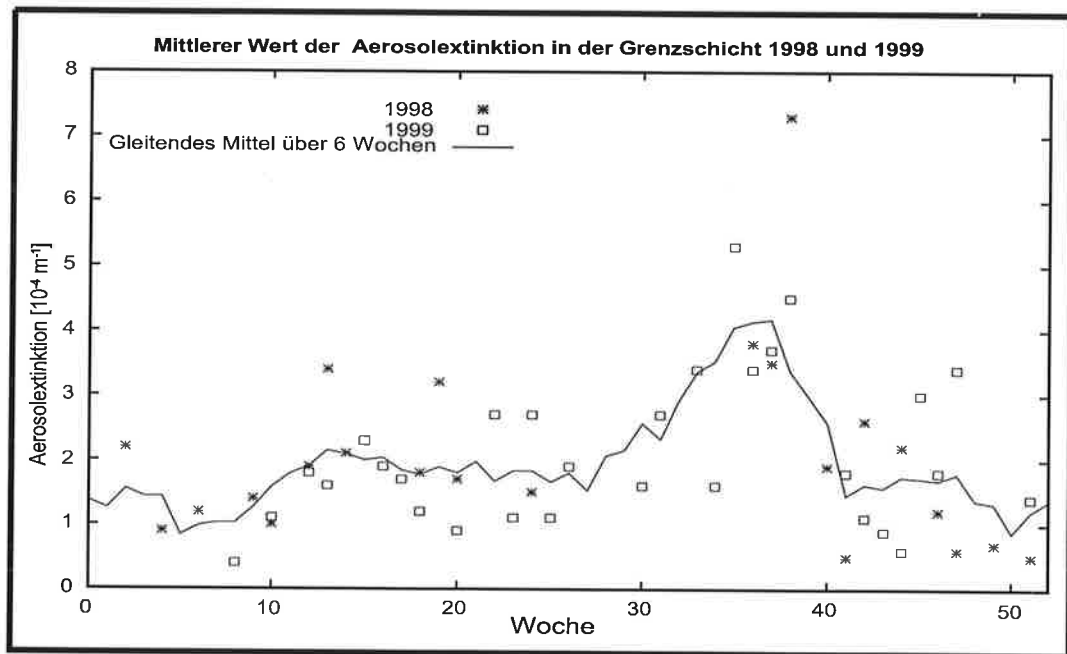




Max-Planck-Institut für Meteorologie

EXAMENSARBEIT Nr. 80



VERTIKALMESSUNGEN DER AEROSOLEXTINKTION UND DES OZONS MIT EINEM UV-RAMAN-LIDAR

von
Volker Matthias

HAMBURG, November 2000

Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades

Autor:

Volker Matthias

Max-Planck-Institut
für Meteorologie

MAX-PLANCK-INSTITUT
FÜR METEOROLOGIE
BUNDESSTRASSE 55
D - 20146 HAMBURG
GERMANY

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

ISSN 0938-5177

Vertikalmessungen der Aerosolextinktion und des Ozons mit einem UV-Raman-Lidar

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

vorgelegt von
Volker Matthias
aus
Selsingen

Hamburg, 2000

ISSN 0938-5177

Als Dissertation angenommen vom Fachbereich Geowissenschaften der Universität
Hamburg

auf Grund der Gutachten von Prof. Dr. Hartmut Graß
und Dr. Jens Bösenberg

Hamburg, den 9. Juni 2000

Prof. Dr. U. Bismayer
Dekan
des Fachbereichs Geowissenschaften

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wird ein kombiniertes UV-Raman-Lidar/Ozon-DIAL zur Messung von Ozon- und Aerosolvertikalprofilen vorgestellt. Im Gegensatz zu den meisten anderen Raman-Lidar-Systemen kann mit diesem Instrument aufgrund der Raman-Wellenlängen unterhalb von 300 nm auch tagsüber ein quantitatives Vertikalprofil der Aerosolextinktion und -rückstreuung bestimmt werden. In Kombination mit anderen Meßgeräten, wie z.B. Sonnenphotometern können durch einen Meßpunkt im Spektralbereich unterhalb 400 nm Informationen über das spektrale Extinktionsverhalten des Aerosols gewonnen werden, die bisher nicht zugänglich waren.

Mit dem UV-Raman-Lidar ist die Bestimmung von Aerosolextinktions- und rückstreuprofilen ohne Vorgabe eines Lidar-Verhältnisses möglich, was wiederum zu einer Verbesserung der beim Ozon-DIAL notwendigen Aerosolkorrektur der Ozonprofile führt. Eine sehr genaue Aerosolkorrektur ist insbesondere dann nötig, wenn der Einfluß von Wolken auf die Ozonverteilung untersucht werden soll, da in der Umgebung von Cumuluswolken sehr unterschiedliche Zustände des streuenden Aerosols vorliegen können. Hier wird gezeigt, daß in solchen Fällen mit dem kombinierten UV-Raman-Lidar/Ozon-DIAL exaktere Ergebnisse erzielt werden können.

Das aufgebaute Meßsystem läßt sich auch bei einer Emissionswellenlänge von 351 nm mit einem Raman-Kanal bei 382 nm betreiben. Dies hat den Vorteil höherer Reichweite und Genauigkeit, beschränkt den Einsatz des Lidars aber auf die Dunkelheit. Mit einer solchen Anordnung wurden im Rahmen des vom BMBF geförderten AFS-Lidar-Netzes wöchentliche Routinemessungen der Aerosolextinktion durchgeführt. Dieser Datensatz erlaubt statistische Untersuchungen, aus denen mittlere Werte der Aerosolextinktion sowie der optischen Dicke insbesondere für die Grenzschicht abgeleitet wurden. Die Standardabweichungen geben Aufschluß über die Variabilität dieser Größen. Eine jahreszeitliche Abhängigkeit der optischen Dicke der Aerosolpartikel ist mit höheren Werten in den Sommermonaten klar erkennbar, insbesondere der Monat September weist bei den bisher untersuchten Jahren 1998 und 1999 sehr hohe Werte auf.

Die Profile des Aerosolextinktionskoeffizienten wurden mit Rückwärtstrajektorien kombiniert, so daß daraus Rückschlüsse auf Quellregionen der Aerosolpartikel gezogen werden können. Der zwar noch begrenzte Datensatz aus 2 Jahren Routinemessungen läßt bereits erkennen, daß die Herkunft einer Luftmasse und ihre Verweildauer über industrialisiertem Gebiet entscheidende Parameter für die am Standort Hamburg gemessene Aerosolpartikelextinktion sind. Die höchsten gemessenen Werte treten im Spätsommer bei sehr kurzen Trajektorien, also stark lokalem Einfluß, oder bei südöstlicher Anströmung auf. Die niedrigsten Werte werden im Winter in Zusammenhang mit nordwestlicher Anströmung gemessen.

Die Daten ermöglichen auch eine statistische Auswertung des gemessenen Lidar-Verhältnisses und damit eine bessere Vorhersage des Lidar-Verhältnisses bei der Auswertung rein elastischer Rückstreuungsmessungen. Es ergab sich hier ein Median von 64 sr, im Winter waren die Werte dabei deutlich niedriger (Median 44 sr) als im Sommer (Median 68 sr). Werte zwischen 60 und 70 sr passen dabei gut zu Modellergebnissen für urbanes Aerosol, niedrige Werte sind mit maritimem Aerosol, das nach Modellrechnungen Werte von ca. 30 sr aufweist, in Verbindung zu bringen. Bei der Herkunftsanalyse zeigten aus Nordwest herantransportierte Luftmassen die geringsten Lidar-Verhältnisse, bei sehr kur-

zen Trajektorien erhielt man eine auffällig verringerte Variabilität des Lidar-Verhältnisses, was auf eine wohldefinierte Zusammensetzung des gemessenen Aerosols hindeutet.

Die Messungen der Aerosolextinktion, sowohl tagsüber im Solar-Blind als auch nachts bei 351 nm, wurden Qualitätskontrollen in Form von Vergleichsmessungen mit anderen Lidar-Systemen oder mit passiven Instrumenten zur Bestimmung der optischen Dicke unterworfen. Es zeigte sich beim Lidar-Vergleich eine exzellente Übereinstimmung der ermittelten Extinktionsprofile bei 351 nm. Auch die abgeschätzte optische Dicke bei 351 nm paßte in mehreren Vergleichen plausibel zu den bei längeren Wellenlängen gemessenen optischen Dicke aus Sternphotometerdaten. Bei 286 nm ergaben sich zum Teil niedrigere Werte als dies eine Approximation mit dem Ångström-Koeffizienten ins UV erwarten ließe, jedoch paßt dies sehr gut zu den Vorhersagen aus Mie-Rechnungen, so daß diese durch die Messungen bestätigt werden. Der Lidar-Vergleich ergab wiederum gute Übereinstimmung der Profile.

Neben den Messungen zeigt diese Arbeit eine ausführliche Untersuchung der zur Auswertung der Lidar-Daten zur Verfügung stehenden Methoden. Sämtliche relevanten Fehler werden bestimmt und eine quantitative Abschätzung angegeben. Ergebnis dieser Untersuchung sind die Vorteile bei der Auswertung von Ozonprofilen mit drei Wellenlängen, wobei die Wahl der Wellenlängen eine entscheidende Rolle spielt. Die mit dem MPI-Ozon-DIAL nutzbaren Wellenlängen 268 nm/292 nm/320 nm erweisen sich als wesentlich weniger fehleranfällig als die andere Kombination 248 nm/277 nm/313 nm. Der verwendete Raman-Kanal liegt vorzugsweise bei 286 nm (Raman-Streuung an atmosphärischem Stickstoff), die Raman-Streuung an Sauerstoff bei 280 nm kann aber bei etwas geringeren Rückstreuintensitäten ebenfalls benutzt werden.

Mit dem Raman-DIAL bei zwei unterschiedlichen Anregungswellenlängen wird ein Verfahren vorgestellt, das praktisch frei von systematischen Fehlern ist. Einen großen Nachteil stellt allerdings die notwendige lange Mittelungszeit dar. Dies führt dazu, daß diese Methode zur Bestimmung von Ozonprofilen mit heute verfügbaren Lasersystemen nicht geeignet ist, für zukünftige hochrepetierende Laser mit hohen Einzelpulsenergien stellt sie allerdings eine attraktive Alternative zum herkömmlichen DIAL dar.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Ozon und Aerosol	4
2.1	Ozon	4
2.1.1	Ozongasphasenchemie	5
2.1.2	Ozonchemie in Wolken	7
2.2	Aerosolpartikel	8
2.2.1	Klassifizierung	8
2.2.2	Größenverteilung	9
2.2.3	Optische Eigenschaften	10
2.3	Wechselwirkungen zwischen Ozon und Aerosol	11
3	Absorption und Streuung	13
3.1	Lidar-Prinzip	13
3.2	Absorption	15
3.3	Streuung	17
3.3.1	Rayleigh-Streuung	17
3.3.2	Raman-Streuung	18
3.3.3	Partikelstreuung	19
4	Auswerteverfahren	25
4.1	Inversion einer Lidar-Gleichung	26
4.2	Raman-Lidar	27
4.3	DIAL	30
4.4	Ramangestütztes DIAL / Dreiwellenlängenverfahren	33
4.5	Raman-DIAL	35
5	Simulationsrechnungen und Fehlerbetrachtung	37
5.1	Inversionsverfahren	39
5.2	Raman-Lidar	41
5.3	DIAL	46
5.4	Ramangestütztes DIAL / Dreiwellenlängenverfahren	55
5.5	Raman-DIAL	61
5.5.1	Fehlerquellen	61
5.5.2	Auswahl der Wellenlängen	62
5.5.3	Fehlerabschätzung	64
5.6	Vergleich der Verfahren	65

6	Das UV-Lidar-System	68
6.1	Sendeseite	68
6.2	Empfangsseite	70
6.3	Aufbau der Raman-Kanäle	73
6.3.1	Streulichtunterdrückung	73
6.3.2	Detektorsystem	74
6.3.3	Auswahl von Photomultiplier und Diskriminator	74
6.3.4	Totzeitbestimmung	75
6.4	Gesamtaufbau	78
6.5	Vergleichsmessungen Ozon-DIAL / ECC-Sonde	78
7	Verbesserung von Ozon-DIAL-Messungen	82
7.1	Eichung bei bedecktem Himmel	82
7.2	Aerosolkorrektur an der Oberkante der Grenzschicht	87
7.3	Messungen bei Cumulusbewölkung	93
7.4	Raman-DIAL	97
8	Vertikalprofile der Aerosolextinktion	99
8.1	Aerosolextinktion über Hamburg	99
8.1.1	Vergleichsmessungen	99
8.1.2	Statistische Analyse der Routinemessungen	102
8.1.3	Herkunftsanalyse	110
8.1.4	Lidar-Verhältnis	113
8.2	Tagesmessung von Extinktionsprofilen im Solar-Blind	117
8.2.1	Vergleiche	118
8.2.2	Tagesmessung während LACE'98	120
8.2.3	Statistik der Aerosolextinktion während LACE'98	121
9	Zusammenfassung	124
A	Gleichungen zur Fehlerbetrachtung	127
A.1	Inversionsalgorithmus	127
A.2	Raman-Lidar	128
A.3	DIAL	129
A.4	Ramangestütztes DIAL / Dreiwellenlängenverfahren	131
A.5	Raman-DIAL	134
B	Verzeichnis der Aerosolmessungen	136

Symbolverzeichnis

A	Empfängerfläche des Lidars
$A(i)$	Abkürzung für die integrierte Differenz von Rückstreutermen
A_i	entfernungskorrigiertes, Molekülextinktions-korrigiertes Signal bei der i -ten Wellenlänge
a	Ångströmkoefizient der Aerosolextinktion
\hat{a}^2	anisotroper Anteil des Polarisierbarkeitstensors eines Moleküls
B	Korrekturterm für differentielle Rückstreuung
B_i	Molekülrückstreuung bei der i -ten Wellenlänge
B_{RD}	Korrekturterm für differentielle Rückstreuung beim Raman-DIAL
b	Ångströmkoefizient der Aerosolrückstreuung
b^2	Quadrat der Nullpunkts-Vibrationsamplitude eines Moleküls
C	Systemkonstante des Lidars
$C_{aer}(z)$	Höhenabhängigkeit der Aerosolextinktion
C_R	Systemkonstante des Lidars für Ramanstreuung
c	Lichtgeschwindigkeit
$D_{aer}(z)$	Höhenabhängigkeit der Aerosolrückstreuung
E	Korrekturterm für differentielle Extinktion
F	Querempfindlichkeitsfaktor
$F(n)$	Funktion zur Totzeitbestimmung
h	Plancksches Wirkungsquantum
\bar{h}	Mittelungslänge
i	imaginäre Einheit
\hat{i}^2	isotroper Anteil des Polarisierbarkeitstensors eines Moleküls
$i_{ }$	Intensitätsfunktion in der Polarisationssebene parallel zum einfallenden Strahl
i_{\perp}	Intensitätsfunktion in der Polarisationssebene senkrecht zum einfallenden Strahl
K_1, K_2	Konstanten der Wellenlängenabhängigkeit beim Raman-DIAL
k	Imaginärteil des komplexen Brechungsindex
k_B	Boltzmannkonstante
M	Molekülmasse
m	komplexer Brechungsindex
N	Anzahldichte der Luftmoleküle unter Standardbedingungen
N	Abkürzung für den Nenner eines Bruches
$N(z)$	höhenabhängige Anzahldichte der Luftmoleküle
$N_p(r)$	Anzahldichteverteilung von Aerosolpartikeln
$N_{O_3}(z)$	höhenabhängige Anzahldichte des Ozons
N_p^{ges}	Gesamtanzahldichte von Aerosolpartikeln
n	Anzahl von Ereignissen/Messungen
n	Realteil des komplexen Brechungsindex
\bar{n}_0	mittlere Photonenzahl
n_s	Brechungsindex von Luft unter Standardbedingungen
O	Sauerstoffkorrekturterm
$O(z)$	Überlappfunktion

P	rückgestreute Laserleistung
P_0	emittierte Laserleistung
P_N	normiertes entfernungskorrigiertes Signal
P_R	ramanrückgestreute Laserleistung
$P(\theta)$	Phasenfunktion der Rayleigh-Streuung
$P(m, x, \theta)$	Phasenfunktion der Aerosolstreuung
p	Druck
$p(n, T)$	Wahrscheinlichkeitsfunktion
Q_e	Extinktionseffizienz von Aerosolpartikeln
Q_s	Streueffizienz von Aerosolpartikeln
R	Rayleigh-Korrekturterm
r	Radius von Aerosolpartikeln
r_M	mittlerer Radius von Aerosolpartikeln
S, S_{aer}	Lidar-Verhältnis
$S_1(\theta), S_2(\theta)$	Streufunktionen der Aerosolstreuung
S_{mol}	Molekülstreuverhältnis
S_r	Streuverhältnis
T	Temperatur
T_A	Transmission der Atmosphäre
T_{uh}	Transmission des untersten Teils der Atmosphäre
t	Zeitdauer
\bar{t}	Mittelungszeit
V	Verhältnis von Aerosol- zu Molekülrückstreuung im Eichniveau
W	wahre Zählrate
w	Lösungsfunktion für drei Lidar-Gleichungen
X	Verhältnis von angenommenem zu korrektem Eichwert
$X(z)$	entfernungskorrigiertes rückgestreutes Signal
x	$= \frac{2\pi r}{\lambda}$, Größenparameter für Mie-Rechnungen
Z	gemessene Zählrate
Z	Abkürzung für den Zähler eines Bruches
z	Entfernung des Streuvolumens vom Sender
z_0	Eichhöhe
z_{uh}	unterste auswertbare Höhe bei einer Lidarmessung
z'	Integrationsvariable der Entfernung
α	gesamter Extinktionskoeffizient
α_a	Aerosolabsorptionskoeffizient
α_{aer}, α_e	Aerosolextinktionskoeffizient
α_{mol}	Molekülextinktionskoeffizient
α_{O_2}	Sauerstoffextinktionskoeffizient
α_{O_3}	Ozonextinktionskoeffizient
α_q	Extinktionskoeffizient querempfindlicher Gase
α_{ray}	Rayleigh-Extinktionskoeffizient, entspricht dem Molekülextinktionskoeffizient α_{mol}
α_s	Aerosolstreukoeffizient
β	gesamter Rückstreukoeffizient
β_{aer}	Aerosolrückstreukoeffizient

$\beta_{ang}(z_0)$	angenommener Wert des Aerosolrückstreuoeffizienten in der Eichhöhe
$\beta_{korr}(z_0)$	korrekter Wert des Aerosolrückstreuoeffizienten in der Eichhöhe
β_{mol}	Molekülrückstreuoeffizient
β_R	Raman-Rückstreuoeffizient
β_{ray}	Rayleigh-Rückstreuoeffizient, entspricht dem Molekülrückstreuoeffizient β_{mol}
γ	Schiefe einer Verteilung
Δ	Vorsatz für einen differentiellen Ausdruck
$\Delta\nu_{vib}$	Vibrationsverschiebung durch Raman-Streuung
$\Delta\nu_{rot}$	Rotationsverschiebung durch Raman-Streuung
$\Delta\sigma_{RD}$	differentieller Ozonabsorptionsquerschnitt beim Raman-DIAL
$\Delta\rho_{O_3,q}$	Ozondichtekorrektur durch Absorption querempfindlicher Gase
Δt	Zeitintervall
Δz	Höhenstufe
δ	Depolarisationsfaktor von Luft
δ	Vorsatz für den Absolutfehler eines Ausdrucks
η	Effizienz des Detektorsystems
Λ	$= \frac{\lambda_{on}}{\lambda_{off}}$ Verhältnis zweier Wellenlängen
λ	Wellenlänge elektromagnetischer Strahlung
λ_0	Anregungswellenlänge für Ramanstreuung
λ_{off}	offline-Wellenlänge
λ_{on}	online-Wellenlänge
λ_R	Raman-Rückstreuwellenlänge
μ	Mittelwert
ν	Frequenz elektromagnetischer Strahlung
$\tilde{\nu}_0$	Wellenzahl des eingestrahlten Photons
$\tilde{\nu}$	Wellenzahl der Vibrationsverschiebung
π	Kreiszahl
ρ	Dichte
σ	Standardabweichung des Einzelwertes
$\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3$	modifizierte differentielle Ozonabsorption
σ_a	Absorptionsquerschnitt von Aerosolpartikeln
σ_e	Extinktionsquerschnitt von Aerosolpartikeln
σ_{O_2}	Sauerstoff-Absorptionsquerschnitt
σ_{O_3}	Ozon-Absorptionsquerschnitt
σ_R	Raman-Streuwirkungsquerschnitt
σ_r	Standardabweichung des mittleren Radius von Aerosolpartikeln
σ_{ray}	Rayleigh-Streuwirkungsquerschnitt
$\sigma_{ray,180^\circ}$	Rayleigh-Rückstreuwirkungsquerschnitt
σ_s	Streuquerschnitt von Aerosolpartikeln
σ_μ	Standardabweichung des Mittelwertes
θ	Streuwinkel
τ	optische Dicke
τ_L	Dauer des Laserpulses
ζ	Integrationsvariable der Entfernung
ω	single scattering albedo
Ω	Raumwinkel

Abkürzungsverzeichnis

ADC	analog digital converter
AFS	Aerosolforschungsschwerpunkt
BERLIOZ	Berlin Ozon Experiment
BMBF	Bundesministerium für Bildung und Forschung
Cer:LiCAF	mit Cer-Ionen dotierter Lithium-Calcium-Aluminium-Fluorid-Kristall, dient als Lasermaterial
DIAL	differential absorption lidar
DWD	Deutscher Wetterdienst
EARLINET	European aerosol research lidar network to establish an aerosol climatology
ECC	electrochemical concentration cell
FT	free troposphere
FWHM	full width half maximum, Halbwertsbreite
HSRL	high spectral resolution lidar
IFT	Institut für Troposphärenforschung
IFU	Fraunhofer Institut für atmosphärische Umweltforschung
KrF	Kryptonfluorid
LACE'98	Lindenberger Aerosol Charakterisierungsexperiment 1998
LED	light emitting diode
Lidar	light detection and ranging
LSB	least significant bit
MOL	Meteorologisches Observatorium Lindenberg
MPI	Max-Planck-Institut (für Meteorologie)
Nd:YAG	mit Neodym-Ionen dotierter Yttrium-Aluminium-Granat-Kristall, dient als Lasermaterial
NIM	nuclear instrumentation methods
NN	Normal Null
OD	optische Dicke
OPO	optisch parametrischer Oszillator
PBL	planetary boundary layer
PMT	photomultiplier tube
Radar	radio detection and ranging
RASS	radio acoustic sounding system
SNR	signal to noise ratio
SRS	stimulierte Raman-Streuung
TiSa	Titan-Saphir, dient als Lasermaterial
UT	universal time
UV	Ultraviolett
VOC	volatile organic compounds
XeF	Xenonfluorid

Kapitel 1

Einleitung

Troposphärisches Ozon und troposphärische Aerosolpartikel sind Hauptgegenstand dieser Arbeit. Beide Größen sind von hoher meteorologischer und gesellschaftlicher Bedeutung. Sie sind daher Gegenstand von aktueller Forschung, unter anderem am Max-Planck-Institut für Meteorologie.

Troposphärisches Ozon ist ein in hohen Konzentrationen toxisches Gas. Es spielt mit seiner hohen Reaktivität eine entscheidende Rolle in der Atmosphärenchemie. Es wird auf photochemischem Wege, aus Stickoxiden und flüchtigen organischen Verbindungen als Vorläufergasen, gebildet. Hierzu bedarf es zudem hoher Sonneneinstrahlung. In den Sommermonaten kommt es daher in Mitteleuropa immer wieder zu sogenannten Ozonepisoden, in denen der Ozonwert den von der Weltgesundheitsorganisation (WHO) vorgeschlagenen Grenzwert von $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ über längere Zeit deutlich überschreitet. Bisweilen werden auch die in Deutschland gültigen Grenzwerte von $180 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Information der Bevölkerung) bzw. $240 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Einleitung von emissionsmindernden Maßnahmen, z.B. Fahrverbote für Kfz) (BMBF, 1996) überschritten.

Ozon ist außerdem ein Treibhausgas, das aufgrund seiner Absorptionsbanden im Infrarot zur Erwärmung der Erdoberfläche beiträgt. Eine anthropogen verursachte Erhöhung der Ozondichte am Boden verstärkt daher den zusätzlichen Treibhauseffekt. Nach Berechnungen des Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC, 1996) ergibt sich aus der Zunahme des troposphärischen Ozons ein zusätzlicher Strahlungsantrieb von $0.5 \text{ W}/\text{m}^2$ im globalen Mittel, immerhin ein Drittel des für CO_2 prognostizierten Effekts.

Aerosolpartikel haben ebenfalls eine große Bedeutung für den zusätzlichen Treibhauseffekt. Dabei sind die bisherigen Kenntnisse über den tatsächlichen Effekt anthropogenen Aerosols sehr gering. Selbst das Vorzeichen des resultierenden Effekts ist unsicher, obwohl einiges auf eine insgesamt abkühlende Wirkung hindeutet (Graßl, 1988). Bei den direkten Effekten durch zusätzliche Aerosolpartikel in der Troposphäre haben Sulfate und die Verbrennung von Biomasse kühlende Effekte. Die Emission von Ruß aus Verbrennungsprozessen trägt aufgrund der hohen Absorption von Ruß dagegen zur Erwärmung bei (IPCC, 1996). Beide Effekte hängen aber entscheidend mit der Albedo des Untergrunds zusammen. Über Schneeflächen mit hoher Reflektivität tragen Aerosolpartikel in der Atmosphäre stets zur Erwärmung der Atmosphäre bei, über sehr dunklen Ozeanoberflächen haben sie dagegen, sofern keine hochabsorbierenden Aerosolpartikel vorhanden sind, kühlenden Effekt.

Die direkten Effekte können von den indirekten bei weitem übertroffen werden. Der wesentliche Prozess ist hier die Erhöhung der Albedo von Wolken durch kleinere Tröpfchen,

die sich dann bilden, wenn vermehrt Aerosolpartikel als Kondensationskerne vorliegen. Nach der Abschätzung des IPCC kann dieser Effekt bis zu -1.5 W/m^2 im global gemittelten Strahlungsantrieb betragen, und damit den zusätzlichen Treibhauseffekt stark vermindern. Die Unsicherheiten sind aber extrem hoch, so daß nur das Vorzeichen und eine obere Abschätzung gegeben werden können. Hier liegt also noch ein großer Forschungsbedarf, um die Unsicherheiten durch Aerosoleffekte in den Klimamodellen zu verkleinern. Eine Ursache für die Unsicherheiten in den Modellrechnungen ist die ungenügende Kenntnis über die vertikale Verteilung der Aerosolpartikel, ihre optischen Eigenschaften sowie ihre Variabilität auf Zeitskalen von wenigen Stunden bis zu Jahren.

Aktive Fernerkundungsverfahren wie light detection and ranging (Lidar) können hier einen wesentlichen Beitrag leisten. Mit einem Lidar kann die vertikale Verteilung von Ozon und Aerosol mit hoher zeitlicher und räumlicher Auflösung beobachtet werden. Durch die gleichzeitige Messung der elastischen Rückstreuung des ausgesandten Laserlichts an Molekülen und Aerosolpartikeln sowie der inelastischen Raman-Streuung an atmosphärischem Stickstoff können Aerosolextinktions- und -rückstreuprofile bestimmt werden. Allerdings ist das Raman-Verfahren aufgrund der geringen Signalintensität und des hohen solaren Hintergrundes zumeist nur bei Dunkelheit anwendbar. Kombiniert man aber Raman-Messungen mit einem Ozon-DIAL (differential absorption lidar), so können gleichzeitig Ozon- und Aerosolprofile, auch tagsüber, bestimmt werden. Dies stellt einen wesentlichen Fortschritt dar, da somit auch Tagesgänge der Aerosolverteilung quantitativ erfaßt werden können.

Routinemessungen der Aerosolverteilung in einem Abstand von 3 – 4 Tagen, wie sie im Rahmen des Aerosolforschungsschwerpunkts (AFS) des Bundesministeriums für Bildung und Forschung (BMBF) im Teilprojekt 1: „Lidarnetz“ gemacht werden, ermöglichen Aussagen über Größe und Variabilität atmosphärischer Aerosolparameter in Gebieten mit hoher zusätzlicher Emission von Aerosolpartikeln durch menschliche Aktivitäten wie in Mitteleuropa. Hier werden Lidar-Systeme zu Monitoring-Zwecken eingesetzt, es soll eine Datenbasis erstellt werden, anhand derer Quellregionen erkannt werden können. Regionale Unterschiede in der Verteilung sowie die Modifikation einer Luftmasse beim Transport über dicht besiedeltem Gebiet sind weitere Untersuchungsgegenstände.

Diese Arbeit beschreibt ein Ozon-DIAL mit zusätzlichen Raman-Kanälen zur Messung von Aerosolextinktions- und -rückstreuprofilen. Es kann auch als Aerosol-Lidar im UV für Routinemessungen eingesetzt werden. In Kapitel 2 werden zunächst einige Grundlagen zu Ozon und Aerosol gegeben. Kapitel 3 beschäftigt sich mit den physikalischen Grundlagen des Lidar-Verfahrens, Absorption und Streuung. Im 4. Kapitel werden die angewandten Auswerteverfahren für Ozon- und Aerosol-Messungen dargestellt. Im anschließenden Kapitel 5 findet eine detaillierte Betrachtung der möglichen Fehler durch die angewandte Auswertemethode statt. Besonderes Gewicht liegt hier auf dem verbesserten Auswerteverfahren für ein Ozon-DIAL, wenn es mit zusätzlichen Raman-Kanälen ausgestattet ist. Insbesondere Ungenauigkeiten in der Ozonmessung bei inhomogenen Aerosolverteilungen können so verbessert werden. Kapitel 6 beschreibt das in wesentlichen Teilen umgebaute und erweiterte MPI-UV-Lidar, mit dem die in Kapitel 7 beschriebenen verbesserten Ozonmessungen durchgeführt wurden. Anhand von Beispielmessungen werden die Vorteile der zuvor beschriebenen ramangestützten Auswertung von Ozonmessungen gezeigt. Sie wird auch zur Untersuchung der Ozondichte in Gegenwart von Cumuluswolken benutzt. In Kapitel 8 werden zunächst Abendmessungen von Aerosolextinktionsprofilen mit Hilfe der Raman-Methode betrachtet. Ein größerer Datensatz der im AFS gemessenen

Profile wurde hier ausgewertet und statistisch untersucht. Erste Erkenntnisse über die Aerosolverteilung über Hamburg und ihre Variabilität konnten gewonnen werden. Insbesondere die Messungen der Aerosolextinktion wurden Qualitätskontrollen unterzogen. Dies beinhaltet den Vergleich mit anderen Lidar-Systemen, aber auch mit Messungen der optischen Dicke der Aerosole durch Sonnen- und Sternphotometer. Dies gilt auch für die gezeigten Tagesmessungen der Aerosolextinktion. Während des Feldexperimentes „Lindenberger Aerosolcharakterisierungsexperiment 1998“ (LACE'98) wurden Tagesgänge sowie eine dreiwöchige Zeitreihe der optischen Dicke, ermittelt aus Tagesmessungen der Aerosolextinktion, aufgenommen. Abschließend folgt in Kapitel 9 eine Zusammenfassung mit einem Ausblick auf künftige Untersuchungen und hierfür optimierte Techniken.

Kapitel 2

Ozon und Aerosol

Ozon und Aerosol werden meist nicht in einem Atemzug genannt, dennoch sind sie in dieser Arbeit untrennbar miteinander verbunden. Dies hängt zunächst mit der verwendeten Meßmethode zusammen. Die empfangenen Lidarsignale wurden in der Atmosphäre an Molekülen und Aerosolpartikeln gestreut. Um eine exakte Bestimmung der Ozondichte mit dem Lidar vornehmen zu können, muß der Einfluß der Aerosole auf das rückgestreute Licht berücksichtigt werden.

Hohe Ozondichten in der planetaren Grenzschicht treten häufig in Zusammenhang mit hohen Aerosolbelastungen auf. Beide Phänomene haben ähnliche Ursachen: Ozon wird bei hoher Sonneneinstrahlung aus Stickoxiden und flüchtigen Kohlenwasserstoffen gebildet. Diese Gase stammen in erster Linie aus Verbrennungsprozessen von Kraftfahrzeugen und Industrieanlagen, ebenso wie eine Vielzahl von Aerosolpartikeln. Zudem werden Aerosolpartikel aus den emittierten Schwefel- und Stickstoffverbindungen neu gebildet. Ozon und Aerosol haben also gleiche Quellen in Bodennähe.

In diesem Kapitel werden einige wichtige Grundlagen zu Ozon und Aerosol dargestellt, die zum weiteren Verständnis dieser Arbeit nötig sind und die Basis für den Vergleich der gezeigten Messungen mit theoretischen Vorhersagen sind.

2.1 Ozon

Das atmosphärische Ozon besitzt eine sowohl vertikal als auch horizontal stark inhomogene globale Verteilung. Sie hat in der Vertikalen ein ausgeprägtes Maximum in der Stratosphäre in ca. 25 km Höhe. Das stratosphärische Ozon entsteht durch Photodissoziation von molekularem Sauerstoff durch den ultravioletten Anteil des Sonnenlichts. Die gebildeten Sauerstoffradikale verbinden sich dann mit einem Sauerstoffmolekül zu Ozon. Durch Absorption der ultravioletten Strahlung mit Wellenlängen kleiner als 300 nm schützt diese Ozonschicht Pflanzen, Tiere und Menschen vor Schädigungen durch das sehr energiereiche Sonnenlicht in diesem Spektralbereich.

In der Troposphäre ist die Ozonkonzentration deutlich niedriger als in der Stratosphäre. Das Ozon wird hier anders gebildet als in großen Höhen. Die wesentlichen Quellen für troposphärisches Ozon sind die photochemische Produktion aus anthropogen emittierten Vorläufergasen, der Eintrag von stratosphärischem Ozon in die Troposphäre durch Tropopausenbrüche und die Bildung von Ozon bei Gewittern.

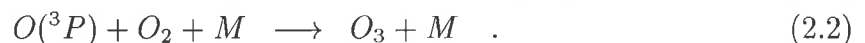
Die Verteilung des Ozons in der Atmosphäre hat sich in den letzten Jahrzehnten massiv verschoben. Einer starken Abnahme in der Stratosphäre steht eine Zunahme in der Tro-

posphäre gegenüber. Beide Effekte sind anthropogenen Ursprungs. Die Ozonabnahme in der winterlichen Stratosphäre ist durch die massive Freisetzung von Fluorchlorkohlenwasserstoffen (FCKW) verursacht, auf die genauen chemischen Vorgänge in der Stratosphäre soll hier aber nicht näher eingegangen werden.

Die Ozonbildung in den unteren Luftschichten hängt mit der Emission von Stickoxiden (NO und NO₂, gemeinsam NO_x), und flüchtigen organischen Verbindungen (volatile organic compounds, VOC) zusammen. Quellen für NO_x sind hauptsächlich der stark zugenommene Auto- und Flugverkehr, aber auch Verbrennungsprozesse in Kraftwerken und privaten Haushalten sowie Biomasseverbrennung (z.B. Waldbrände). Dabei wird hauptsächlich NO emittiert, NO₂ wird dann photochemisch durch unterschiedliche Mechanismen gebildet. VOC stammen hauptsächlich aus Lösungsmitteln und dem Straßenverkehr (United Kingdom Photochemical Oxidants Review Group, 1997) und zu einem geringen Teil auch aus natürlichen Quellen wie Wäldern. Da die anthropogen verursachte Ozonproduktion inzwischen die Hauptquelle troposphärischen Ozons ist, kann es im Sommer in industrialisierten Gebieten auch großräumig zu Ozondichten von 180 µg/m³ und mehr kommen. In der unbelasteten Atmosphäre findet man dagegen meist nur Ozondichten von 50 - 80 µg/m³.

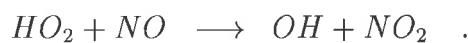
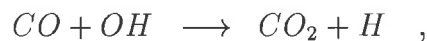
2.1.1 Ozongasphasenchemie

Die Bildung von troposphärischem Ozon beruht auf der Photolyse von NO₂:



Das vom Stickstoffdioxid abgespaltene Sauerstoffatom befindet sich dabei in seinem Grundzustand O(³P). Bei der Bildung von Ozon mit Sauerstoff muß ein weiteres Molekül M als Stoßpartner beteiligt sein.

Dies ist die einzig bekannte Quelle des troposphärischen Ozons (Finlayson-Pitts und Pitts Jr., 1997). An der Bildung von NO₂ wiederum sind flüchtige organische Verbindungen (VOC) oder auch Kohlenmonoxid maßgeblich beteiligt. Ebenfalls beteiligt ist das OH-Radikal, das aufgrund seiner hohen Reaktivität auch das „Waschmittel“ der Atmosphäre genannt wird. Die Bildung von NO₂ über Kohlenmonoxid unter Einbeziehung eines OH-Radikals läuft folgendermaßen ab (Finlayson-Pitts und Pitts Jr., 1997; United Kingdom Photochemical Oxidants Review Group, 1997):

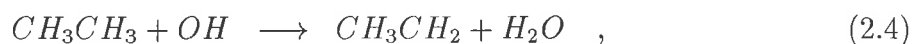


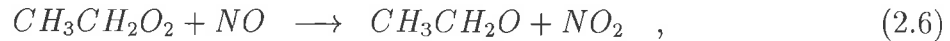
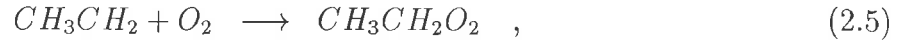
Zusammen mit den obigen Gleichungen zur Ozonbildung aus NO₂ wird netto



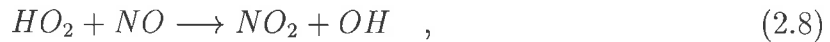
OH und die NO_x sind nur als Katalysatoren an der Reaktion beteiligt.

Ein möglicher Weg zur Bildung von NO₂ unter Beteiligung eines Kohlenwasserstoffs (hier Äthan) und von OH ist der folgende (Finlayson-Pitts und Pitts Jr., 1997):

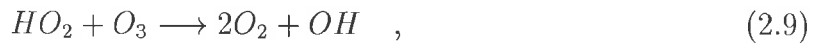




NO ist unter Beteiligung von Äthan und dem OH-Radikal zu NO₂ oxidiert worden. Das NO₂ kann jetzt tagsüber, wie in den Gleichungen (2.1) und (2.2) beschrieben, Ozon bilden. Das ebenfalls entstandene HO₂ reagiert auf unterschiedliche Art weiter. So kann z. B. unter Rückbildung des OH-Radikals ein weiteres NO₂ gebildet werden



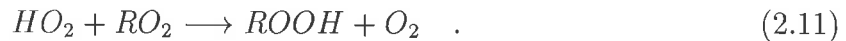
ein Ozonmolekül kann vernichtet werden



das HO₂ kann mit einem weiteren HO₂ reagieren

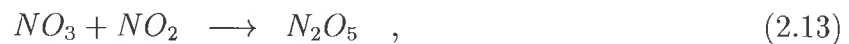


oder es reagiert mit einem beliebigen Molekül mit O₂-Rest



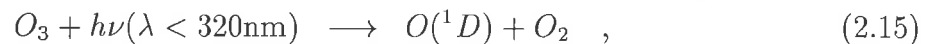
Welche der Reaktionen (2.8) bis (2.11) bevorzugt wird, hängt von der Konzentration der beteiligten Gase ab. In verschmutzten Gegenden, mit genügend hoher NO Konzentration (> 10 ppt) wird ein weiteres NO₂ gebildet und vermehrt Ozon produziert. In eher sauberen Bereichen sind die Reaktionen (2.9) bis (2.11) dagegen vergleichbar mit der NO₂-Bildung. Ob und wieviel Ozon tagsüber durch das Zusammenwirken von VOC und NO_x gebildet wird, hängt also kritisch von der NO-Konzentration ab.

Nachts und bei hoher Konzentration von NO₂ und O₃ laufen die Stickoxid-Reaktionen anders ab:

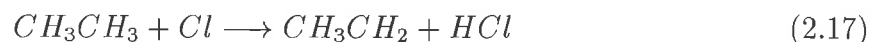


Ozon wird in verschmutzten Gegenden nachts wieder fast vollständig abgebaut. Außerdem kann Ozon bei sehr hohen Werten von NO₂ und O₃ auch tagsüber wieder abgebaut werden, so daß die Netto-Produktion von Ozon dann nicht weiter ansteigt.

Ozon spielt bei der Bildung von OH-Radikalen in der Atmosphäre eine entscheidende Rolle. Ozon wird von kurzweiliger UV-Strahlung in ein elektronisch angeregtes Sauerstoffatom und ein Sauerstoffmolekül zerlegt. Die Reaktion des O-Atoms mit Wasserdampf bildet dann das extrem reaktive OH:



Auch Halogenatome können in verschmutzten küstennahen Bereichen eine wesentliche Rolle für die Ozonproduktion spielen (Finlayson-Pitts und Pitts Jr., 1997). Seesalzaerosol ist eine Quelle für Chloratome, welche analog zu OH in Gleichung (2.4) ein Wasserstoffatom von organischen Komponenten abspalten können und die oben beschriebene Reaktionsfolge zur Bildung von NO₂ und damit Ozon initiieren. Zum Beispiel mit Äthan:



und dann weiter wie (2.5) bis (2.7).

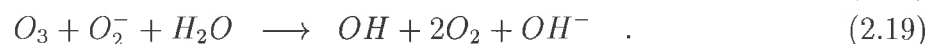
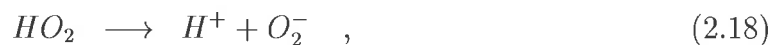
Obwohl NO und NO₂ eine wesentliche Rolle bei der Ozonbildung spielen, sind sie auch ein limitierender Faktor. Bei hohen Konzentrationen von NO und O₃ bildet sich schnell NO₂, bei hohen Konzentrationen von NO₂ bildet dieses mit OH HNO₃ und die Oxidation von VOC wird damit vermindert. Bei hohen NO_x/VOC-Verhältnissen kann daher eine Verminderung von NO_x durchaus zu einem Anstieg in der Ozonkonzentration führen. Die Ozonproduktion ist dann VOC-begrenzt.

Bei hohen VOC/NO_x-Verhältnissen ist sie dagegen NO_x-begrenzt, d.h. es kann nur soviel Ozon gebildet werden, wie NO zu NO₂ umgewandelt wird und anschließend zu O(³P) photolysiert wird.

Um photochemische Ozonbildung zu vermeiden, müssen sowohl NO_x als auch VOC limitiert werden.

2.1.2 Ozonchemie in Wolken

Der Einfluß von Wolken auf die Ozonchemie wurde bisher wenig beachtet. Dabei können sie einen maßgeblichen Einfluß haben. Nach Lelieveld und Crutzen (Lelieveld und Crutzen, 1990) ist die Ozonproduktion in Wolken stark vermindert oder es wird sogar Ozon abgebaut. Ursache hierfür ist, daß wichtige Reaktionspartner für die Bildung von Ozon in der Gasphase in Wolkentröpfchen gelöst werden und dadurch die Reaktionen anders ablaufen. Dies betrifft hauptsächlich HO₂. In der flüssigen Phase werden aus HO₂ und O₃ Sauerstoff und Hydroxylradikale gebildet:



Dies ist eine wichtige Quelle von OH. Der Ozonabbau durch diesen Mechanismus ist aber nicht sehr hoch, da Ozon nicht gut löslich ist. Bedeutender für die Ozondichte ist, daß HO₂ in Lösung geht und damit der NO₂-Bildungsmechanismus über HO₂ unterdrückt ist (Gleichung 2.8).

Die Modelluntersuchungen von Lelieveld und Crutzen berücksichtigen allerdings keine Strahlungseffekte, die in der Nähe von Wolken und auch in ihnen durchaus Relevanz haben dürften. Unterhalb der Wolke und in der Wolke ist die Strahlungsintensität deutlich vermindert, und damit ist auch die Ozonproduktion reduziert. Oberhalb einer Wolke und im oberen Bereich der Wolke selbst kann man dagegen durch Reflexionen an den Wolkentröpfchen erhöhte Strahlung erwarten. Dort sind aber deutlich geringere NO_x-Konzentrationen als unter ihr zu erwarten, da die Wolkenoberkante sich meist schon in der freien Troposphäre befindet. Daher sollte der Netto-Strahlungseffekt ebenfalls eine Ozonproduktionsverminderung durch Wolken ergeben.

Matthijsen et al. (1997) haben den Einfluß von Wolken auf die Ozonbildung mit dem LOTOS-Modell untersucht. Dieses Modell umfaßt in horizontaler Ausdehnung ganz Europa mit einer Auflösung von 0.5° × 1.0°, in der Vertikalen werden die unteren 3 km der Troposphäre in die Rechnungen integriert. Strahlungseffekte sowie eine veränderte Flüssigphasenchemie können hier berücksichtigt werden. Die Effekte wurden getrennt untersucht.

Unter Berücksichtigung reiner Strahlungseffekte berechneten Matthijsen et al. eine Gesamtreaktion des Ozons nach einer Laufzeit von 12 Tagen von 4% gegenüber dem wolkenfreien Modellauf. Lokal konnten bis zu 22% weniger Ozon in der planetaren Grenzschicht

gefunden werden, die Ozonproduktion war im Mittel um 14% reduziert. Unter zusätzlicher Berücksichtigung der veränderten Flüssigphasenchemie ergab sich eine Gesamtreduktion des Ozons in der planetaren Grenzschicht um 5%, die Produktion verminderte sich um 20%. Der zusätzliche Effekt durch die veränderte Chemie ist also deutlich kleiner als der reine Strahlungseffekt. Insgesamt war der Effekt durch die Größe der Wolken begrenzt. Es trat nur in 20% der Gitterzellen Bewölkung auf, die insgesamt 5.5% des Volumens umfaßte.

Zwar ergeben diese Rechnungen eine insgesamt kleine Reduktion der Ozondichte durch Wolken, allerdings liegt die Ozonreduktion in der gleichen Größenordnung wie der Volumenanteil der Wolken. Dies beinhaltet die Möglichkeit, daß der Effekt in der Nähe einer Wolke unter Umständen deutlich ausgeprägter sein kann. In-situ-Messungen in Wolken (Acker et al., 1995) haben gezeigt, daß das Ozon in den Wolken selbst erheblich reduziert ist. Die Messung dieses Effekts in der Nähe von Wolken mit einem Ozon-DIAL erweist sich aufgrund der hohen Dynamik und der damit verbundenen hohen Änderungen der Aerosoleigenschaften im Wolkenumfeld als schwierig. Hinzu kommen hohe Anforderungen an die Genauigkeit einer Messung, da der zu beobachtende Effekt unter Umständen nur klein ist. In dieser Arbeit (Kapitel 7.3) werden Ozonmessungen mit einem DIAL in der Umgebung von Cumuluswolken vorgestellt.

2.2 Aerosolpartikel

Unter einem Aerosol versteht man die Mischung von festen oder flüssigen Partikeln mit einem Gas, im Fall der Atmosphäre also mit Luft. Aerosolpartikel in der Atmosphäre tragen wesentlich zu deren optischen Eigenschaften bei. Sie streuen und absorbieren Sonnenstrahlung und terrestrische Strahlung und verursachen damit die Trübung der Atmosphäre. Sie haben wesentlichen Einfluß auf die Strahlungsbilanz, der Nettoeffekt hängt dabei von der Zusammensetzung des Aerosols, der vertikalen Verteilung und der Bodenbeschaffenheit ab. Ihre Quellen sind ebenso vielfältig wie ihre chemische Zusammensetzung, ihre Morphologie und ihre optischen Eigenschaften. Aerosolpartikel unterliegen stetigen Veränderungen in der Atmosphäre. Ihre Größenverteilung und ihre Zusammensetzung ändert sich mit der relativen Feuchte und mit ihrer Verweildauer in der Atmosphäre durch Koagulation, Sedimentation, chemische Reaktionen und Auswaschung durch Niederschlagsprozesse. An dieser Stelle kann daher nur ein grober Überblick des Wissens über atmosphärische Aerosolpartikel gegeben werden.

2.2.1 Klassifizierung

Um eine sinnvolle Einteilung der äußerst vielfältigen Aerosolpartikel in der Atmosphäre vornehmen zu können, betrachtet man zunächst die Quellen der Aerosolpartikel. Die wichtigsten natürlichen Quellen sind die Ozeane (Seesalz), Wüsten (mineralischer Wüstenstaub) bzw. die Erdkruste, sowie die Biosphäre durch Emission von Gasen, die durch Gas-Partikel-Umwandlung zu Aerosolpartikeln werden. Weitere untergeordnete oder nur episodisch auftretende Quellen sind extraterrestrische Partikel, Vulkanausbrüche und direkte biogene Partikelemissionen wie z.B. Pollen. Bei den anthropogenen Quellen überwiegt die Gas-Partikel-Umwandlung von kohlenstoffhaltigen und organischen Substanzen sowie von Sulfaten und Nitraten. Diese Gase stammen hauptsächlich aus Ver-

brennungsprozessen, sowohl durch die Industrie zur Strom-, Kraft- und Wärmeerzeugung als auch durch Verkehr und private Haushalte. Weitere Quellen sind Waldbrände und die direkte Partikelemission bei Verbrennungsprozessen.

Global ist der Anteil anthropogener Aerosolpartikel gering, er liegt etwa bei 5% bis 7% der totalen Emissionen (d'Almeida et al., 1991). Dadurch, daß die Quellen sich aber hauptsächlich in stark industrialisierten Gebieten befinden, können die lokalen Effekte sehr groß sein. Außerdem können einzelne Komponenten, auch wenn sie nur in geringer Menge emittiert werden, große optische Effekte haben. So ist der hauptsächlich anthropogen emittierte Ruß ein außergewöhnlich guter Absorber solarer Strahlung und beeinflusst den Strahlungshaushalt signifikant.

Obwohl die Quellen so unterschiedlich sind, nimmt man zumeist eine Einteilung der Aerosolpartikel in Komponenten vor, die dann in den Modellrechnungen zu den Strahlungseigenschaften der Partikel Eingang finden. Bei Shettle und Fenn (1976, 1979) waren dies 7 Komponenten, d'Almeida et al. (1991) haben drei weitere Komponenten hinzugefügt und weitere Unterteilungen der Komponenten nach Größenklassen vorgenommen. Eine neuere Veröffentlichung, das „Global Aerosol Data Set (GADS)“ (Köpke et al., 1997) kommt dagegen mit insgesamt 10 Komponenten aus, wobei unterschiedliche Größenklassen bereits enthalten sind. D'Almeidas Klimatologie wurde von GADS als Basis benutzt, so daß man GADS auch als Weiterentwicklung betrachten kann. Es handelt sich hier um die Komponenten „wasserunlöslich“, „wasserlöslich“, „Ruß“, „Seesalz“ in zwei Größenklassen (accumulation und coarse mode), „mineralisch“ in drei Größenklassen (nucleus, accumulation und coarse mode) sowie „mineralisch-transportiert“ und „Schwefelsäuretröpfchen“. Aus diesen Komponenten setzen sich dann Aerosoltypen als externe Mischungen zusammen. Das heißt, ein Aerosol wird als Mischung von Aerosolkomponenten betrachtet, die ohne Wechselwirkung nebeneinander existieren. Dies ist nur bedingt richtig, ermöglicht aber Modellrechnungen. Die optischen Eigenschaften von Partikeln, die aus unterschiedlichen Aerosolpartikeln zusammengesetzt sind (interne Mischung, sogenannte Mischpartikeln), lassen sich nur schwer vollständig bestimmen. Die Rechnungen werden dann extrem komplex und aufwendig, zudem existiert eine unübersichtliche Vielfalt möglicher Mischpartikel. Von den 10 Aerosoltypen, die in GADS definiert werden, sind in Mitteleuropa nur sechs relevant. Es handelt sich um die Aerosoltypen „kontinental/rein“, „kontinental/normal“, „kontinental/verschmutzt“, „urban“, „maritim/rein“ und „maritim/verschmutzt“. Diese setzen sich wiederum aus den Komponenten „wasserunlöslich“, „wasserlöslich“, „Ruß“ und „Seesalz“ (beide Größenklassen) in unterschiedlichen Anteilen zusammen. In Norddeutschland sind die Mischungstypen „urban“ und „maritim/verschmutzt“ die dominanten.

2.2.2 Größenverteilung

Die Größe von Aerosolpartikeln umfaßt einen weiten Bereich von wenigen nm bis zu einigen 10 μm . In diesem Bereich befinden sich verschiedene Maxima der Größenverteilung, daher unterscheidet man nach Junge (1963) oder Withby (1978) noch einmal drei Größenklassen. Die Größe wird meist als Radius oder Durchmesser der Teilchen angegeben, allerdings sind die Teilchen in der Realität nur dann hinreichend kugelförmig, wenn sie genügend Wasser enthalten. Die Größenangaben gelten aber für trockene Teilchen.

Folgt man der Namensgebung nach Withby so befindet sich zwischen 1 nm und 100 nm

der „nucleation mode“ (nach Junge „Aitken-Kerne“), zwischen 100 nm und 1 μm der „accumulation mode“ (nach Junge „large particles“) und zwischen 1 μm und 100 μm der „coarse mode“ (nach Junge „giant particles“). Die weitaus meisten Teilchen befinden sich in der kleinsten Größenklasse, dem „nucleation mode“. Wie der Name sagt, sind diese Partikel besonders gute Kondensationskerne bei der Bildung von Wolkentröpfchen. Hier findet man typischerweise zwischen 10 und 10^5 Teilchen pro cm^3 (Jaenicke, 1987). Die optisch aktivsten Partikel findet man im „accumulation mode“, da hier der Radius der Teilchen in etwa der Wellenlänge des gestreuten solaren Lichts entspricht. Typische Teilchenzahldichten liegen hier zwischen 0.1 und 10^3 Teilchen pro cm^3 . Im „coarse mode“ liegt die Teilchenzahldichte meist deutlich unter 1 pro cm^3 . Diese Teilchen werden durch Sedimentation schnell aus der Atmosphäre entfernt.

Die Größenangabe erfaßt nur den mittleren Radius der Teilchen, Teilchen mit anderen Radien liegen ebenso vor. Die Größenverteilung der Aerosolpartikel wird am besten durch eine sog. log-normal-Verteilung beschrieben. Diese Verteilung ist durch die gesamte Anzahldichte N_p^{ges} , den mittleren Radius r_M und dessen Standardabweichung σ_r definiert

$$\frac{dN_p(r)}{d(\ln r)} = \frac{N_p^{ges}}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma_r} \exp\left(-\frac{1}{2} \left(\frac{\ln \frac{r}{r_M}}{\ln \sigma_r}\right)^2\right) \quad (2.20)$$

Definiert man für jede Komponente einer Aerosolmischung eine solche Größenverteilung, so ergibt sich die Gesamtverteilung als Summe über die Einzelverteilungen. Gemessene Verteilungen haben daher oft mehr als ein lokales Maximum, es handelt sich dann um bi- oder trimodale Verteilungen.

2.2.3 Optische Eigenschaften

Die optischen Eigenschaften der Aerosolpartikel werden durch ihre Größe und durch ihren Brechungsindex bestimmt. Die Größenverteilung wird durch Angabe des mittleren Radius, dessen Standardabweichung und die gesamte Teilchenzahldichte bestimmt. Die Verteilung ändert sich aber mit der relativen Feuchte durch zunehmende Wasseraufnahme hygroskopischer Teilchen.

Der Brechungsindex wird als komplexe Zahl angegeben. Der Imaginärteil enthält dabei Informationen über die Absorptionsfähigkeit des Aerosolpartikels. Der Brechungsindex ist nur für einige reine Komponenten gut bekannt. Mischungen werden bei den Rechnungen daher immer als externe Mischungen von Teilchen mit bekanntem Brechungsindex behandelt. Bei der Größe ist der Radius die bestimmende Eingangsgröße für Streurechnungen. Diese können bisher nur unter der Annahme von sphärischen Teilchen durchgeführt werden. Ansätze für Rechnungen mit nichtsphärischen Teilchen existieren zwar, sind aber sehr schwierig und rechenaufwendig.

Der Brechungsindex weist spektrale Abhängigkeiten auf. Insbesondere im UV, bei Wellenlängen kleiner als 350 nm, existieren zum Teil starke Änderungen der Werte mit der Wellenlänge. Hier liegen aber nur wenige Daten einzelner Aerosolkomponenten vor. So ist bei d'Almeida et al. (1991) die kleinste betrachtete Wellenlänge 300 nm. Die Daten von Shettle und Fenn (1979) beginnen bei 200 nm. Abbildung 2.1 zeigt die spektrale Abhängigkeit des Brechungsindex der Komponenten „Ruß“ und „wasserlöslich“, wie sie unterhalb von 300 nm von Shettle und Fenn, ab 300 nm von d'Almeida et al. angegeben werden. Zusätzlich sind die Werte für Wasser nach Hale und Query (1973) dargestellt. Man erkennt die deutlich unterschiedlichen Werte für „Ruß“ und „wasserlöslich“ und die

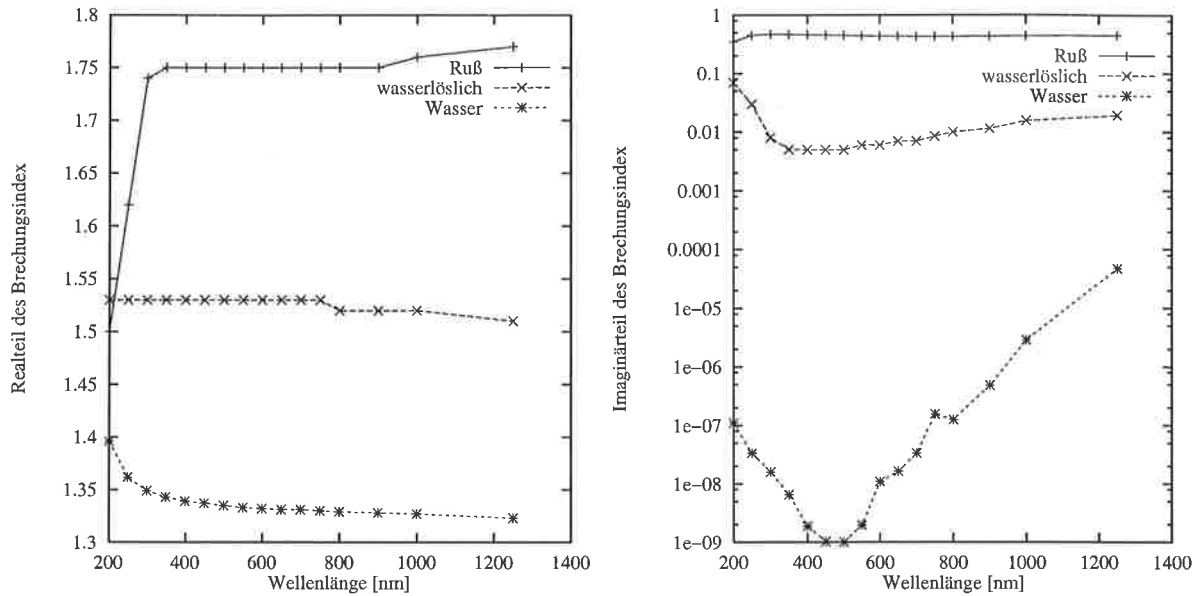


Abbildung 2.1: Spektrale Abhängigkeit des Brechungsindex für die Komponenten „wasserlöslich“, „Ruß“ und für Wasser. Links der Realteil, rechts der Imaginärteil.

starke Änderung der Werte für „Ruß“ im UV. Das optische Verhalten einer Mischung hängt demnach stark von seiner Zusammensetzung aus diesen Komponenten ab. Diese Werte gelten aber für trockenes Aerosol, mit zunehmender relativer Feuchte ändert sich sowohl die Größenverteilung als auch der Brechungsindex. Letzterer nähert sich für die Komponente „wasserlöslich“ mit zunehmender Feuchte stark dem von Wasser an. Abbildung 2.2 zeigt die Änderung des Radius der Teilchen und des Realteils des Brechungsindex für die Komponente „wasserlöslich“ mit zunehmender Feuchte. Drastische Änderungen zeigen sich ab ca. 70% relativer Feuchte, darunter ändern sich die Eigenschaften der Aerosolkomponenten nur geringfügig.

2.3 Wechselwirkungen zwischen Ozon und Aerosol

Hohe Ozonwerte treten häufig in Verbindung mit hoher Belastung der Atmosphäre durch Partikel auf. Ein Grund hierfür ist, daß anthropogene Aerosolpartikel in ihrer Mehrzahl sekundäre Aerosole sind, das heißt sie werden erst in der Atmosphäre durch Gas-Partikel-Umwandlung gebildet (Finlayson-Pitts und Pitts Jr., 1997). Die Vorläufergase sind dabei ähnliche wie die für die Ozonbildung verantwortlichen: Stickoxide und flüchtige organische Verbindungen (VOC), zusätzlich aber auch Schwefelverbindungen, die bei der Ozonbildung keine Rolle spielen. Zwar sind auch heterogene Reaktionen an Oberflächen von Aerosolpartikeln in der Ozonchemie von Bedeutung (Andreae und Crutzen, 1997), jedoch sind diese Effekte insgesamt klein oder nicht sehr gut erforscht.

Die beobachtete starke Korrelation zwischen hohen Ozonwerten und hoher Aerosolpartikelstreuung ist daher zunächst so zu deuten, daß beide Effekte denselben Ursprung haben, nämlich anthropogene oder natürliche Emission von Vorläufergasen für die Produktion von Ozon und Aerosolpartikeln. Sie bedeutet nicht notwendig eine direkte Wechselwirkung von Ozon mit Aerosolpartikeln. Allerdings könnte man Aerosolpartikel in Zusammenhang mit erhöhten Ozonwerten in der unteren freien Troposphäre als Indikator für Ozon,

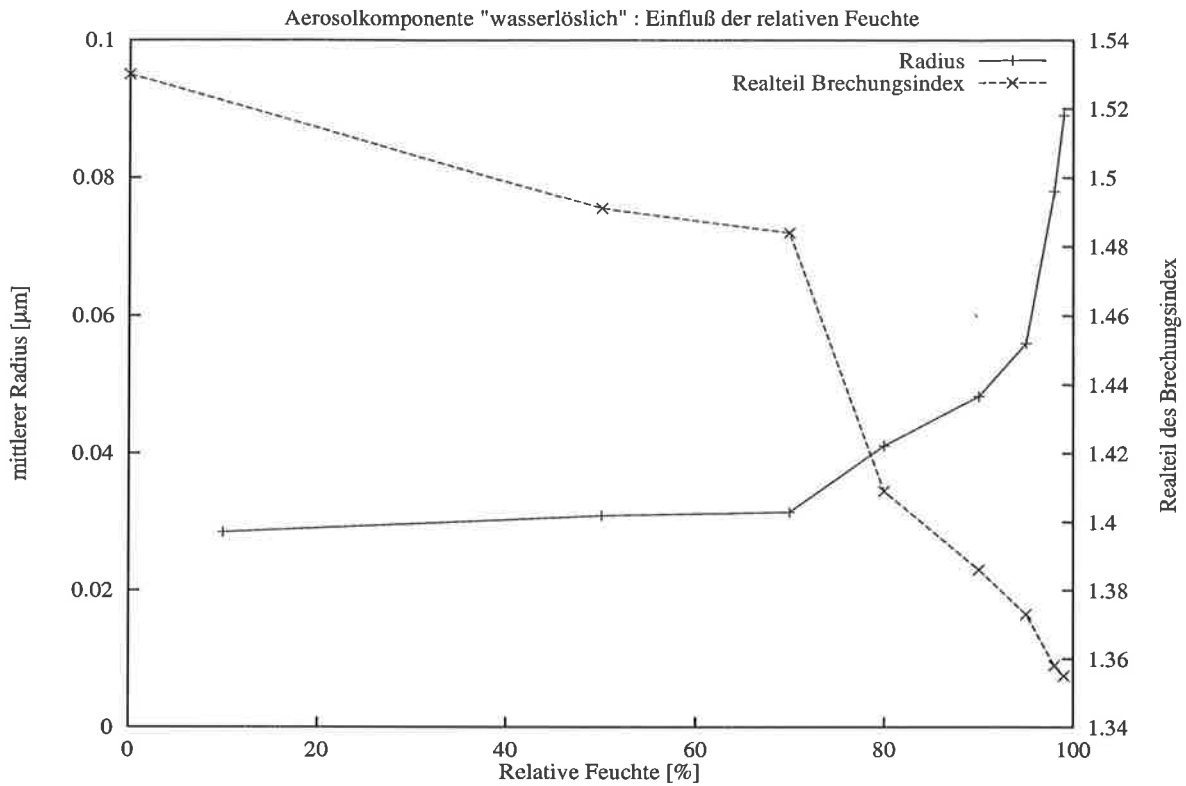


Abbildung 2.2: Einfluß der relativen Feuchte auf das Teilchenwachstum und den Realteil des Brechungsindex für die Aerosolkomponenten „wasserlöslich“.

das seinen Ursprung in der planetaren Grenzschicht hat, ansehen. Unter dieser Annahme könnten Studien über Austauschprozesse von Ozon und Aerosol zwischen planetarer Grenzschicht und unterer freier Troposphäre durchgeführt werden. Auch der Ferntransport von Ozon ist häufig mit gleichzeitigem Transport von Aerosolpartikeln verknüpft.

Kapitel 3

Absorption und Streuung

Absorption und Streuung elektromagnetischer Strahlung im Wellenlängenbereich von $0.2 \mu\text{m}$ bis $10 \mu\text{m}$ sind die bestimmenden physikalischen Prozesse bei der Anwendung der Lidar-Technik in der Meteorologie. Sie sollen hier nach einer kurzen Erläuterung des Lidar-Prinzips etwas ausführlicher dargestellt werden. Insbesondere der Partikelstreuung wird hier Aufmerksamkeit geschenkt, da sie schwieriger als die Molekülstreuung zu behandeln ist und eine wichtige Meßgröße des MPI-UV-Lidars ist. Theoretische Abhängigkeiten der Aerosolpartikelstreuung von der Wellenlänge oder der relativen Feuchte sowie Werte für das Lidar-Verhältnis für unterschiedliche Aerosole sind von hohem Interesse für die Interpretation von Aerosol-Lidar-Messungen.

3.1 Lidar-Prinzip

Berührungslose Fernmeßverfahren, die atmosphärische Parameter durch Senden und Empfangen von elektromagnetischer Strahlung erkunden, haben inzwischen einen festen Platz in der meteorologischen Forschung. Man unterscheidet aktive Systeme, die sowohl senden als auch empfangen, und passive Systeme, die solare oder terrestrische Strahlung empfangen und analysieren.

Light detection and ranging (Lidar) ist ein aktives Fernerkundungsverfahren, das elektromagnetische Strahlung mit Wellenlängen zwischen ca. 250 nm und $10 \mu\text{m}$ aussendet. Das ausgesendete Licht wird an Luftmolekülen und Aerosolpartikeln gestreut, die Rückstreuung unter 180° wird von einem Teleskop empfangen und kann analysiert werden. Das Licht unterliegt auf seinem Weg durch die Atmosphäre einer Reihe von Wechselwirkungen, die aufgeteilt werden können in Absorption und Streuung.

Streuung findet in der Atmosphäre an Molekülen und an Partikeln statt. Bei der elastischen Molekülstreuung handelt es sich um Rayleigh-Streuung, d.h. der Streuer ist deutlich kleiner als die Wellenlänge des gestreuten Lichts. Auch kleine Partikel können als Rayleigh-Streuer aufgefaßt werden. Inelastische Streuung an Molekülen, insbesondere Raman-Streuung mit erheblichen Wellenlängenverschiebungen des gestreuten Lichts, spielt ebenfalls eine Rolle. Die Streuung an Partikeln wird zumeist mit der Mieschen (Mie, 1908) Streutheorie beschrieben, die aber nur für sphärische Partikel gilt. Mie-Streuung ist also nur ein Spezialfall der Streuung an Aerosolpartikeln.

Lidarsysteme empfangen und analysieren die atmosphärische Rückstreuung an Molekülen oder Partikeln. Bei Molekülen gilt ein fester Zusammenhang zwischen Rückstreuung und

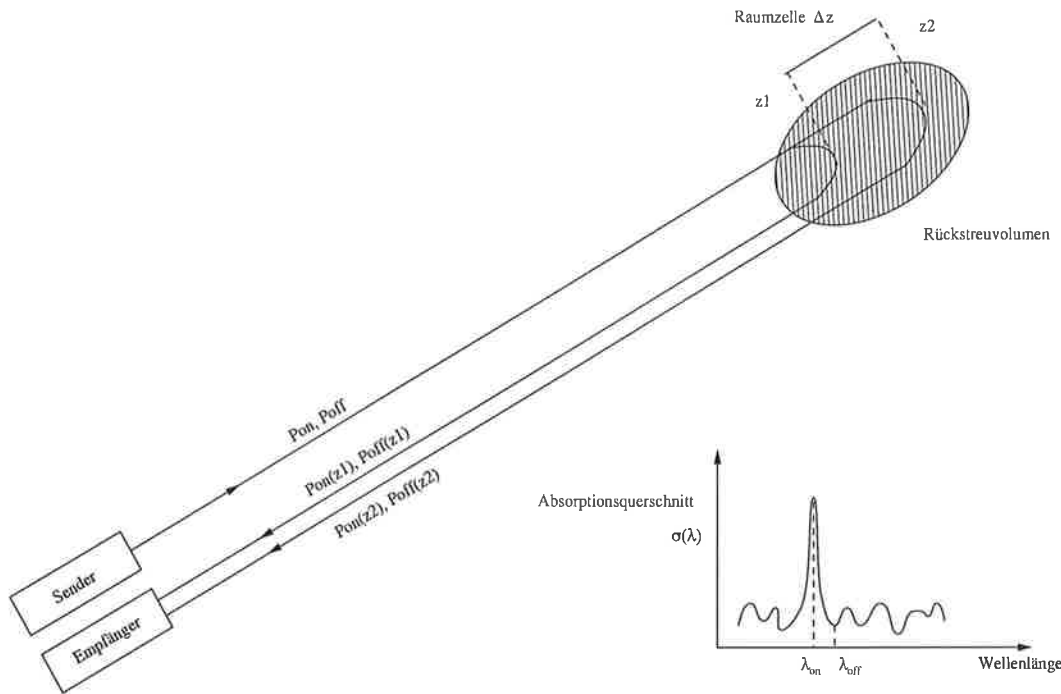


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung des DIAL-Prinzips.

Extinktion:

$$\beta_{mol} = \frac{3}{8\pi} \alpha_{mol} \quad (3.1)$$

Bei Partikeln kann die Proportionalitätskonstante je nach Aerosoltyp und relativer Feuchte stark schwanken, sie liegt etwa zwischen 0.1 und 0.01.

Absorption erfolgt in der Atmosphäre zum überwiegenden Teil durch Moleküle mit breiten Absorptionsbanden (wie dem Ozon) oder schmalen Absorptionslinien (wie Schwefeldioxid, Wasserdampf oder anderen Molekülen). Aerosolpartikel absorbieren in der Regel wesentlich schwächer als Moleküle.

Die gesamte Schwächung des Lichts durch Absorption und Streuung bezeichnet man als Extinktion. Die optische Dicke eines Luftpakets erhält man als Integral der Extinktion über den durchlaufenen Weg:

$$\tau = \int_0^z \alpha(\lambda, \zeta) d\zeta \quad (3.2)$$

Die Transmission der Atmosphäre ergibt sich nach dem Beerschen Gesetz zu

$$T_A = \exp(-\tau) \quad (3.3)$$

Für die Intensität des von einem Laser in die Atmosphäre emittierten und dann instantan, inkohärent einfach rückgestreuten Lichts gilt die Lidar-Gleichung (Collis und Russell, 1976; Bösenberg, 1998):

$$P(\lambda, z) = P_0(\lambda) C \frac{O(z)}{z^2} \beta(\lambda, z) \exp\left(-2 \int_0^z \alpha(\lambda, \zeta) d\zeta\right) \quad (3.4)$$

$$= P_0(\lambda) C \frac{O(z)}{z^2} \beta(\lambda, z) T^2 \quad (3.5)$$

wobei $C = \eta A \frac{c\tau_L}{2}$.

Dabei ist $P(\lambda, z)$ die rückgestreute Leistung bei der Wellenlänge λ aus der Entfernung z , $P_0(\lambda)$ ist die emittierte Laserleistung bei der Wellenlänge λ , C ist die abstandsunabhängige Systemkonstante (die aber unterschiedlich für einzelne Wellenlängen ist) und $O(z)$ die Überlappfunktion. $\beta(\lambda, z)$ bezeichnet die Rückstreuung und $\alpha(\lambda, \zeta)$ die Extinktion. Die Systemkonstante C hängt von der Effizienz η des Detektorsystems, der Empfängerfläche A und der Pulslänge des Lasers τ_L ab. c bezeichnet die Lichtgeschwindigkeit.

Die hier vereinfacht gezeigte Lidar-Gleichung berücksichtigt auch keine spektralen Einzelheiten des ausgesandten und des zurück gestreuten Laserlichts noch findet das Problem der Mehrfachstreuung Beachtung. Für die Betrachtung eines Ozon-DIALs ist die hier angegebene Gleichung ausreichend. Für ein Raman-Lidar modifizieren sich Rückstreuung und Transmission aufgrund der inelastischen Rückstreuung, die entsprechenden Gleichungen werden im Abschnitt 4.2 ausführlich diskutiert.

3.2 Absorption

Die Atmosphäre der Erde besteht zwar zum allergrößten Teil aus Sauerstoff und Stickstoff, die wesentlichen Prozesse wie Niederschlag und die Temperatur der Erdoberfläche werden aber von Gasen mit geringer Konzentration, sog. Spurengasen gesteuert. Sie bestimmen die Strahlungsbilanz der Erde durch Absorption im solaren und infraroten Spektralbereich.

Unter Absorption versteht man einen Wechselwirkungsprozeß, bei dem ein Molekül

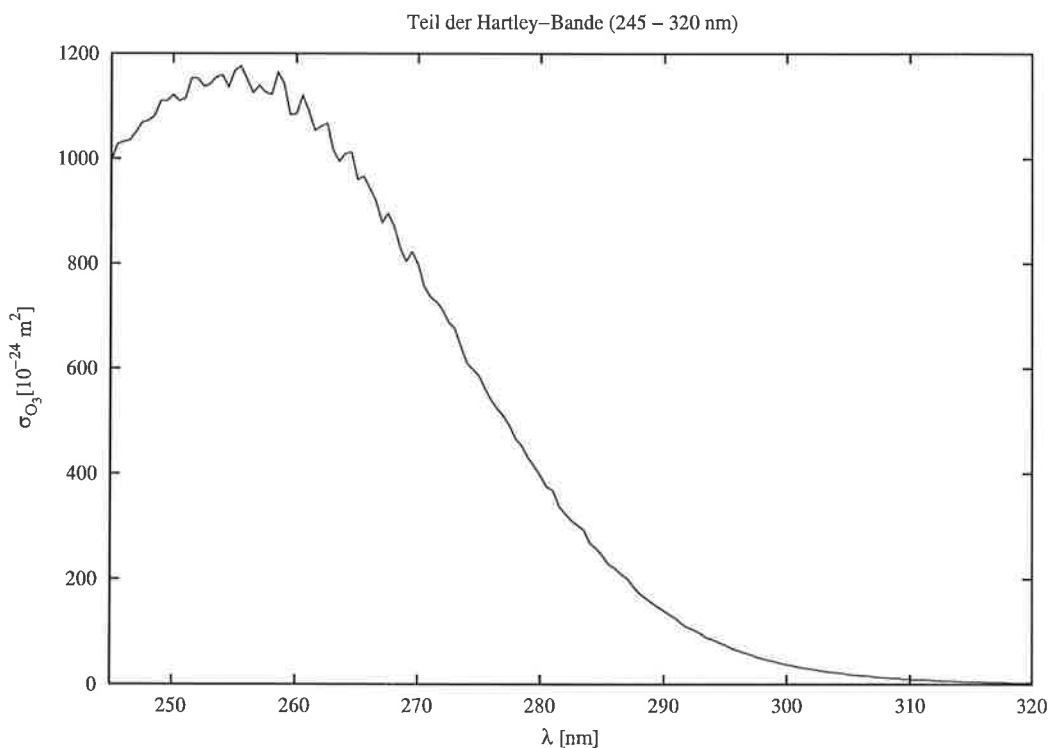


Abbildung 3.2: Spektrale Abhängigkeit des Ozon-Absorptionsquerschnitts im UV: Hartley-Bande zwischen 245 und 320 nm nach Molina und Molina (1986).

Energie in Form von elektromagnetischer Strahlung aufnimmt und diese Energie nicht unmittelbar wieder abgibt, sondern in eine andere Energieform umwandelt. Je nach Energie des eingestrahnten Lichts werden Elektronen in angeregte Zustände versetzt (Wellenlängenbereich des eingestrahnten Lichts $\lambda_{\text{in}} \approx 200 \text{ nm} - 400 \text{ nm}$), das Molekül zu Schwingungen und Rotationen ($\lambda_{\text{in}} \approx 1 \mu\text{m} - 20 \mu\text{m}$) oder zu reinen Rotationen ($\lambda_{\text{in}} \approx 20 \mu\text{m} - 2000 \mu\text{m}$) angeregt.

Da die Moleküle sich nur in durch die Quantenmechanik beschriebenen diskreten Energiezuständen befinden können, können sie auch nur bestimmte Lichtquanten, d.h. Photonen einer bestimmten Wellenlänge und damit bestimmten Energie aufnehmen. Daraus resultiert ein Linienspektrum für die Absorption. Für jedes Gas lassen sich bestimmte charakteristische Absorptionslinien bestimmen. Diese Linien haben eine bestimmte Breite, welche durch drei Faktoren beeinflusst wird: (a) die natürliche Linienbreite durch die Heisenbergsche Unschärferelation, (b) die Dopplerverbreiterung durch die Bewegung der Moleküle, (c) die Stoßverbreiterung durch Stöße der Moleküle untereinander. In der unteren Troposphäre spielt die Stoßverbreiterung die dominierende Rolle, in der oberen Troposphäre ist auch die Dopplerverbreiterung von Bedeutung. Diese Verbreiterungen übertreffen die natürliche Linienbreite bei weitem.

Dadurch, daß viele Linien sehr eng benachbart und verbreitert sind, kommt es zu Überlagerungen von Absorptionslinien gleicher und unterschiedlicher Gase im solaren Spektralbereich. Man spricht auch von Absorptionsbanden, wenn die sich überlagernden Linien in einem bestimmten Bereich praktisch ein Kontinuum bilden.

Ozon auf der einen Seite, Wasserdampf auf der anderen sind die wichtigsten absorbierenden Gase an den Enden des solaren Spektrums. Wasserdampf absorbiert dabei stark im Infraroten in mehreren Liniensystemen oder Banden zwischen ca. 700 nm und 2 μm , Ozon absorbiert dagegen im Ultravioletten (Abb. 3.2) zwischen ca. 200 nm und 300 nm. Die stratosphärische Ozonschicht verhindert so, daß kurzwellige ultraviolette Strahlung unterhalb von 300 nm die Erdoberfläche erreicht. Das Absorptionsspektrum des Ozons ist im UV sehr breit und nicht stark strukturiert. Man bezeichnet es als Hartley-Bande. Es handelt sich hier um elektronische Übergänge, die durch Rotations- und Vibrationsübergänge überlagert sind.

Stickstoff und Sauerstoff absorbieren im solaren Spektrum nicht, da sie symmetrische Moleküle sind und über keine Rotations-Schwingungsbanden verfügen. Mit einer Eigenschwingung oder -rotation des Moleküls ist bei symmetrischen Molekülen nämlich keine Änderung des Dipolmoments verbunden. Die Absorptionsbanden liegen für diese Moleküle unterhalb von 270 nm.

Auch Aerosolpartikel absorbieren elektromagnetische Strahlung. Die Absorption ist wellenlängenabhängig und hängt stark von der Zusammensetzung der Partikel ab. Das Spektrum ist aber im Gegensatz zu dem von Molekülen unstrukturiert. Insbesondere Ruß ist ein guter Absorber, so daß eine hohe Absorption durch Aerosolpartikel meist auf einen hohen Rußanteil hindeutet. Die physikalische Beschreibung der Absorption durch Aerosolpartikel erfolgt über den Imaginärteil des komplexen Brechungsindex

$$m = n - ik \quad . \quad (3.6)$$

Für Aerosolpartikel kann k Werte zwischen 10^{-9} (Wasser bei ca. 500 nm) und 0.5 (Ruß im sichtbaren Spektralbereich) annehmen, n liegt zwischen 1.3 (Wasser) und 1.8 (Ruß) (siehe auch Abb. 2.1).

3.3 Streuung

Streuung bezeichnet einen Wechselwirkungsprozeß, bei dem die elektromagnetische Strahlung unmittelbar wieder abgegeben wird, allerdings über alle Abstrahlwinkel verteilt. Bei elastischer Streuung verbleibt keine Energie beim Streuer, das eingefallene und das gestreute Licht haben die gleiche Wellenlänge, aber eine andere Richtung (wobei auch Licht in Vorwärtsrichtung gestreut wird, also keine Änderung stattfindet). Diese Streuung erfolgt in der Atmosphäre an Partikeln und Molekülen. Es findet auch inelastische Streuung an Molekülen statt. Dabei wird ein Teil der Photonenenergie an das Molekül abgegeben, das gestreute Licht ist somit wellenlängenverschoben. Der Betrag der Wellenlängenverschiebung hängt dabei vom Molekül ab, an dem die Streuung stattfand.

3.3.1 Rayleigh-Streuung

Die elastische Streuung elektromagnetischer Strahlung an Molekülen bezeichnet man nach ihrem Entdecker Lord Rayleigh als Rayleigh-Streuung. Voraussetzung für die Anwendbarkeit der Rayleighschen Streuformel ist, daß der Streuer als punktförmig betrachtet werden kann, also im Vergleich zur Wellenlänge sehr klein ist. Das ist bei Molekülen mit Abmessungen von einigen Nanometern und Licht mit Wellenlängen von einigen hundert Nanometern der Fall.

Der Rayleigh-Rückstreuungswirkungsquerschnitt beträgt (in m^2/sr) (Elterman, 1968)

$$\sigma_{ray,180^\circ}(\lambda) = \frac{d\sigma_{ray}(\lambda, \theta = 180^\circ)}{d\Omega} = \frac{\pi^2(n_s^2 - 1)^2}{N^2\lambda^4} \left(\frac{6 + 3\delta}{6 - 7\delta} \right) \quad , \quad (3.7)$$

wobei

θ : Streuwinkel

n_s : Brechungsindex (in diesem Fall von Luft unter Standardbedingungen)

N : Anzahldichte der Moleküle unter Standardbedingungen
(1013 hPa, 15°C) in $1/\text{m}^3$

λ : Wellenlänge des einfallenden Lichts in m

δ : Depolarisationsfaktor, $\delta = 0.035$ für Luft.

Der Brechungsindex von Luft ist seinerseits schwach wellenlängenabhängig (Edlen, 1953):

$$n_s = 1 + \left(6432.8 + \frac{2949810}{146 - \lambda^{-2}} + \frac{25540}{41 - \lambda^{-2}} \right) 10^{-8} \quad , \quad (3.8)$$

dabei muß die Wellenlänge λ in μm eingesetzt werden. Die Winkelabhängigkeit der Rayleigh-Streuung erhält man aus der Phasenfunktion

$$P(\theta) = \frac{3}{16\pi} (1 + \cos^2 \theta) \quad . \quad (3.9)$$

Über alle Raumwinkel integriert erhält man den gesamten Streuwirkungsquerschnitt zu

$$\sigma_{ray}(\lambda) = \frac{8\pi}{3} \sigma_{ray,180^\circ}(\lambda) \quad . \quad (3.10)$$

Die Extinktion durch Rayleigh-Streuung erhält man dann als das Produkt von Streuquerschnitt und der Anzahl der Streuer, also der Luftmoleküle pro Kubikmeter $N(z)$:

$$\alpha_{ray}(\lambda, z) = \sigma_{ray}(\lambda)N(z) \quad . \quad (3.11)$$

Analog ergibt sich für die Rayleigh-Rückstreuung

$$\beta_{ray}(\lambda, z) = \sigma_{ray,180^\circ}(\lambda)N(z) \quad . \quad (3.12)$$

Sollen Gase mit sehr schmalen Absorptionslinien gemessen werden (z.B. Wasserdampf), so muß die spektrale Verbreiterung des an einem Molekül gestreuten Lichts beachtet werden. Ursache für die Verbreiterung sind der Doppler-Effekt (in der oberen Troposphäre dominierend) und die Stoßverbreiterung (in der unteren Troposphäre dominierend). Beim Ozon spielt dieser Effekt aufgrund des sehr breiten unstrukturierten Absorptionsspektrums keine Rolle.

Da es sich bei der Streuung elektromagnetischer Strahlung der hier interessierenden Wellenlängen an Luftmolekülen stets um Rayleigh-Streuung handelt, wird in dieser Arbeit im folgenden der Index *mol* für Molekülstreuung und nicht mehr der hier benutzte Index *ray* für Rayleigh-Streuung verwendet, wenn es sich um Rayleigh-Streuung an Molekülen handelt.

3.3.2 Raman-Streuung

Die Raman-Streuung ist eine inelastische Streuung an Molekülen, die auch für Lidar-Messungen eine wichtige Rolle spielt, obwohl der Streuquerschnitt um mehr als den Faktor 10^3 kleiner ist als der für Rayleigh-Streuung.

Bei der Raman-Streuung wird ein Teil der Energie des einfallenden Lichts in Vibrations- oder Rotationsenergie des Moleküls, an dem gestreut wird, umgewandelt. Das gestreute Licht ist somit zu längeren Wellenlängen hin verschoben. Da das Molekül wiederum nur diskrete Eigenschwingungs- und Eigenrotationszustände annehmen kann, erhält man ein Linienspektrum für das gestreute Licht. Um eine Vibrationslinie sehr hoher Intensität gibt es eine Reihe von Rotationslinien an beiden Seiten der Vibrationslinie. Die Energie zur Anregung einer Vibration ist weit größer als die zur Anregung einer Rotation (siehe Tabelle 3.1). Dies führt dazu, daß die Vibrationslinien im Rückstreupektrum stärker separiert sind als die Rotationslinien. Die Beträge der Wellenlängenverschiebung sind charakteristisch für das Molekül, an dem die Streuung stattgefunden hat. So kann man durch spektrale Aufspaltung des aus der Atmosphäre rückgestreuten Lichts das z.B. an Stickstoff oder Sauerstoff ramangestreute Licht vom elastisch gestreuten Licht separieren und getrennt detektieren. Bei schmalbandiger Laseremission und genügend hoher Dispersion der spektralen Elemente können sogar einzelne Rotationslinien gemessen und zur Temperaturmessung verwendet werden (Arshinov und Bobrovnikov, 1983; Wandinger et al., 1998).

Der Raman-Rückstreuquerschnitt ist gegeben durch (Inaba, 1976)

$$\frac{d\sigma_R(\tilde{\nu}, \theta = 180^\circ)}{d\Omega} = \frac{(2\pi)^4 b^2 (\tilde{\nu}_0 - \tilde{\nu})^4}{(1 - \exp(-hc\tilde{\nu}/k_B T))} g(\hat{i}^2 + \frac{7}{45}\hat{a}^2) \quad , \quad (3.13)$$

mit

$$b^2 = \frac{h}{8\pi^2 c \tilde{\nu}} \quad . \quad (3.14)$$

	$\Delta\nu_{vib}$ cm ⁻¹	$\Delta\nu_{rot}$ cm ⁻¹ für V = 1
Stickstoff	2331	1.98
Sauerstoff	1556	1.42

Tabelle 3.1: Wellenlängenverschiebung durch Raman-Streuung. Die Werte der Rotationsverschiebung gelten für das 1. Vibrationsniveau (Inaba, 1976).

Primärwellenlänge nm	Streumolekül	Raman-Wellenlänge nm	$(d\sigma/d\Omega)_{ray}$ Primärw. 10 ⁻³⁴ m ² /sr	$(d\sigma/d\Omega)_R$ 10 ⁻³⁴ m ² /sr	$\frac{\beta_R}{\beta_{ray}}$
248.5	O ₂	258.5	15441	16.57	2.25 · 10 ⁻⁴
248.5	N ₂	263.8	15441	12.79	6.47 · 10 ⁻⁴
268.5	O ₂	280.2	10966	12.00	2.29 · 10 ⁻⁴
268.5	N ₂	286.4	10966	9.20	6.54 · 10 ⁻⁴
277.1	O ₂	289.6	9556	10.52	2.31 · 10 ⁻⁴
277.1	N ₂	296.2	9556	8.04	6.57 · 10 ⁻⁴
291.9	O ₂	305.8	7628	8.46	2.32 · 10 ⁻⁴
291.9	N ₂	313.2	7628	6.44	6.58 · 10 ⁻⁴

Tabelle 3.2: Emissionswellenlängen des MPI-UV-Lidars und zugehörige Raman-Wellenlängen, deren Rayleigh-Rückstreuwirkungsquerschnitte und Raman-Rückstreuwirkungsquerschnitte für Streuung an Sauerstoff bzw. Stickstoff und Verhältnis von Raman-Rückstreuoeffizient zu Rayleigh-Rückstreuoeffizient in der Atmosphäre. Berechnet nach Elterman (1968) und Inaba (1976).

Dabei bedeuten $\tilde{\nu}_0$: Wellenzahl des eingestrahnten Photons, $\tilde{\nu}$: Wellenzahl der Vibrationsverschiebung, g : Entartungsgrad des Vibrationsniveaus, \hat{i}^2 : isotroper Anteil des Polarisierbarkeitstensors des Moleküls, \hat{a}^2 : anisotroper Anteil des Polarisierbarkeitstensors des Moleküls, T : Temperatur, k_B : Boltzmannkonstante, h : Plancksches Wirkungsquantum, c : Lichtgeschwindigkeit.

Der Nenner kann hier praktisch vernachlässigt werden, da $1 - \exp(-hc\tilde{\nu}/k_B T) \approx 1$ für $\lambda \approx 300\text{nm}$ und $T \approx 300\text{K}$. Somit braucht eine Höhenabhängigkeit des Rückstreuwirkungsquerschnitts aufgrund der Temperaturabhängigkeit nicht beachtet zu werden. Es ergibt sich eine λ^{-4} -Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts. In Tabelle 3.2 sind die Raman-Rückstreuwirkungsquerschnitte und das Verhältnis zur Rayleigh-Streuung für einige Emissionswellenlängen des MPI-UV-Lidars angegeben.

Die Raman-Streuung trägt aufgrund des sehr kleinen Streuquerschnitts nur unwesentlich zur Extinktion bei, daher wird hier nur die Rückwärtsstreuung betrachtet.

3.3.3 Partikelstreuung

Partikelstreuung wird in der Atmosphäre meist als Aerosolpartikelstreuung bezeichnet. Der Begriff Aerosolstreuung verweist nicht mehr auf die Partikel, meint aber die Streuung an den Aerosolpartikeln und wird im folgenden oft statt der sehr langen, aber kor-

rekteren Bezeichnung Aerosolpartikelstreuung benutzt. Die Streuung an Partikeln in der Atmosphäre ist zeitlich und räumlich sehr variabel. Aerosolpartikel haben unterschiedliche chemische Zusammensetzungen, Größenverteilungen und Formen. Daraus resultieren unterschiedliche Streueigenschaften, die zudem zeitlich und räumlich variabel sind. Der Wasserdampf spielt dabei eine große Rolle, da er für das Aufquellen der Teilchen bei hohen relativen Feuchten verantwortlich ist. Die Partikel ändern also auch mit der Feuchte ihre Form und Größe.

Die Streuung an Partikeln läßt sich dennoch unter vereinfachten Annahmen analytisch beschreiben. Dies wurde zuerst von Mie (1908) getan. Dabei wird angenommen, daß die Teilchen sphärische Streuer sind. Partikel mit einem Radius in der gleichen Größenordnung wie die Wellenlänge des einfallenden Lichts, also zwischen $0.1 \mu\text{m}$ und $10 \mu\text{m}$ sind optisch am aktivsten und für die Trübung der Atmosphäre in der planetaren Grenzschicht verantwortlich.

Mies Herleitung ist komplex und beruht auf der Lösung der Maxwell-Gleichungen in Polarkoordinaten. Der komplexe Brechungsindex des streuenden Teilchens wird ebenso berücksichtigt wie der Brechungsindex des Mediums, in dem sich das streuende Teilchen befindet. Es sollen hier daher nur die wichtigsten Ergebnisse gezeigt werden (Liou, 1980). Die Extinktionseffizienz Q_e ist gegeben als Reihe von Funktionen a_n und b_n :

$$Q_e = \frac{2}{x^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \text{Re}[a_n + b_n] \quad . \quad (3.15)$$

$x = \frac{2\pi r}{\lambda}$ ist ein bei der Angabe der Funktionen oft verwendeter Größenparameter, a_n und b_n enthalten Bessel- und Neumann-Funktionen, die bei der Lösung der Differentialgleichungen auftauchen, sowie den komplexen Brechungsindex m des streuenden Teilchens. Die Streueffizienz Q_s erhält man als

$$Q_s = \frac{2}{x^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) (|a_n|^2 + |b_n|^2) \quad . \quad (3.16)$$

Der Streuquerschnitt ergibt sich zu

$$\sigma_s = \pi r^2 Q_s \quad , \quad (3.17)$$

der Extinktionsquerschnitt zu

$$\sigma_e = \pi r^2 Q_e \quad . \quad (3.18)$$

Die Winkelabhängigkeit wird durch die Intensitätsfunktionen i_{\parallel} und i_{\perp} beschrieben, die die Intensitäten in den Polarisations Ebenen parallel und senkrecht zum einfallenden Strahl wiedergeben. Sie sind das Betragsquadrat der Streufunktionen $S_1(\theta)$ und $S_2(\theta)$:

$$i_{\perp} = |S_1(\theta)|^2 \quad , \quad (3.19)$$

$$i_{\parallel} = |S_2(\theta)|^2 \quad . \quad (3.20)$$

Letztere enthalten wiederum die Koeffizienten a_n und b_n sowie Legendrepolynome:

$$S_1(\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} (a_n \pi_n(\cos\theta) + b_n \tau_n(\cos\theta)) \quad , \quad (3.21)$$

$$S_2(\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} (a_n \tau_n(\cos\theta) + b_n \pi_n(\cos\theta)) \quad , \quad (3.22)$$

mit

$$\pi_n(\cos\theta) = \frac{1}{\sin\theta} P_n^1(\cos\theta) \quad , \quad (3.23)$$

$$\tau_n(\cos\theta) = \frac{d}{d\theta} P_n^1(\cos\theta) \quad , \quad (3.24)$$

die die Legendrepolynome $P_n^1(\cos\theta)$ enthalten. Die gesamte Phasenfunktion ist dann:

$$P(m, x, \theta) = \frac{\lambda^2(i_{\parallel} + i_{\perp})}{2\pi^2} \quad . \quad (3.25)$$

Sie besitzt ein ausgeprägtes Maximum in Vorwärtsrichtung, es ist um so ausgeprägter, je größer die Teilchen sind. In Rückwärtsrichtung erhält man ein schwaches sekundäres Maximum.

Die Absorption der Aerosolpartikel ergibt sich hier als Differenz von Extinktion und Streuung:

$$\alpha_a = \alpha_e - \alpha_s \quad . \quad (3.26)$$

Der spektrale Extinktionskoeffizient läßt sich mit $\alpha_e = \pi r^2 Q_e(x)$ unter der Annahme einer Größenverteilung der Partikel nach Junge (1963)

$$N(r) \propto r^{-4} \quad (3.27)$$

berechnen als Integral über alle Radien von 0 bis ∞ . Man erhält

$$\alpha_{aer}(\lambda) \propto \lambda^{-1} \quad , \quad (3.28)$$

was allerdings nur für die vorgegebene Größenverteilung gilt. Für reale Verteilungen weicht das Ergebnis hiervon ab, die Exponenten von λ liegen aber in der Regel zwischen 0 und -2, die Streuung ist also wesentlich schwächer von der Wellenlänge abhängig als für Molekülstreuung.

Besonders im UV bei Wellenlängen kleiner als ca. 350 nm wird es schwierig, überhaupt eine zuverlässige Angabe über die Wellenlängenabhängigkeit von Extinktion und Rückstreuung durch Aerosolpartikel zu machen. Rechnungen von Völger (1993, 1996), die auf der Klimatologie von d'Almeida et al. (1991) und den älteren Veröffentlichungen von Shettle und Fenn (1976, 1979) beruhen, zeigen für die in Norddeutschland wichtigen Aerosolkomponenten „wasserlöslich“ und „Ruß“ einen starken Abfall des Rückstreckoeffizienten mit der Wellenlänge unterhalb von 300 nm. Die spektrale Abhängigkeit des Extinktionskoeffizienten zeigt im UV ebenfalls einen flacheren Verlauf als im übrigen Wellenlängenbereich, der Abfall ist aber weniger stark. Ursache hierfür ist die starke Änderung des Brechungsindex unterhalb von 300 nm (siehe Abb. 2.1).

Ähnliche Ergebnisse werden auch von Krekov (1993) gegeben. Er gibt die Extinktion und die Rückstreuung für wichtige Laserwellenlängen und ein globales Aerosolmodell an (Abb. 3.3). Auch hier sieht man den deutlichen Abfall der Rückstreuung mit der Wellenlänge bei 248 nm. Aufgrund der wenigen berechneten Punkte ist im für ein Ozon-DIAL interessanten Bereich von 260 bis 300 nm nur schwer eine Aussage über die tatsächliche Wellenlängenabhängigkeit möglich.

Als weitere Schwierigkeit bei der Annahme einer Wellenlängenabhängigkeit von Aerosolextinktion und -rückstreuung kommt die Änderung der Verhältnisse mit der Feuchte

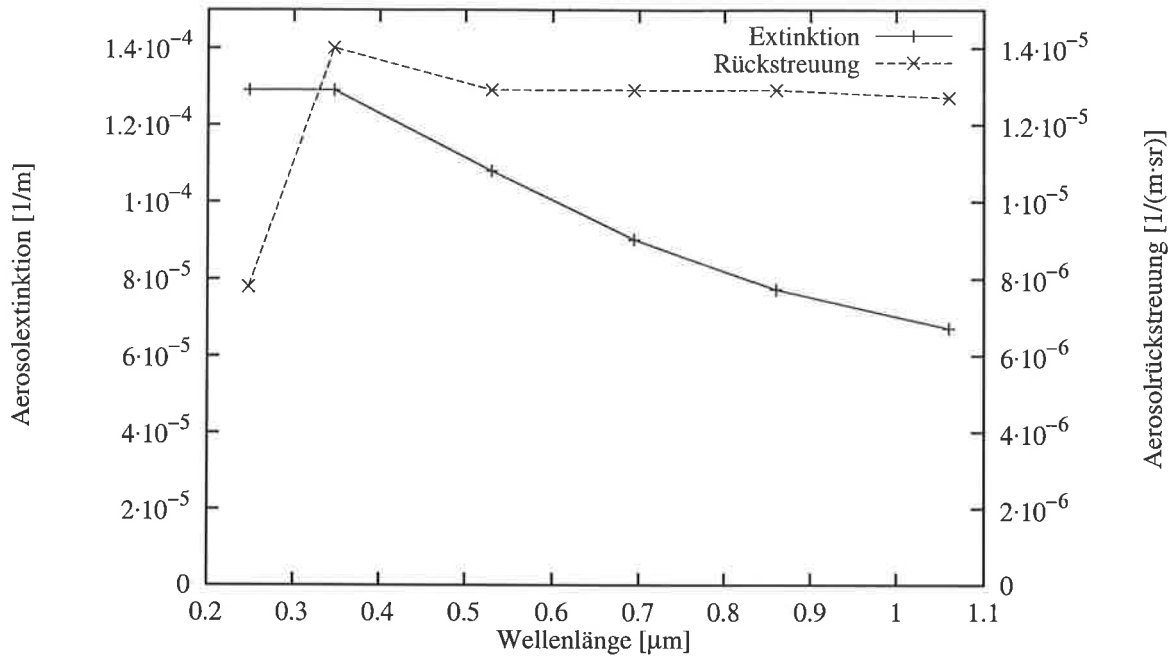


Abbildung 3.3: Spektrale Abhängigkeit der Aerosolextinktion und -rückstreuung für trockenes Aerosol in einem globalen Modell nach Krekov (1993).

hinzu. Zunehmende Aufnahme von Wasser bei wasserlöslichen Aerosolpartikeln führt zu einem Anwachsen der Partikel. Damit verbunden ist eine Zunahme der Streuung in Vorwärtsrichtung, wie sie die Modellrechnung nach Mie mit zunehmender Teilchengröße zeigt. Dies führt zu einer Zunahme der Extinktion gegenüber der Rückstreuung und damit zu einem Anwachsen des Lidar-Verhältnisses

$$S \equiv \frac{\alpha_{aer}}{\beta_{aer}} \quad (3.29)$$

mit der Feuchte. Da Wasser in viel geringerem Maße absorbiert als die Aerosolkomponenten „wasserlöslich“ und „Ruß“, gibt es hierdurch einen gegenläufigen Effekt. Die Streuung nimmt insgesamt gegenüber der Extinktion zu und damit auch die Rückstreuung gegenüber der Extinktion. Dies kann man durch Angabe der sogenannten single scattering Albedo von Aerosolpartikeln beschreiben

$$\omega = \frac{\alpha_s(\lambda)}{\alpha_s(\lambda) + \alpha_a(\lambda)} = \frac{\alpha_s(\lambda)}{\alpha_e(\lambda)} \quad , \quad (3.30)$$

wobei hier $\alpha_{aer}(\lambda) = \alpha_e(\lambda) = \alpha_s(\lambda) + \alpha_a(\lambda)$ gilt. Die Extinktion setzt sich also aus einem Anteil durch Streuung und einem Anteil durch Absorption zusammen. Mit α_{aer} ist hier immer die gesamte Extinktion gemeint, da dies die vom Lidar gemessene Größe ist. Ohne Berücksichtigung des Größenwachstums mit der Feuchte steigt die single scattering Albedo aufgrund der Abnahme der Absorption an. Bei gleichbleibendem Verhältnis von Streuung zu Rückstreuung, d.h. ohne Berücksichtigung des Größenwachstums, wird das Lidar-Verhältnis im UV bei stark absorbierenden Substanzen mit der Feuchte abnehmen. Modellrechnungen, die mit dem Programmpaket Optical Properties of Aerosols and Clouds (OPAC) (Hess et al., 1998) durchgeführt wurden, zeigen das starke Anwachsen

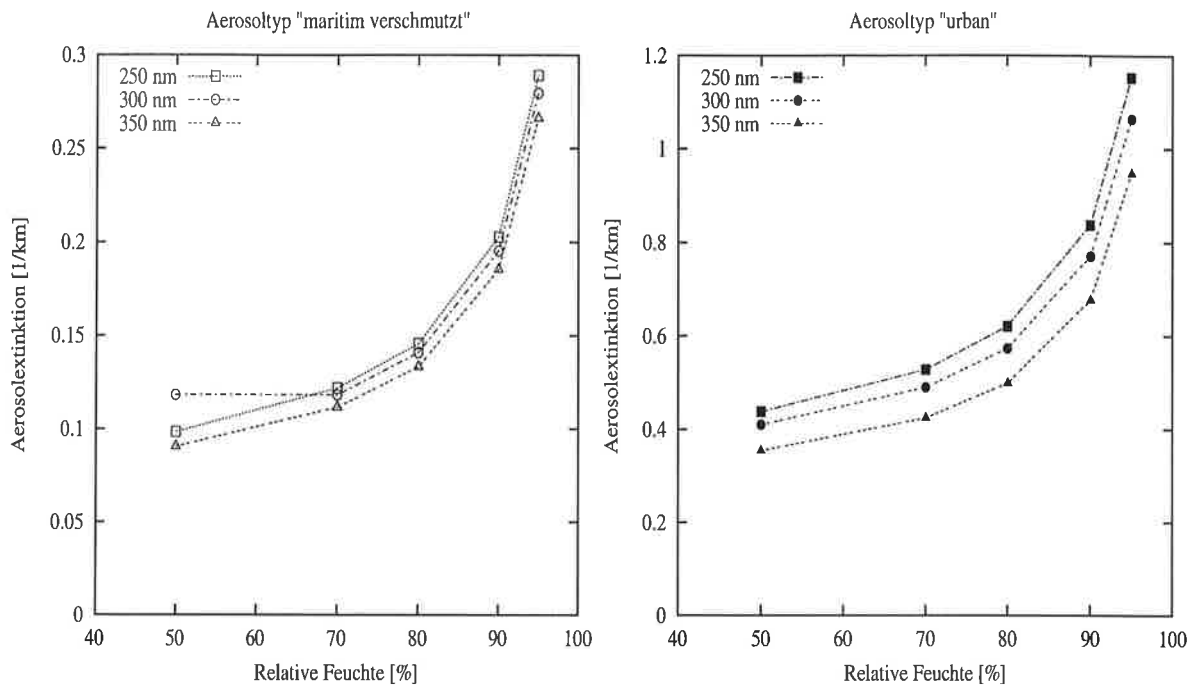


Abbildung 3.4: Abhängigkeit der Aerosolextinktion von der relativen Feuchte für die Aerosoltypen „maritim verschmutzt“ und „urban“ bei drei UV-Wellenlängen. Rechnungen mit OPAC (Hess et al., 1998).

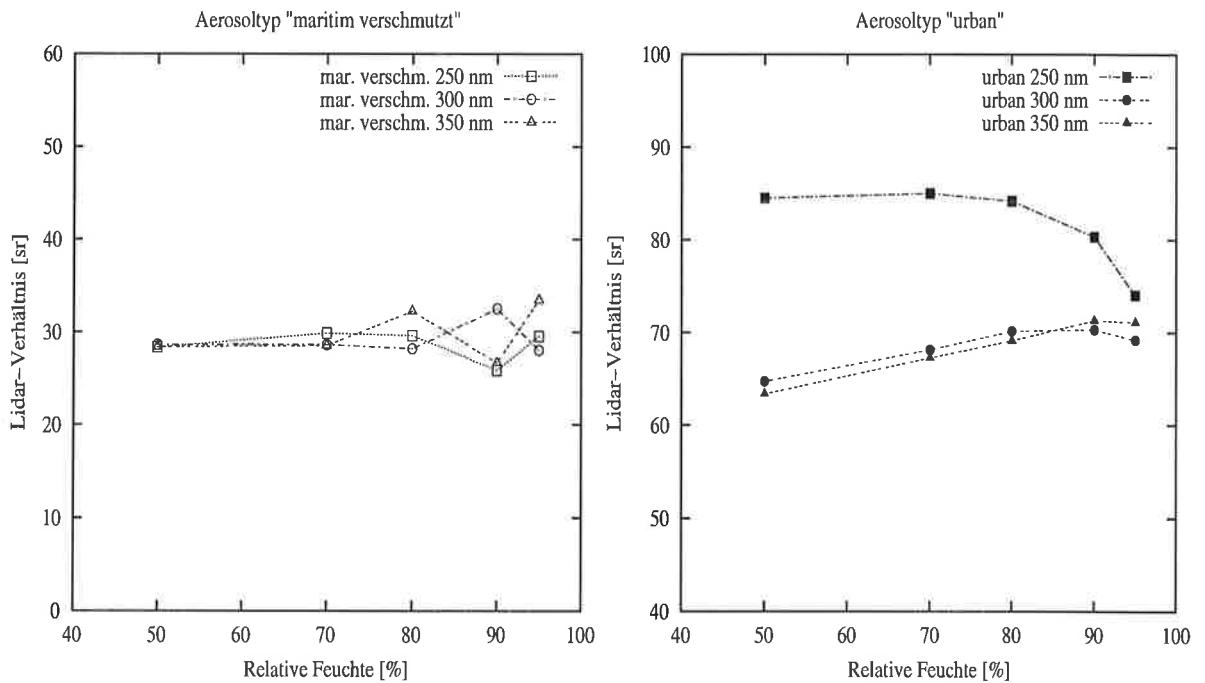


Abbildung 3.5: Abhängigkeit des Lidar-Verhältnisses von der relativen Feuchte für die Aerosoltypen „maritim verschmutzt“ und „urban“ bei drei UV-Wellenlängen. Rechnungen mit OPAC (Hess et al., 1998).

der Aerosolextinktion mit der Feuchte auf fast das Dreifache bei 95% Feuchte gegenüber 50% Feuchte für die Aerosoltypen „urban“ und „maritim verschmutzt“ (Abb. 3.4). Auch die spektrale Abhängigkeit ändert sich für den Aerosoltyp „maritim verschmutzt“ bei den drei UV Wellenlängen 250 nm, 300 nm und 350 nm mit der relativen Feuchte. Die Extinktion steigt bei 250 nm stärker mit der Feuchte an.

Das Lidarverhältnis ist für die betrachteten Aerosoltypen recht unterschiedlich. Es beträgt ca. 30 sr für „maritim verschmutzt“ und ca. 70 sr für „urban“, ein Effekt, der auf den hohen Anteil absorbierender Substanzen im urbanen Aerosol zurückzuführen ist. Den Einfluß der Feuchte auf das Lidar-Verhältnis kann man aus diesen Rechnungen ebenfalls entnehmen (Abb. 3.5). Es nimmt für den Aerosoltyp „urban“ bei 350 nm mit der Feuchte zu, ein Effekt, der dem Größenwachstum der wasserlöslichen Teilchen zuzuschreiben ist. Bei 300 nm beginnt bereits ein gegenläufiger Effekt, der bei 250 nm dominierend ist. Hier spielt die Absorption eine große Rolle, insbesondere für die Komponente „wasserlöslich“ nimmt sie ab 300 nm stark zu und der für stark absorbierende Teilchen erwartete Effekt tritt auf. Für den Aerosoltyp „maritim verschmutzt“ ist nur ein geringer Anstieg des Lidar-Verhältnisses von ca. 10% bei 95% Feuchte gegenüber 50% bei 350 nm. Dies ist etwa der gleiche Effekt wie beim Aerosoltyp „urban“ bei dieser Wellenlänge.

Ackermann (1998) hat auf der gleichen Datenbasis Lidar-Verhältnisse berechnet. Er kommt auf ein ähnliches spektrales Verhalten, die Absolutwerte betragen auch hier typischerweise zwischen 20 sr und 70 sr. Im gleichen Bereich liegen die von Takamura (1994) in der Nähe von Tokio gemessenen Werte. Diese beziehen sich aber auf $\lambda = 532$ nm.

Kapitel 4

Auswerteverfahren

Bereits die Messung des atmosphärischen Rückstreusignals einer einzigen Laserwellenlänge ermöglicht Aussagen über Aerosolverteilungen und damit verbunden über Schichtung und Dynamik der Atmosphäre. Mit sogenannten Inversionsverfahren kann unter der vereinfachenden Annahme eines bekannten Verhältnisses zwischen Aerosolextinktion und rückstreuung, dem sogenannten Lidar-Verhältnis, das Profil des Aerosolrückstreckoeffizienten bestimmt werden (Klett, 1981; Fernald et al., 1972; Fernald, 1984). Mißt man zusätzlich die Raman-Streuung an einem Molekül bekannter Dichte, also an Stickstoff oder Sauerstoff, so läßt sich hiermit eine unabhängige Bestimmung der Aerosolextinktion durchführen (Ansmann et al., 1992). Damit läßt sich auch die Bestimmung der Aerosolrückstreuung entscheidend verbessern, da das Lidar-Verhältnis berechnet werden kann und nicht vorgegeben werden muß. Hieraus lassen sich u.U. sogar zusätzliche Informationen über den Zustand der streuenden Aerosolpartikel ableiten. Die Messung der Raman-Streuung ist aufgrund des sehr kleinen Signals aber technisch aufwendiger als die Messung des elastisch zurückgestreuten Signals und bei den meisten Lidar-Systemen aufgrund des hohen Tageslichtuntergrundes nur bei Nacht möglich.

Zur Berechnung der Ozondichte aus Lidar-Daten können unterschiedliche Verfahren angewendet werden, je nachdem wieviele unterschiedliche Lidar-Signale gemessen wurden. Beim UV-Lidar des MPI für Meteorologie liegen in der Regel drei elastisch gestreute Signale bei 268 nm, 292 nm und 320 nm und zwei ramangestrene Signale vor. Diese Wellenlängen werden unter Ausnutzung der stimulierten Raman-Streuung (SRS) an Deuterium gewonnen. Die möglichen Raman-Wellenlängen sind 264 nm, 286 nm und 306 nm. Alternativ kann auch die SRS an Wasserstoff ausgenutzt werden, wobei die zusätzlichen Wellenlängen bei 277 nm und 313 nm liegen, das ramangestrene Signal hat dann eine Wellenlänge von 296 nm.

Bei rein elastischer Rückstreuung wird das DIAL-Verfahren verwendet, eine Aerosolkorrektur erfolgt mit einem Aerosolprofil, das mit einem Inversionsalgorithmus bei einer nicht oder nur schwach vom Ozon absorbierten Wellenlänge ermittelt wird. Zur Berücksichtigung der Aerosolextinktion müssen Annahmen über das Lidar-Verhältnis getroffen werden.

Zusätzliche Raman-Kanäle gestatten die unabhängige Bestimmung der Aerosolextinktion. Mit einem Dreiwellenlängenverfahren, das auch auf drei elastisch gestreute Signale anwendbar ist, können so exaktere Informationen über die Aerosoleigenschaften gewonnen werden, da es keiner Vorgabe des Lidar-Verhältnisses bedarf.

Zwei Raman-Signale ermöglichen die Ozondichtebestimmung, ohne daß Kenntnisse über

die Aerosolrückstreuung nötig sind. Als einzige Aerosoleigenschaft muß die Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolextinktion vorgegeben werden.

Alle Verfahren können beim MPI-UV-Lidar angewandt werden, sie werden an dieser Stelle daher auch alle dargestellt. Je nach Meßbedingungen findet das eine oder andere Verfahren den Vorzug.

4.1 Inversion einer Lidar-Gleichung

Liegen keine Raman-Messungen und damit keine Informationen über die Aerosolextinktion vor, so können die Aerosolprofile mittels eines Inversionsalgorithmus, bei dem sowohl eine Eichung als auch eine Annahme über das Lidar-Verhältnis $S(z) = \alpha_{aer}(z)/(\beta_{aer}(z))$ gemacht werden müssen, bestimmt werden. Da die meisten Lidar-Systeme nicht über Möglichkeiten zur Raman-Messung verfügen, sind die Inversionsverfahren weit verbreitet und ihre Stärken und Schwächen gut erforscht (Sasano et al., 1985; Matsumoto und Takeuchi, 1994; Kovalev und Moosmüller, 1994; Bösenberg et al., 1997b).

Zur Berechnung von Aerosolrückstreuprofilen, die dann auch u.a. zur Ozonkorrektur verwendet werden, findet am MPI der von Fernald vorgeschlagene Algorithmus Anwendung (Fernald, 1984). Er soll hier daher noch einmal kurz beschrieben werden.

Die Lidar-Gleichung lautet, falls keine absorbierenden Gase betrachtet werden müssen

$$P(\lambda, z) = P_0(\lambda)C \frac{\beta_{aer}(\lambda, z) + \beta_{mol}(\lambda, z)}{z^2} \exp\left(-2 \int_0^z \alpha_{aer}(\lambda, \zeta) + \alpha_{mol}(\lambda, \zeta) d\zeta\right) \quad (4.1)$$

Das Lidar-Verhältnis S wird höhenkonstant angenommen und in dieser Herleitung zur besseren Unterscheidung von $S_{mol} = \frac{8\pi}{3}$ mit S_{aer} bezeichnet. Mit $\alpha_{aer} = S_{aer} \cdot \beta_{aer}$ sind in Gleichung (4.1) noch die Aerosolrückstreuung $\beta_{aer}(z)$ und die Systemkonstanten unbekannt. Letzere werden über eine Eichung in der Höhe z_0 eliminiert. Unter der Annahme, die Aerosolpartikelstreuung in der Höhe z_0 zu kennen (z. B. wenn sie dort Null ist) sowie die Molekülstreuung mit genügender Genauigkeit berechnen zu können, können die nicht höhenabhängigen Systemkonstanten in der Lidar-Gleichung bestimmt werden. Die Lösung der Lidar-Gleichung für zwei Sorten von Streuern (Partikel und Moleküle) lautet für $z_0 > z$

$$\beta_{aer}(z) = -\beta_{mol}(z) + \frac{P(z)z^2 \exp\left(-2(S_{aer} - S_{mol}) \int_0^z \beta_{mol}(\zeta) d\zeta\right)}{P_0C - 2S_{aer} \int_0^z P(\zeta)\zeta^2 \exp[-2(S_{aer} - S_{mol}) \int_0^\zeta \beta_{mol}(z') dz'] d\zeta} \quad (4.2)$$

Mit der Eichung in der Höhe z_0 zur Bestimmung der Systemkonstanten P_0C erhält man unter Benutzung der Abkürzung $X(z_0) = P(z_0)z_0^2$

$$\beta_{aer}(z) = -\beta_{mol}(z) + \frac{X(z) \exp\left(-2(S_{aer} - S_{mol}) \int_{z_0}^z \beta_{mol}(\zeta) d\zeta\right)}{\frac{X(z_0)}{\beta_{aer}(z_0) + \beta_{mol}(z_0)} - 2S_{aer} \int_{z_0}^z X(\zeta) \exp[-2(S_{aer} - S_{mol}) \int_{z_0}^\zeta \beta_{mol}(z') dz'] d\zeta} \quad (4.3)$$

Hieraus kann man ein einfaches numerisches Integrationsschema ableiten. Beginnend im Eichniveau ($i = 0$ in z_0) integriert man jeweils ein Intervall Δz nach unten. Dabei setzt man

$$A(i, i-1) = (S_{aer} - S_{mol})[\beta_{mol}(i) + \beta_{mol}(i-1)]\Delta z \quad (4.4)$$

und ersetzt damit das Integral im Exponenten im Nenner. Ersetzt man das zweite Integral im Nenner ebenfalls durch Summation über einzelne Höhenstufen der Dicke Δz ergibt sich eine Höhenstufe unter der Eichhöhe z_0

$$\beta_{aer}(i-1) = -\beta_{mol}(i-1) + \frac{X(i-1) \exp(+A(i, i-1))}{\frac{X(i)}{\beta_{aer}(i)+\beta_{mol}(i)} + S_{aer}(X(i) + X(i-1) \exp[+A(i, i-1)]) \Delta z} \quad (4.5)$$

Dies entspricht der Abwärtsintegration. Analog kann man von der Eichhöhe z_0 auch nach oben integrieren. Ebenso lassen sich die Gleichungen für die Aerosolextinktion unter Verwendung der Verhältnisse S_{aer} und S_{mol} angeben.

Die Abwärtsintegration ist in jedem Falle der Aufwärtsintegration vorzuziehen, da es bei letzterer zu Instabilitäten in sehr trüben Atmosphären kommen kann (Klett, 1981; Fernald, 1984). Man erhält bei der Abwärtsintegration sehr schnell ein Ergebnis, das nicht mehr sehr stark von der Wahl des Eichwertes für $\beta_{aer}(z_0)$ abhängt, zudem ist dieser in großen Höhen, in denen im Allgemeinen nur noch geringe Aerosolrückstreuung vorhanden ist, leichter zu bestimmen. Dies gilt insbesondere im UV, wo die Molekülstreuung in der freien Troposphäre die Aerosolstreuung oft weit übersteigt. Im Infraroten hingegen ist die Molekülstreuung bereits so klein, daß hier größere Fehler durch eine inkorrekte Eichung möglich sind.

Auch Fehleruntersuchungen von Bissonnette (1986) zeigen, daß bei der Abwärtsintegration kleinere Fehler auftreten als bei der Aufwärtsintegration. Letztere ist bei bodengebundenen Messungen nur dann sinnvoll, wenn in einem niedrigen Höhenniveau die Aerosolrückstreuung aus anderen Messungen bekannt ist oder aufgrund von Bewölkung kein Eichniveau mit geringer Aerosolrückstreuung gefunden werden kann. Bei Messungen aus großen Höhen, vom Flugzeug oder Satelliten hingegen, findet man im Fernbereich keine geringe Rückstreuung, da sich hier die meisten Aerosolpartikel befinden, und muß im Nahbereich eichen.

Der größte Nachteil dieser Methode liegt aber sicherlich in der Vorgabe des höhenkonstanten Lidar-Verhältnisses. Zum einen weiß man sehr wenig über seine Größe, zum anderen ist es i.allg. nicht höhenkonstant. Ein anderer Nachteil liegt ähnlich wie bei der vorher beschriebenen Methode in der Wahl des Eichwertes. Unter Wolken ist dieser Wert kaum richtig zu bestimmen und die Iterationsschritte sind zu wenige um bereits einige hundert Meter unter der Wolke schon an der korrekten Lösung zu sein. Es gibt auch keinen Anhaltspunkt, eine Lösung als richtig beurteilen zu können. Die Tatsache, daß bei dieser Methode eine Annäherung an den richtigen Wert mit zunehmender Iterationstiefe erfolgt, führt außerdem zu Verformungen des Profils und damit zu falschen Gradienten in den Aerosolprofilen.

4.2 Raman-Lidar

Bei ausschließlich vertikal ausgerichteten Lidar-Systemen kann die Aerosolextinktion ohne Annahmen über die Aerosolrückstreuung und die Systemeffizienz nur mittels der Messung reiner Molekülrückstreuung bestimmt werden. Bei der elastischen Rückstreuung ist es sehr aufwendig, die Rayleigh-Rückstreuung von der Aerosolrückstreuung zu trennen (Shipley et al., 1983; Sroga et al., 1983), einfacher kann die wellenlängenverschobene

inelastische Raman-Streuung an Stickstoff oder Sauerstoff benutzt werden. Die Raman-Lidar-Gleichung lautet

$$P(\lambda_0, \lambda_R, z) = P_0(\lambda_0)C_R \cdot \frac{\beta_R(\lambda_0, z)}{z^2} \exp\left(-\int_0^z (\alpha(\lambda_0, \zeta) + \alpha(\lambda_R, \zeta))d\zeta\right). \quad (4.6)$$

Unter der Annahme, daß für die Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolextinktion ein Ångström-Gesetz mit Exponenten a gilt

$$\alpha_{aer} \propto \lambda^a, \quad (4.7)$$

kann man die Raman-Lidar-Gleichung nach der Aerosolextinktion bei einer Wellenlänge auflösen. Die Gleichung lautet:

$$\alpha_{aer}(\lambda_0)\left(1 + \left(\frac{\lambda_R}{\lambda_0}\right)^a\right) = \frac{d}{dz} \ln\left(\frac{N(z)}{P_R(z)z^2}\right) - \alpha_{mol}(\lambda_0, z) - \alpha_{mol}(\lambda_R, z) - \alpha_{O_3}(\lambda_0, z) - \alpha_{O_3}(\lambda_R, z) - \alpha_{O_2}(\lambda_0, z) - \alpha_{O_2}(\lambda_R, z), \quad (4.8)$$

wobei hier bereits $\beta_R(\lambda_0, z) = N(z)\sigma_R(\lambda_0)$ mit $d/dz \sigma_R(\lambda_0) = 0$ eingesetzt wurde.

Mißt man nicht im UV, so brauchen die Terme für die Ozon- und die Sauerstoffabsorption nicht beachtet zu werden, so daß ein Raman-Rückstreusignal zur Berechnung der Aerosolextinktion ausreicht. Allerdings lassen sich diese Messungen aufgrund des hohen störenden Tageslichtuntergrundes nur nachts durchführen. Im Solar-Blind-Bereich unterhalb von 300 nm muß hingegen eine Ozonkorrektur und zum Teil auch eine Sauerstoffkorrektur ($\lambda < 270$ nm) gemacht werden. Dies erfordert zusätzliche DIAL- oder Raman-DIAL-Messungen.

Die Bestimmung der Aerosolextinktion aus der Raman-Lidar-Gleichung ermöglicht die unabhängige Bestimmung der Aerosolrückstreuung unter Benutzung des elastischen Rückstreusignals. Ansmann (1992) schlägt die Bildung des Quotienten

$$\frac{P(\lambda_0, z)P(\lambda_R, z_0)}{P(\lambda_0, z_0)P(\lambda_R, z)} \quad (4.9)$$

vor, wobei $P(\lambda_0, z_0)$ und $P(\lambda_R, z_0)$ die gemessenen Signale in der Eichhöhe z_0 bezeichnen. In der Eichhöhe wird analog zum Inversionsverfahren nach Klett oder Fernald der Wert der Aerosolrückstreuung $\beta_{aer}(z_0)$ vorgegeben. Die Eichung muß also wiederum in einer Höhe oberhalb der stark mit Aerosolen belasteten Grenzschicht erfolgen, in der außerdem die empfangenen Signale noch ausreichende Intensität haben. Auflösung des Signalquotienten nach $\beta_{aer}(\lambda_0, z)$ ergibt

$$\beta_{aer}(\lambda_0, z) = -\beta_{mol}(\lambda_0, z) + (\beta_{aer}(\lambda_0, z_0) + \beta_{mol}(\lambda_0, z_0)) \times \frac{P(\lambda_0, z)P(\lambda_R, z_0)N_R(z)}{P(\lambda_0, z_0)P(\lambda_R, z)N_R(z_0)} \exp\left(\int_z^{z_0} (\Delta\alpha_{aer}(\zeta) + \Delta\alpha_{mol}(\zeta))d\zeta\right), \quad (4.10)$$

wobei $\Delta\alpha_{aer}(\zeta) = \alpha_{aer}(\lambda_R, \zeta) - \alpha_{aer}(\lambda_0, \zeta)$ und $\Delta\alpha_{mol}(\zeta) = \alpha_{mol}(\lambda_R, \zeta) - \alpha_{mol}(\lambda_0, \zeta)$. Der Vorteil dieses Verfahrens liegt in der unabhängigen Bestimmung von $\beta_{aer}(\lambda_0, z)$, ohne daß der vorzugebende (in diesem Fall aus einem Raman-Signal berechnete) Wert der Aerosolextinktion einen sehr hohen Einfluß hat, da er nur differentiell in den Exponenten eingeht.

Mathematisch äquivalent und zunächst einfacher erscheint die Einsetzung der Aerosolextinktion in die Lidar-Gleichung für ein elastisch zurückgestreutes Signal. Die Systemkonstanten werden dabei wiederum durch Eichung in einer festen Höhe z_0 unter Vorgabe der Aerosolextinktion in dieser Höhe eliminiert.

$$\beta_{aer}(\lambda_0, z) = -\beta_{mol}(\lambda_0, z) + (\beta_{aer}(\lambda_0, z_0) + \beta_{mol}(\lambda_0, z_0)) \times \frac{P(\lambda_0, z)z^2}{P(\lambda_0, z_0)z_0^2} \exp\left(-2 \int_z^{z_0} (\alpha_{aer}(\lambda_0, \zeta) + \alpha_{mol}(\lambda_0, \zeta))d\zeta\right) . \quad (4.11)$$

Die Anwendung dieser Formel ist insbesondere dann geeignet, wenn die Intensität des Raman-Signals in der Eichhöhe mit geringer Aerosolrückstreuung schon sehr klein ist und in Gleichung (4.10) hohe Fehler durch Rauschen des Signals eingeführt werden könnten. Das Rauschen des elastisch zurückgestreuten Signals ist aufgrund der deutlich höheren Intensität sehr viel geringer als das des Raman-Signals. Dafür geht hier ein Fehler in der Bestimmung der Aerosolextinktion, die ja ausschließlich aus dem Raman-Signal erfolgt und daher schnell mit statistischen Ungenauigkeiten behaftet sein kann, sehr viel stärker ein. Gegebenenfalls müssen beide Rechnungen durchgeführt werden und die Ergebnisse verglichen werden.

Im ultravioletten Spektralbereich, unter Einbeziehung der Absorptionsterme des Ozons (Sauerstoff läßt sich analog miteinbeziehen), lautet die Gleichung für die Aerosolrückstreuung:

$$\beta_{aer}(\lambda_0, z) = -\beta_{mol}(\lambda_0, z) + \beta(\lambda_0, z_0) \frac{P(\lambda_0, z)z^2}{P(\lambda_0, z_0)z_0^2} \times \exp\left(-2 \int_{z_0}^z (\alpha_{aer}(\lambda_0, \zeta) + \alpha_{\lambda_0, ray}(\zeta) + \alpha_{O_3}(\lambda_0, \zeta))d\zeta\right) . \quad (4.12)$$

Die Profile für $\alpha_{aer}(z)$ und $\alpha_{O_3}(z)$ müssen aus den Raman-Messungen bzw. den Ozonmessungen zwischen z und z_0 bekannt sein. Die Eichhöhe muß also in einer Höhe gewählt werden, in der sowohl das Ozonprofil als auch das Aerosolprofil noch auswertbar sind. Dies bedeutet eine gewisse Einschränkung für die Eichung bei ausgedehnter planetarer Grenzschicht. Dann ist es zum Teil nicht möglich, einen Bereich zu finden, in dem $\beta_{aer} \ll \beta_{mol}$, da dies zumeist nur oberhalb der planetaren Grenzschicht mit einiger Sicherheit angenommen werden kann.

In einem solchen Fall kann es hilfreich sein, zunächst die Rückstreuung bei einer nicht vom Ozon absorbierten Meßwellenlänge zu bestimmen. Diese weist so gut wie immer genügend Signalintensität in einem weitgehend aerosolfreien Bereich auf und kann somit leichter richtig geeicht werden. Unter Zuhilfenahme eines Ångström-Gesetzes für die Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolrückstreuung kann dann ein Eichwert für die kürzere Wellenlänge innerhalb der Grenzschicht bestimmt werden. Auch unter Grenzschichtbewölkung ist es schwierig, einen guten Wert für β_{aer} zu bestimmen, da eine korrekte Eichung oberhalb der Grenzschicht überhaupt nicht möglich ist. Bei durchbrochener Bewölkung sind die Möglichkeiten besser. Im Prinzip reicht es, eine längere Messung zu einem Zeitpunkt zu eichen und diese Eichung dann auf den gesamten Meßzeitraum anzuwenden. Durch die Eichung erhält man Informationen über die Systemkonstanten und die Transmission im untersten Teil der Atmosphäre (Bösenberg et al., 1997b)

$$\frac{P(z_0)z_0^2}{\beta(z_0)} \exp\left(2 \int_{z_{uh}}^{z_0} (\alpha_{aer}(\zeta) + \alpha_{mol}(\zeta) + \alpha_{O_3}(\zeta))d\zeta\right) =$$

$$C \exp \left(- 2 \int_0^{z_{uh}} (\alpha_{aer}(\zeta) + \alpha_{mol}(\zeta) + \alpha_{O_3}(\zeta)) d\zeta \right) = CT_{uh} \quad , \quad (4.13)$$

wobei z_{uh} die unterste Höhe bezeichnet, in der Informationen über die Aerosolextinktion verfügbar sind. C steht für die Systemkonstanten und T_{uh} bezeichnet die Transmission des untersten Teils der Atmosphäre.

Nimmt man an, daß diese Transmission sich nicht allzu stark ändert, während eine Wolke im Gesichtsfeld des Teleskops ist, so kann die Aerosolrückstreuung unter der Wolke wie folgt berechnet werden:

$$\beta_{aer}(z) = -\beta_{mol}(z) + \frac{P(z)z^2}{CT_{uh}} \times \exp \left(2 \int_{z_{uh}}^z (\alpha_{aer}(\zeta) + \alpha_{mol}(\zeta) + \alpha_{O_3}(\zeta)) d\zeta \right) \quad . \quad (4.14)$$

Dies liefert glaubwürdigere Resultate, als wenn man versucht, unterhalb der Wolke zu eichen, wo die Aerosolpartikeleigenschaften sicher andere als in der Wolkenlücke sind.

4.3 DIAL

Die folgende Herleitung gilt zunächst für ein Ozon-DIAL, sie läßt sich aber auf andere zu messende Gase fast analog übertragen. Nicht betrachtet werden sollen hier spektrale Einzelheiten des ausgesandten und empfangenen Laserlichts, die besonders bei der Messung von Gasen mit sehr schmalen Absorptionslinien wie z.B. Wasserdampf eine große Rolle spielen können (Bösenberg, 1998). Betrachtet man erneut die Lidar-Gleichung im UV (3.4), so lassen sich der Volumenrückstreckoeffizienten β und die totale Extinktion α wie folgt aufteilen:

$$\begin{aligned} \beta(\lambda, z) &= \beta_{mol}(\lambda, z) + \beta_{aer}(\lambda, z) \quad , \\ \alpha(\lambda, z) &= \alpha_{mol}(\lambda, z) + \alpha_{aer}(\lambda, z) + \alpha_{O_3}(\lambda, z) + \alpha_q(\lambda, z) \quad . \end{aligned}$$

$\beta(\lambda, z)$ ist die Summe aus Molekül- und Aerosolrückstreuung, $\alpha(\lambda, z)$ ist die Summe aus Molekül-, Aerosol- und Ozonextinktionskoeffizienten. Der Term $\alpha_q(\lambda, z)$ taucht nur auf, wenn bei dieser Wellenlänge noch andere (querempfindliche) Gase nennenswerte Absorption aufweisen. Durch Kombination zweier Lidar-Gleichungen bei den Wellenlängen λ_{on} und λ_{off} erhält man die DIAL-Gleichung. Mit $\Delta\alpha_{O_3} = N_{O_3}(z) \Delta\sigma_{O_3}$ kann man die Ozonanzahldichte wie folgt berechnen:

$$N_{O_3}(z) = \frac{1}{2\Delta\sigma_{O_3}} \times \left(\frac{d}{dz} \ln \frac{P_{off}(z)}{P_{on}(z)} + \frac{d}{dz} \ln \frac{\beta_{on}(z)}{\beta_{off}(z)} - 2\Delta\alpha_{mol}(z) - 2\Delta\alpha_{aer}(z) - 2\Delta\alpha_q(z) \right) \quad , \quad (4.15)$$

wobei $N_{O_3}(z)$ die Anzahldichte der Ozonmoleküle ist, $\Delta\sigma_{O_3} = \sigma_{O_3}(\lambda_{on}) - \sigma_{O_3}(\lambda_{off})$ ist die Differenz der Ozonabsorptionsquerschnitte bei λ_{on} und λ_{off} , $\Delta\alpha_{mol} = \alpha_{mol}(\lambda_{on}) - \alpha_{mol}(\lambda_{off})$, $\Delta\alpha_{aer} = \alpha_{aer}(\lambda_{on}) - \alpha_{aer}(\lambda_{off})$ und $\Delta\alpha_q = \alpha_q(\lambda_{on}) - \alpha_q(\lambda_{off})$ sind die

entsprechenden differentiellen Extinktionen durch Moleküle (Rayleigh-Extinktion), Aerosolpartikel und querempfindliche Gase.

Die Molekülrückstreuung und Extinktion kann aus der Anzahldichte der Luft mit genügender Genauigkeit ermittelt werden, wenn man Bodenwerte von Druck und Temperatur kennt und eine Standardatmosphäre zugrunde legt.

Auch die Korrekturterme

$$B \equiv \frac{1}{2\Delta\sigma_{O_3}} \left(\frac{d}{dz} \ln \frac{\beta_{on}(z)}{\beta_{off}(z)} \right) \quad (4.16)$$

und

$$E \equiv -\frac{1}{\Delta\sigma_{O_3}} \Delta\alpha_{aer}(z) \quad (4.17)$$

müssen in der Regel berücksichtigt werden. Dazu berechnet man meist ein Aerosolrückstreuprofil aus dem nicht absorbierten offline-Signal unter Verwendung eines Inversionsalgorithmus nach Fernald oder Klett und unter der Annahme eines bekannten höhenkonstanten Lidar-Verhältnisses. Außerdem müssen die Wellenlängenabhängigkeiten von α_{aer} und β_{aer} und ein Eichwert für $\beta_{aer}(z_0)$ in einer festen Höhe vorgegeben werden. Die Extinktion durch andere Gase wie Sauerstoff, Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid, Toluol und Phenol (Brassington, 1981; Cann et al., 1984; Schneider et al., 1987; Thomsen, 1990; Etzkorn et al., 1999) ist klein oder kann ebenfalls korrigiert werden. Tabelle 4.1 zeigt die für das MPI-DIAL relevanten Wellenlängen mit den Absorptionsquerschnitten der jeweiligen Gase.

Daraus ergeben sich Abschätzungen für die jeweiligen Korrekturfaktoren. Diese sollen so ausgedrückt werden, daß direkt ablesbar ist, welchen Ozondichtefehler (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) eine

Gas	248.5	258.5	263.8	268.5	277.1	280.2
O ₃	1082	1122	1000	830	509	395
SO ₂	n.bek.	n.bek.	n.bek.	64.5	78.1	87.9
NO ₂	1.8	2.2	2.6	3.0	4.7	5.7
O ₂	$6.9 \cdot 10^{-4}$	$1.3 \cdot 10^{-4}$	$1.4 \cdot 10^{-4}$	$8.0 \cdot 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$
Toluol	< 10	50	40	30	< 10	< 10
Phenol	< 100	< 100	ca. 200	ca. 1100	ca. 200	< 50

Gas	286.4	291.9	305.8	313.2	319.8	Autor
O ₃	212	107	17	7	3	[1]
SO ₂	63.2	80.4	22	20	n.bek.	[2], [3]
NO ₂	7.7	10.1	15.4	19.9	25.2	[4]
O ₂	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	$< 10^{-5}$	[5]
Toluol	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	[6]
Phenol	< 50	< 50	< 50	< 50	< 50	[6]

Tabelle 4.1: Absorptionsquerschnitte für im UV absorbierende Gase in 10^{-24}m^2 für beim MPI-Lidar relevante Wellenlängen in nm. Sie stammen aus [1]: Molina und Molina, 1986; [2]: Thomsen, 1990 ; [3]: Brassington, 1981; [4]: Schneider et al., 1987; [5]: Cann et al., 1984; [6]: Etzkorn et al., 1999.

Wellenlängenpaar	F _{SO₂}	F _{NO₂}	F _{Toluol}	F _{Phenol}
268 nm / 292 nm	-0.0165	-0.0103	+0.022	≈ +0.7
277 nm / 313 nm	+0.0868	-0.0316	≈ 0	≈ +0.15
292 nm / 320 nm	+0.4356	-0.1515	≈ 0	≈ 0

Tabelle 4.2: Querempfindlichkeitsfaktor für die beim MPI-DIAL benutzten Wellenlängenkombinationen.

Dichte des querempfindlichen Gases von 1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ bewirkt, falls keine Korrekturen erfolgen:

$$\Delta\rho_{O_3,q} = \frac{M_{O_3}}{M_q} \frac{\Delta\sigma_q}{\Delta\sigma_{O_3}} \rho_q \quad , \quad (4.18)$$

$$\Delta\rho_{O_3,q} = F \cdot \rho_q \quad , \quad (4.19)$$

wenn M die Molekülmasse, ρ die Dichte und $\Delta\sigma$ den differentiellen Absorptionsquerschnitt bedeuten und die Indizes O_3 und q für Ozon bzw. das querempfindliche Gas stehen. Der Querempfindlichkeitsfaktor F gibt also an, welcher Anteil des querempfindlichen Gases als Ozon interpretiert wird.

Aus Tabelle 4.2 ist ersichtlich, daß das Wellenlängenpaar 268 nm/292 nm hier nur geringe Querempfindlichkeiten aufweist. Weniger als 2% der Dichte des querempfindlichen Gases, sei es Schwefeldioxid oder Stickstoffdioxid, wird als Ozon interpretiert. Da beide Gase eher geringere Dichten als Ozon aufweisen, sind die Querempfindlichkeiten vernachlässigbar, bzw. müssen nur bei extrem hohen Verschmutzungen in Betracht gezogen werden. Zu einigen flüchtigen organischen Verbindungen existieren im UV hohe Querempfindlichkeitsfaktoren, z.B. zu Phenol und Toluol (Etzkorn et al., 1999). Diese spielen aber aufgrund der kleinen Dichten dieser Gase, die im Bereich weniger $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (Toluol) bzw. unter 1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (Phenol) liegen, keine Rolle für die Ozonmessung mit dem Wellenlängenpaar 268 nm/292 nm.

Etwas empfindlicher ist das Wellenlängenpaar 277 nm/313 nm, wo ca. 9% des SO_2 als Ozon interpretiert wird. In den meisten Fällen ist aber auch das vernachlässigbar. Sehr empfindlich reagiert hingegen das Wellenlängenpaar 292 nm/320 nm auf eine hohe SO_2 -Dichte. Da dieses Wellenlängenpaar aufgrund anderer Querempfindlichkeiten zur Aerosolstreuung (siehe dazu Kapitel 5) ohnehin nur in der freien Troposphäre verwendbar ist, kann diese Querempfindlichkeit aufgrund der dort vorherrschenden geringen SO_2 - und NO_2 -Dichten aber ebenfalls vernachlässigt werden.

Die Sauerstoffabsorption spielt nur zwischen 248 nm und 268 nm eine Rolle. Die Dichte ist ebenso wie bei der Rayleigh-Korrektur gut bekannt, die Absorptionsquerschnitte haben aber einige Unsicherheiten. Es handelt sich um sehr schmale Linien mit geringem Absorptionsquerschnitt ($\sigma_{O_2} < 10^{-28} \text{ m}^2$), die aufgrund der stets überlagerten Ozonabsorption nur sehr schwer zu messen sind. Daher ist nur eine Fehlerabschätzung möglich. Vergleiche von Lidar-Messungen mit anderen Meßverfahren haben aber die Richtigkeit der angenommenen Absorptionsquerschnitte bei 268 nm bestätigt (Grabbe et al., 1996). Die Wellenlänge 248 nm wird aufgrund ihrer hohen Absorption nicht detektiert und braucht daher hier nicht näher betrachtet werden.

4.4 Ramangestütztes DIAL / Dreiwellenlängenverfahren

Jede Kombination von zwei Lidar-Gleichungen bei unterschiedlichen Wellenlängen im UV enthält fünf Sätze unbekannter Parameter. Es handelt sich um Aerosolextinktion und -rückstreuung, beide abhängig von der Höhe und der Wellenlänge, sowie die Ozonanzahldichte in Abhängigkeit von der Höhe. Drei Lidar-Gleichungen haben sieben Sätze unbekannter Parameter, nämlich zusätzlich die Aerosolextinktion und -rückstreuung bei der dritten Wellenlänge, nimmt man aber an, daß man die Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolextinktion und -rückstreuung für alle drei Wellenlängen mit einer Funktion beschreiben kann, so verbleiben fünf unbekannte Parameter.

Bisher wurden 3 Lidar-Gleichungen durch ein Iterationsschema zwischen einer DIAL- und einer Raman-Lidar-Gleichung oder zwei DIAL-Gleichungen gelöst (Papayannis et al., 1990). Um eine langwierige Iteration zu vermeiden und um das Problem der Lösung von drei Lidar-Gleichungen besser zu verstehen, wurde nach einer analytischen Lösung gesucht. Diese Lösung wurde zunächst für drei elastische Lidar-Gleichungen untersucht, sie gilt aber nach Ersetzen der elastischen durch die Raman-Rückstreuung und der entsprechenden Absorptionsquerschnitte der elastisch gestreuten Wellenlänge durch die für elastisch und ramangestreut ebenso für zwei elastisch getreute und ein ramangestreutes Signal. Hier wird nur die übersichtlichere Lösung für drei elastische Lidar-Gleichungen gezeigt und die nötige Substitution zum Übergang auf eine Raman-Lidar-Gleichung und zwei elastische Lidar-Gleichungen dargestellt (Matthias, 1993).

Bei drei unabhängigen gemessenen Signalen sollte man drei Unbekannte eliminieren können, die beiden verbleibenden müssen vorgegeben werden. Da sich die Wellenlängenabhängigkeiten der Aerosolparameter noch am ehesten aus Modellrechnungen ermitteln lassen, wurde für die Lösung angenommen, daß diese bekannt und höhenkonstant sind. Eine Annahme, die in der Realität sicher nicht vollständig richtig ist, da sich die Zusammensetzung der Aerosole und damit ihre Eigenschaften mit der Höhe ändern. Alle anderen Parameter variieren aber deutlich stärker von Fall zu Fall, so daß es die geringsten Fehler verspricht, die Wellenlängenabhängigkeiten als bekannt vorauszusetzen.

Die Gesamttextinktion $\alpha(\lambda, z)$ ergibt sich als Summe der Ozonextinktion, Molekülextinktion, Aerosolextinktion und Extinktion durch andere Gase (hier spielt hauptsächlich Sauerstoff eine Rolle). Diese Terme lassen sich alle in einen höhenabhängigen und einen wellenlängenabhängigen Anteil separieren. Für die Ozonextinktion gilt

$$\alpha_{O_3}(\lambda, z) = N_{O_3}(z) \sigma_{O_3}(\lambda) \quad , \quad (4.20)$$

mit der Anzahldichte des Ozons $N_{O_3}(z)$ und dem Ozonabsorptionsquerschnitt σ_{O_3} . Die Molekülextinktion wird als bekannt bzw. berechenbar angenommen und braucht nicht weiter aufgespalten werden. Bei der Aerosolrückstreuung und -extinktion ist die Situation komplexer, da diese Funktionen der Größenverteilung der Partikel, ihrer Zusammensetzung aus unterschiedlichen Quellen und der relativen Feuchte sind. Allerdings zeigen Modellrechnungen, die auf Daten von d'Almeida et al. (1991) zurückgreifen (Völger, 1993), daß der folgende Ansatz eine gute Näherung darstellt:

$$\alpha_{aer}(\lambda, z) = C_{aer}(z) \lambda^a \quad , \quad (4.21)$$

$$\beta_{aer}(\lambda, z) = D_{aer}(z) \lambda^b \quad . \quad (4.22)$$

Der Parameter a variiert nur schwach mit der Wellenlänge im Bereich relativer Feuchten zwischen 10% und 95% und die Werte für maritim verschmutzte und urbane Aerosolpartikel sind fast gleich. Letzere dürften die häufigsten Aerosoltypen in Norddeutschland sein. Für b ist es etwas schwieriger, da die Modellrechnungen ein Maximum der Aerosolrückstreuung bei ca. 300 nm zeigen und die Annahme eines Potenzgesetzes für die Wellenlängenabhängigkeit nicht gilt. Dennoch wird b in den folgenden Rechnungen als Konstante behandelt.

Mit den eben genannten Annahmen kann man also aus drei Lidar-Gleichungen die drei unbekannt Funktionen C_{aer} , D_{aer} und N_{O_3} bestimmen (Matthias, 1993; Matthias et al., 1994). Nachdem man $N_{O_3}(z)$ und $C_{aer}(z)$ eliminiert hat, erhält man eine Gleichung für $D_{aer}(z)$. Es gilt

$$w(D_{aer}) \equiv \left(\frac{A_1}{D_{aer}\lambda_1^b + B_1} \right)^{\sigma_1} \cdot \left(\frac{A_2}{D_{aer}\lambda_2^b + B_2} \right)^{\sigma_2} \cdot \left(\frac{A_3}{D_{aer}\lambda_3^b + B_3} \right)^{\sigma_3} - 1 = 0 \quad (4.23)$$

Der Übersichtlichkeit halber sind dabei einige Kurzschreibweisen eingeführt worden. Es gilt $\sigma_1 = \sigma_{O_3}(\lambda_2)\lambda_3^a - \sigma_{O_3}(\lambda_3)\lambda_2^a$, $\sigma_2 = \sigma_{O_3}(\lambda_3)\lambda_1^a - \sigma_{O_3}(\lambda_1)\lambda_3^a$, $\sigma_3 = \sigma_{O_3}(\lambda_1)\lambda_2^a - \sigma_{O_3}(\lambda_2)\lambda_1^a$, $A_i = (P(\lambda, z)z^2/P_0(\lambda)C) \cdot \exp(2 \int_0^z \alpha_{mol}(\lambda_i, \zeta) d\zeta)$ und $B_i = \beta_{mol}(\lambda_i, z)$, wobei jeweils $i = 1, 2, 3$.

Das Problem ist soweit reduziert, daß jetzt nur noch die Nullstelle der Funktion $w(D_{aer})$ gefunden werden muß. Dies läßt sich mit Hilfe eines Nullstellensuchprogramms sehr einfach bewerkstelligen. Für geringe Werte des Streuverhältnisses ($\beta_{aer}/\beta_{mol} < 0.2$) läßt sich sogar eine explizite Lösung für $D_{aer}(z)$ angeben (siehe Anhang A). Dieser Fall ist zwar nicht selten, jedoch reicht dann meist auch die DIAL-Gleichung zur exakten Bestimmung des Ozonprofils, da die Aerosolkorrekturen dann klein sind.

Ähnlich wie bei einem Inversionsalgorithmus müssen in einer Gleichung für die Aerosolrückstreuung allerdings die Systemkonstanten, die hier in den $P_N(\lambda, z)$ enthalten sind, vorgegeben werden. Dies geschieht am einfachsten, indem man β_{aer} in einer Eichhöhe z_0 als bekannt voraussetzt. Durch Variation der Eichung erhält man unterschiedliche Absolutwerte für $D_{aer}(z)$ (und damit für das Lidar-Verhältnis), allerdings ändert sich der Verlauf der Funktion nur sehr wenig. Da aber die Ableitung des Logarithmus des Rückstreckoeffizienten nach der Höhe in die Ozonberechnung eingeht, hat ein konstanter Faktor keinen Einfluß auf die Ozonberechnung, eine falsche Eichung erzeugt also keinen nennenswerten Fehler im Ozonprofil.

Die Gleichungen für N_{O_3} und C_{aer} lauten:

$$N_{O_3}(z) = \frac{1}{2\sigma_3} \cdot \frac{d}{dz} \ln \left(\left(\frac{A_2}{D_{aer}(z)\lambda_2^b + B_2} \right)^{\lambda_1^a} \left(\frac{D_{aer}(z)\lambda_1^b + B_1}{A_1} \right)^{\lambda_2^a} \right) \quad (4.24)$$

$$C_{aer}(z) = -\frac{1}{2\lambda_i^a} \left(\frac{d}{dz} \ln \left(\frac{P_N(\lambda_i, z)}{\beta(\lambda_i, z)} \right) + 2\alpha_{mol}(\lambda_i, z) + 2N_{O_3}(z)\sigma_{O_3}(\lambda_i) \right), \quad i = 1, 2, \quad (4.25)$$

wobei hier $P_N(\lambda, z) = (P(\lambda, z)z^2)/(P_0(\lambda)C)$. Das Lidar-Verhältnis berechnet man dann einfach als Quotient der nunmehr bekannten Werte für α_{aer} und β_{aer} . Der Übergang dieser Lösung auf die Lösung für zwei elastische und eine Raman-Lidar-Gleichung kann nun mit folgenden Ersetzungen sehr einfach erfolgen:

$$2\lambda_3^a \Rightarrow \lambda_1^a + \lambda_R^a, \quad (4.26)$$

$$P_N(\lambda_3, z) \Rightarrow P_N(\lambda_1, \lambda_R, z) \quad , \quad (4.27)$$

$$2\sigma_{O_3}(\lambda_3) \Rightarrow \sigma_{O_3}(\lambda_1) + \sigma_{O_3}(\lambda_R) \quad , \quad (4.28)$$

$$2\alpha_{mol}(\lambda_3) \Rightarrow \alpha_{mol}(\lambda_1) + \alpha_{mol}(\lambda_R) \quad , \quad (4.29)$$

$$D_{aer}(z)\lambda_3^b + \beta_{mol}(\lambda_3, z) \Rightarrow \beta_R(\lambda_R, z) \quad , \quad (4.30)$$

wobei angenommen wurde, daß λ_1 die Anregungswellenlänge für die Raman-Streuung in der Atmosphäre ist und daß die Streuung an Sauerstoff oder Stickstoff stattfindet, da dann der Raman-Rückstreukoeffizient $\beta_R(\lambda_R, z) = N_R(z)(d\sigma(\lambda_1)/d\Omega)_R$ bekannt ist. Weitere Details der Herleitung der Dreiwellenlängengleichung sind in Matthias (1993) zu finden.

4.5 Raman-DIAL

Es gilt die Raman-Lidar-Gleichung im UV unter Berücksichtigung der Ozonabsorption für $\lambda < 320$ nm und der Sauerstoffabsorption für $\lambda < 270$ nm. Diese kann man nach der Aerosolextinktion auflösen, wie dies auch in Wellenlängenbereichen ohne Ozonabsorption üblich ist (Ansmann et al., 1992).

$$\begin{aligned} \alpha_{aer}(\lambda_{on}, z) + \alpha_{aer}(\lambda_R, z) &= -\frac{d}{dz} \ln(P_R(z)z^2) + \frac{d}{dz} \ln \beta_R \\ &\quad - \alpha_{mol}(\lambda_{on}, z) - \alpha_{mol}(\lambda_R, z) \\ &\quad - \alpha_{O_3}(\lambda_{on}, z) - \alpha_{O_3}(\lambda_R, z) \\ &\quad - \alpha_{O_2}(\lambda_{on}, z) - \alpha_{O_2}(\lambda_R, z) \quad . \end{aligned} \quad (4.31)$$

Um die Aerosolextinktion bei einer Wellenlänge zu ermitteln, setzt man eine bekannte Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolextinktion voraus. Sei $\alpha_{aer}(\lambda) \propto \lambda^a$ (Ångström-Gesetz), so folgt

$$\alpha_{aer}(\lambda_{on}) = \left(\frac{\lambda_{on}}{\lambda_R}\right)^a \alpha_{aer}(\lambda_R) \quad , \quad (4.32)$$

und wenn die Raman-Signale von zwei unterschiedlichen Anregungswellenlängen miteinander verknüpft werden sollen auch

$$\alpha_{aer}(\lambda_{on_1}) = \left(\frac{\lambda_{on_1}}{\lambda_{on_2}}\right)^a \alpha_{aer}(\lambda_{on_2}) \quad . \quad (4.33)$$

Mit $\beta_R = N_R(z)(\frac{d\sigma}{d\Omega}(\lambda_1))_R$ und $\frac{d}{dz} \ln(\frac{d\sigma}{d\Omega}(\lambda_1))_R = 0$ ergibt sich

$$\begin{aligned} \alpha_{aer}(\lambda_{on}) \left(1 + \left(\frac{\lambda_R}{\lambda_{on}}\right)^a\right) &= \frac{d}{dz} \ln \left(\frac{N(z)}{P_{R_i}(z)z^2}\right) \\ &\quad - \alpha_{mol}(\lambda_{on}, z) - \alpha_{mol}(\lambda_R, z) \\ &\quad - \alpha_{O_3}(\lambda_{on}, z) - \alpha_{O_3}(\lambda_R, z) \\ &\quad - \alpha_{O_2}(\lambda_{on}, z) - \alpha_{O_2}(\lambda_R, z) \quad . \end{aligned} \quad (4.34)$$

Stellt man zwei solcher Formeln für unterschiedliche Anregungswellenlängen auf und benutzt anschließend die Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolextinktion bei den jeweiligen Anregungswellenlängen, so kann man mit den Abkürzungen $K_1 = 1/(1 + (\frac{\lambda_{R_1}}{\lambda_{on_1}})^a)$ und

$K_2 = 1/\left(\left(\frac{\lambda_{on1}}{\lambda_{on2}}\right)^a + \left(\frac{\lambda_{on1}\lambda_{R2}}{\lambda_{on2}^2}\right)^a\right)$ eine Gleichung bilden, in der die Aerosolextinktion nicht mehr vorkommt.

$$\begin{aligned}
& K_1 \left(\frac{d}{dz} \ln \left(\frac{N(z)}{P_{R_1}(z)z^2} \right) - \alpha_{mol}(\lambda_{on}, z) - \alpha_{mol}(\lambda_{R_1}, z) \right. \\
& \quad \left. - \alpha_{O_3}(\lambda_{on}, z) - \alpha_{O_3}(\lambda_{R_1}, z) - \alpha_{O_2}(\lambda_{on}, z) - \alpha_{O_2}(\lambda_{R_1}, z) \right) = \\
& K_2 \left(\frac{d}{dz} \ln \left(\frac{N(z)}{P_{R_2}(z)z^2} \right) - \alpha_{mol}(\lambda_{on}, z) - \alpha_{mol}(\lambda_{R_2}, z) \right. \\
& \quad \left. - \alpha_{O_3}(\lambda_{on}, z) - \alpha_{O_3}(\lambda_{R_2}, z) - \alpha_{O_2}(\lambda_{on}, z) - \alpha_{O_2}(\lambda_{R_2}, z) \right) . \quad (4.35)
\end{aligned}$$

Diese Gleichung läßt sich mit $\alpha_{O_3}(\lambda, z) = N_{O_3}(z)\sigma_{O_3}(\lambda)$ nach der Anzahldichte $N_{O_3}(z)$ des Ozons auflösen:

$$\begin{aligned}
& K_1\alpha_{O_3}(\lambda_{R_1}, z) + K_1\alpha_{O_3}(\lambda_{on1}, z) - K_2\alpha_{O_3}(\lambda_{R_2}, z) - K_2\alpha_{O_3}(\lambda_{on2}, z) = \\
& K_1 \frac{d}{dz} \ln \left(\frac{N(z)}{P_{R_1}(z)z^2} \right) - K_2 \frac{d}{dz} \ln \left(\frac{N(z)}{P_{R_2}(z)z^2} \right) + \\
& (K_2 - K_1)\alpha_{mol}(\lambda_{on}, z) + K_2\alpha_{mol}(\lambda_{R_2}, z) - K_1\alpha_{mol}(\lambda_{R_1}, z) + \\
& (K_2 - K_1)\alpha_{O_2}(\lambda_{on}, z) + K_2\alpha_{O_2}(\lambda_{R_2}, z) - K_1\alpha_{O_2}(\lambda_{R_1}, z) , \quad (4.36)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
N_{O_3}(z) &= \frac{1}{K_1\sigma_{O_3}(\lambda_{R_1}, z) + K_1\sigma_{O_3}(\lambda_{on1}, z) - K_2\sigma_{O_3}(\lambda_{R_2}, z) - K_2\sigma_{O_3}(\lambda_{on2}, z)} \times \\
& \left(K_1 \frac{d}{dz} \ln \left(\frac{N(z)}{P_{R_1}(z)z^2} \right) - K_2 \frac{d}{dz} \ln \left(\frac{N(z)}{P_{R_2}(z)z^2} \right) + \right. \\
& (K_2 - K_1)\alpha_{mol}(\lambda_{on}, z) + K_2\alpha_{mol}(\lambda_{R_2}, z) - K_1\alpha_{mol}(\lambda_{R_1}, z) + \\
& \left. (K_2 - K_1)\alpha_{O_2}(\lambda_{on}, z) + K_2\alpha_{O_2}(\lambda_{R_2}, z) - K_1\alpha_{O_2}(\lambda_{R_1}, z) \right) . \quad (4.37)
\end{aligned}$$

Die Raman-DIAL-Gleichung lautet dann

$$\begin{aligned}
N_{O_3}(z) &= \frac{1}{\Delta\sigma_{RD}} \left(K_2 \frac{d}{dz} \ln(P_{R_2}(z)z^2) - K_1 \frac{d}{dz} \ln(P_{R_1}(z)z^2) \right. \\
& \quad \left. + B_{RD} + R + O \right) , \quad (4.38)
\end{aligned}$$

$$B_{RD} \equiv (K_1 - K_2) \frac{d}{dz} \ln(N(z)) , \quad (4.39)$$

$$R \equiv (K_2 - K_1)\alpha_{mol}(\lambda_{on}, z) + K_2\alpha_{mol}(\lambda_{R_2}, z) - K_1\alpha_{mol}(\lambda_{R_1}, z) , \quad (4.40)$$

$$O \equiv (K_2 - K_1)\alpha_{O_2}(\lambda_{on}, z) + K_2\alpha_{O_2}(\lambda_{R_2}, z) - K_1\alpha_{O_2}(\lambda_{R_1}, z) , \quad (4.41)$$

$$\begin{aligned}
\Delta\sigma_{RD} &\equiv K_1\sigma_{O_3}(\lambda_{R_1}, z) + K_1\sigma_{O_3}(\lambda_{on1}, z) \\
& \quad - K_2\sigma_{O_3}(\lambda_{R_2}, z) - K_2\sigma_{O_3}(\lambda_{on2}, z) . \quad (4.42)
\end{aligned}$$

Der Ozonwert läßt sich also wie schon bei der DIAL-Gleichung als Quotient der höhenkorrigierten Rückstreusignale berechnen, wobei hier noch die Koeffizienten K_1 und K_2 beachtet werden müssen. Sie enthalten als einzigen vorzugebenden Parameter den Ångström-Koeffizienten a , der die Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolextinktion angibt. B_{OD} , R und O lassen sich als Korrekturterme auffassen, deren Wert und deren Fehler man getrennt berechnen kann.

Kapitel 5

Simulationsrechnungen und Fehlerbetrachtung

Die vorgestellten Auswerteverfahren sollen hinsichtlich ihrer statistischen und systematischen Fehler untersucht und verglichen werden. Dies ist wichtig, um im Einzelfall beurteilen zu können, welches der Auswerteverfahren bei der jeweiligen Fragestellung am besten benutzt wird. Die Fehlerbetrachtung geschieht zum einen mittels analytischer Berechnung der Fehlerterme aus den im letzten Kapitel gegebenen Gleichungen (siehe dazu Anhang A), zum anderen, wo eine analytische Betrachtung nicht möglich oder sehr aufwendig ist, mittels Simulationsrechnungen an einer Beispielatmosphäre. Betrachtet werden hier meist die für das MPI-UV-Lidar relevanten Wellenlängen bzw. Wellenlängenkombinationen. Dennoch sind viele der gewonnenen Aussagen für einen weiten Anwendungsbereich gültig. Die statistischen Fehler sind beim Lidar zum einen durch das Rauschen der Detektoren und der nachfolgenden Elektronik bedingt. Diese Effekte spielen bei sehr hohen Rückstreuintensitäten eine Rolle, da hier das Ausgangssignal $P(\lambda, z)$ des Detektors als Strom gemessen wird. Bei relativ kleinen Intensitäten wie den Raman-Signalen werden dagegen Einzelphotonen gezählt, deren Verteilung durch die Poisson-Verteilung gegeben ist und deren Fehler dann durch $\sqrt{P(\lambda, z)}$ bestimmt ist.

Die systematischen Fehler liegen in der ungenügenden Kenntnis von Parametern, die für die Lösung der entsprechenden Gleichung zur Bestimmung der Ozon- oder Aerosolverteilung nötig sind. Bei der Bestimmung eines Aerosolprofils sind dies der Eichwert $\beta_{aer}(z_0)$ sowie das Lidar-Verhältnis. Beim Ozon gehören die Absorptionsquerschnitte von querempfindlichen Gasen oder des Ozons selbst, die Druck- und Temperaturverteilung in der Atmosphäre und die Verteilung von Aerosolpartikeln sowie deren Streu- und Absorptionseigenschaften dazu. Hohe systematische Fehler betreffen hauptsächlich die aus einem gemessenen Aerosolprofil bestimmte Aerosolkorrektur, die bei allen im UV günstigen Wellenlängenkombinationen zur Bestimmung der Ozondichte nicht vernachlässigt werden darf.

Die statistischen Fehler lassen sich durch ein höheres Empfangssignal, das man z.B. durch Erhöhung der Ausgangsenergie oder Vergrößerung der Empfängerfläche erreichen kann, vermindern. Ebenso verringert zeitliches und räumliches Mitteln den statistischen Fehler. Dieser Fehler kann daher im Prinzip sehr klein werden, allerdings sind hier apparative Grenzen gesetzt. Die systematischen Fehler hingegen lassen sich durch geeignete Auswertemethoden oder durch Zusatzmessungen bisher unbekannter Parameter vermindern. Völlig zu vermeiden sind sie allerdings nicht.

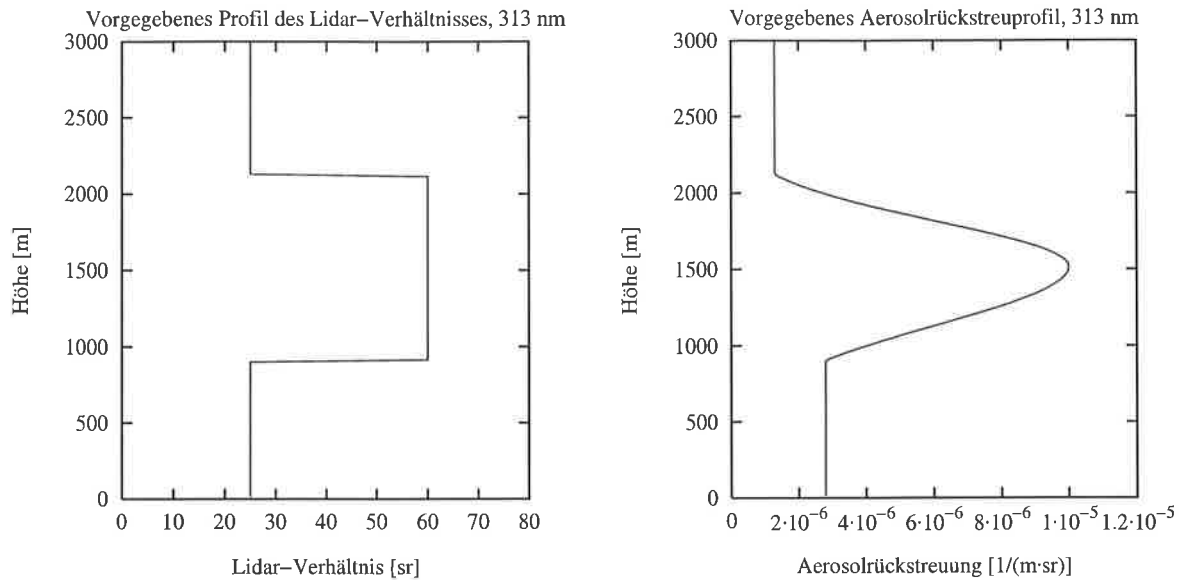


Abbildung 5.1: In den Simulationsrechnungen vorgegebene Profile der Aerosolrückstreuung und des Lidar-Verhältnisses bei 313 nm.

Die Berechnung der statistischen Fehler kann in den meisten Fällen analytisch erfolgen und die Fehlergröße kann dann oft sehr genau angegeben werden. Bei den meisten systematischen Fehlern ist dies schwieriger, die Fehler können oft nur durch Variation der geschätzten Größen innerhalb eines Wertebereiches, in dem diese nach bester Kenntnis liegen, ermittelt werden. Dazu dient hier ein Simulationsprogramm, mit dem „künstliche“ Meßdaten erzeugt werden können, aus denen dann mit den jeweiligen Auswerteprogrammen die Ozondichte berechnet werden kann und deren Abweichung vom vorgegebenen Ozonprofil bestimmt werden kann.

Die Simulation wurde mit einem Aerosolrückstreuprofil mit scharfen Gradienten (positiven als auch negativen) gerechnet. Nach Untersuchungen von Bösenberg (1997), der zahlreiche Messungen vom Juni und Juli 1993 hinsichtlich der vorliegenden Aerosolgradienten untersucht hat, lagen in ca. 10% der betrachteten Fälle schärfere Gradienten als in diesem Modell vor. Das Lidar-Verhältnis wurde höhenabhängig gewählt und enthält hohe Werte im Bereich hoher Aerosolrückstreuung und niedrige Werte in den übrigen Höhen (Abb. 5.1). Diese Annahme beruht auf den je nach Aerosoltyp und Feuchte unterschiedlichen Lidar-Verhältnissen, wie sie in Kapitel 3 gezeigt wurden und repräsentiert eine inhomogene Aerosolverteilung mit unterschiedlichen Aerosoltypen in unterschiedlichen Höhen. Die Wellenlängenabhängigkeiten der Aerosolrückstreuung und -extinktion wurden nach den Untersuchungen von Völger (1993) zu $a = -0.6 \pm 0.3$ und $b = -0.2 \pm 0.5$ gewählt. Obwohl auch diese Werte mit der Feuchte und damit auch mit der Höhe variieren, wurden sie der Einfachheit halber als höhenkonstant angenommen. Durch die unterschiedlichen Wellenlängenabhängigkeiten von Aerosolrückstreuung und -extinktion variiert auch das Lidar-Verhältnis schwach mit der Wellenlänge, die in den Abbildungen gegebenen Werte gelten daher nur bei 313 nm.

Die Fehler der einzelnen Verfahren sollen zunächst getrennt betrachtet werden. Anschließend erfolgt ein Vergleich der Verfahren unter Annahme der Modellatmosphäre.

5.1 Inversionsverfahren

Für das iterative Verfahren zur Bestimmung eines Aerosolrückstreuprofils aus einer Lidar-Messung bei nur einer Wellenlänge nach Fernald (1984) (siehe Abschnitt 4.1) ist der statistische Fehler meist klein. Er läßt sich berechnen, wenn die Signalfehler bekannt sind. Die Ableitung hierzu befindet sich im Anhang, Abschnitt A.1. Beim MPI-DIAL werden die statistischen Fehler der Signale mitgemessen, so daß ein statistischer Fehler für die Aerosolrückstreuung angegeben werden kann. Für ein Beispielpprofil vom 11.8.98, 7:22 bis 7:27 UT wurde der Fehler für die Wellenlänge 320 nm bei einer Mittelung über 5 min (3000 Laserpulse) und 120 m in der Höhe berechnet. Er lag bis in 6000 m unter $10^{-7}(\text{m} \cdot \text{sr})^{-1}$ und ist daher selbst bei kurzen Mittelungszeiten im Bereich der unteren Troposphäre vernachlässigbar.

Entscheidender sind die systematischen Fehler durch Annahme eines falschen Lidar-Verhältnisses S oder durch falsche Eichung. Letzteres spielt insbesondere bei niedriger Bewölkung eine Rolle, wenn kein weitgehend aerosolfreier Bereich der Atmosphäre für das Lidar zugänglich ist.

Das in den Simulationen verwendete Lidar-Verhältnis wurde höhenabhängig gewählt. Das Verfahren kann daher keine exakte Reproduktion der Vorgabe liefern, wenn bei der Rechnung, wie es üblicherweise der Fall ist, ein höhenkonstantes Lidar-Verhältnis angenommen wird. Das angenommene Lidar-Verhältnis wurde zwischen 20 sr (zu klein) und 80 sr (zu groß) variiert. Die Eichung wurde in 2700 m mit dem richtigen Eichwert vorgenommen. In Abbildung 5.2 sind die Ergebnisse zu sehen. Man erkennt eine starke Überschätzung der Rückstreuung im Maximum der Verteilung um bis zu 80% bei Annahme eines in diesem Bereich zu kleinen Lidar-Verhältnisses. Wird das Lidar-Verhältnis dort, wo die höchste Rückstreuung liegt, richtig gewählt, so sind die Fehler insgesamt am kleinsten. Dies hängt damit zusammen, daß die optische Dicke in diesem Bereich dann am besten reproduziert wird. Eine Überschätzung des Lidar-Verhältnisses bewirkt eine etwas bessere Wiedergabe des tatsächlichen Rückstreuprofils als eine Unterschätzung.

Der zweite freie Parameter im Inversionsalgorithmus ist die Rückstreuung in der Eichhöhe z_0 . Sie sollte möglichst in einem Bereich kleiner Aerosolrückstreuung vorgegeben werden, da dann die Fehler bei der Schätzung in dieser Höhe nur klein sind. Die Rayleigh-Streuung läßt sich mit hoher Genauigkeit aus Bodenwerten berechnen, über die Aerosolrückstreuung liegen dagegen kaum Informationen vor.

Obwohl bei dieser Simulation auch oberhalb der Schicht mit der höchsten Aerosolrückstreuung noch eine nennenswerte Rückstreuung durch Partikel angenommen wurde, sind die Fehler durch falsche Eichung weitaus kleiner als die durch Annahme eines falschen Lidar-Verhältnisses, sofern es möglich ist, in einem Bereich kleiner Aerosolrückstreuung zu eichen. Man erkennt die für die Abwärtsintegration typische Annäherung an die „richtige“ Lösung mit zunehmender Iterationstiefe, im unteren Bereich bis 1000 m sind die Lösungen praktisch identisch. Sie weisen dann alle die gleichen Abweichungen von der Vorgabe auf, die aber durch das Lidar-Verhältnis verursacht sind. Die Eichung wurde zwischen $X \equiv (\beta_{aer}(z_0))_{ang}/(\beta_{aer}(z_0))_{korr} = 0.1 \dots 3.0$ variiert, wobei $(\beta_{aer}(z_0))_{ang}$ den für die Rechnung angenommenen Wert und $(\beta_{aer}(z_0))_{korr}$ den korrekten Eichwert bezeichnen.

Allerdings lassen sich diese Fehler in den meisten Fällen minimieren, da Bereiche geringer Aerosolrückstreuung bereits in den Lidar-Signalen erkannt werden können. Ein Verlauf der Aerosolrückstreuung wie ihn die Kurve für $X = 3.0$ zeigt, wo die Aerosolrückstreuung

mit der Höhe zunimmt, kann leicht als nicht glaubwürdig verworfen werden. Allerdings wird man aufgrund des falschen Lidar-Verhältnisses am ehesten die Kurve für $X = 0.5$ im oberen Höhenbereich als korrekt einstufen, so daß auch durch Plausibilitätsbetrachtungen zusätzliche Fehler durch die Eichung nicht zu vermeiden sind.

Dagegen stellt die Eichung einen großen Unsicherheitsfaktor dar, wenn man keinen Bereich geringer Aerosolrückstreuung identifizieren kann. Das ist insbesondere bei einer geschlossenen Wolkendecke der Fall. Dieser Fall wurde hier so simuliert, daß die Eichung in 1800 m vorgenommen wurde und dann abwärts integriert wurde. Wiederum wurde der Eichfaktor variiert ($X = 0.1 \dots 3.0$). Die Profile unterschieden sich in Absolutbetrag und Gradienten deutlich. Der Verlauf bietet aber keinen Anhaltspunkt, eines der Profile als deutlich falsch einzustufen, so daß hier sehr große Fehler durch falsche Eichung entstehen können.

Zusammengefaßt läßt sich sagen, daß die Rückrechnung von Aerosolrückstreuprofilen mit einem Inversionsalgorithmus, sei es von Klett (1981) oder Fernald (1972, 1984), aufgrund der vorzugebenden freien Parameter Lidar-Verhältnis und Eichwert sehr fehlerbehaftet sein kann. Dies ist insbesondere bei geschlossener Bewölkung und bei stark höhenabhängigem Lidar-Verhältnis der Fall. Ausführliche Untersuchungen hierzu sind bereits gemacht worden (Sasano et al., 1985; Kovalev und Moosmüller, 1994; Matsumoto und Takeuchi, 1994; Bösenberg et al., 1997b), an dieser Stelle sollten nur die Fehler, die bei Vorgabe eines solchen Simulationsprofils entstehen und ihre Auswirkungen auf die Bestimmung der Ozondichte untersucht werden.

Trotz der in speziellen Situationen sehr hohen Fehler eignet sich die Methode in vielen Fällen zur Bestimmung eines Aerosolrückstreuprofils, wenn auch die Genauigkeit oft

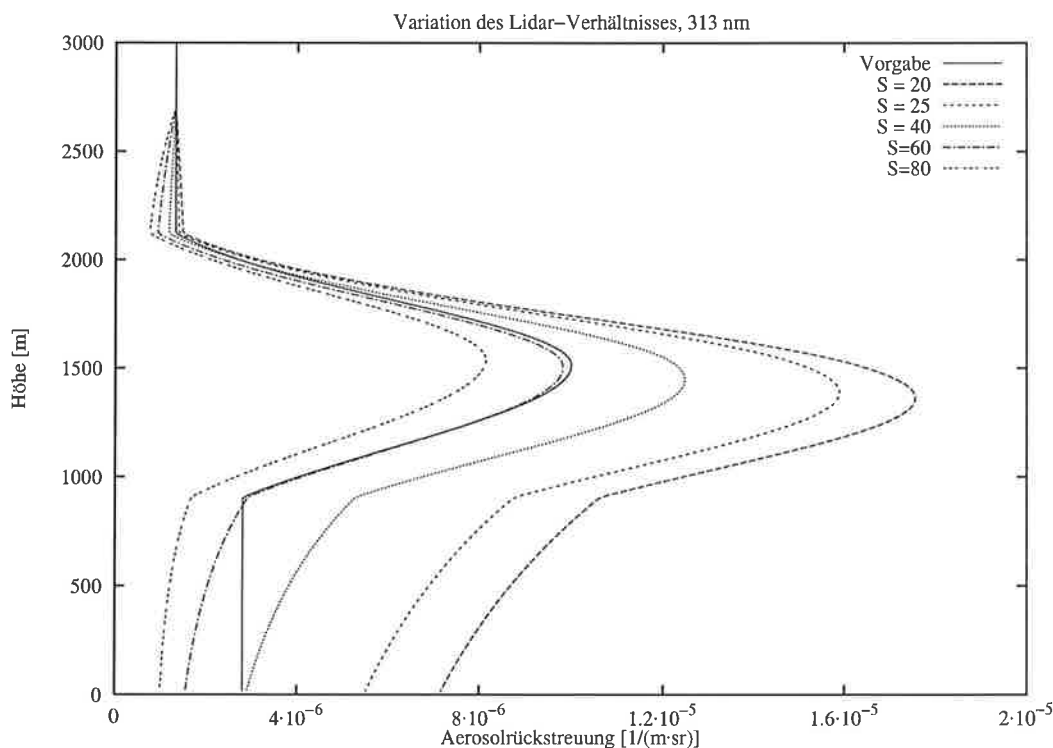


Abbildung 5.2: Simulation: Aerosolrückstreuprofile für unterschiedliche höhenkonstante Lidar-Verhältnisse, berechnet nach Fernald.

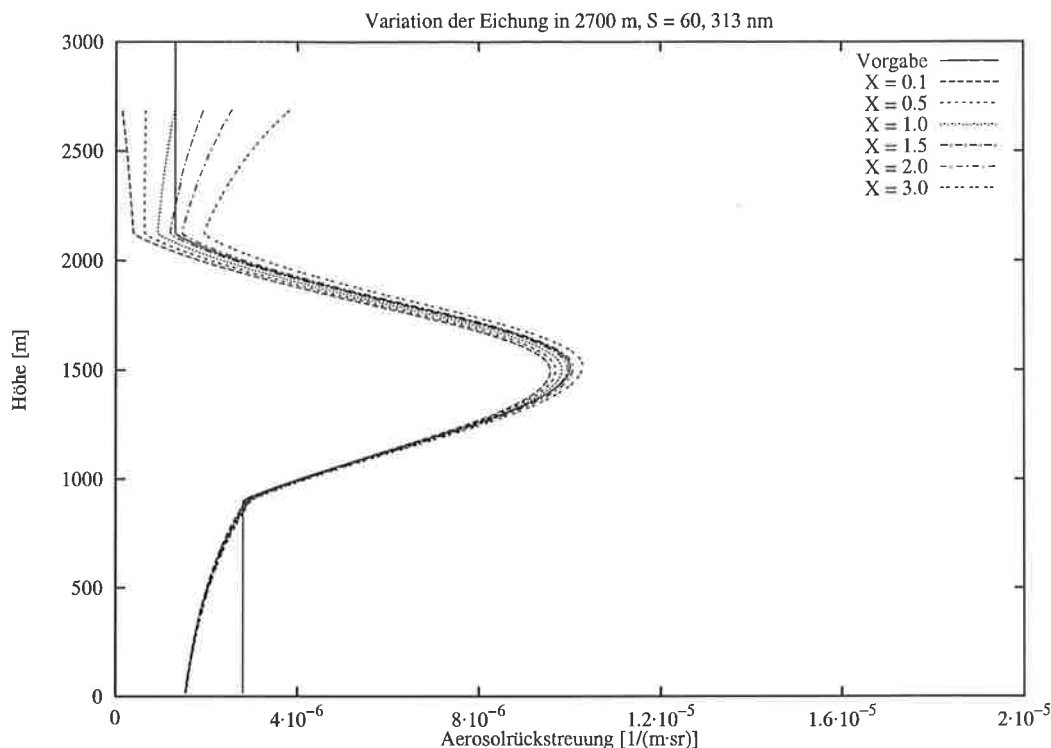


Abbildung 5.3: Rückrechnung des Rückstreuprofils mit dem Fernald-Algorithmus bei variierender Eichung ($X = 0.1 \dots 3.0$) in 2700 m.

nicht besser als 50% ist (siehe z.B. Sasano (1985)). Im wolkenfreien Fall oder auch nur bei durchbrochener Bewölkung läßt sich ein relativ genauer Eichwert finden. Im UV beträgt der Anteil der Aerosolrückstreuung an der Gesamtrückstreuung in der Eichhöhe oft nur 5% (in diesem Beispiel waren es in 2700 m 12%) oder weniger, so daß Fehler in der Abschätzung des Aerosolanteils nur geringen Einfluß haben. Zudem ist die darunter liegende Grenzschicht mit relativ hoher Aerosolrückstreuung oft gut durchmischt und es gibt einen vorherrschenden Aerosoltyp, so daß bei relativen Feuchten unterhalb von 70% keine großen Änderungen der Aerosolrückstreuung und des Lidar-Verhältnisses auftreten. Allerdings braucht man eine grobe Abschätzung des Lidar-Verhältnisses, um bessere Gesamtgenauigkeiten als oben angegeben zu erzielen. Ziel von Routinemessungen der Aerosolextinktion mit der Raman-Methode ist daher auch die Ermittlung von Richtwerten für das Lidar-Verhältnis im UV (siehe Abschnitt 8.1.4).

5.2 Raman-Lidar

Die Gleichung zur Bestimmung der Aerosolextinktion lautet

$$\alpha_{aer}(\lambda_{on}) = \frac{1}{\left(1 + \left(\frac{\lambda_R}{\lambda_{on}}\right)^a\right)} \cdot \left(\frac{d}{dz} \ln \left(\frac{N(z)}{P_R(z)z^2} \right) - \alpha_{mol}(\lambda_{on}, z) - \alpha_{mol}(\lambda_R, z) - \alpha_{O_3}(\lambda_{on}, z) - \alpha_{O_3}(\lambda_R, z) - \alpha_{O_2}(\lambda_{on}, z) - \alpha_{O_2}(\lambda_R, z) \right) \quad (5.1)$$

Die Fehler teilen sich wie folgt auf:

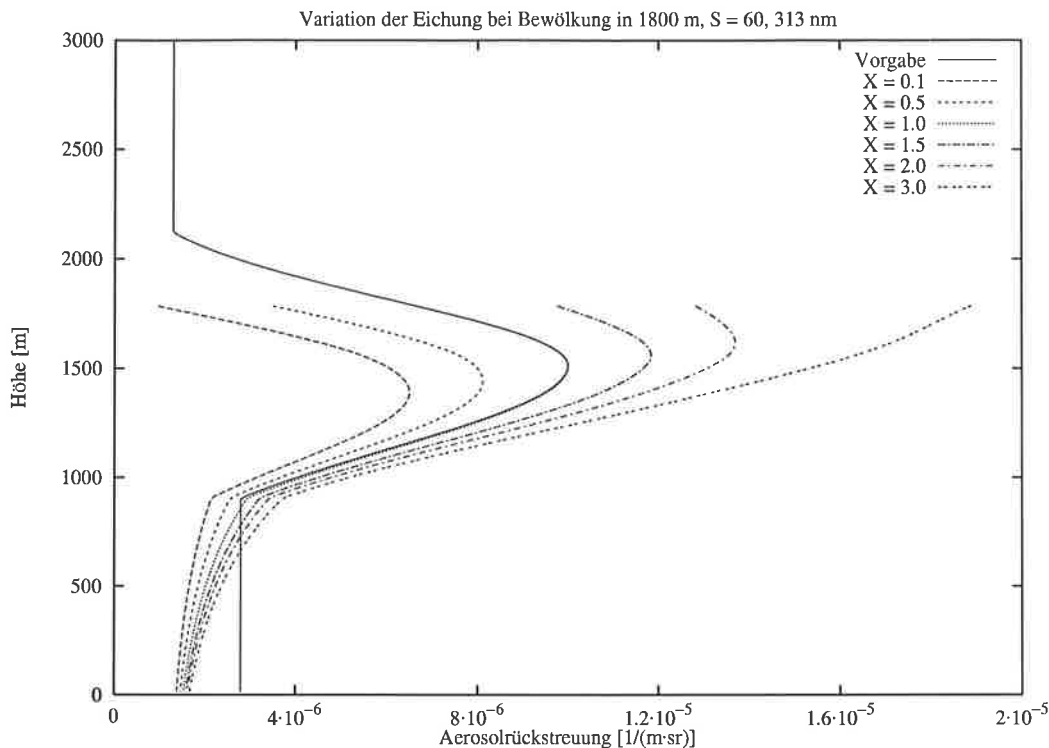


Abbildung 5.4: Rückrechnung des Rückstreuprofils mit dem Fernald-Algorithmus bei variierender Eichung ($X = 0.1 \dots 3.0$) im Bereich hoher Aerosolrückstreuung in 1800 m.

1. Fehler in der Anzahldichte des Rückstreuers Stickstoff oder Sauerstoff
2. Statistischer Fehler im Signal
3. Fehler in der Abstandsbestimmung
4. Fehler in der Rayleigh-Streukorrektur
5. Fehler in der Ozonkorrektur
6. Fehler in der Sauerstoffkorrektur

Diese Fehler können nun für typische Bedingungen quantifiziert werden, um die Größe und damit die Bedeutung der Fehler abzuschätzen. Es wird generell angenommen, daß der Ångström-Koeffizient für die Aerosolextinktion -0.6 beträgt, außerdem werden bei der Berechnung der Dichte Standardatmosphärenbedingungen ($p = 101325 \text{ Pa}$, $T = 288 \text{ K}$) angenommen. Der Einfluß des Faktors $1/(1 + (\frac{\lambda R}{\lambda_{on}})^a)$ wird hier vernachlässigt. Er beträgt für eine Ausgangswellenlänge von 351 nm (Raman-Wellenlänge von Stickstoff bei 382 nm) 0.5128 und ändert sich durch Variation von a bei allen Wellenlängenkombinationen nur um maximal 4% . Die Fehlerangaben sind ohnehin nur als Richtwerte zu verstehen und müssen im Einzelfall genau berechnet werden.

1. Fehler in der Anzahldichte

Nimmt man an, daß keine Radiosonde am Meßort gestartet wurde, aber die Bodendaten von Druck und Temperatur vorliegen (das ist bei den Messungen mit dem MPI-Lidar

immer der Fall), so kann man von einer Genauigkeit der Dichtbestimmung von besser als ca. 3% (Russell et al., 1982) ausgehen, in den meisten Fällen dürfte sie sogar besser als 1.5% sein. Das entspricht einem Temperaturfehler von 9 K bzw. 4.5 K. Typische Ableitungslängen sind bei den Raman-Verfahren ca. 240 m. Der Fehler in der Aerosolextinktion beträgt dann maximal $9 \cdot 10^{-5} \text{m}^{-1}$, in den meisten Fällen ist er kleiner als $4.5 \cdot 10^{-5} \text{m}^{-1}$. Liegt eine Radiosonde vor, so läßt sich der Dichtefehler leicht auf 0.1% senken (bei einer Meßgenauigkeit der Temperatur durch die Radiosonde von 0.3 K). Dann ist der Fehler durch die Dichtebestimmung nicht größer als $3 \cdot 10^{-6} \text{m}^{-1}$. Allerdings liegen nicht zu jedem Meßzeitpunkt Werte von Druck und Temperatur vor, so daß man insgesamt wohl auch unter Hinzuziehung einer Radiosonde von einem Fehler in der Größenordnung von 10^{-5}m^{-1} ausgehen muß. Wenn möglich sollte aber eine Radiosonde für die Dichteberechnung verwendet werden, mindestens müssen aber Bodenwerte von Druck und Temperatur zugrunde gelegt werden.

2. Statistischer Fehler im Signal

Hierfür wurde eine Simulationsrechnung durchgeführt, da der statistische Fehler extrem höhenabhängig ist und von den atmosphärischen Bedingungen abhängt. Dieser Fehler muß bei jeder Messung nach den im Anhang A gegebenen Formeln einzeln bestimmt werden, hier wird nur eine Größenordnung angegeben.

Angenommen wurde eine höhenkonstante Aerosolextinktion von 10^{-4}m^{-1} , eine Rayleigh-Atmosphäre unter Standardbedingungen und eine Emissionswellenlänge von 351 nm. Die maximale Zählrate betrage 10 MHz in 800 m Höhe, die Zahl der Laserpulse 36000 (entspricht 30 Minuten Mittelung bei 20 Hz Repetitionsrate) und die räumliche Mittelung 240 m. Unter diesen Voraussetzungen bleibt der statistische Fehler bis ca. 4500 m Höhe kleiner als $5 \cdot 10^{-5} \text{m}^{-1}$. Mittelt man im oberen Höhenbereich über 480 m in der Höhe, so bleibt der Fehler sogar bis 6000 m unter $5 \cdot 10^{-5} \text{m}^{-1}$.

In Spektralbereichen, in denen die Ozonabsorption dominant ist, wächst der Fehler sehr viel schneller. Nimmt man zusätzlich zu den obigen Voraussetzungen eine Ozondichte von $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$ an, so bleibt der Fehler für die Anregungswellenlänge 268 nm (Raman-Wellenlänge 286 nm) und eine räumliche Mittelung von 240 m bis in eine Höhe von ca. 2600 m kleiner als $5 \cdot 10^{-5} \text{m}^{-1}$. Bei Mittelung über 480 m erreicht man diesen Fehler in 3200 m. Bei verschmutzten Atmosphären mit hohen Ozondichten und hoher Aerosolextinktion können oft nur bis ca. 2000 m zuverlässige Werte der Aerosolextinktion bestimmt werden.

3. Fehler in der Abstandsbestimmung

In die Raman-Lidar-Gleichung geht das Quadrat der Entfernung des Streuvolumens vom Sender und Empfänger ein. Die Bestimmung dieses Abstands hängt entscheidend davon ab, wie genau sich der Zündzeitpunkt des Lasers in der Datenerfassung ablesen läßt. Der beim MPI-Lidar verwendete Photonen-zähler besitzt eine zeitliche Auflösung von 200 ns, das entspricht einer Ortsauflösung von 30 m. Kennt man das Zeitfenster, in dem der Lichtpuls des Lasers ausgesandt wird, so kann man zunächst von einer Genauigkeit der Ortsbestimmung von $\pm 15 \text{m}$ ausgehen. Es läßt sich aber die Lage des Pulses im Zeitfenster durch sukzessive Erhöhung der Zeitverzögerung zwischen Meßbeginn und Zünden des Lasers bestimmen. Die Länge des Pulses selbst (hier 22 ns) setzt aber eine untere Grenze für die Genauigkeit der Ortsbestimmung, die hier mit bestenfalls 5 m (entspricht 33 ns) angegeben werden soll.

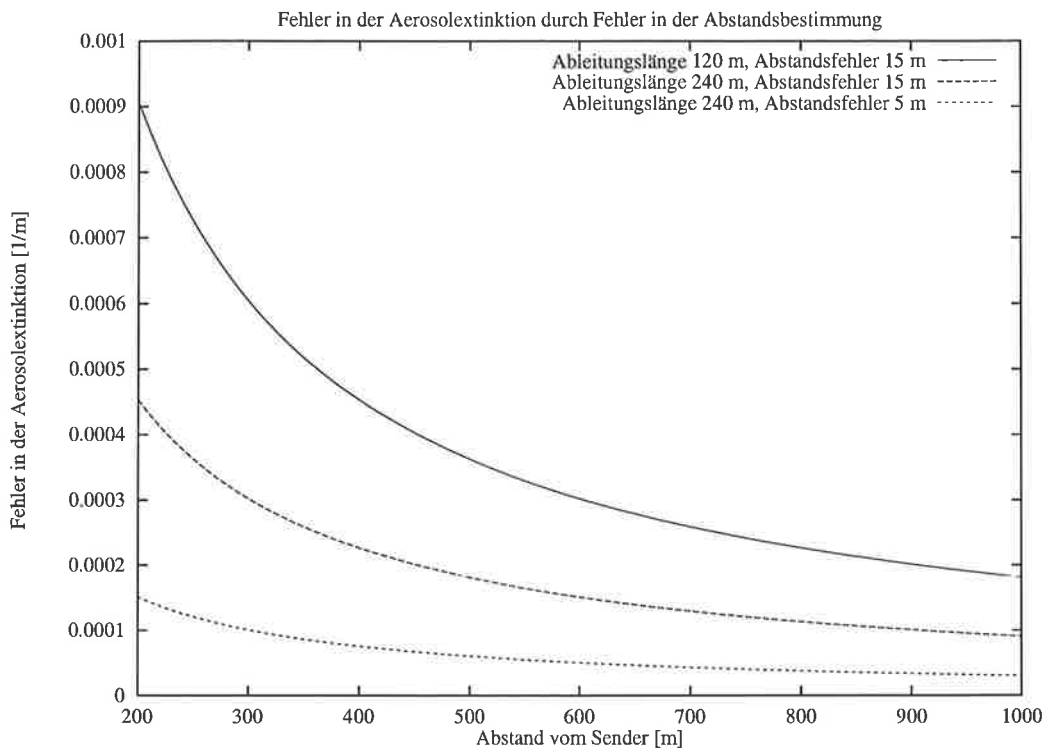


Abbildung 5.5: Fehler in der Bestimmung der Aerosolextinktion mit der Raman-Methode aufgrund ungenauer Abstandsbestimmung.

Unter diesen Bedingungen kann der hierdurch verursachte Fehler in der Bestimmung der Aerosolextinktion insbesondere im Nahbereich sehr hoch sein (Matthias und Bösenberg, 1998). Abbildung 5.5 zeigt den berechneten Fehler für verschiedene Werte der Ableitungslänge und des Abstandsfehlers. Der Fehler liegt bei einem Abstandsfehler von 15 m mindestens in der Größenordnung des möglichen Meßwertes. Selbst bei einer (bestmöglichen) Genauigkeit in der Ortsbestimmung von 5 m beträgt er in 500 m noch $6 \cdot 10^{-5} \text{m}^{-1}$. Die zugrunde liegenden Gleichungen befinden sich im Anhang A.2.

4. Fehler in der Rayleigh-Streukorrektur

Ein Fehler der Rayleigh-Streukorrektur kann durch Fehler in der Dichtebestimmung oder Fehler in der Berechnung des Rayleigh-Streuquerschnitts verursacht sein. Die gesamte Rayleigh-Korrektur beträgt bei 351/382 nm $6.6 \cdot 10^{-5} \text{m}^{-1}$. Dichte und Streuquerschnitt lassen sich beide mit einer Genauigkeit von 3% (in der Regel besser) bestimmen, so daß der gesamte Fehler nicht größer als $3.5 \cdot 10^{-6} \text{m}^{-1}$ sein dürfte. Dies kann als obere Abschätzung des Fehlers betrachtet werden, da mit abnehmender Dichte und gleichbleibendem relativen Fehler der gesamte Fehler noch mit der Höhe abnimmt.

5. Fehler in der Ozonkorrektur

Dieser Fehler tritt nur bei Wellenlängen kleiner als ca. 300 nm auf, da die Ozonabsorption dann stark zunimmt und schließlich der dominierende Term in der Extinktion wird. Für die Wellenlänge 351 nm braucht dieser Term also nicht betrachtet werden. Unterhalb von 300 nm sollen die Anregungswellenlängen 248 nm mit der Raman-Wellenlänge bei 264 nm (Streuung an Stickstoff) und 268 nm mit der Raman-Streuung bei 286 nm

(ebenfalls Streuung an Stickstoff) zur Fehlerabschätzung herangezogen werden. Es sollen wieder beide möglichen Fehler, der der Anzahldichte des Ozons und der des Absorptionsquerschnitts, betrachtet werden. Die Ozondichte kann in der Troposphäre sehr unterschiedlich sein, auch ihre Bestimmung mit dem DIAL kann je nach Bedingungen unterschiedliche Genauigkeiten haben. Deshalb soll die Abschätzung an dieser Stelle nur für typische Ozondichten und typische Fehler erfolgen, im Einzelfall muß der Fehler für das jeweilige Profil unter Benutzung der im Anhang A.2 angegebenen Formel exakt berechnet werden. An dieser Stelle wird eine Ozondichte von $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$ mit einem oberen Fehler von $8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (entsprechend 10%) angenommen. In vielen Fällen ist der Fehler bei einem Halbstundenprofil (Mittelung über 18000 Laserpulse und 120 m in der Höhe) aber kleiner als $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Für die Wellenlängen 268 nm/286 nm (Raman N_2) beträgt der Dichtefehler $5.5 \cdot 10^{-5} \text{m}^{-1}$, für 248 nm/264 nm (Raman N_2) aufgrund der höheren Ozonabsorption $1.1 \cdot 10^{-4} \text{m}^{-1}$. Als untere Abschätzung gelten $1.4 \cdot 10^{-5} \text{m}^{-1}$ (268 nm/286 nm) bzw. $2.8 \cdot 10^{-5} \text{m}^{-1}$ (248 nm/264 nm).

Der Fehler im Absorptionsquerschnitt fällt dagegen nicht mehr stark ins Gewicht. Die Fehlerquelle liegt hier in der meist nicht berücksichtigten schwachen Temperaturabhängigkeit des Absorptionsquerschnitts von $< 0.5\%$ zwischen 263 K und 298 K (Molina und Molina, 1986) sowie in der von Molina und Molina selbst angegebenen Genauigkeit der Werte von ca. 1%. Hieraus resultieren Fehler in der Aerosolextinktion von ca. $5.5 \cdot 10^{-6} \text{m}^{-1}$ für (268 nm/286 nm) und ca. $1.1 \cdot 10^{-5} \text{m}^{-1}$ für 248 nm/264 nm. Die Fehler durch die Bestimmung der Ozondichte sind also etwa dreimal so groß wie die durch Ungenauigkeiten beim Absorptionsquerschnitt.

6. Fehler in der Sauerstoffkorrektur

Die Sauerstoffkorrektur ist nur bei Wellenlängen kleiner als ca. 270 nm von Belang, sie stellt aber eine besondere Schwierigkeit dar. Das Hauptproblem liegt hier in der ungenügenden Kenntnis der sehr schwachen Absorptionslinien des Sauerstoffs im Wellenlängenbereich 240 - 270 nm (Herzberg-System). Die Messung ist unter anderem deshalb sehr schwierig, weil sie von der wesentlich stärkeren Hartley-Bande des Ozons überlagert ist. Dennoch spielt sie bei Lidar-Messungen im UV eine Rolle, da der Sauerstoffgehalt der Atmosphäre um ca. $5 \cdot 10^7$ größer ist als der des Ozons.

Die Literaturangaben zur Sauerstoffabsorption beruhen auf Rechnungen von Cann et al. (1984) und Trakhovsky et al. (1989), wobei letzterer sich auf die Daten von Cann beruft. Leider sind in der Veröffentlichung von Cann keine expliziten Zahlen angegeben, so daß die hier angenommenen Absorptionsquerschnitte auf den Rechnungen von Trakhovsky beruhen.

Genauere Rechnungen ließen sich auf der Basis von neuen Veröffentlichungen zu den Linienstärken des Herzberg-Systems im UV (Yoshino et al., 1994; Yoshino et al., 1995) bei exakter Kenntnis des ausgesandten Laserspektrums durchführen. Jedoch ist dies zum einen sehr aufwendig, zum anderen liegen keine Kenntnisse über die exakte Breite und Lage des ausgesandten Laserspektrums vor. Es ist sogar anzunehmen, daß das Spektrum von Puls zu Puls schwankt und daher ohnehin nur eine Abschätzung gemacht werden könnte. Für die Sauerstoffabsorption wurde daher nach wie vor auf die Daten von Trakhovsky zurückgegriffen.

Die bisher abgeschätzten Fehler in der Bestimmung der Aerosolextinktion durch Messung der atmosphärischen Raman-Streuung ergeben einen Gesamtfehler, der selbst bei zum Teil

Fehlerabschätzung der Aerosolextinktion aus Raman-Messungen		
Fehlerursache	Annahmen	Fehlerabschätzung
Anzahldichte des Streuers	$\delta N/N$ ca. 3% (Bodenwerte), $\Delta z = 240m$	$9 \cdot 10^{-5} m^{-1}$
	$\delta N/N$ ca. 0.1% (Radiosonde), $\Delta z = 240 m$	$3 \cdot 10^{-6} m^{-1}$
Statistischer Fehler	Zählrate 10 Mhz in 800 m, $\Delta z = 240 m$ Mittelung über 36000 Laserpulse 351 nm, bis 4500 m	$< 5 \cdot 10^{-5} m^{-1}$
	286 nm, $\rho_{O_3} = 80 \mu g/m^3$, bis 2600 m	$< 5 \cdot 10^{-5} m^{-1}$
Abstandsfehler	$\delta z = 15m, \Delta z = 240m, z > 500m$	$< 2 \cdot 10^{-4} m^{-1}$
	$\delta z = 5m, \Delta z = 240m, z > 500m$	$< 6 \cdot 10^{-5} m^{-1}$
Rayleigh-Streuung	$\delta N/N$ ca. 3% (Bodenwerte)	$< 3.5 \cdot 10^{-6} m^{-1}$
Ozonkorrektur, δN_{O_3}	$\lambda < 300nm$, $\delta \rho_{O_3} = 8 \mu g/m^3$, 248/264 nm	$1.1 \cdot 10^{-4} m^{-1}$
	$\lambda < 300nm$, $\delta \rho_{O_3} = 8 \mu g/m^3$, 268/286 nm	$5.5 \cdot 10^{-5} m^{-1}$
	$\lambda < 300nm$, $\delta \rho_{O_3} = 2 \mu g/m^3$, 248/264 nm	$2.8 \cdot 10^{-5} m^{-1}$
	$\lambda < 300nm$, $\delta \rho_{O_3} = 2 \mu g/m^3$, 268/286 nm	$1.4 \cdot 10^{-5} m^{-1}$
Ozonkorrektur, $\delta \sigma_{O_3}$	$\lambda < 300nm$, $\rho_{O_3} = 80 \mu g/m^3$, 248/264 nm	$1.1 \cdot 10^{-5} m^{-1}$
	$\lambda < 300nm$, $\rho_{O_3} = 80 \mu g/m^3$, 268/286 nm	$5.5 \cdot 10^{-6} m^{-1}$
Gesamtfehler	Nahbereich $< 500 m$, ungünstigster Fall	$2.3 \cdot 10^{-4} m^{-1}$
	mittl. Entf., ca. 1500 m, günstigster Fall	$< 8 \cdot 10^{-5} m^{-1}$

Tabelle 5.1: Fehlerabschätzung der Bestimmung der Aerosolextinktion aus Raman-Messungen unter typischen Meßbedingungen.

vorsichtiger Schätzung (z.B. des Dichte- und des Abstandsfehlers) in der Grenzschicht bei ca. $8 \cdot 10^{-5} m^{-1}$ liegt. Darüber nimmt zwar der Abstandsfehler weiter ab, jedoch wird dann der mit der Höhe rasch zunehmende statistische Fehler dominierend. Typische Werte der Aerosolextinktion liegen im Bereich von $10^{-5} m^{-1}$ bis $5 \cdot 10^{-4} m^{-1}$. In Einzelfällen können Werte von mehr als $10^{-3} m^{-1}$ im Ultravioletten vorkommen. Die Technik ist also in erster Linie zur Bestimmung recht hoher Aerosolextinktionen geeignet, welches aber auch die interessantesten und häufigsten Fälle in Mitteleuropa sind. Da die Extinktion mit abnehmender Wellenlänge zunimmt, sind Messungen im UV solchen bei größeren Wellenlängen vorzuziehen.

5.3 DIAL

Die DIAL-Gleichung setzt sich aus einem Signalterm und drei Korrekturtermen zusammen, wenn man hier die bereits genannten Querempfindlichkeiten zu anderen Gasen als vernachlässigbar einstuft. Das ist im wesentlichen zulässig, nur der Effekt der Sauerstoffabsorption auf die Wellenlänge 268.5 nm muß hier gesondert untersucht werden. Dies soll aber nach einer allgemeineren Fehlerbetrachtung erfolgen, die für alle möglichen DIAL-Wellenlängen gilt. Die vereinfachte DIAL-Gleichung lautet

$$N_{O_3}(z) = \frac{1}{2\Delta\sigma_{O_3}} \left(\frac{d}{dz} \ln \frac{P_{off}(z)}{P_{on}(z)} \right) + B + R + E \quad (5.2)$$

Die drei Korrekturterme umfassen die Aerosolrückstreuungskorrektur $B = 1/2\Delta\sigma_{O_3} \times (d/dz \ln(\beta_{on}(z)/\beta_{off}(z)))$, die Rayleigh-Korrektur $R = -1/\Delta\sigma_{O_3} \cdot \Delta\alpha_{mol}(z)$ sowie

die Aerosolextinktionskorrektur $E = -1/\Delta\sigma_{O_3} \cdot \Delta\alpha_{aer}(z)$. Der Signalterm enthält hauptsächlich den statistischen Fehler, systematische Effekte hängen im Detail von der Datenverarbeitung, den Detektoren und anderen Störeinflüssen ab. Diese sollen hier als nicht vorhanden oder vernachlässigbar angesehen werden. Die Korrekturterme enthalten systematische Unsicherheiten durch ungenügende Kenntnis über das tatsächliche Aerosolprofil sowie über die Wellenlängenabhängigkeiten von Aerosolextinktion und -rückstreuung.

Für den statistischen Fehler des Ozons gilt, falls in dem Höhenintervall Δz , über das die Ableitung gebildet wird, keine sehr starke Änderung des Meßsignals vorhanden ist:

$$\delta N_{O_3}(z) = \frac{\sqrt{2}}{2\Delta\sigma_{O_3}\Delta z} \sqrt{\left(\frac{\delta P(\lambda_{off}, z)}{P(\lambda_{off}, z)}\right)^2 + \left(\frac{\delta P(\lambda_{on}, z)}{P(\lambda_{on}, z)}\right)^2} \quad (5.3)$$

Hier ist mit der δP der statistische Fehler des Signals P und mit Δz die Ableitungslänge bezeichnet. Näheres zur Herleitung findet man im Anhang, Abschnitt A.3. Die Fehler für die Aerosolkorrekturterme B und E hängen vom Algorithmus zur Bestimmung des Aerosolprofils aus einer nicht oder nur schwach vom Ozon absorbierten Wellenlänge ab. Sie lassen sich nur aus Simulationsrechnungen ersehen. Es läßt sich jedoch ermitteln, welche Wellenlängenkombination zu besonders kleinen Fehlern bei gleichem Aerosolprofil führt. Eine numerische Abschätzung kann dann mit Hilfe der in Abschnitt 5.1 bei den Untersuchungen zu Inversionsverfahren erzielten Ergebnisse gemacht werden (Bösenberg et al., 1997a). Sei $\Lambda = \lambda_{on}/\lambda_{off}$, $S_r = \beta_{aer}(\lambda_{off})/\beta_{mol}(\lambda_{off})$ und $\beta_{aer}(\lambda_{on}) = \beta_{aer}(\lambda_{off})\Lambda^b$, dann gilt (Browell et al., 1985; Bösenberg et al., 1997a)

$$B = -\frac{\Delta\lambda}{2\Delta\sigma_{O_3}\lambda_{off}}(4+b)\frac{d}{dz}\left(\frac{S_r}{1+S_r}\right) \quad (5.4)$$

mit $\Delta\lambda = \lambda_{off} - \lambda_{on}$. Man erkennt, daß die Korrektur von drei unterschiedlichen Termen bestimmt ist:

- von der Wellenlängenkombination, die in $-\Delta\lambda/2\Delta\sigma_{O_3}\lambda_{off}$ enthalten ist
- von der Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolrückstreuung, die in dem Term $4+b$ enthalten ist und
- vom Gradienten des inversen Streuverhältnisses, der sich besonders an Schichtgrenzen wie der Grenze zwischen planetarer Grenzschicht und freier Troposphäre stark ändert, so daß hier besonders große Fehler zu erwarten sind.

Die Korrektur der Aerosolextinktion läßt sich wie folgt vereinfacht hinschreiben (Browell et al., 1985; Bösenberg et al., 1997a):

$$E \approx \frac{-1}{\Delta\sigma_{O_3}}\alpha_{off} \cdot a \cdot \frac{\Delta\lambda}{\lambda_{off}}, \quad \Delta\lambda \ll \lambda \quad (5.5)$$

Die Korrektur und damit der Fehler hängt wie schon bei der Korrektur B von einem wellenlängenabhängigen Teil $-\Delta\lambda/(2\Delta\sigma_{O_3}\lambda_{off})$, vom Ångström-Koeffizienten a und vom Extinktionsprofil $\alpha_{off}(z)$ ab.

Die Fehler lassen sich wiederum unter bestimmten Annahmen quantifizieren. Hier sollen Richtwerte gegeben werden, die Aussagen über dominierende und zu vernachlässigende

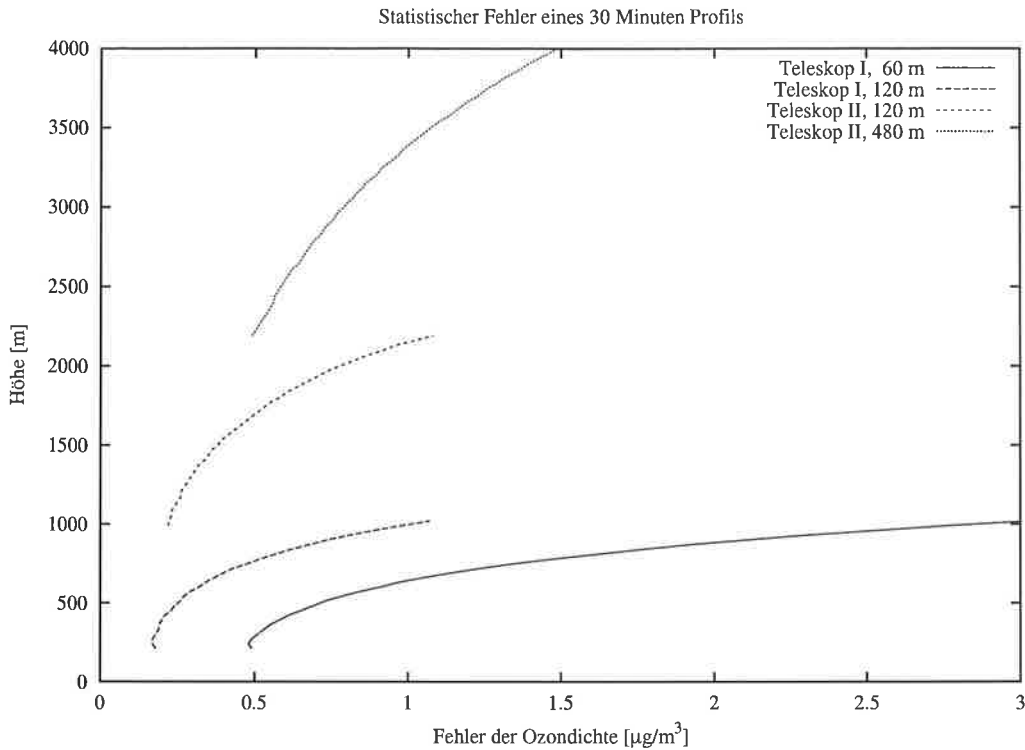


Abbildung 5.6: Beispielhafter statistischer Fehler für eine Messung vom 5.8.98. Die Mittelungslänge wurde zwischen 60 m und 480 m variiert, die Mittelungszeit lag bei 30 Minuten, entsprechend 18000 Laserpulsen.

Fehler ermöglicht.

1. Statistischer Fehler

Der statistische Fehler des Signals läßt sich theoretisch nicht quantifizieren, da das Signal analog gemessen wird und die Fehler nicht durch die Poissonverteilung der Einzelphotonen, sondern durch das Rauschen der hinter dem Detektor liegenden Verstärkungs- und Aufzeichnungselektronik sowie durch Störeffekte auf die Elektronik bestimmt sind. Deshalb sind in Abbildung 5.6 die gemessenen statistischen Fehler einer Beispielmessung vom 5.8.98 gezeigt. Die Signalfehler werden mit Hilfe der neben den Signalmittelwerten \bar{P} aufgezeichneten Quadraten der Signale P^2 berechnet. Es gilt $\delta P = \sqrt{1/(n(n-1)) \cdot (\sum_{i=1}^n P^2 - \sum_{i=1}^n \bar{P}^2)}$ und damit für den statistischen Fehler des Ozons (siehe auch Abschnitt A.3):

$$\delta N_{O_3}(z) = \frac{\sqrt{2}}{2\Delta\sigma_{O_3}\Delta z} \sqrt{\left(\frac{\delta P(\lambda_{off}, z)}{P(\lambda_{off}, z)}\right)^2 + \left(\frac{\delta P(\lambda_{on}, z)}{P(\lambda_{on}, z)}\right)^2} \quad (5.6)$$

Diese Fehler sind bis 2200 m repräsentativ für den statistischen Fehler einer DIAL-Messung mit dem Wellenlängenpaar 268 nm/292 nm. Darüber gelten die Werte für das Wellenlängenpaar 292 nm/320 nm bei vervierfachter Mittelungslänge. Der statistische Fehler ist sehr konstant von Messung zu Messung, letztendlich hängt er hauptsächlich davon ab, wie schnell das Signal mit der Höhe abnimmt, d.h. von Ozon- und Aerosolgehalt der Atmosphäre. Um davon unabhängige Aussagen zu bekommen, wurde hier als untere Signalgrenze ein Signal von 10 LSB (least significant bits) des AD-Wandlers

(ADC) angenommen, dies entspricht ca. $1/300$ des maximalen Signals. Bis zu dieser Signalthöhe werden die DIAL-Messungen im allgemeinen nur ausgewertet, da es darunter zu unerwünschten zusätzlichen Fehlern aufgrund von differentiellen Nichtlinearitäten in den AD-Wandlern kommt (Bösenberg, 1998). Der statistische Fehler liegt für das Wellenlängenpaar 268 nm/292 nm bei einer Mittelungslänge von 120 m und einer Mittelungszeit von 30 Minuten (das entspricht i.d.R. 18000 Laserpulsen) bis 2200 m unter $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für die beiden verwendeten Teleskope. Dabei deckt ein Teleskop den Bereich zwischen 300 m und 1000 m, das andere den Bereich von 1000 m bis 2200 m ab. Darüber kann mit dem Wellenlängenpaar 292 nm/320 nm bis 4000 m bei 480 m Mittelungslänge mit einem statistischen Fehler unter $1.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gerechnet werden. Bei kürzeren Mittelungszeiten und -längen nimmt der statistische Fehler zu. Nimmt man die hier verwendeten Werte als Referenz (\bar{t}_{Ref} und \bar{h}_{Ref}), so ändert sich der statistische Fehler bei anderer Mittelungslänge \bar{h} mit $(\bar{h}/\bar{h}_{Ref})^{-3/2}$ und bei anderer Mittelungszeit mit $(\bar{t}/\bar{t}_{Ref})^{-1/2}$. Durch größere Mittelungslängen läßt sich der Fehler also drastisch verringern. Dies liegt daran, daß die Mittelungslänge auch in Δz eingeht, während die Mittelungszeit nur in δP eingeht. Bei 60 m vertikaler Mittelungslänge erreicht man bis 1000 m immer noch einen statistischen Fehler unterhalb von $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im 30-Minuten-Mittel.

Die Empfindlichkeit verschiedener Wellenlängenkombinationen bezüglich des statistischen Fehlers kann man in Tabelle 5.2 ablesen. Für die Wellenlängen 277 nm/313 nm erhält man einen ca. 50% größeren statistischen Fehler als für 268 nm/292 nm. Dennoch läßt der statistische Fehler auch Messungen mit hoher Auflösung mit dem MPI-DIAL zu. Bei einer zeitlichen Auflösung von nur 2 Minuten ist der statistische Fehler in den meisten Bereichen deutlich unter $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$, wenn man eine Ortsauflösung von 120 m wählt. Will man hochauflösende Messungen nur in einem bestimmten Höhenbereich mit großer Signalintensität betrachten, läßt sich auch die Höhenauflösung noch verkleinern.

2. Fehler der Rayleigh-Korrektur

Der Fehler der Rayleigh-Korrektur ist proportional zur Korrektur selbst. Diese läßt sich unter Standardbedingungen am Boden angeben. Sie beträgt für 268/292 nm $7.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und für 277 nm/313 nm $12.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Nimmt man eher große Fehler von jeweils 3% für den Wirkungsquerschnitt und die Anzahldichte an, so bleiben die Fehler der Rayleigh-Korrektur für 268 nm/292 nm unter $0.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und für 277 nm/313 nm unter $0.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und können als vernachlässigbar angesehen werden.

3./4. Fehler der Aerosolkorrektur

Der Fehler durch die Aerosolkorrekturterme B und E wird besonders klein, wenn der Proportionalitätsfaktor $\Delta\lambda/\Delta\sigma_{O_3}$ klein wird. Das kann man anschaulich leicht verstehen: gesucht wird eine Wellenlängenkombination, bei der der Absorptionsquerschnitt sich möglichst stark mit der Wellenlänge ändert. Diese sind besonders in der abfallenden Flanke der Hartley-Bande zwischen 270 nm und 280 nm zu finden. Das zeigt auch Abbildung 5.7, wo $\Delta\lambda/\Delta\sigma_{O_3}$ in Abhängigkeit von λ_{on} und $\Delta\lambda$ dargestellt ist. Eine online-Wellenlänge von ca. 265 – 275 nm zeigt bei einer Wellenlängendifferenz von 10 – 20 nm die geringste Empfindlichkeit gegenüber Aerosolrückstreukorrekturen. Auch 280 nm als online-Wellenlänge ist noch relativ günstig, wobei die offline-Wellenlänge dann nicht mehr als 20 nm entfernt liegen sollte. Bei größeren online-Wellenlängen werden sehr schnell hohe Empfindlichkeiten erreicht. Sehr kleine Wellenlängenabstände haben

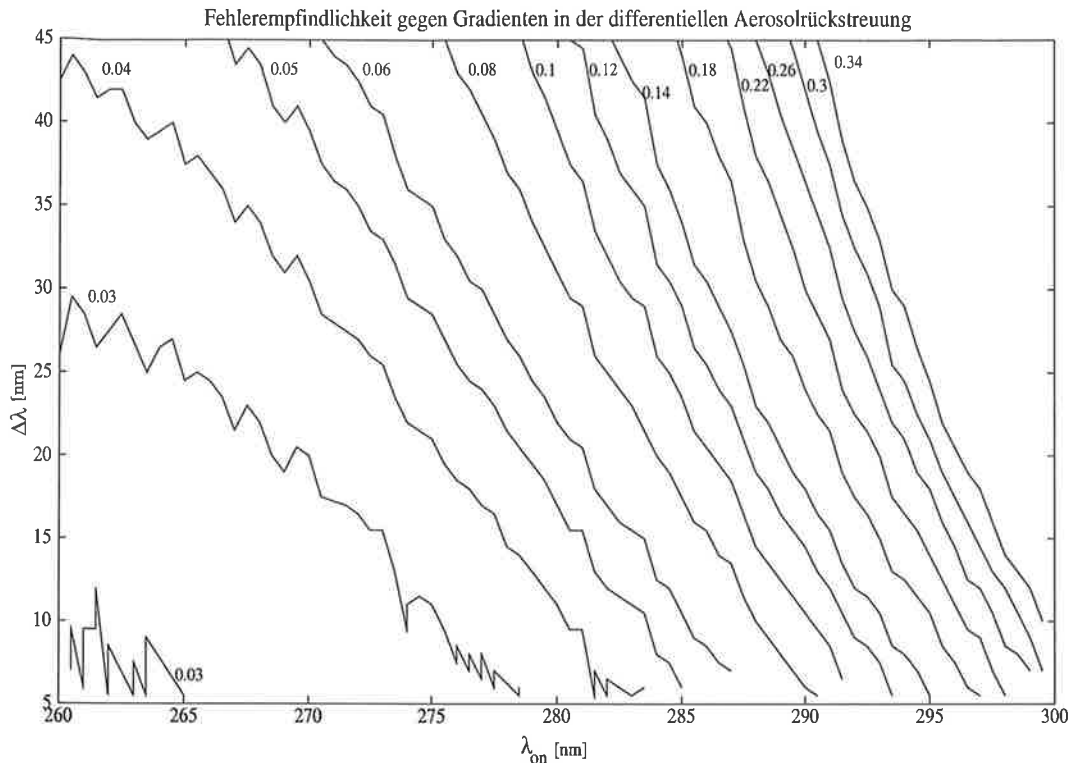


Abbildung 5.7: Empfindlichkeit möglicher DIAL-Wellenlängenpaare bezüglich Fehlern in der Korrektur der Aerosolrückstreuung (Isolinien für $(\Delta\lambda)/(\Delta\sigma_{O_3})$ in 10^{15} m^{-1}).

den Nachteil, daß sie ein kleines $\Delta\sigma_{O_3}$ aufweisen und damit andere Fehler, wie z.B. der statistische Fehler aufgrund der $1/\Delta\sigma_{O_3}$ -Abhängigkeit stärker zu Buche schlagen. Die Reichweite des DIAL-Systems hängt aufgrund der eingeschränkten Signaldynamik auch von der gewählten online-Wellenlänge ab, durch Wahl einer schwächer absorbierenden Wellenlänge läßt sie sich wesentlich erhöhen. Diese unterschiedlichen Aspekte sind der Grund für unterschiedliche Wellenlängenkombinationen in den existierenden Ozon-DIAL-Systemen. Tabelle 5.2 gibt die Empfindlichkeiten einiger Wellenlängenkombinationen wieder.

Die Wellenlängenkombinationen 266 nm/289 nm und 268 nm/292 nm sind fast äquivalent

DIAL Wellenlängen	Laser System	$1/(\Delta\sigma_{O_3})$ 10^{21} m^{-2}	$\Delta\lambda/(\Delta\sigma_{O_3})$ 10^{15} m^{-1}
266/289	Nd:YAG vervierfacht, SRS D ₂	1.266	0.0291
268/292	KrF-Excimer, SRS D ₂	1.379	0.0331
277/313	KrF-Excimer, SRS H ₂	1.989	0.0716
282.7/284.1	TiSa verdreifacht, abstimmbar	24.39	0.0341
289/299	Nd:YAG vervierfacht, SRS D ₂ und H ₂	8.850	0.0885
292/320	KrF-Excimer, SRS D ₂	9.268	0.2596

Tabelle 5.2: In Ozon-DIAL-Systemen übliche Wellenlängenkombinationen und ihre Empfindlichkeiten bezüglich statistischem $(1/\Delta\sigma_{O_3})$ Fehler und Aerosolrückstreckkorrekturf Fehler $(\Delta\lambda/(\Delta\sigma_{O_3}))$. SRS: Stimulierte Raman-Streuung.

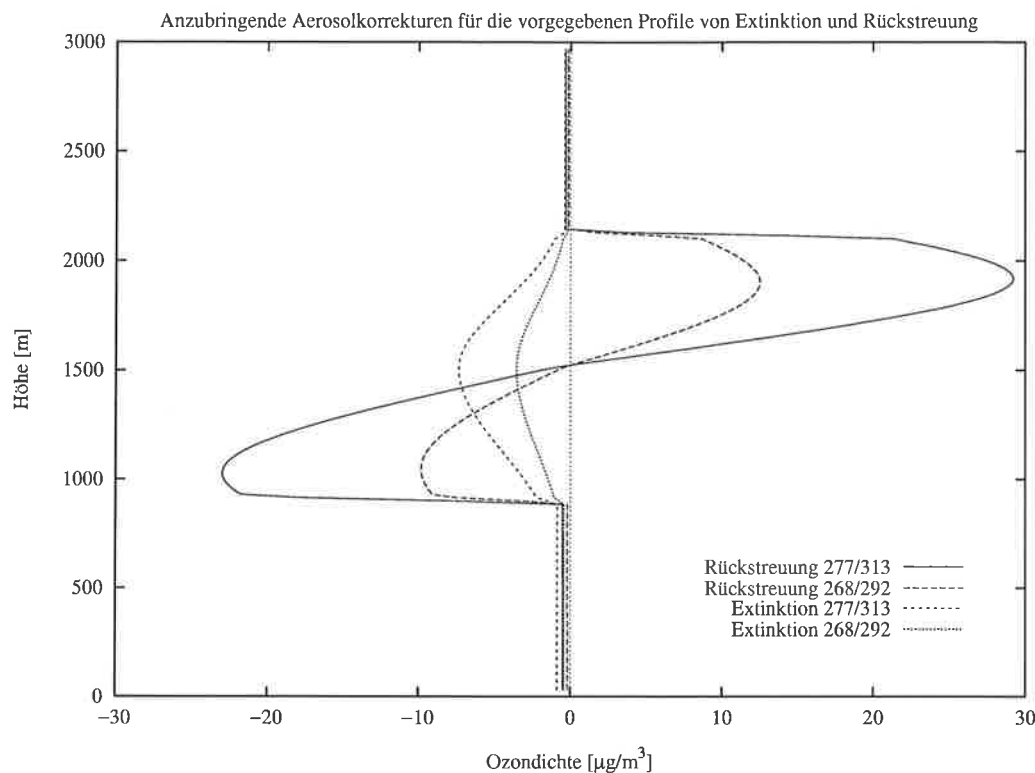


Abbildung 5.8: In der DIAL-Gleichung anzubringende Aerosolkorrekturen B für Rückstreuung und E für Extinktion für das in den Simulationen verwendete Aerosolprofil.

und sehr unempfindlich gegen Fehler. Dafür ist die Reichweite dieser Wellenlängenpaare aufgrund des hohen Absorptionsquerschnitts der online-Wellenlänge stark begrenzt. Hier bietet das Wellenlängenpaar 277 nm/313 nm Vorteile, es ist aber bereits zwei bis dreimal so empfindlich gegen die Aerosolrückstreukorrektur.

Kleine Wellenlängenabstände, wie man sie bei dem Titan-Saphir-System benutzt, ermöglichen ebenfalls sehr geringe Empfindlichkeiten gegen die Aerosolrückstreukorrektur, allerdings unterscheidet sich die Absorption dieser Wellenlängen nur sehr wenig voneinander, was zu hohen statistischen Fehlern führen kann. Zudem wirken sich hier auch kleine Fehler in der Signalerfassung aufgrund der sehr ähnlichen Signale stark auf die berechnete Ozondichte aus.

Relativ ungünstig scheinen die Wellenlängenpaare 289 nm/299 nm und 292 nm/320 nm zu sein. Sie werden aber aufgrund ihrer hohen Reichweite vor allem in Höhenbereichen eingesetzt, in denen wenig Aerosolpartikel vorkommen und geringe Inhomogenitäten in der Ozonverteilung große Mittelungslängen erlauben. Die erreichbaren Fehler werden bei Vervierfachung der Mittelungslänge ähnlich klein wie für die Wellenlängenpaare 268 nm/292 nm bzw. 266 nm/289 nm.

Der Fehler, der durch falsche Bestimmung des Aerosolrückstreuprofiles aufgrund falscher Annahme des Lidar-Verhältnisses S oder des Eichwertes $\beta_{aer}(z_0)$ verursacht wird, hängt auf komplexe Weise mit dem Inversionsalgorithmus zusammen, mit dem das Rückstreuprofil bestimmt wird. Simulationsrechnungen mit dem bereits in Abschnitt 5.1 verwendeten Aerosolprofil geben hier Aufschluß.

Abbildung 5.8 zeigt die an die Ozondichte anzubringenden Aerosolkorrekturen für die Modellaerosolverteilung und verschiedene Wellenlängenpaare, wie sie mit dem MPI-DIAL

erzeugt werden können. Die Korrekturen liegen in diesem Beispiel bei mehr als $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für die Wellenlängen 268 nm/292 nm und bei fast $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für das Wellenlängenpaar 277 nm/313 nm. Hieraus lassen sich die Fehler, die aus einer falschen Annahme der Wellenlängenabhängigkeiten a und b resultieren, sehr einfach aus den Formeln für B und E berechnen.

Variiert b um ± 0.5 , so beträgt der Fehler $\pm 12.5\%$ der absoluten Korrektur, also ca. $3.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für die Wellenlängen 277 nm/313 nm und ca. $1.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für 268 nm/292 nm.

Variiert man a um ± 0.3 , so beträgt der Fehler in der Korrektur 50% des Korrekturwertes, also $3.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für 277 nm/313 nm und $1.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für 268 nm/292 nm. Obwohl in der Literatur oftmals nur der Rückstreuungfehler als der dominierende Fehler angesehen wird, sieht man, daß in Bezug auf die Wellenlängenabhängigkeit ähnliche Fehler durch die Extinktionskorrektur eingeführt werden können.

Zusätzlich sei hier darauf hingewiesen, daß die verbreitete Annahme $a = b$ zu sehr hohen Extinktionsfehlern führen kann. Zum Beispiel für $b = +1$ beträgt der Rückstreuungfehler $9.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und der Extinktionsfehler $12.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für 277 nm/313 nm.

Die Fehler, die durch ein falsch angenommenes Lidar-Verhältnis entstehen, können nicht so leicht bestimmt werden. Sie hängen vom Inversionsalgorithmus ab und wurden durch die Simulation bestimmt. Es wurde Fernalds Inversionsalgorithmus mit Abwärtsintegration benutzt. Die Eichhöhe lag in 2700 m, das für den Algorithmus vorgegebene Lidar-Verhältnis wurde zwischen 25 sr und 80 sr variiert. Die hierdurch eingeführten Fehler in der Ozonkorrektur betragen zwischen maximal $7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (268/292 nm) und $11 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (277/313 nm). Die Fehler werden kleiner, wenn das Lidar-Verhältnis im Bereich hoher

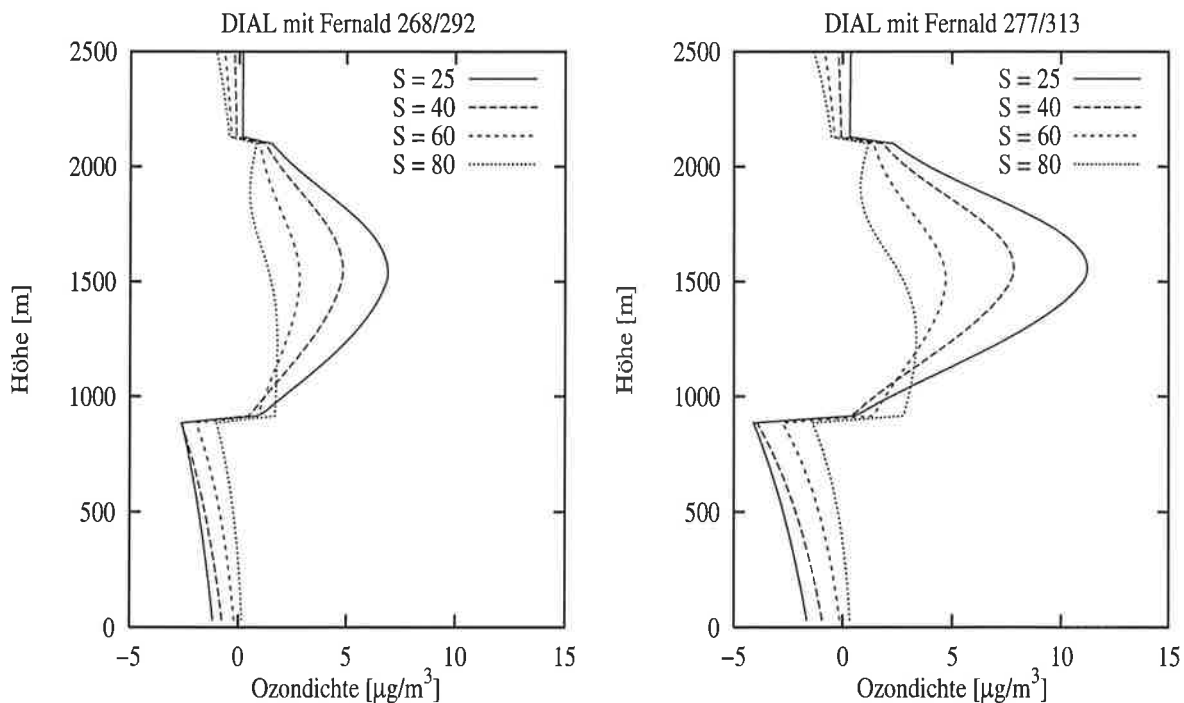


Abbildung 5.9: Fehler in der Aerosolkorrektur durch falsch angenommenes Lidar-Verhältnis in der Berechnung des Aerosolprofils nach Fernald für die Wellenlängen 268 nm/292 nm (links) und 277 nm/313 nm (rechts).

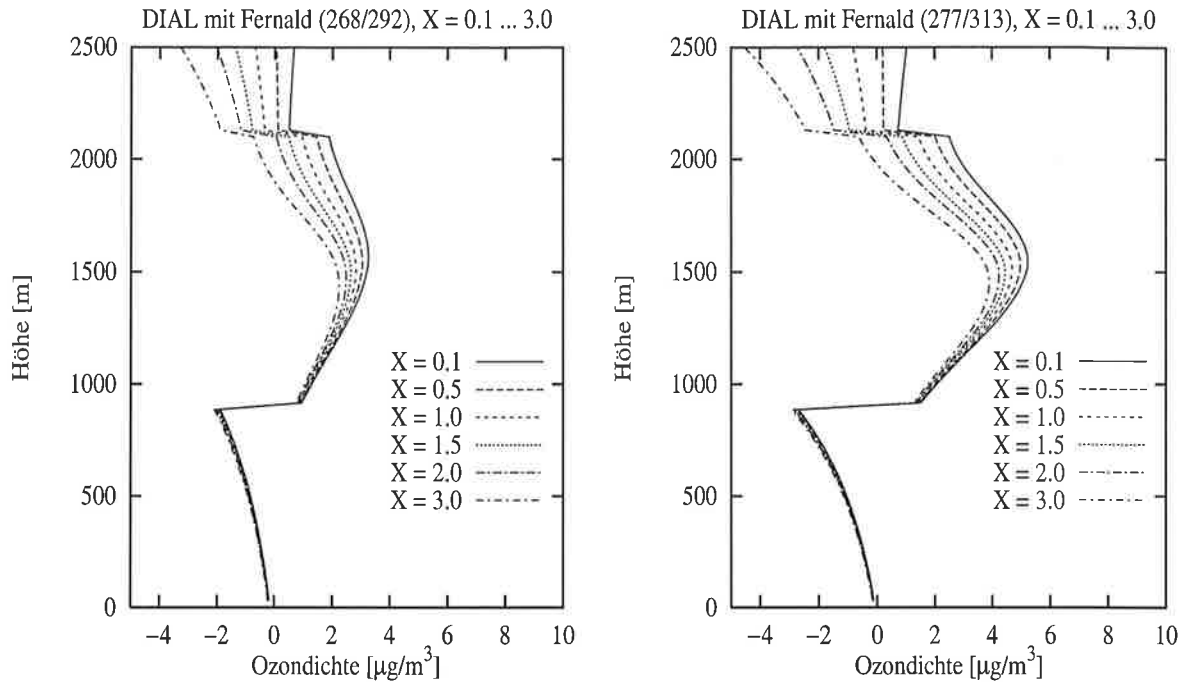


Abbildung 5.10: Simulation „wolkenfrei“: Fehler in der Aerosolkorrektur durch falsch angenommenen Eichwert $\beta(z_0)$ in 2700 m bei der Berechnung des Aerosolprofils nach Fernald für die Wellenlängen 268 nm/292 nm (links) und 277 nm/313 nm (rechts). X gibt das Verhältnis von angenommenem zu korrektem Eichwert an.

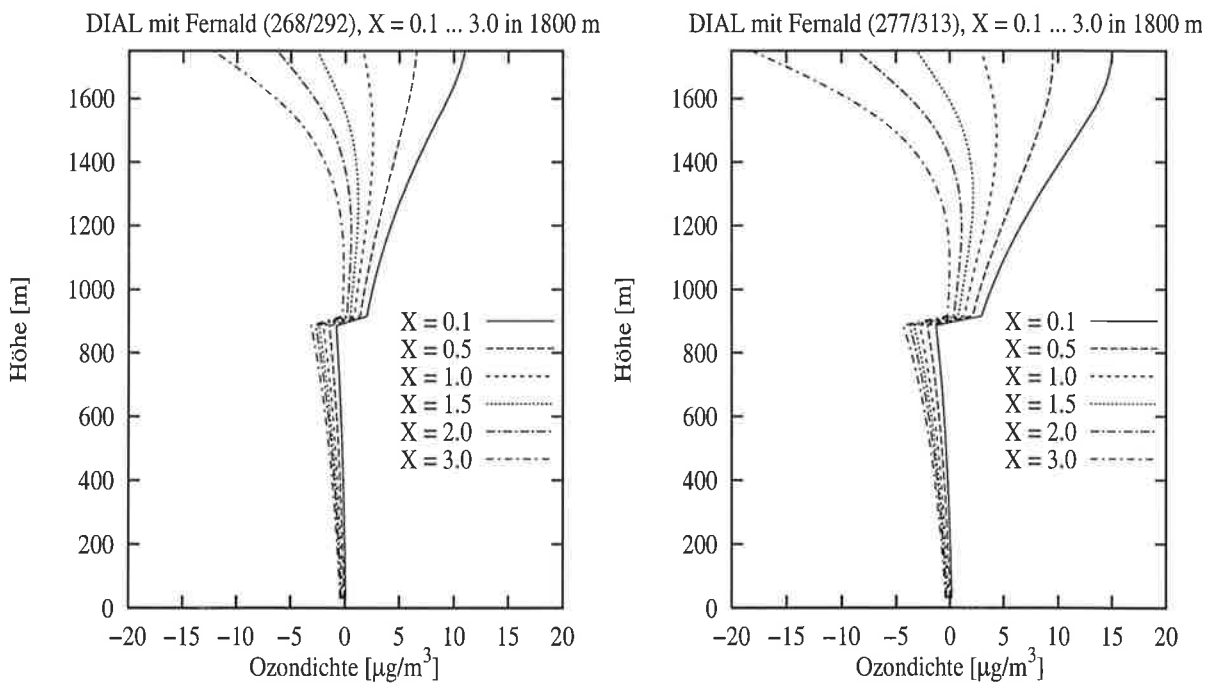


Abbildung 5.11: Simulation mit „Bewölkung“: Fehler in der Aerosolkorrektur durch falsch angenommenen Eichwert $\beta(z_0)$ in 1800 m bei der Berechnung des Aerosolprofils nach Fernald für die Wellenlängen 268 nm/292 nm (links) und 277 nm/313 nm (rechts). X gibt das Verhältnis von angenommenem zu korrektem Eichwert an.

Fehlerabschätzung von Ozon-DIAL-Messungen mit Aerosolkorrektur			
Fehlerursache	Annahmen	Fehlerabschätzung [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	
		268/292	277/313
statistischer Fehler	Mittelung 18000 Pulse (30 min.), 120 m Auswertung bis Signalhöhe von 10 LSB	< 1.0	< 1.5
Rayleigh-korrektur	Std. Bedingungen am Boden $\delta N/N = 0.03, \delta \Delta\sigma/\Delta\sigma = 0.03$	< 0.4	< 0.6
Extinktionskorrektur Ångstrøm-Koeff. a	$a = -0.6 \pm 0.3$	< 1.5	< 3.5
Rückstreuungkorrektur Ångstrøm-Koeff. b	$b = -0.2 \pm 0.5$	< 1.6	< 3.6
Aerosolkorrektur Lidar-Verhältnis	$S = 25$ $S = 80$	< 7 < 2	< 11 < 4
Aerosolkorrektur Eichung wolkenfrei	$S = 60$, $X = 0.1 \dots 3.0$ in 2700 m	< 3	< 4
Aerosolkorrektur Eich. unter Wolken	$S = 60$, $X = 0.1 \dots 3.0$ in 1800 m	< 10	< 15

Tabelle 5.3: Fehlerabschätzung für Ozon-DIAL-Messungen mit dem MPI-DIAL unter typischen Bedingungen (stat. Fehler und Rayleigh-Korrekturf Fehler) bzw. aus Simulationsrechnungen (Aerosolkorrekturf Fehler).

Aerosolrückstreuung richtig angenommen wird. Der maximale Fehler tritt nicht im Bereich maximaler Gradienten sondern im Bereich maximaler Extinktion auf.

Die Fehler durch falsche Eichung sind relativ klein, wenn ein Algorithmus mit Abwärtsintegration benutzt wird und das Eichniveau hoch gewählt werden kann, das heißt in einem Bereich, in dem die Aerosolrückstreuung relativ klein gegenüber der Rayleigh-Streuung ist. Bei wolkenlosem Himmel sollte dies immer möglich sein. Treten allerdings niedrige Wolken auf und muß daher in niedrigen Höhen geeicht und aufwärts integriert werden, so werden die Fehler beträchtlich. Dies verdeutlicht Abbildung 5.11. Die zugehörigen Rückstreuprofile sind bereits in Abschnitt 5.1 gezeigt worden. Die Fehler im Ozon sind insbesondere unter der Wolke sehr hoch und können mehr als $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ betragen. In größerer Entfernung von der Wolke werden die Fehler dann wieder kleiner, bei sehr niedriger Bewölkung (z.B. in ca. 1000 m, was sehr typisch in Norddeutschland ist) muß aber im gesamten Auswertebereich mit hohen Fehlern durch falsche Eichung gerechnet werden.

Zusammengefaßt läßt sich sagen, daß die Aerosolkorrektur sowohl bezüglich Extinktion als auch Rückstreuung eine erhebliche Fehlerquelle von Ozon-DIAL-Messungen ist. Die Fehler lassen sich durch geeignete Wahl der Wellenlängen minimieren, wie man an den Empfindlichkeitsstudien (Tabelle 5.2) erkennen kann. Der Vergleich der beim MPI-DIAL möglichen DIAL-Wellenlängenpaares 268 nm/292 nm und 277 nm/313 nm zeigt auch in den Ergebnissen der Simulationsrechnungen deutlich die Vorteile des Wellenlängenpaares 268 nm/292 nm. In Kauf nehmen muß man dafür eine kleinere Reichweite. Betrachtet man für die Wellenlängen 268 nm und 277 nm die Höhe, in der ein in 800 m gleiches Signal auf 1/300 abgefallen ist, so liegt diese oberste Meßhöhe für die 268 nm in ca. 2050 m, für 277 nm sind es ca. 2420 m. Zugrunde gelegt wurde die in den Simulationen be-

nutzte Atmosphäre mit einer höhenkonstanten Ozondichte von $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Diese Werte entsprechen realistischen Meßbedingungen.

5.4 Ramangestütztes DIAL / Dreiwellenlängenverfahren

Die Gleichung zur Bestimmung der Ozondichte beim ramangestützten DIAL / Dreiwellenlängenverfahren unterscheidet sich von der DIAL-Gleichung hauptsächlich dadurch, daß die Aerosolextinktion nicht berücksichtigt werden muß, da sie zuvor aus den Gleichungen eliminiert wurde. Gleichung (4.24) läßt sich wie folgt umformulieren:

$$\begin{aligned}
 N_{O_3}(z) = & \frac{-1}{\Delta\sigma} \left\{ \frac{d}{dz} \left(\lambda_2^a \ln(P_1 z^2) - \lambda_1^a \ln(P_2 z^2) \right) + \right. \\
 & \frac{d}{dz} \left(\lambda_2^a \ln(\beta_{mol}(\lambda_1, z) + \beta_{aer}(\lambda_1, z)) - \lambda_1^a \ln(\beta_{mol}(\lambda_2, z) + \beta_{aer}(\lambda_2, z)) \right) + \\
 & \left. \lambda_2^a \alpha_{mol}(\lambda_1) - \lambda_1^a \alpha_{mol}(\lambda_2) \right\} \quad (5.7)
 \end{aligned}$$

Dabei bedeutet $\Delta\sigma = \sigma_{O_3}(\lambda_1) \cdot \lambda_2^a - \sigma_{O_3}(\lambda_2) \cdot \lambda_1^a$ den modifizierten differentiellen Wirkungsquerschnitt.

Es lassen sich drei Terme unterscheiden, deren Fehler getrennt untersucht werden können. Der erste Term beinhaltet die Signale, der Fehler ist hier hauptsächlich statistischer Natur, instrumentelle Effekte sollen wiederum vernachlässigt werden. Der zweite Term enthält die differentiellen Rückstreuterme mit der zuvor bestimmten Aerosolrückstreuung und der Rayleigh-Rückstreuung. Der dritte Term, die Rayleigh-Extinktionskorrektur, hängt nur vom Druck- und Temperaturprofil und dem Rayleigh-Streuquerschnitt ab.

Bei den Signalen läßt sich der statistische Fehler berechnen, elektronisches Rauschen kann in den statistischen Fehler miteinbezogen werden, da es auch statistischer Natur ist und in den aufgezeichneten Quadraten der Signale enthalten ist.

Der Fehler der Rückstreukorrektur läßt sich ebenso wie beim DIAL am besten durch Simulationsrechnungen bestimmen, da er wesentlich von der Genauigkeit in der Bestimmung des Aerosolprofils abhängt. Allerdings enthält die berechnete Aerosolrückstreuung bereits einen statistischen Fehler, der groß werden kann, falls auch ein Raman-Signal zur Auswertung mit herangezogen wird. Für einen einfachen Fall ($\beta_{aer} < 0.2 \cdot \beta_{mol}$) kann dieser Fehler abgeleitet werden, die zugehörigen Formeln befinden sich im Anhang A.

Hier soll zunächst eine Abschätzung des Ozonfehlers durch den statistischen Fehler in der Bestimmung der Aerosolrückstreuung gegeben werden. Der Fehler wurde zunächst für drei elastische Signale bei 268 nm, 292 nm und 320 nm anhand des gemessenen statistischen Fehlers einer Lidar-Messung im oberen Meßbereich vom 11.8.1998, 7:22 - 7:27 UT abgeschätzt. Es herrschten relativ hohe Ozonwerte (ca. $130 \mu\text{g}/\text{m}^3$) und eine hohe Aerosolextinktion (ca. $2 \cdot 10^{-4} \text{m}^{-1}$ bis $4 \cdot 10^{-4} \text{m}^{-1}$). Das Signal war zwischen ca. 1000 m und 2000 m Höhe auswertbar. Der relative Signalfehler $\delta P/P$ bleibt bei einer räumlichen Mittelung über 120 m und einer zeitlichen über 3000 Laserpulse (entspricht 5 Minuten bei 10 Hz Repetitionsrate) für alle Signale kleiner als $5 \cdot 10^{-3}$. Dann bleibt der Rückstreufehler nach den im Anhang gegebenen Formeln stets unter $8 \cdot 10^{-8} (\text{m} \cdot \text{sr})^{-1}$ und der daraus resultierende Ozonfehler unter $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Ein beachtlicher Fehler, der aber eine obere Abschätzung darstellt (in 1500 m ist er nur noch etwa halb so groß) und durch weitere

Mittelung verringert werden kann.

Für die Fehlerabschätzung mit einem zusätzlichen Raman-Kanal wurde angenommen, daß der statistische Fehler des Raman-Signals der dominante statistische Fehler ist, gegen den die anderen statistischen Fehler vernachlässigt werden können. Für diesen Fall wurde wie schon bei der Fehlerabschätzung für die Aerosolextinktion bei 286 nm (Abschnitt 5.1) eine konstante Ozondichte von $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$, eine konstante Aerosolextinktion von $1 \cdot 10^{-4} \text{m}^{-1}$ und einem maximalen Zählsignal von 10 MHz in 800 m angenommen. Unter diesen Voraussetzungen und bei einer räumlichen Mittelung von 240 m und einer zeitlichen von 36000 Laserpulsen (entspricht 30 Minuten bei 20 Hz Repetitionsrate) beträgt der resultierende Fehler in der Aerosolrückstreuung in 2000 m Höhe $1.7 \cdot 10^{-7} (\text{m} \cdot \text{sr})^{-1}$. Daraus ergibt sich ein Ozonfehler von $6.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Beim ramangestützten DIAL entstehen systematische Fehler durch die Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolrückstreuung und -extinktion sowie durch die notwendige Eichung. Das Lidar-Verhältnis muß hier nicht vorgegeben werden sondern folgt aus den Messungen. Untersucht wurden die systematischen Fehler für unterschiedliche Wellenlängenkombinationen, die sich aus den beiden zur Frequenzkonversion benutzten Gase Wasserstoff und Deuterium ergeben. (siehe Tabelle 5.4). Die Variation der Wellenlängenabhängigkeit betrug wiederum $a = -0.6 \pm 0.3$ und $b = -0.2 \pm 0.5$. Der angenommene Eichwert $(\beta_{aer}(z_0))_{ang}$ lag zwischen 10% des korrekten Wertes ($X = 0.1$) und 300% des korrekten Wertes ($X = 3.0$) in 2700 m.

Abbildung 5.12 bis 5.18 zeigen die Ergebnisse. Alle Fehler sind kleiner als $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$, nur bei zu hoher Eichung bei der Wellenlängenkombination 248/277/313 nm beträgt der Fehler bis zu $11 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Fehler sind für die mit Deuterium erzeugten Wellenlängen generell

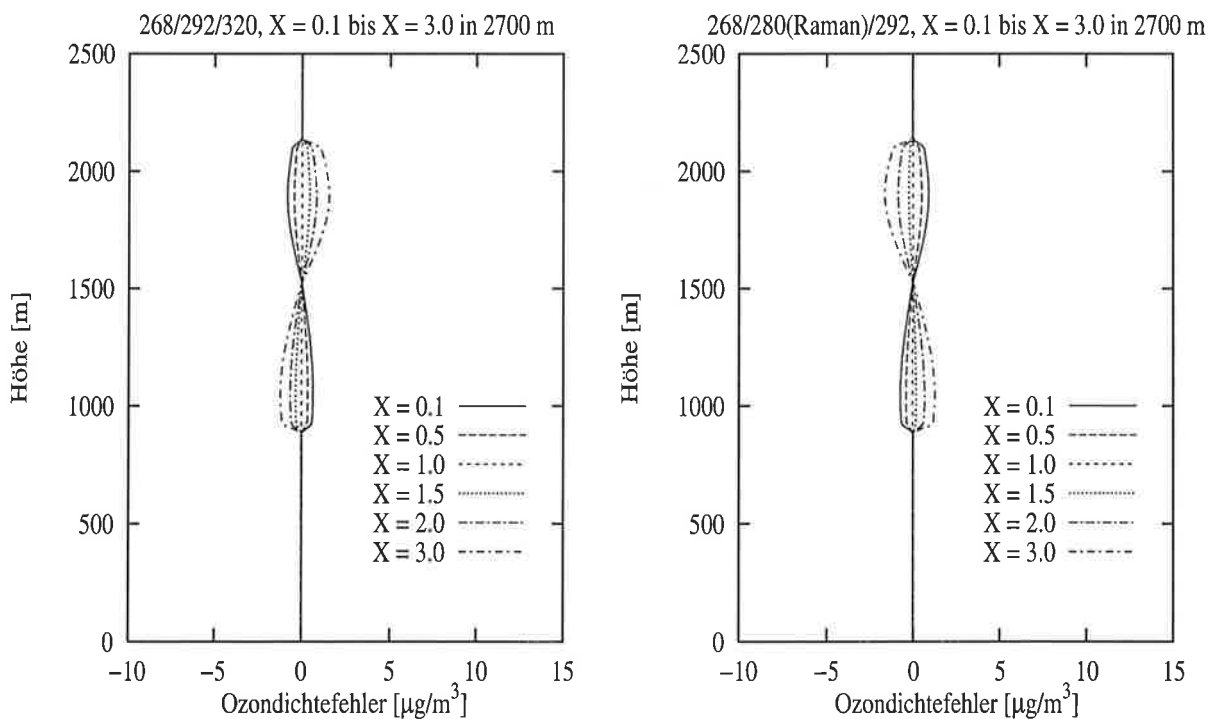


Abbildung 5.12: Fehler durch falsche Eichung in 2700 m; links: 3 elastische Wellenlängen 268 nm/292 nm/320 nm; rechts mit einem Raman-Kanal 268 nm/280 nm (Raman)/292 nm.

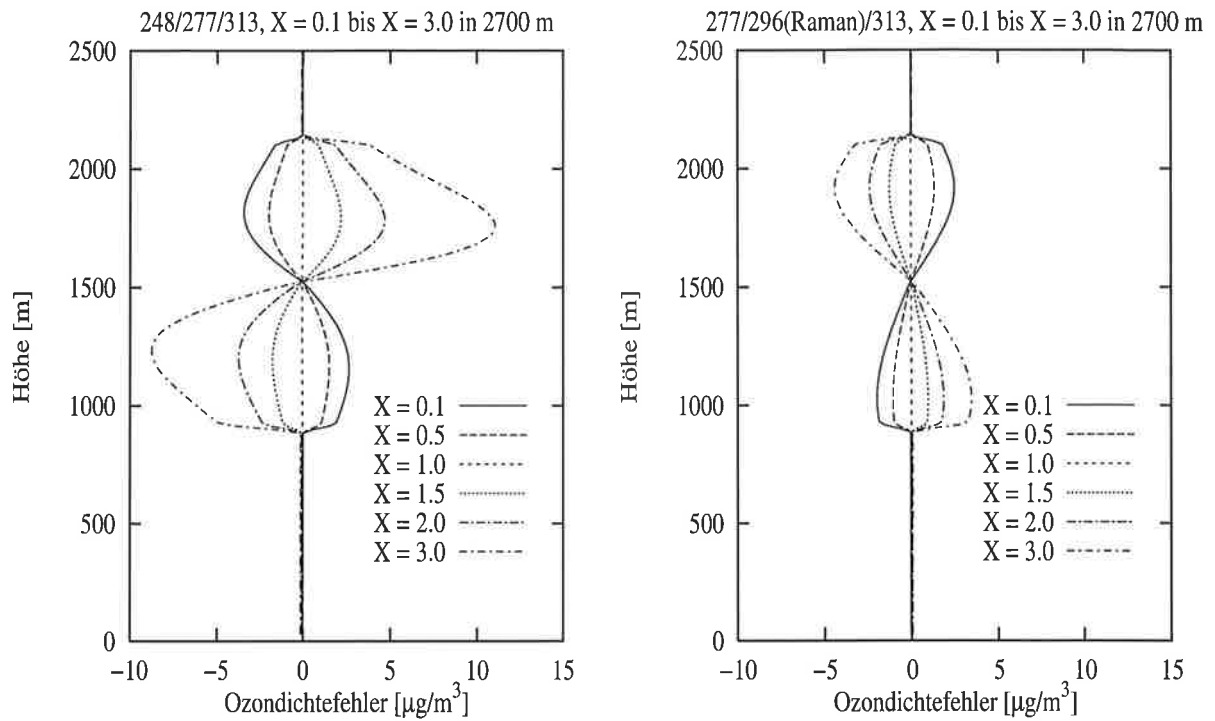


Abbildung 5.13: Fehler durch falsche Eichung in 2700 m; links: 3 elastische Wellenlängen 248 nm/277 nm/313 nm; rechts mit einem Raman-Kanal 277 nm/296 nm (Raman)/313 nm.

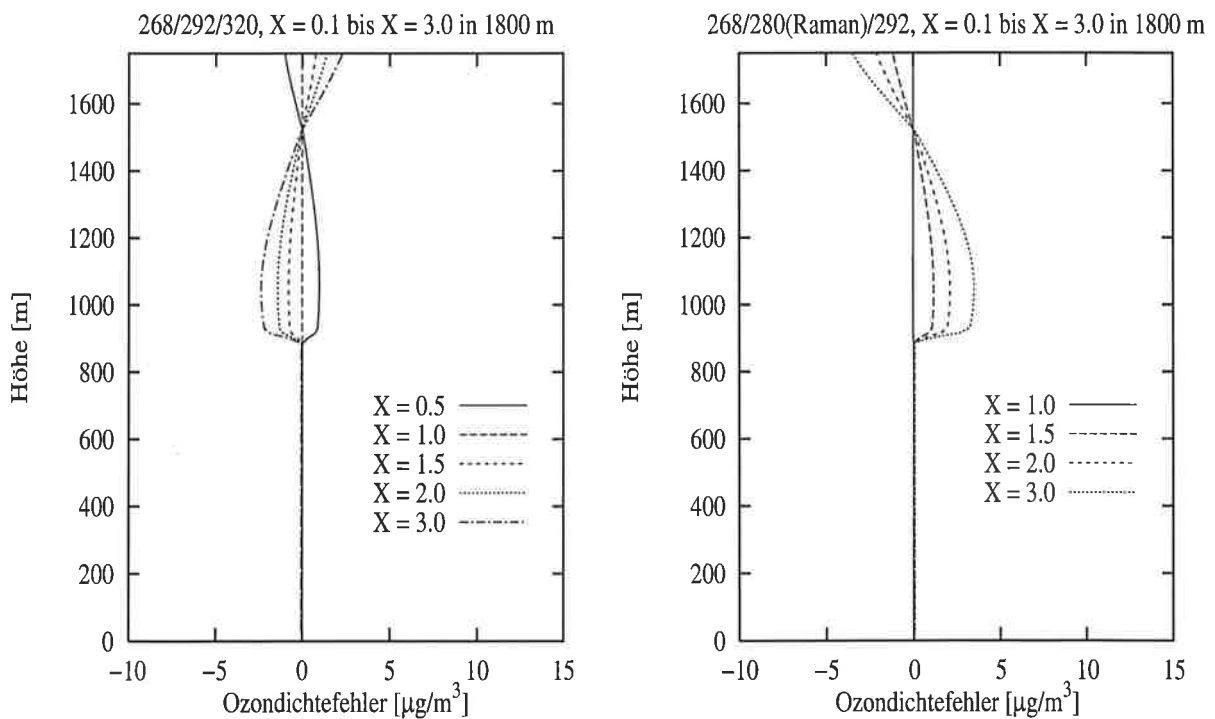


Abbildung 5.14: Fehler durch falsche Eichung in 1800 m („geschlossene Wolkendecke“); links: 3 elastische Wellenlängen 268 nm/292 nm/320 nm; rechts mit einem Raman-Kanal 268 nm/280 nm (Raman)/292 nm.

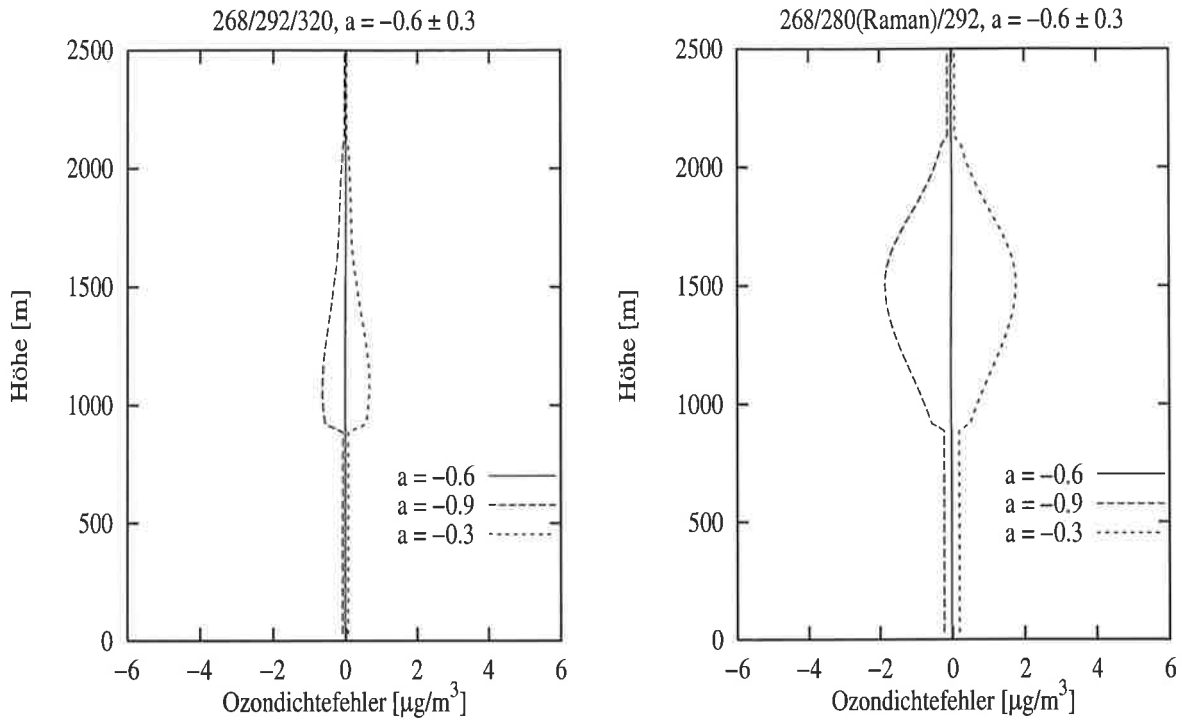


Abbildung 5.15: Fehler durch falsche Annahme der Wellenlängenabhängigkeit der Aero-solextinktion ($a = -0.6 \pm 0.3$); links: 3 elastische Wellenlängen 268 nm/292 nm/320 nm; rechts mit einem Raman-Kanal 268 nm/280 nm (Raman)/292 nm.

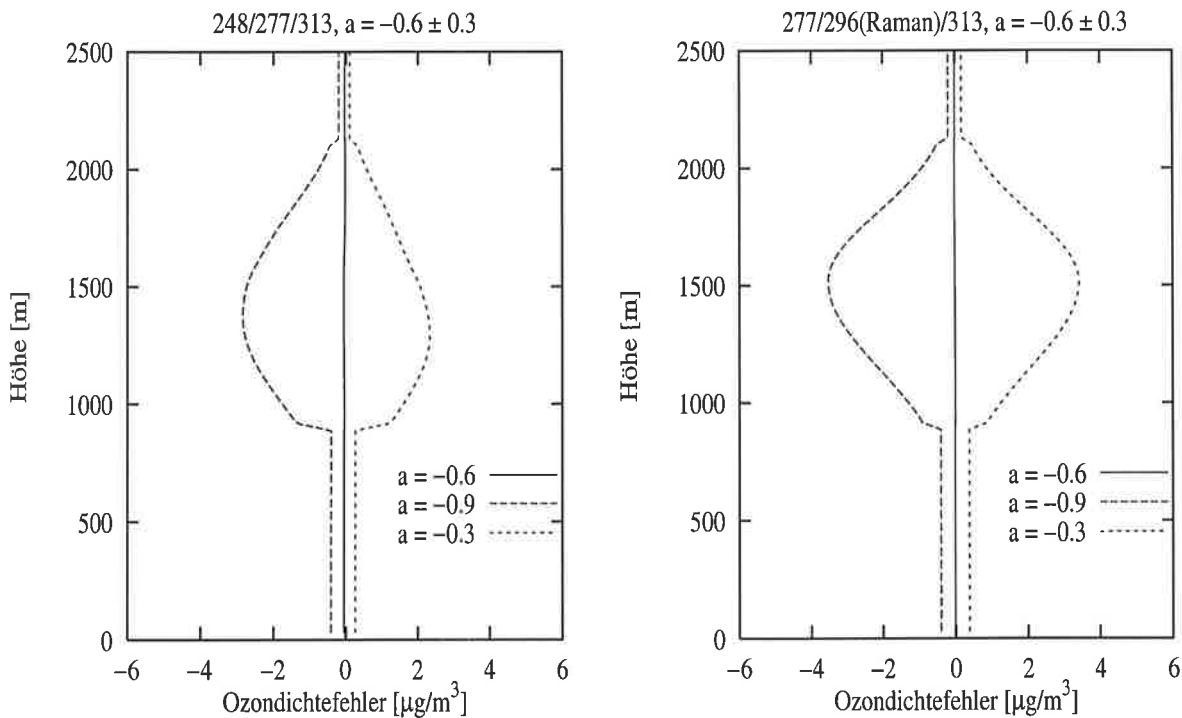


Abbildung 5.16: Fehler durch falsche Annahme der Wellenlängenabhängigkeit der Aero-solextinktion ($a = -0.6 \pm 0.3$); links: 3 elastische Wellenlängen 248 nm/277 nm/313 nm; rechts mit einem Raman-Kanal 277 nm/296 nm (Raman)/313 nm.

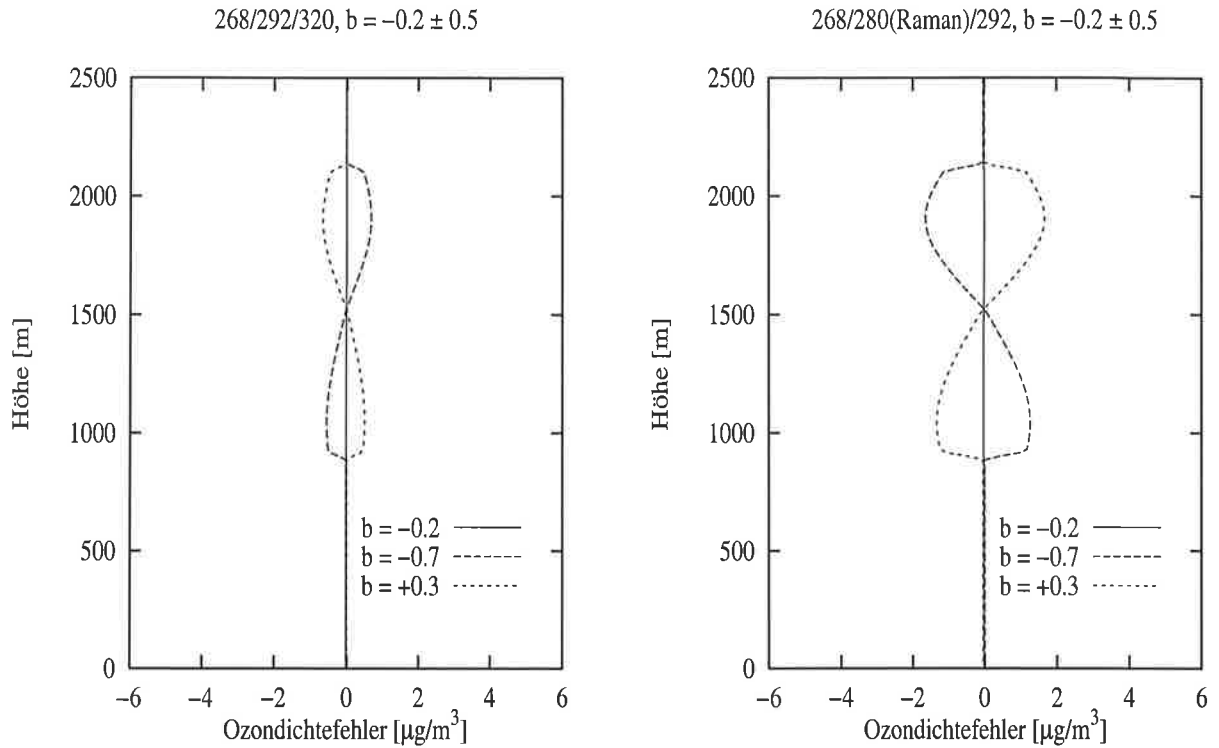


Abbildung 5.17: Fehler durch falsche Annahme der Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolrückstreuung ($b = -0.2 \pm 0.5$); links: 3 elastische Wellenlängen 268 nm/292 nm/320 nm; rechts mit einem Raman-Kanal 268 nm/280 nm (Raman)/292 nm.

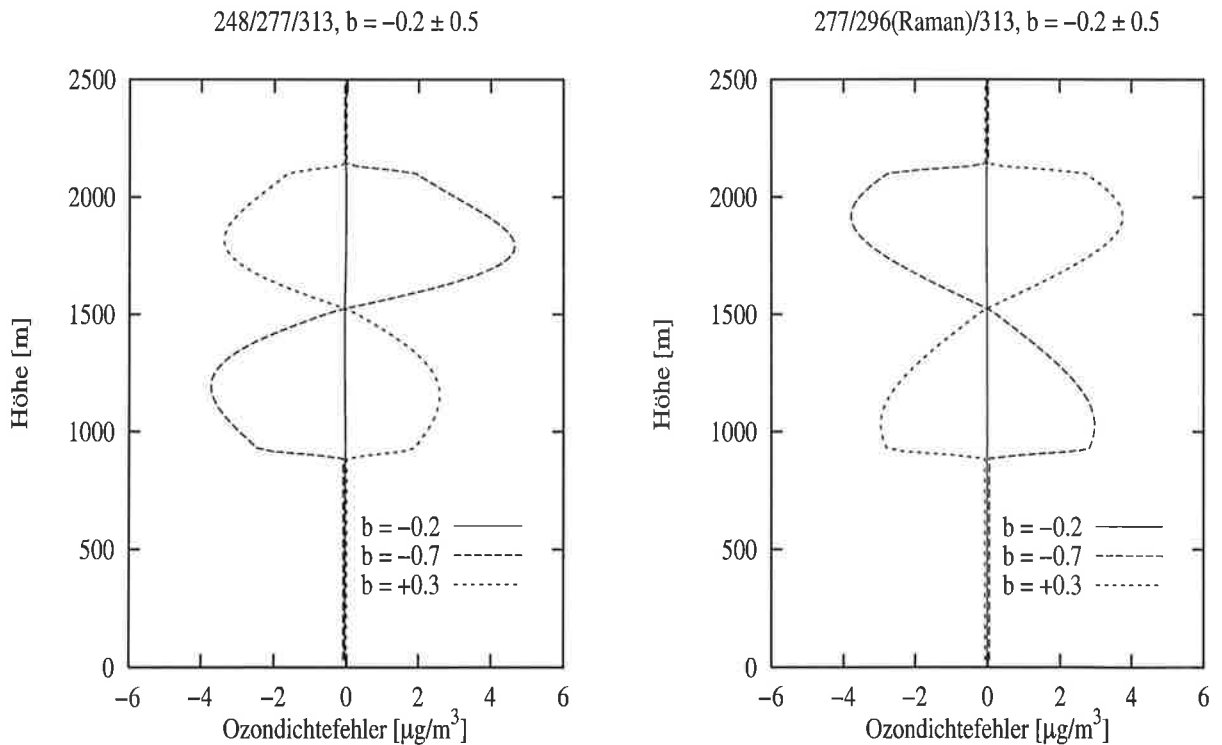


Abbildung 5.18: Fehler durch falsche Annahme der Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolrückstreuung ($b = -0.2 \pm 0.5$); links: 3 elastische Wellenlängen 248 nm/277 nm/313 nm; rechts mit einem Raman-Kanal 277 nm/296 nm (Raman)/313 nm.

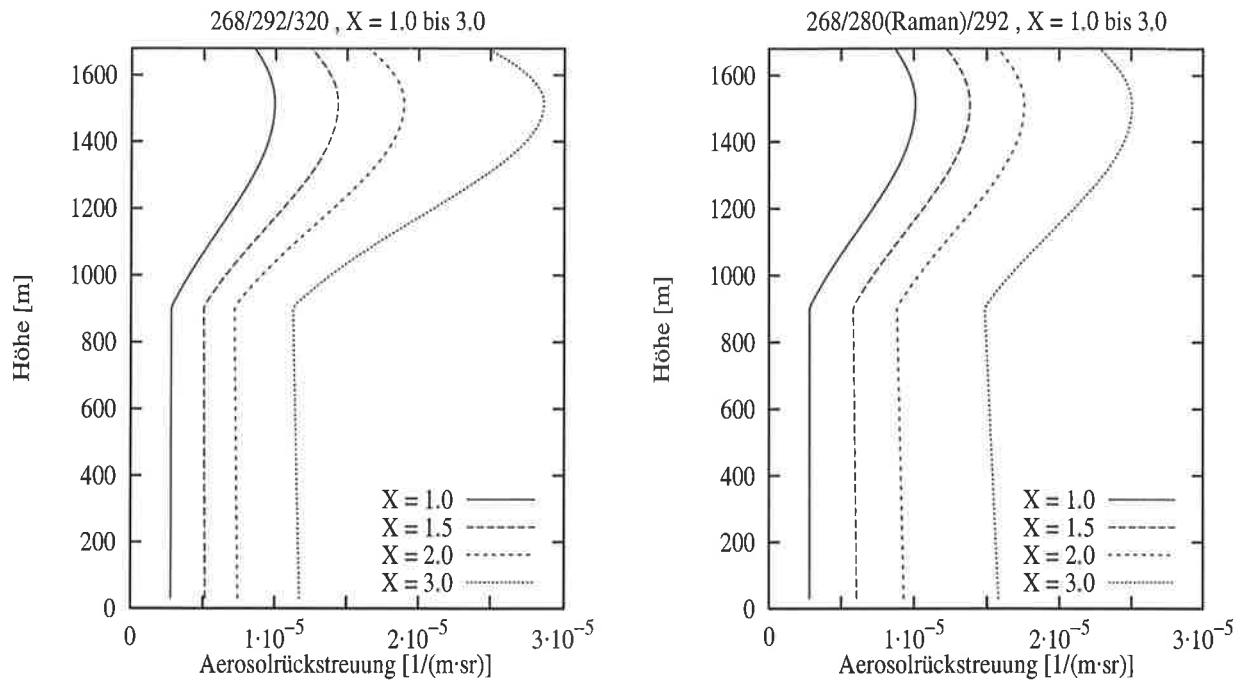


Abbildung 5.19: Aerosolprofil bei falscher Eichung; links: 3 elastische Wellenlängen 268 nm/292 nm/320 nm; rechts mit einem Raman-Kanal 268 nm/280 nm (Raman)/292 nm.

kleiner, da die Wellenlängenabstände kleiner sind und der differentielle Absorptionsquerschnitt größer ist.

Im Vergleich zu den Ergebnissen in den Abschnitten 5.1 und 5.3 sind insbesondere die Ergebnisse bei „geschlossener Wolkendecke“, also mit Eichung in einem Bereich relativ hoher Aerosolrückstreuung deutlich verbessert. Die Eichungen mit $X = 0.1$ und $X = 0.5$

Fehlerabschätzung des Dreiwellenlängenverfahrens					
Fehlerursache	Annahmen	Fehlerabschätzung [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]			
		$D_2(\text{el.})$	$D_2(\text{R})$	$H_2(\text{el.})$	$H_2(\text{R})$
statistischer Fehler	Mittelung 36000 Pulse (30 min., 20 Hz), 240 m vert. Mittelung Signalmax. 20 MHz in 800 m Auswertung bis 2000 m	< 6	< 6.5	n.u.	n.u.
Rayleigh-korrektur	Std. Bedingungen am Boden $\delta N/N = 0.03, \delta \Delta\sigma/\Delta\sigma = 0.03$	< 0.4	< 0.4	< 0.6	< 0.6
Extinktionskorrektur Ångström-Koeff. a	$a = -0.6 \pm 0.3$	< 0.7	< 1.8	< 2.3	< 3.4
Rückstreukorrektur Ångström-Koeff. b	$b = -0.2 \pm 0.5$	< 0.7	< 1.7	< 4.7	< 3.7
Aerosolkorrektur Eichung wolkenfrei	$S = 60$, $X = 0.1 \dots 3.0$ in 2700 m	< 1.5	< 1.5	< 11.0	< 4.4
Aerosolkorrektur Eich. unter Wolken	$S = 60$, $X = 0.1 \dots 3.0$ in 1800 m	< 2.4	< 3.5	n.u.	n.u.

Tabelle 5.4: Fehlerabschätzung für Ozonmessungen mit 3 Wellenlängen mit dem MPI-DIAL unter typischen Bedingungen (stat. Fehler und Rayleigh-Korrekturf Fehler) bzw. aus Simulationsrechnungen (Aerosolkorrekturf Fehler). Es bedeuten $D_2(\text{el.}) = 268/292/320$, $D_2(\text{R}) = 268/286/320$, $H_2(\text{el.}) = 248/277/313$, $H_2(\text{R}) = 277/296/313$, (n.u.: nicht untersucht).

des korrekten Wertes hatten beim Lösungsverfahren mit drei Wellenlängen in den meisten Höhen keine Lösung und konnten daher sofort verworfen werden.

Beim ramangestützten Verfahren findet durch falsche Eichung nur eine Verschiebung der Profile unter weitgehendem Erhalt des Gradienten statt. Etwas ausgeprägter ist dieser Effekt bereits, wenn man statt einer ramangestreuten Wellenlänge eine weitere elastisch gestreute hinzunimmt. Die Deformierung der Aerosolprofile ist etwas stärker als bei der ramangestützten Methode (Abb. 5.19).

Umso überraschender ist es, daß die Benutzung der Wellenlängen 268 nm/292 nm/320 nm insgesamt die kleinsten Fehler zeigt, sie sind sogar noch etwas geringer als für die ramangestützte Methode mit 268 nm/280 nm/292 nm. Auch bei der Variation der Ångström-Koeffizienten a und b zeigt die Wellenlängenkombination 268 nm/280 nm/292 nm die beste Rekonstruktion des Aerosolrückstreuprofiles, dennoch sind die Fehler in der Ozondichte etwas höher als für 268 nm/292 nm/320 nm. Für diesen Effekt gibt es zwei mögliche Erklärungen. Eine Ursache könnte die höhere differentielle Absorption der Kombination 268 nm/292 nm/320 nm gegenüber 268 nm/280 nm/292 nm sein, ein anderer könnte Fehlerneutralisierung sein. Die Fehler für die drei elastisch gestreuten Wellenlängen 248 nm/277 nm/313 nm sind dagegen meist größer als die für 277 nm/296 nm/313 nm.

5.5 Raman-DIAL

5.5.1 Fehlerquellen

Beim Raman-DIAL sind die systematischen Fehler sehr klein. Da die gemessenen Rückstreudaten unabhängig von der Aerosolrückstreuung sind und es auch keiner Eichung bedarf, ist der einzige vorzugebende Parameter die Wellenlängenabhängigkeit des Aerosolextinktionskoeffizienten. Bei diesem Verfahren sind die statistischen Fehler die dominierende Fehlerquelle. Von ihnen hängt auch die Wahl der günstigsten Wellenlängenkombination ab.

Drei der Korrekturterme hängen vom Fehler in der Bestimmung der Anzahldichte der Luft δN ab (siehe Abschnitt A.5). Sie sollte daher am besten aus Radiosondendaten erfolgen. Die Sauerstoffkorrektur stellt den problematischsten Korrekturterm dar, da es nur ungenügende Informationen über den Absorptionsquerschnitt des Sauerstoffs im Ultraviolett gibt. Zudem ist die Korrektur recht groß, so daß auch kleine Fehler in der Anzahldichte des Sauerstoffs wesentlich zum Gesamtfehler beitragen können.

Er spielt zwar nur für Wellenlängen kleiner als 270 nm eine Rolle, allerdings muß beim Raman-DIAL mindestens die online-Wellenlänge in diesem Bereich liegen, wenn das Verfahren auch bei Tageslicht durchführbar sein soll.

Durch Variation der Wellenlängenabhängigkeit der Extinktion ändern sich die Proportionalitätskonstanten K_1 und K_2 geringfügig. Für $a = -0.6 \pm 0.3$ sind die Fehler für alle denkbaren Wellenlängenkombinationen im Solar-Blind kleiner als 0.5%, entsprechend ca. $0.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bei typischen Ozondichten in Norddeutschland.

Es können noch andere systematische Fehler auftreten, die vor allem bei Raman-Messungen von Belang sind. Die Bestimmung der Aerosolextinktion und des Ozons ist abhängig von der exakten Bestimmung der Entfernung des Streuvolumens vom Sender (siehe auch Abschnitt 5.2). Da durch die Datenerfassung nur alle 200 ns ein unabhängiger Meßwert genommen wird (das entspricht einer räumlichen Auflösung von 30 m), ist die

Entfernungsbestimmung im Nahbereich fehlerbehaftet. Die mögliche Effekte für Ungenauigkeiten in der Entfernungsbestimmung lassen sich mit der im Anhang gegebenen Formel (Abschnitt A.5, Punkt 3) für ein Beispiel berechnen. Nimmt man das Raman-Wellenlängenpaar 263.7 nm/286.4 nm, einen Ångström-Koeffizienten von $a = -0.6$ und eine Mittelungslänge von 240 m, so kann man den Fehler durch die Abstandsbestimmung auf die einfache Formel

$$\delta N_{O_3}^z(z) = 37.8 \cdot \frac{\delta z}{z} \mu\text{g}/\text{m}^3 \quad (5.8)$$

bringen. Selbst wenn man $\delta z = 15$ m annimmt ist der Fehler in der Ozonbestimmung in 500 m Höhe nur noch etwas größer als $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$, er kann hier vernachlässigt werden. Für andere Wellenlängenpaare, z.B. das Wellenlängenpaar 280 nm/286 nm ergeben sich ähnliche Werte. In diesem Fall ist $\delta N_{O_3}^z(z) = 35.1 \cdot (\delta z/z) \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Auch Totzeiteffekte zählen zu den systematischen Fehlerquellen bei den Raman-Verfahren, bei denen das sehr geringe Rückstreusignal nur durch das Zählen einzelner Photonen erfaßt werden kann. Übersteigt deren Zählrate einen bestimmten, von der jeweiligen Detektor/Zähler-Einheit bestimmten Wert, so erniedrigen Totzeiteffekte das gemessene Signal. Dieser Effekt ist im Prinzip korrigierbar und auch vermeidbar. Um auch in großen Höhen noch eine gute Signalstatistik zu erreichen, kann es aber sinnvoll sein, bei hohen Zählraten zu arbeiten und dann Korrekturen anzubringen. Wie dies bei dem ramangestützten UV-DIAL des MPI gemacht wird, wird in Kapitel 6 ausführlich erläutert.

In den oberen Höhenbereichen, oberhalb von ca. 500 m und unter Nichtberücksichtigung des Totzeiteffektes, sollte es möglich sein, bei genügend langer Mittelungszeit sehr genaue Ozonprofile zu erhalten, da dann nur noch der statistische Fehler eine Rolle spielt und dieser mit zunehmender Mittelungszeit immer kleiner wird.

5.5.2 Auswahl der Wellenlängen

Bei dem vorhandenen UV-Lidar-System des MPI für Meteorologie stehen verschiedene Möglichkeiten für die benutzten Raman-Wellenlängen zur Auswahl. In den vorherigen Abschnitten ist deutlich geworden, daß die Verwendung von Deuterium zur Frequenzkonversion unter Erzeugung der Wellenlängen 248.5 nm, 268.5 nm, 291.9 nm und 319.8 nm sehr viel günstiger in Bezug auf die Fehlerempfindlichkeit der Auswertung ist als die Verwendung der Wellenlängen 248.5 nm, 277.1 nm und 313.2 nm unter Verwendung von Wasserstoff. Daher werden hier nur die Möglichkeiten für ein Raman-DIAL unter Benutzung der Wellenlängen 248.5 nm, 268.5 nm, 291.9 nm und 319.8 nm weiter untersucht.

λ_0	Sauerstoff $\Delta\nu = 1556\text{cm}^{-1}$	Stickstoff $\Delta\nu = 2331\text{cm}^{-1}$
248.5 nm	258.5 nm	263.8 nm
268.5 nm	280.2 nm	286.4 nm
291.9 nm	305.8 nm	313.2 nm

Tabelle 5.5: Raman-Rückstreuwellenlängen bei Anregung mit einem KrF-Excimer-Laser mit anschließender Frequenzkonversion mit D_2 .

Betrachtet man nur die Raman-Streuung an Molekülen mit bekannter Dichte, also Stickstoff oder Sauerstoff, so ergeben sich sechs Raman-Wellenlängen unterhalb von 320 nm. Wenn das Raman-Rückstreusignal noch im Solar-Blind-Bereich liegen soll, d.h. kleiner als ca. 300 nm sein soll, können nur die Wellenlängen 248.5 nm und 268.5 nm als Anregungswellenlängen benutzt werden.

Die von den 291.9 nm angeregten Raman-Wellenlängen bei 305.8 nm und 313.2 nm sind am Tage mit einem hohen Untergrundlicht behaftet. Ihre Benutzung für Messungen bei Tageslicht ist nur eingeschränkt möglich (bei niedrigem Sonnenstand im Winter). Bei Nacht stellen sie aber eine gute Alternative dar, da sich die Reichweite eines Raman-DIALs aufgrund der geringeren Ozonabsorption entscheidend erhöhen läßt. Die möglichen Wellenlängenpaare für ein Raman-DIAL sind also

1. 258.5nm / 263.8 nm (O_2/N_2),
2. 258.5nm / 280.2 nm (O_2/O_2),
3. 258.5nm / 286.4 nm (O_2/N_2),
4. 263.8nm / 280.2 nm (N_2/O_2),
5. 263.8nm / 286.4 nm (N_2/N_2),
6. 280.2nm / 286.4 nm (O_2/N_2),
7. 286.4nm / 305.8 nm (N_2/O_2) .

Dabei ist die letzte angegebene Wellenlängenkombination am Tage nur bedingt verwendbar.

Die Auswahl soll so vorgenommen werden, daß die zu erwartenden statistischen Fehler möglichst klein und die Reichweite des Systems möglichst hoch ist. Entscheidend für die Intensität des rückgestreuten Signals ist die Ausgangsenergie, die Extinktion durch Absorption und Streuung, die Dichte der Streuer und der Raman-Rückstreuerquerschnitt. Das erste Wellenlängenpaar braucht nicht näher betrachtet zu werden, da der Wellenlängenabstand sehr klein ist, mit kleiner differentieller Absorption, und beide Wellenlängen im Maximum der Ozonabsorption liegen, also sehr schnell extinguiert werden und daher nur eine geringe Reichweite haben.

Die Rückstreuung an atmosphärischem Stickstoff ist der an Sauerstoff vorzuziehen, da sie ca. um einen Faktor 2.5 größer ist. Die Wellenlängenpaare 2 (258/280) und 4 (263/280) sind also mit Sicherheit ungünstiger als die Paare 3 (258/286) und 5 (263/286), da der Wellenlängenabstand und damit die differentielle Absorption bei letzteren zudem größer ist. Für den Vergleich der Wellenlängenpaare 3 (258/286), 5 (263/286), 6 (280/286) und 7 (286/306) wurde eine Modellrechnung durchgeführt, in die zum Vergleich auch das ungünstige Wellenlängenpaar 258/280 miteinbezogen wurde. In den Rechnungen wurden die unterschiedlichen Rückstreuerquerschnitte und Dichten der Rückstreuer, die unterschiedliche Ausgangsenergie des Lasersystems bei 248 nm (ca. 60 mJ/Puls) gegenüber 268 nm (ca. 30 mJ/Puls) und 292 nm (ca. 10 mJ/Puls) und die bereits verwendete Modellaerosolverteilung mit einer konstanten Ozondichte von $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ berücksichtigt. Die Simulation wurde für eine maximale Zählrate von 10 MHz in ca. 500 m gerechnet (Empfangsteleskop II). Die Angaben über den statistischen Fehler beruhen auf Poissonstatistik bei einer Mittelung über 240 m und 36000 Laserpulse.

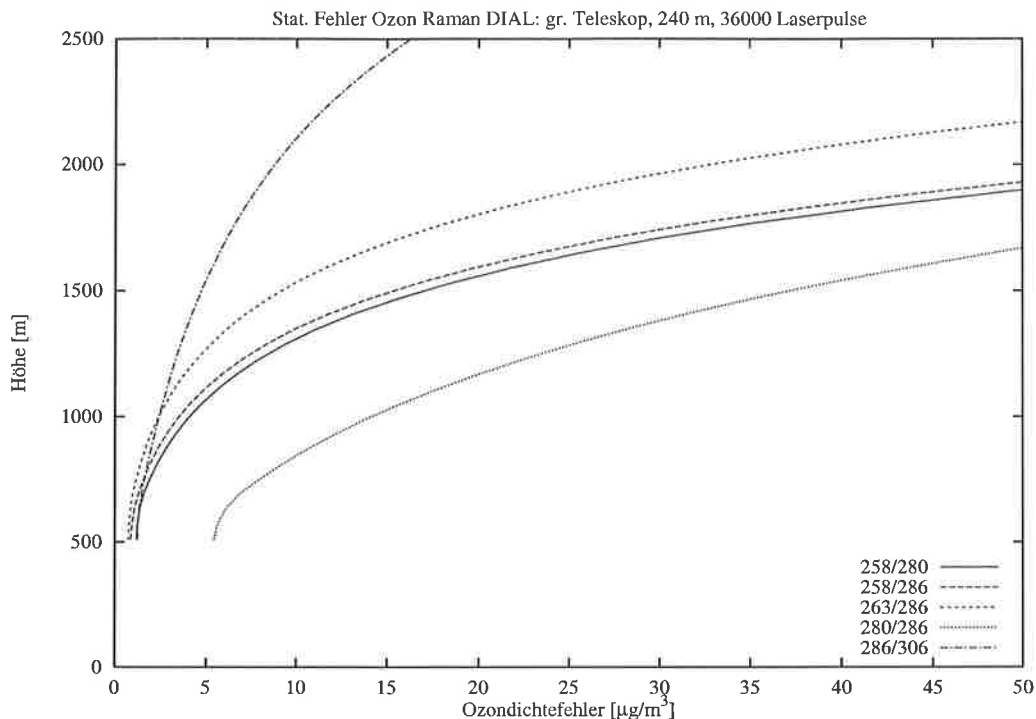


Abbildung 5.20: Statistischer Fehler für unterschiedliche Raman-DIAL Wellenlängenpaare unter Modellbedingungen für den oberen Höhenbereich. Für das Wellenlängenpaar 286 nm/306 nm wurde angenommen, daß kein solares Hintergrundlicht vorliegt (nächtlige Bedingungen).

Das Wellenlängenpaar 263 nm/286 nm ist nach diesen Rechnungen bei Tageslicht das günstigste (Matthias und Bösenberg, 1998). Obwohl die online-Wellenlänge im Maximum der Ozonabsorption liegt, ist der zu erwartende statistische Fehler deutlich kleiner als bei 280 nm/286 nm. Bei diesem Wellenlängenpaar macht sich die kleine differentielle Absorption bemerkbar. Es ist von Vorteil, mit unterschiedlichen Anregungswellenlängen für die Raman-Streuung zu arbeiten und eine relativ hohe Separation der Wellenlängen zu wählen. Dies war auch schon beim Ozon-DIAL aus elastischer Rückstreuung der Fall. Abends oder nachts ist dagegen das am Tage aufgrund des solaren Hintergrundlichts nur bedingt nutzbare Wellenlängenpaar 286 nm/306 nm vorzuziehen. Mit diesem Wellenlängenpaar können deutlich höhere Reichweiten erzielt werden, da keine sehr stark absorbierte Wellenlänge (Anregung der Raman-Streuung bei 248 nm) benutzt wird und die offline-Wellenlänge (306 nm, angeregt bei 292 nm) nur noch schwach absorbiert wird. Zudem ist der Wellenlängenabstand durch die unterschiedlichen Anregungswellenlängen wiederum deutlich höher als bei 280 nm/286 nm.

5.5.3 Fehlerabschätzung

Die Rechnungen machen deutlich, daß die zu erwartenden statistischen Fehler sehr hoch werden können und dadurch der Meßbereich eingeschränkt ist. Bei nicht hoch repetierenden Systemen (10 - 30 Hz) wird es nur möglich sein, stark gemittelte Daten von ca. 30 Minuten und 240 m Mittelungslänge zu erhalten, wenn der Fehler nicht größer als ca. 10 µg/m³ werden soll. Dieser Wert wird unter den Modellbedingungen bei Mittelung

über 240 m und 36000 Pulse in ca. 1400 m für das Empfangsteleskop II und in ca. 900 m für das Empfangsteleskop I erreicht. Stärkere zeitliche Mittlung vermag den Meßbereich nur geringfügig zu erweitern. Bei z.B. 144000 Pulsen (entspricht 2 Stunden bei 20 Hz) erreicht man einen Fehler von $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in 1700 m.

Daher erscheint es sinnvoll, bei geringem Tageslichtuntergrund oder Dunkelheit auch eine sehr schwach absorbierte Wellenlänge, die nicht mehr im Solar-Blind liegt (305.8 nm), mitzumessen und für den oberen Höhenbereich das Wellenlängenpaar 286 nm/306 nm zu benutzen.

5.6 Vergleich der Verfahren

Die hier vorgenommene Fehlerabschätzung anhand eines Beispielaerosolprofils ermöglicht einen Vergleich der Verfahren bezüglich ihrer Stärken und Schwächen.

Für alle Verfahren läßt sich sagen, daß die unter Benutzung von Deuterium erzeugten Wellenlängen 268 nm/292 nm/320 nm sehr viel günstiger zur Auswertung von Ozonprofilen sind als die mit Wasserstoff in der Raman-Zelle erzeugten Wellenlängen 248 nm/277 nm/313 nm. Dies liegt insbesondere an dem größeren differentiellen Wirkungsquerschnitt $\Delta\sigma_{\text{O}_3}$ und dem kleineren Wellenlängenabstand $\Delta\lambda$. Als DIAL-Wellenlängen sind sie in den meisten Fällen fehlerunempfindlich. Ein weiterer Vorteil ist die dritte detektierbare Wellenlänge bei 320 nm, die eine genaue Bestimmung von Aerosolprofilen ohne Ozon-einfluß erlaubt und mit der Wellenlänge 292 nm kombiniert ein Wellenlängenpaar für Ozonauswertung in der unteren freien Troposphäre bis ca. 4000 m bildet.

Problematisch wird es bei sehr hohen Gradienten in der Aerosolrückstreuung, bei sehr fehlerhafter Schätzung des Lidar-Verhältnisses (hier soll diese Arbeit weiterhelfen) und wenn in einem Bereich mit hoher Aerosolrückstreuung geeicht werden muß, z.B. bei geschlossener Wolkendecke.

Hier bieten die Verfahren mit drei Wellenlängen, elastisch oder unter Einbeziehung eines Raman-Kanals, Vorteile. Die mit Deuterium erzeugten Wellenlängenkombinationen sind sehr unempfindlich gegen Fehler in den vorgegebenen Parametern. Die Kombination dreier elastischer Wellenlängen (268 nm/292 nm/320 nm) schneidet im Vergleich für die vorgegebene Aerosolverteilung sogar noch besser ab als 268 nm/292 nm unter Einbeziehung eines Raman-Kanals bei 280 nm. Die Unterschiede sind aber klein. Die mit SRS an Wasserstoff erzeugten Wellenlängenkombinationen können insbesondere durch Eichfehler hohe Fehler in der Ozonbestimmung aufweisen.

Für einen Vergleich zwischen DIAL mit Inversionsalgorithmus nach Fernald und der Dreiwellenlängenmethode mit kombinierten systematischen Fehlern wurden mehrere zu schätzende Parameter gleichzeitig variiert. In allen Fällen bestand die Vorgabe aus einem höhenabhängigen Lidar-Verhältnis (Abb. 5.1). Für die Rückrechnung wurde ein mittleres Lidar-Verhältnis von $S = 40$ angenommen. Es wurden dann einmal zu niedrige Werte für die Wellenlängenabhängigkeit der Rückstreuung ($a = -0.9, b = -0.7$) und einmal zu hohe Werte ($a = -0.3, b = +0.2$) angenommen. Der Eichwert wurde jeweils um einen Faktor 2 überschätzt ($X = 2.0$).

Die Abbildungen 5.21 und 5.22 zeigen die Ergebnisse. Offenbar kann es vorkommen, daß sich Fehler neutralisieren, wie für DIAL mit Fernald-Korrektur für zu niedrige a und b . Der Einzelfehler durch falsches Lidar-Verhältnis betrug im Bereich 1500 m bereits

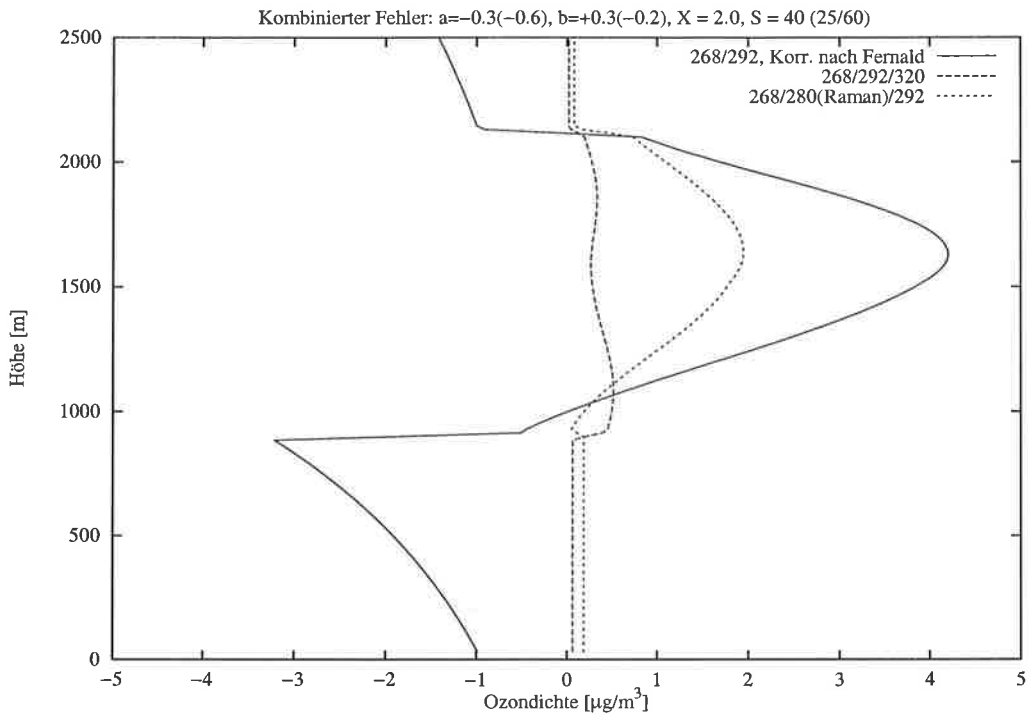


Abbildung 5.21: *Kombinierter Fehler bei zu hohem a und b für DIAL mit Fernald-Korrektur, 3 elastische Wellenlängen und 2 elastische Wellenlängen mit einem Raman-Kanal.*

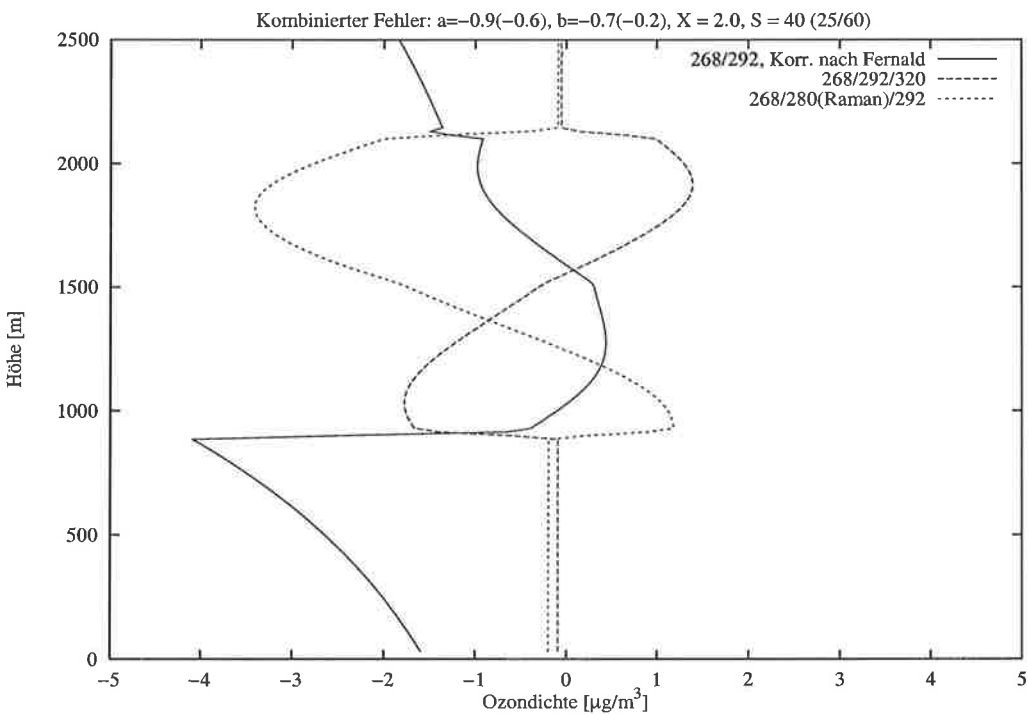


Abbildung 5.22: *Kombinierter Fehler bei zu niedrigem a und b für DIAL mit Fernald-Korrektur, 3 elastische Wellenlängen und 2 elastische Wellenlängen mit einem Raman-Kanal.*

$5 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Generell zeigt das Dreiwellenlängenverfahren aber bessere Ergebnisse, da es unabhängig vom Lidar-Verhältnis ist. Dieser Vorteil ist von immenser Bedeutung, da es unmöglich ist, das Lidar-Verhältnis richtig zu schätzen.

Das Raman-DIAL-Verfahren weist praktisch keine systematischen Fehler mehr auf. Der größte Nachteil dieses Verfahrens liegt dagegen in den mit der Höhe sehr schnell anwachsenden statistischen Fehlern. Der Auswertebereich ist damit neben der erforderlichen hohen Mittelungslänge stark eingeschränkt, so daß sich in der Praxis nur wenige auswertbare Datenpunkte ergeben. Hier werden sich nur mit hochrepetierenden Lasersystemen, die dadurch den statistischen Fehler merklich senken können, Erfolge erzielen lassen. Unter dieser Voraussetzung kann das Verfahren aber substantielle Fortschritte in Situationen mit großen Inhomogenitäten in der Aerosolverteilung ergeben. Durch die Unabhängigkeit von Eichung und Schätzung von Aerosolparametern ist es hervorragend zur Automatisierung geeignet. Die anderen Verfahren erfordern doch oftmals noch eine für jedes Profil neue Schätzung der vorzugebenden Aerosolparameter.

Beim Raman-DIAL stellt sich eine weitere Schwierigkeit durch die Benutzung von Wellenlängen mit Querempfindlichkeiten zum molekularen Sauerstoff. Die bisher ungenügende Kenntnis der sehr kleinen Absorptionsquerschnitte beinhaltet hohe Fehler für die Auswertung. Hier sollten sich aber prinzipiell Fortschritte erzielen lassen, z.B. durch vergleichende Messungen bei „einfachen“ atmosphärischen Verhältnissen, d.h. bei sehr sauberer Atmosphäre.

Kapitel 6

Das UV-Lidar-System

Das Max-Planck-Institut für Meteorologie betreibt schon seit Anfang der neunziger Jahre ein Ozon-DIAL (Bösenberg et al., 1993; Schaberl, 1995). Dieses wurde im Rahmen dieser Arbeit in wesentlichen Teilen umgebaut und erweitert, so daß die von Bösenberg und Schaberl beschriebenen Systeme nur noch prinzipielle Übereinstimmungen mit dem derzeitig betriebenen Ozon-DIAL aufweisen.

Wesentliche Änderungen waren der Einbau eines anderen Excimer-Lasers, die Verlegung von Empfangsteleskopen und Gasversorgung des Lasers *in* den Container, die Erweiterung der Detektionsseite um Raman-Kanäle mit Photonenzählsystem sowie die innerhalb von 2 - 3 Stunden realisierbare optionale Umstellung des Ozon-DIALs auf ein UV-Rückstreu- und Raman-Lidar bei 351 nm. Hinzu kommt, daß das Lidar seit Sommer 1998 ebenfalls optional unter einem Zenitwinkel von 70° messen kann und damit der erfaßbare Höhenbereich auf Minimalhöhen von 100 m ausgedehnt wurde.

Hier erfolgt daher eine ausführliche Beschreibung des neuen UV-Lidar-Systems.

6.1 Sendeseite

Kernstück des Lidars ist ein Excimer-Laser der Firma Lambda Physik (EMG 201 MSC). Das emittierte Licht hat mit einer Kryptonfluorid (KrF)-Füllung des Lasers eine Wellenlänge von 248.5 nm, bei Füllung mit Xenonfluorid (XeF) eine Wellenlänge von 351.0 nm. Der mit einer instabilen Resonatoroptik ausgestattete Laser emittiert mit einer Linienbreite von 0.53 nm und einer Divergenz kleiner als 0.4 mrad (Lambda Physik, 1984). Zur Erzeugung weiterer UV-Wellenlängen für den Betrieb als Ozon-DIAL wird der Effekt der stimulierten Raman-Streuung (SRS) an einem Gas ausgenutzt. Hierbei findet eine Konversion zu höheren Wellenlängen, den Stokes-Wellenlängen, statt, indem die Moleküle des streuenden Gases zu Eigenschwingungen angeregt werden. Der Betrag der Wellenlängenverschiebung ist somit abhängig vom benutzten Gas. Je nach Linienbreite und Druck des Gases in der Raman-Zelle findet auch eine Konversion von Energie in die 2. und 3. Ordnung statt, d.h. es werden mehrere Wellenlängen mit gleichem Wellenzahlabstand erzeugt (Milton et al., 1998). Bei der stimulierten Raman-Streuung bleiben die Kohärenz und Monochromasie des Laserlichts erhalten.

Bei diesem System werden nur Wasserstoff und Deuterium zur stimulierten Ramanstreuung verwendet. Bei H₂ werden neben den 248.5 nm noch die Wellenlängen 277.2 nm und 313.2 nm emittiert, bei D₂ sind es 268.5 nm, 291.9 nm und 319.8 nm. Aufgrund der Untersuchungen zur Meßgenauigkeit, die in Kapitel 5 ausführlich erläutert wurden, wird

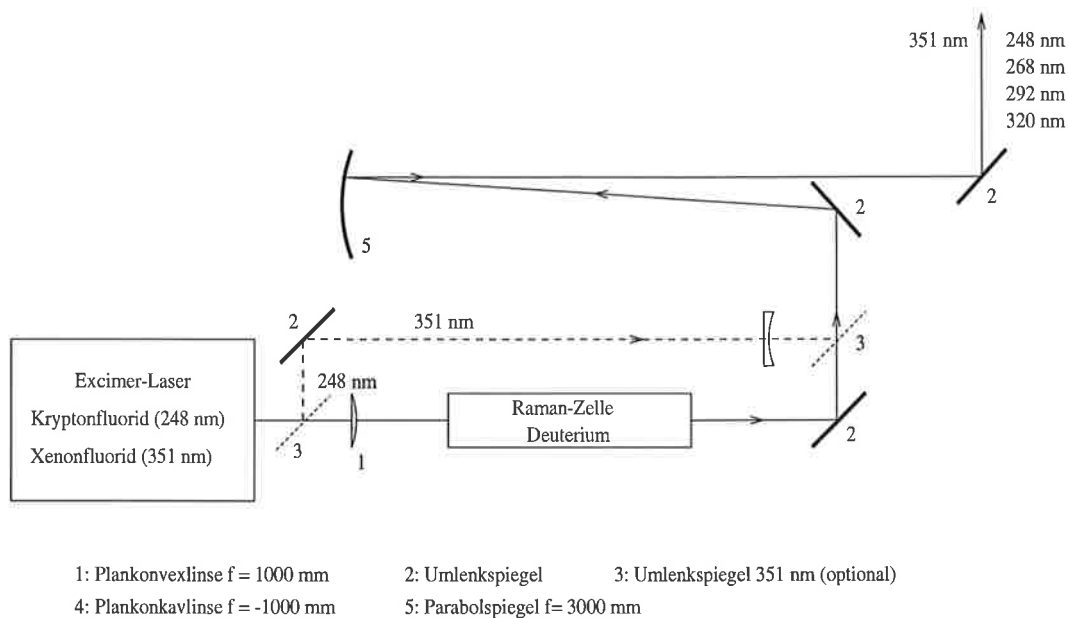


Abbildung 6.1: Schematische Darstellung der Sendeseite des MPI-UV-Lidar.

seit 1997 praktisch nur noch Deuterium benutzt.

Aufgrund der hohen Linienbreite des Laserlichts und der geringen Verstärkung der SRS bei Deuterium bleibt die meiste Energie in der Ausgangswellenlänge von 248.5 nm, mit zunehmender Ordnung der Streuung nimmt die Energie dann weiter ab. Für die Ozon-DIAL-Messung verbleiben ca. 20 mJ in der online-Wellenlänge bei 268.5 nm und ca. 10 mJ in der offline-Wellenlänge bei 291.9 nm.

Das Laserlicht wird mit einer Linse der Brennweite 1000 mm in die Raman-Zelle fokussiert. Es wird anschließend umgelenkt und von einem off-axis betriebenen Parabolspiegel der Brennweite 3000 mm wieder parallelisiert. Dabei wird der Strahl 3-fach aufgeweitet, um eine Strahldivergenz kleiner als 0.2 mrad zu erhalten. Ein weiterer Umlenkspiegel sorgt dafür, daß der Strahl dann senkrecht in die Atmosphäre gelenkt wird. Beim Betrieb des Lasers mit XeF-Füllung wird das Laserlicht nur mittels einer Zerstreuungslinse der Brennweite $f = -1000$ mm und anschließender Parallelisierung durch den Parabolspiegel mit $f = 3000$ mm 3-fach aufgeweitet und dann vertikal in die Atmosphäre emittiert. Der Strahlengang auf dem optischen Tisch kann durch Einbau zweier zusätzlicher Spiegel auf Repositionierplatten sehr schnell geändert werden.

	Wasserstoff $\Delta\nu = 4155\text{cm}^{-1}$	Deuterium $\Delta\nu = 2991\text{cm}^{-1}$
λ_0	248.5 nm	
λ_1	277.1 nm	268.5 nm
λ_2	313.2 nm	291.9 nm
λ_3	360.0 nm	319.8 nm

Tabelle 6.1: Unter Ausnutzung der stimulierten Raman-Streuung mit einem KrF-Excimer-Laser erzeugte Wellenlängen.

Excimer-Laser	
Typ	Lambda Physik, EMG 201 MSC
Wellenlänge	248.5 nm (KrF), 351.0 nm (XeF)
Ausgangsenergie	≈ 280 mJ (KrF), ≈ 60 mJ (XeF)
Bandbreite (FWHM)	0.53 nm
Repetitionsrate	max. 80 Hz, typ. 10 Hz
Strahldivergenz (voller Winkel)	< 0.4 mrad
Pulslänge (FWHM)	22 ns
Strahlgröße (b × h)	5 × 20 mm ²
Optiken	
Fokussierlinse	Suprasil 1, plankonvex, f = 983.5 mm (248.5 nm)
Zerstreuungslinse	Suprasil 1, plankonkav, f = -1040 mm (351.0 nm)
Parabolspiegel	Suprasil 1, Al-beschichtet, f = 2987.5 mm
Strahldivergenz (voller Winkel) nach Aufweitung	< 0.2 mrad
Raman-Zellen	
Gase	H ₂ und/oder D ₂
Druck	max. 40 bar
Länge	1 m
Typische Füllung	40 bar D ₂
Ausgangsenergie	> 20 mJ für 268nm, > 10 mJ für 292 nm, > 4 mJ für 320 nm

Tabelle 6.2: Übersicht über wichtige technische Daten der Sendeseite.

6.2 Empfangsseite

Das aus der Atmosphäre zurückgestreute Licht wird mit zwei Teleskopen empfangen. Diese bestehen aus Parabolspiegeln, in deren Fokus sich jeweils eine Glasfaser des Kerndurchmessers 1.25 mm befindet. Dabei dient ein kleines Teleskop (Empfangsteleskop I, Spiegeldurchmesser 150 mm) zur Messung im unteren Höhenbereich ab ca. 300 m und ein großes Teleskop (Empfangsteleskop II, Spiegeldurchmesser 400 mm) zur Messung im oberen Höhenbereich ab ca. 1000 m. Die erreichbaren Meßhöhen richten sich stark nach der Absorption des Strahls, also nach atmosphärischen Eigenschaften wie Ozondichte und Aerosolextinktion, nach den benutzten Wellenlängen und der Anordnung von Strahl und Teleskop. Mittelwerte für die Wellenlänge 268 nm sind ca. 1000 m für das Empfangsteleskop I und ca. 2200 m für das Empfangsteleskop II. Die Wellenlänge 292 nm des Empfangsteleskops II kann bis etwa 4000 m zur Auswertung von Ozonprofilen herangezogen werden. Bei Betrieb des Lidars bei 351 nm kann mit beiden Teleskopen ein Bereich bis zu 8000 m abgedeckt werden. Signale von noch höher liegender Cirrusbewölkung können aufgrund der erhöhten Rückstreuung ebenfalls detektiert werden.

Optional kann auch unter einem Zenitwinkel von 70° gemessen werden und damit die unterste Meßhöhe mit dem Empfangsteleskop I auf ca. 100 m reduziert werden. Dazu wird auf dem Dach des Meßcontainers ein Umlenkspiegel über Strahl und Teleskop angebracht.

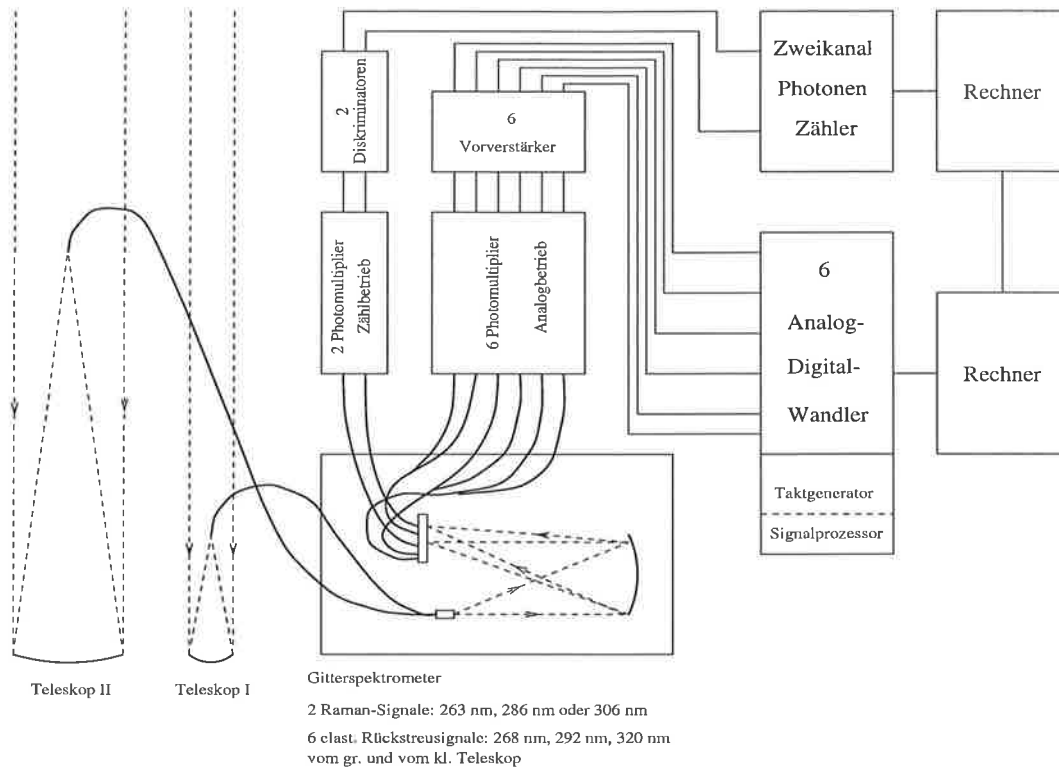


Abbildung 6.2: Schematischer Aufbau der Empfangsseite des Ozon-DIALs.

Der Umbau erfolgt innerhalb weniger Minuten.

Die Quarzglasfasern im Fokus der Teleskope leiten das empfangene Licht zur Zerlegung in die einzelnen Wellenlängen in ein Spektrometer (Schaberl, 1990). Das Spektrometer besteht aus einem planen geritzten Reflexionsgitter mit 1200 Linien pro mm. Zur parallelen Abbildung des divergenten Lichts aus der Eingangsglasfaser dient ein parabolischer Kollimatorspiegel. Ein Fernrohrspiegel bildet das nach Wellenlängen getrennte Licht erneut auf Glasfasern des Durchmessers 1.5 mm ab. Die lineare Dispersion beträgt 2.8 nm/mm. Bei eng benachbarten Wellenlängen, wie es zum Beispiel einige Raman-Wellenlängen zu elastisch gestreuten Wellenlängen sind, beträgt der Durchmesser der Ausgangsfasern ebenfalls 1.25 mm. Die Effizienz des Spektrometers, d.h. der Anteil des eingestrahnten Lichtes einer bestimmten Wellenlänge, der wieder auf die Ausgangsfaser gelangt, beträgt ca. 30%. Die Glasfasern der Ausgangsebene leiten das Licht auf die mit Solar-Blind-Filtern geschützten Detektoren. Hierfür werden Photoelektronenvervielfacher (englisch: photomultiplier tube, PMT) der Firma Thorn EMI, Typ 9883 QB benutzt. Sie besitzen ein Quarzglasfenster und eine Bialkalikathode. Die Verstärkung erfolgt über 14 Dynoden aus BeCu bei typischen Verstärkungsfaktoren von 10^6 . Die Quantenausbeute der PMT liegt bei ca. 27%. Die PMT werden für die elastisch gestreuten Signale im Analogmodus betrieben, d.h. es kann ein Strom aus der Anode entnommen werden, der dann mit Transimpedanzverstärkern (Typ Femto HCA-S) verstärkt und in ein Spannungssignal konvertiert wird. Sechs 12-bit Analog-Digital-Wandler (ADC) messen das Signal. Die über 100 - 300 Laserpulse gemittelten Signale und die Mittelwerte der Quadrate der Signale werden auf einer SUN-Workstation gespeichert. Die Speicherung der Quadrate dient der Berechnung der Standardabweichung und damit des statistischen Fehlers der Messung.

Empfangsteleskop I	
Spiegel	parabolisch, $f = 450 \text{ mm}$, $\phi 150 \text{ mm}$
Schutzfenster	Suprasil $\phi 160 \text{ mm}$
Ausgang	Quarzglasfaser, Kerndurchmesser 1.25 mm
Gesichtsfeld (voller Winkel)	2.7 mrad
Empfangsteleskop II	
Spiegel	parabolisch, $f = 1000 \text{ mm}$, $\phi 400 \text{ mm}$
Schutzfenster	Suprasil, Breitband-Antireflex-Beschichtung
Ausgang	Quarzglasfaser, Kerndurchmesser 1.25 mm
Gesichtsfeld (voller Winkel)	1.0 mrad
Analog-Datenerfassung	
Photomultiplier	EMI 9883 QB, 14 Dynoden BeCu, Solar-Blind-Filter
Vorverstärker	Femto HCA-S, DC - 10 MHz Verstärkung 5 - 500 kV/A, Offset einstellbar
ADC	PENTEK 12 bit, 10 MHz. Eingangssignal $-1\text{V} - +1\text{V} / 50 \Omega$
Rechner	SUN Workstation
Photonenzähl-Datenerfassung	
Photomultiplier	Thorn EMI 9893 QB 350, 14 Dynoden BeCu, Interferenzfilter FWHM 1.5 nm
Diskriminatoren	Phillips Scientific 6904, 300 MHz
Photonenzähler	Optech FDC 700, 2 Kanäle, 700 MHz 200 ns Zeitauflösung

Tabelle 6.3: Übersicht über wichtige technische Daten der Empfängerseite.

Die Messung der inelastischen Raman-Streuung erfolgt auch mit Photomultipliern, allerdings mit speziellen Photonenzähltypen (EMI 9893 QB 350). Diese haben eine kleinere Kathode zur Vermeidung von hohen Dunkelzählraten. Auf die Kathode auftreffende Photonen erzeugen jedes für sich eine Elektronenlawine, die als Spannungspuls unterschiedlicher Höhe am Ausgang des PMT gemessen werden kann. Ein Diskriminator schneidet sehr kleine Pulse, die in der Mehrzahl durch Rauschen verursacht sind, ab und konvertiert alle über der Diskriminatorschwelle liegenden Pulse in ein schnelles NIM-Signal (-0.7 V). Die Halbwertsbreite des Ausgangssignals kann bei den benutzten Diskriminatoren (Phillips Scientific 6904) auf bis zu 3.3 ns verkleinert werden. Die maximale Zählrate beträgt daher 300 MHz . Der anschließende 2-Kanal-Photonenzähler (Optech FDC 700) kann Zählraten bis zu 700 MHz verarbeiten und speichert die Daten von zwei Eingangssignalen ohne Totzeit zwischen einzelnen Zeitfenstern mit einer Auflösung von 200 ns .

Wird das Lidar als reines Rückstreu- und Raman-Lidar mit der Ausgangswellenlänge 351 nm betrieben, so kann auf der Empfängerseite auch auf das Spektrometer verzichtet werden und das Licht direkt auf Photomultiplier mit entsprechenden Interferenzfiltern für 351 nm (elastisch gestreut) bzw. 382.3 nm (ramangestreu an Stickstoff) geleitet werden.

Der Interferenzfilter des Raman-Kanals unterdrückt das elastische Rückstreusignal bereits ausreichend.

Das ramangestreute Signal ist bei 382.3 nm so hoch, daß es noch abgeschwächt werden muß, um die maximal erreichbare Zählrate zu erzielen, zur analogen Messung ist es allerdings noch zu schwach. Der Einsatz des Spektrometers zur Trennung der Wellenlängen, bevor sie auf den PMT geleitet werden, ist daher ohne Intensitätsverluste möglich und wurde ebenfalls realisiert.

6.3 Aufbau der Raman-Kanäle

6.3.1 Streulichtunterdrückung

Da die Raman-Streuung einen ca. $6 \cdot 10^{-4}$ kleineren Wirkungsquerschnitt als die elastische Rayleigh-Streuung hat, bedarf es einer hohen Streulichtunterdrückung in den Raman-Kanälen. Die gesamte elastische Rückstreuung kann sich an Wolken oder Schichten mit hoher Aerosolrückstreuung sogar noch um einen Faktor 2-10 gegenüber der reinen Rayleigh-Streuung vergrößern, so daß die Unterdrückung elastisch gestreuten Lichts in den Raman-Kanälen mindestens um einen Faktor 10^6 erfolgen muß, wenn der elastisch gestreute Anteil am Raman-Signal unter 1% bleiben soll. Da das Raman-Signal auf der anderen Seite möglichst hoch sein soll, bedarf es einer hohen Transmission bei den Raman-Wellenlängen.

Diese Aufgabe wurde hier für den Solar-Blind-Bereich unterhalb 300 nm durch eine Kombination von Spektrometer und anschließendem Interferenzfilter gelöst. Im Spektrometer werden alle Meßwellenlängen getrennt. Die elastischen Kanäle werden über einen Solar-Blind-Filter (der das Tageslicht abschneidet und ein Übersteuern des Detektors durch Streulicht verhindert) mit Glasfasern direkt auf die Detektoren gegeben. Die Raman-Kanäle werden mit Glasfasern auf eine Linse der Brennweite 15 mm gebracht, die das Licht parallelisiert. Über Interferenzfilter der Halbwertsbreite 1.5 nm und einer Transmission von ca. 15% trifft das Licht auf die Photokathode eines Photomultipliers.

Die gesamte Streulichtunterdrückung ist besser als 10^{-7} . Da das Spektrometer allein eine Streulichtunterdrückung von ca. $2 \cdot 10^{-5}$ und die Interferenzfilter eine von besser als 10^{-6} aufweisen, sollte in Kombination dieser Elemente eine weit bessere Unterdrückung als 10^{-7} erreichbar sein. Dies wird nicht erreicht, da der Laser selbst ein breitbandiges Spektrum geringer Intensität emittiert, das stets mitgemessen wird (Matthias, 1993). Die Intensität ist aber so gering, daß dies nicht zu Fehlern in der Messung der Raman-Streuung führt. Die Messung der Unterdrückung erfolgte durch Messung des Restlichts, das bei den Raman-Meßwellenlängen noch durch die Anordnung aus Spektrometer und Interferenzfilter gelangt, wenn man Licht der benachbarten elastisch gestreuten Wellenlängen ein-

Streulichtunterdrückung			
Wellenlänge [nm]	Spektrometer	Interferenzfilter	Kombination beider
280.2	$2.5 \cdot 10^{-5}$	$1.9 \cdot 10^{-7}$	$9.6 \cdot 10^{-8}$
286.4	$2.8 \cdot 10^{-4}$	$8.7 \cdot 10^{-7}$	$8.0 \cdot 10^{-8}$

Tabelle 6.4: Streulichtunterdrückung für zwei Raman-Wellenlängen durch Spektrometer und Interferenzfilter.

strahlt. Zum Vergleich mißt man die Intensität ohne Interferenzfilter und bei maximaler Transmission des Spektrometers. Um den hohen Dynamikbereich zu erfassen, werden Neutralfilter in den Strahlengang eingeführt. So kann der Detektor bei der gleichen Verstärkung betrieben werden. Die Messung der Intensität erfolgt dann mit einem schnellen Oszilloskop als Mittelwert über 256 Laserpulse. Die Transmission der Neutralfilter und des Interferenzfilters wurden zuvor mit einem scannenden UV-Spektrometer (Shimadzu UV-2101 PC) ermittelt.

6.3.2 Detektorsystem

Als Detektor zur Messung geringer Lichtintensitäten im UV dienen Photomultiplier. Mit ihnen können Einzelphotonen mit hoher Zählrate nachgewiesen werden. Ein auf die Kathode des PMT auftreffendes Photon erzeugt zunächst mit einer bestimmten Quanteneffizienz ein Elektron, das durch Anlegen einer äußeren Spannung auf die der Kathode nachfolgenden Dynoden hin beschleunigt wird. Dort werden weitere Elektronen herausgelöst und man erhält schließlich einen Spannungspuls mit einer Pulsbreite von wenigen Nanosekunden an der Anode. So können maximale Zählraten von zum Teil einigen 100 MHz erreicht werden.

Die PMTs werden im Photonenzählbetrieb bei einer festen Hochspannung betrieben, die so ausgewählt wird, daß ein möglichst gutes Signal-Rausch-Verhältnis (Signal to Noise Ratio, SNR) vorliegt. Kleine Rauschpulse können mit einem Diskriminator, der Pulse unterhalb einer festen Schwelle nicht durchläßt, abgeschnitten werden. Dadurch können im Photonenzählbetrieb extrem hohe SNR erreicht werden.

Es existiert eine ganze Reihe unterschiedlicher PMTs, die je nach Anwendung unterschiedliche Charakteristika haben. Beim Photonenzählen im UV müssen unter anderem folgende Anforderungen gestellt werden: Der PMT muß eine hohe Verstärkung und eine kleine Kathode mit hoher Quanteneffizienz im UV haben. Das Widerstandsnetzwerk, das die Spannungen zwischen den einzelnen Verstärkerstufen des PMT regelt, muß eine hohe Spannung zwischen Kathode und erster Dynode bereit stellen und es müssen Kondensatoren parallel zu den Widerständen zwischen den hinteren Dynoden geschaltet sein (Hamatsu, 1996). Zur Verminderung von Totzeiteffekten sollte nach Möglichkeit auf einen weiteren Verstärker hinter dem PMT verzichtet werden, sowie möglichst schnelle Diskriminatoren und Photomultiplier benutzt werden.

Die gemessene Zählrate muß, auch wenn sehr schnelle Detektoren und eine schnelle nachfolgende Elektronik verwendet wird, meist bezüglich Totzeiteffekten durch sich überlagernde Einzelphotonenpulse korrigiert werden. Die wahre Zählrate W hängt von der gemessenen Z bei gegebener Totzeit τ wie folgt ab (Kohlrausch, 1968):

$$W = \frac{Z}{1 - Z\tau} \quad (6.1)$$

Beträgt die Totzeit z.B. 10 ns mit einer Genauigkeit von 1 ns, so kann das gemessene Signal bis zu einer Zählrate von 10 MHz mit einer Genauigkeit von 1% korrigiert werden.

6.3.3 Auswahl von Photomultiplier und Diskriminator

Es wurde ein Photomultiplier der Firma Thorn EMI, Typ 9893 QB, ausgewählt, der speziell fürs Photonenzählen konzipiert ist. Er hat eine Bialkalkathode und ein

Photomultiplier	
Hersteller	Thorn EMI
Typ	9893 QB
Dynodenanzahl	14
Durchmesser	9 mm
max. Versorgungsspannung	3000 V
max. Quantenausbeute	27%
Verstärkung	$8.3 \cdot 10^7$
Anstiegszeit	2.2 ns
Halbwertsbreite des Pulses (FWHM)	3.4 ns
Dunkelzählrate	80 Hz
U_{k-d_1} (max.)	650 V
Kathodenmaterial	Bialkali
Dynodenmaterial	BeCu

Tabelle 6.5: Technische Daten des verwendeten Photomultipliers.

Quarzglasfenster mit einer Quanteneffizienz von ca. 27% zwischen 250 und 300 nm. Er hat eine lineare Dynodenanordnung, die nominale Verstärkung beträgt $8.3 \cdot 10^7$, der Kathodendurchmesser nur 9 mm. Die Dunkelzählraten liegen bei 80 Hz. Die Spannung zwischen Kathode und erster Dynode beträgt bis zu 650 V, weitere Spezifikationen können Tabelle 6.5 entnommen werden.

Der Diskriminator ist ein 300 MHz Diskriminator der Firma Phillips Scientific. Die Diskriminatorschwelle ist von -1 mV bis -100 mV einstellbar, als Ausgangspuls erhält man einen schnellen NIM-Puls (-0.7 V), dessen Breite einstellbar ist und bis 2.5 ns (FWHM) schmal sein kann.

Zur Bestimmung der Pulshöhenverteilung wird zunächst ein Zählraten/Spannungsdiagramm bei fester Diskriminatorschwelle aufgenommen. Anschließend werden für mehrere mögliche Arbeitspunkte die Pulshöhenverteilungen bestimmt. Hieraus ergab sich der optimale Arbeitspunkt zu 1.9 kV für PMT 1 und zu 2.15 kV für PMT 2.

6.3.4 Totzeitbestimmung

Die Totzeitbestimmung erfolgt nach einer von Johnson (1966) vorgeschlagenen Methode. Hierbei nutzt man die Tatsache aus, daß die statistische Verteilung von Zählergebnissen gleicher Messungen bei hohen Zählraten aufgrund von Zählverlusten von der idealen Poissonverteilung abweicht. Ergebnisse mit hohen Anzahlen kommen seltener vor, als wenn keine Zählverluste auftreten. Sei $p(n, T)$ die Wahrscheinlichkeit bei einer Messung der Dauer T genau n Photonen zu zählen, so gilt bei poissonverteilten Ereignissen (also beim Zählen von aus der Atmosphäre zurückgestreuten Photonen)

$$p(n, t) = \frac{\bar{n}_0^n}{n!} e^{-\bar{n}_0} \quad . \quad (6.2)$$

Hier ist \bar{n}_0 die mittlere Anzahl der Photonen, die in der Zeitdauer t gezählt werden. Falls Totzeiteffekte durch die Totzeit τ auftreten, so weicht die Verteilung $p(n, t)$ von der

Poissonverteilung ab. In erster Ordnung von τ/t gilt für $t \gg \tau$ (Johnson et al., 1966)

$$p(n, t) = \frac{\bar{n}_0^n}{n!} e^{-\bar{n}_0} \left(1 + n(\bar{n}_0 - n + 1) \frac{\tau}{t}\right) \quad (6.3)$$

Bildet man jetzt die Größe

$$F(n) = \frac{(n+1) p(n+1, t)}{p(n, t)} \quad (6.4)$$

so ist deren Ableitung nach n , $d/dn F(n)$ proportional zu $-2\bar{n}_0\tau/t$. Die Totzeit kann also durch Annähern einer Geraden an $F(n)$ aus deren Steigung bestimmt werden.

Die Messung der Totzeit erfolgte durch konstante Beleuchtung des Photomultipliers mit einer grünen LED. Ohne Ausbau der Interferenzfilter vor den PMT's kann auch eine Deuteriumlampe verwendet werden, die im UV emittiert. Hinter dem PMT befanden sich der Diskriminator und der verwendete Photonenzähler. Die Intensität wurde auf eine Zählrate von ca. 20 MHz eingestellt, da dann bei einer erwarteten Totzeit von ca. 10 ns deutliche Totzeiteffekte vorhanden sein sollten. Es wurden 176295 Einzelmessungen zu 200 ns ausgewertet. Die Häufigkeit der einzelnen Zählergebnisse wurde ermittelt und die Funktion $F(n)$ berechnet. Anschließend wurde eine lineare Regression durchgeführt und der Abfall der Regressionsgerade bestimmt. Dabei wurden nur die Punkte mit Häufigkeiten > 10000 miteinbezogen. Die Totzeiten ergaben sich für die benutzten Photomultiplier mit Phillips Scientific 6904 Diskriminatoren und Optech FDC 700 Photonenzählssystem für die beiden Kanäle zu

$$\begin{aligned} \tau(\text{Kanal 1}) &= 11.3 \text{ ns} \pm 0.3 \text{ ns} \\ \tau(\text{Kanal 2}) &= 8.7 \text{ ns} \pm 0.1 \text{ ns} \end{aligned}$$

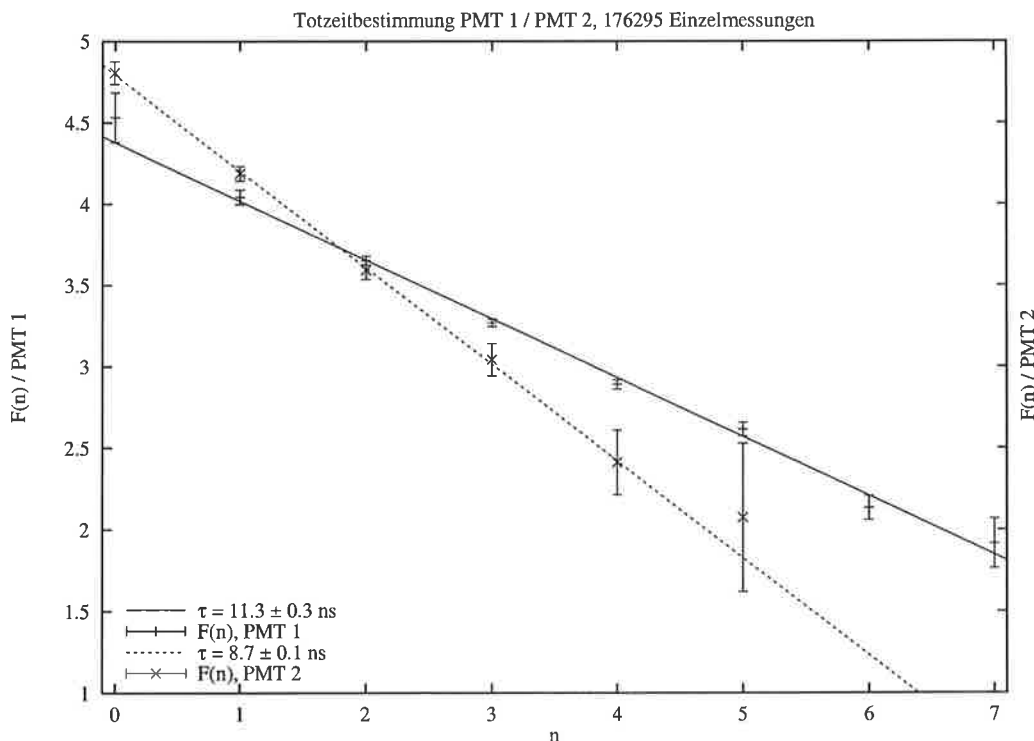


Abbildung 6.3: Ermittlung der Totzeit aufgrund von Abweichungen von der Poissonverteilung bei hohen Zählraten. Die Totzeit ergibt sich aus der Steigung der Funktion $F(n)$.

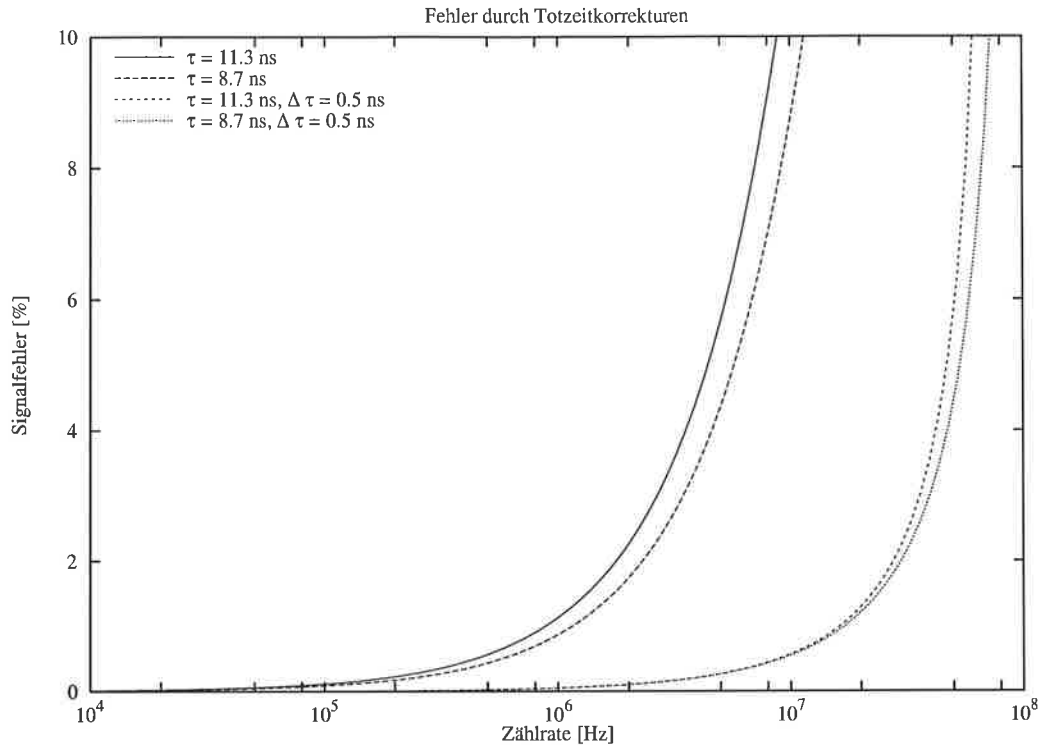


Abbildung 6.4: Signalfehler mit und ohne Totzeitkorrektur für die hier ermittelten Totzeiten der Raman-Kanäle.

Die angegebene Genauigkeit der Totzeit bezieht sich auf die Genauigkeit der linearen Regression, die zur Ermittlung der Steigung der Funktion $F(n)$ durchgeführt wurde. Die Kenntnis der Totzeit erlaubt eine Totzeitkorrektur. Damit können wesentlich höhere Signalintensitäten ausgenutzt werden, als wenn keine Totzeitkorrektur vorgenommen wird. Bei den hier ermittelten Totzeiten muß ohne Korrektur schon bei Zählraten von 1 MHz mit einem Signalfehler von 1% gerechnet werden. Mit Totzeitkorrektur einer Genauigkeit von 0.5 ns können Signale bis zu 20 MHz mit maximal 1% Abweichung der korrigierten Zählrate von der tatsächlichen bestimmt werden (siehe Abbildung 6.4). Mehrfache Messungen der Totzeit ergaben eine Abhängigkeit der Totzeit von den Umgebungsbedingungen, insbesondere der Temperatur im Meßcontainer und damit auch der Temperatur des Detektorsystems. Die Totzeit stieg bei ca. 35°C im Container auf über 20 ns an. Weiterhin wurde eine Abhängigkeit der Totzeit von der Diskriminatorschwelle festgestellt. Wird die Schwelle etwas angehoben, so verringert sich die Totzeit des Gesamtsystems. Vermutlich arbeiten einige Bausteine des Detektorsystems nicht linear und verursachen solche Abhängigkeiten. Daher sollte die Umgebungstemperatur möglichst konstant sein und die Diskriminatorschwelle einmal fest eingestellt werden. Die Totzeit sollte häufiger neu gemessen werden, um eine Kontrolle über die Totzeit zu erhalten. Zum anderen sollten die Zählraten nicht zu hoch gewählt werden, um den Fehler in der tatsächlichen Zählrate durch die Totzeitkorrektur nicht zu groß werden zu lassen. Gegebenenfalls müssen bei zu hoher Signalintensität Abschwächer in den Strahlengang eingeführt werden.

6.4 Gesamtaufbau

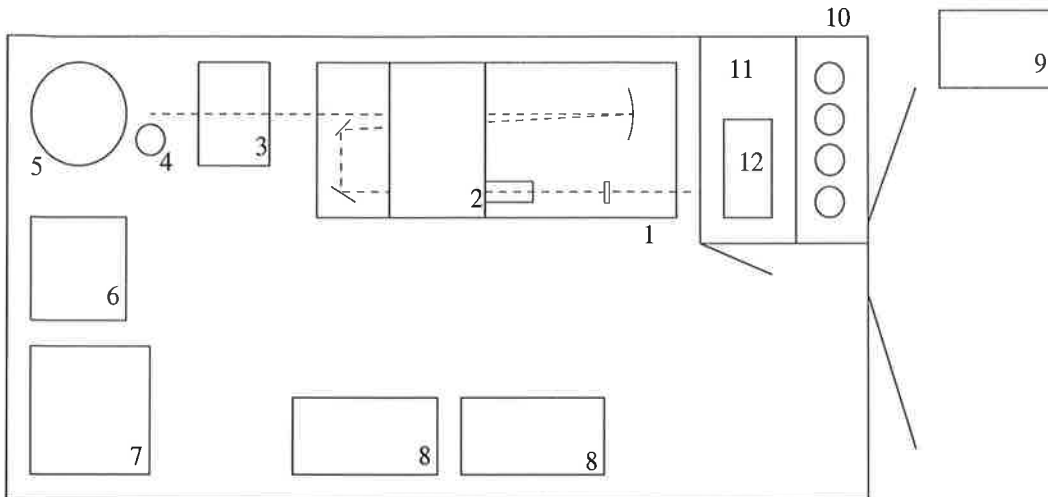


Abbildung 6.5: Schematischer Aufbau des Gesamtsystems: 1: Optischer Tisch, darunter Excimer-Laser, 2: Spektrometer (über optischem Tisch) mit Photomultiplier und Vorverstärkern, 3: Netzgerät Laser, 4: Empfangsteleskop I, 5: Empfangsteleskop II, 6: Rack mit Hochspannungsversorgung, Pulsgenerator und Monitor 7: Rack mit analoger Datenerfassung, Photonenzähler und Oszilloskop, 8: Werkzeug- und Ersatzteilkisten, 9: Externes Kühlgerät für Laser, 10: Gasversorgung, 11: Stromanschlußraum, 12: Ozonmonitor (über Stromanschlußraum).

Das gesamte Meßsystem ist in einen 20-Fuß-Standardcontainer eingebaut. Dieser hat ein motorisiertes Dachschiefenfenster, das für die Messungen geöffnet werden kann. Die Gasversorgung für den Laser befindet sich ebenfalls im Container, ist aber aus Sicherheitsgründen luftdicht vom Innenraum getrennt und wird von außen bedient. Als zusätzliches Meßgerät ist der Container mit einem Ozonmonitor der Fa. Ansyco zur kontinuierlichen Messung des Bodenozonwertes ausgestattet. Hierzu wird in ca. 2 m Abstand vom Container Außenluft angesaugt und über einen Teflonschlauch zum Monitor geführt. Als einziges externes Gerät befindet sich das Kühlgerät für den Laser (Etscheid IKV 4) außerhalb des Containers. Es kann aber aufgrund seiner Kompaktheit ($70 \times 60 \times 50 \text{ cm}^3$, Gewicht ca. 85 kg) zum Transport im Container untergebracht werden. Der Container benötigt einen 380 V/63 A Stromanschluß. Der Stromverbrauch beträgt ca. 15 kW Spitzenlast. Das Gesamtsystem ist somit ohne hohen Aufwand transportierbar und kann binnen eines Tages nach dem Transport wieder in Betrieb genommen werden. Es wird daher neben Routinemessungen in Hamburg auch für ausgedehnte Feldexperimente benutzt.

6.5 Vergleichsmessungen Ozon-DIAL / ECC-Sonde

Zur Überprüfung und Sicherung der Datenqualität des Ozon-DIALs wurden im Sommer 1998 während der Feldexperimente LACE'98 (Lindenberger Aerosol Charakterisierungs Experiment) und BERLIOZ (Berlin Ozon Experiment) in Lindenberg am Meteorologischen Observatorium (MOL) insgesamt 9 Vergleiche mit Sonden vom Typ Vaisala ECC

durchgeführt (Matthias et al., 1999). Zusätzlich wurde im Rahmen der Qualitätssicherung bei BERLIOZ ein Vergleichsflug mit einem Flugzeug des Fraunhofer Instituts für atmosphärische Umweltforschung (IFU) durchgeführt.

In Lindenberg wurden bereits 1994 ausführliche Vergleiche des MPI-Ozon-DIAL mit ECC-Ozonsonden durchgeführt (Grabbe et al., 1996). Diese Vergleiche haben bereits die hohe Qualität der DIAL-Messungen gezeigt. Eine erneute Reihe von Vergleichen, wie sie während BERLIOZ möglich war, bietet aber eine gute Gelegenheit zur erneuten Überprüfung der Messungen, zumal an dem DIAL inzwischen zahlreiche Umbauten erfolgten und Neuerungen eingebaut wurden.

Das MOL führt seit Jahren regelmäßig Ozonsondenaufstiege durch. Es ist eine von zwei Routinestationen des Deutschen Wetterdienstes (DWD), hier gibt es also die seltene Möglichkeit eines Vergleichs der DIAL-Daten mit einer frei fliegenden Ozonsonde und damit zur Qualitätssicherung der DIAL-Daten durch mehrfache Vergleiche der Meßsysteme.

Das MOL verwendet dabei Sonden vom Typ Vaisala ECC. Diese basiert auf einem idiommetrischen Meßprinzip, das Ozon reagiert in einer Kaliumjodidlösung und ändert damit die Zusammensetzung der Lösung. Dies führt zu einem meßbaren Strom, der proportional zum Partialdruck des Ozons ist. Die Sonden sind vielfach getestet und weisen hohe Meßgenauigkeiten auf. Sie besitzen eine Zeitkonstante von 20 - 30 Sekunden, in der eine stufenartig geänderte Ozonkonzentration bis auf den Faktor $1/e$ nachgewiesen werden kann (Komhyr, 1969). Das entspricht bei einer Steiggeschwindigkeit von ca. 5 m/s einer räumlichen Auflösung von ca. 150 m. Die Sonde neigt also zum „Verschmieren“ bei sich stark mit der Höhe ändernden Ozonkonzentrationen. Außerdem weist sie eine Querempfindlichkeit zu Schwefeldioxid von -0.93 ppbV O_3 pro 1 ppbV SO_2 auf (Schenkel und Broder, 1982).

Das Ozon-DIAL und der Sondenstartplatz waren ca. 500 m entfernt, in 3000 m Höhe ist die Sonde bei einer mittleren Windgeschwindigkeit vom 5 m/s etwa 3000 m verdriftet. Bei den Vergleichen muß also beachtet werden, daß die Meßsysteme Sonde und DIAL mit zunehmender Höhe weiter voneinander entfernt sind und damit unterschiedliche Meßvolumina vorliegen. Zudem werden hier über 30 Minuten gemittelte DIAL-Profile mit instantanen in-situ-Messungen verglichen.

Trotz dieser Einschränkungen bei der Vergleichbarkeit der Messungen zeigen die Ozonwerte in der Regel gute Übereinstimmung. In Tabelle 6.6 sind die Vergleichsdaten zu sehen. In den meisten Fällen ist die mittlere Differenz fast Null, nur beim ersten Vergleich, am 20.7.98 morgens, liegen die mit dem DIAL ermittelten Werte mit $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ deutlich unter den Werten der Sonde.

Am 8.8.98, 10:45 UT, wurde der Maximalwert des Ozons in ca. 1800 m bei der Berechnung der statistischen Parameter unberücksichtigt gelassen. Man erkennt aus Abbildung 6.6, daß Sonden und DIAL-Profile gut übereinstimmen. Das Ozonmaximum in ca. 1800 m wird von den Systemen aber in unterschiedlichen Höhen gefunden, was bei dem horizontalen Versatz der Messungen durchaus möglich ist. Vergleicht man bei diesem Profil die Werte in festen Höhen, wie es sonst gemacht wurde, so erhält man in 1800 m Abweichungen von mehr als $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$, was zu einer nicht gerechtfertigten Verschlechterung der statistischen Parameter Mittelwert und Standardabweichung vom Mittelwert führen würde.

Die Standardabweichung der Differenzen liegt bei allen Vergleichen in der gleichen Größenordnung von 5 - 10%. Berücksichtigt man die zum Teil eingeschränkte Vergleich-

Datum	Startzeit ECC [UT]	Meßzeit DIAL [UT]	Auswertebereich DIAL [m über NN]	Wellen- längen [nm]	mittl. Diff. [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	mittl. Diff. [%]	Stdabw. der Diff. [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	Stdabw. der Diff. [%]
20.7.98	4:59	4:40 - 5:10	1125 - 1845 1965 - 3645	268/292 292/319	-10.4	-10.6	5.7	5.9
20.7.98	10:51	10:40 - 11:10	945 - 1245 1965 - 3885	268/292 292/319	-3.2	-3.5	7.0	7.8
21.7.98	4:45	4:36 - 5:06	1735 - 3645	292/319	-1.8	-1.2	10.4	6.8
3.8.98	10:48	11:08 - 11:18	525 - 1965 2205 - 2925	268/292 292/319	-0.3	-0.3	6.2	6.2
5.8.98	4:52	4:51 - 5:21	525 - 2205 2460 - 3675	268/292 292/319	-0.2	-0.3	3.9	4.8
5.8.98	10:50	10:38 - 10:59	465 - 1305	268/292	-0.3	-0.4	5.1	6.8
8.8.98	10:45	10:47 - 10:50	525 - 1965 2205 - 3645	268/292 292/319	-0.9	-1.2	7.4	10.0
10.8.98	10:45	10:45 - 11:15	495 - 2205 2685 - 3645	268/292 292/319	0.5	0.6	5.6	6.2
11.8.98	10:50	10:56 - 11:26	525 - 1965 2325 - 3765	268/292 292/319	5.0	3.7	7.0	4.9

Tabelle 6.6: Vergleiche zwischen frei fliegender ECC-Sonde und Ozon-DIAL: mittlere Differenzen und deren Standardabweichungen.

barkeit der Systeme, so ist dies ein sehr gutes Ergebnis.

Auch der Vergleich mit der Flugzeugmessung des IFU ergab ähnliche Abweichungen. Hier wurde ein in situ Ozonmonitor an Bord eines Meßflugzeugs betrieben. Die Vergleichshöhe lag zwischen 700 m und 1700 m über NN, die mittlere Abweichung betrug $4.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$, entsprechend 5.1%. Die Standardabweichung der Differenzen vom Mittelwert betrug $7.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$, entsprechend 7.4%.

Die Werte decken sich ebenfalls gut mit den von Grabbe et al. (1996) für den Vorgänger dieses Lidar-Systems gefundenen Abweichungen. Diese lagen in der mittleren Abweichung bei -4.5 bis $+13.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$, in der Standardabweichung bei 3.2 bis $10.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Das DIAL weist also bereits ohne optimierte Aerosolkorrektur gute Übereinstimmung in Vergleichsmessungen mit anderen Instrumenten auf. Es ist anzunehmen, daß die Abweichungen auf den schon genannten Schwierigkeiten beim Vergleich zweier sehr unterschiedlicher Meßsysteme beruhen. Daher wird sich eine Verbesserung in der Genauigkeit der DIAL-Profile nicht durch einen Sondenvergleich bestätigen lassen. Die zusätzliche Korrektur liegt im Bereich der Unsicherheit der Vergleichsmessungen.

Aufgrund des Umfangs sollen hier nur vier unter sehr unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen gemessene Vergleiche dargestellt werden. Trotz zum Teil sehr unterschiedlicher Ozonprofile liegen die mittleren Abweichungen und deren Standardabweichungen in derselben Größenordnung.

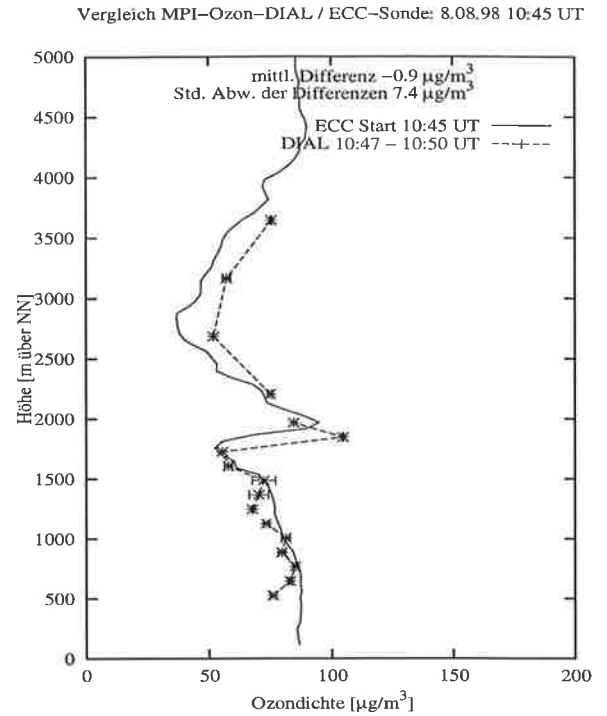
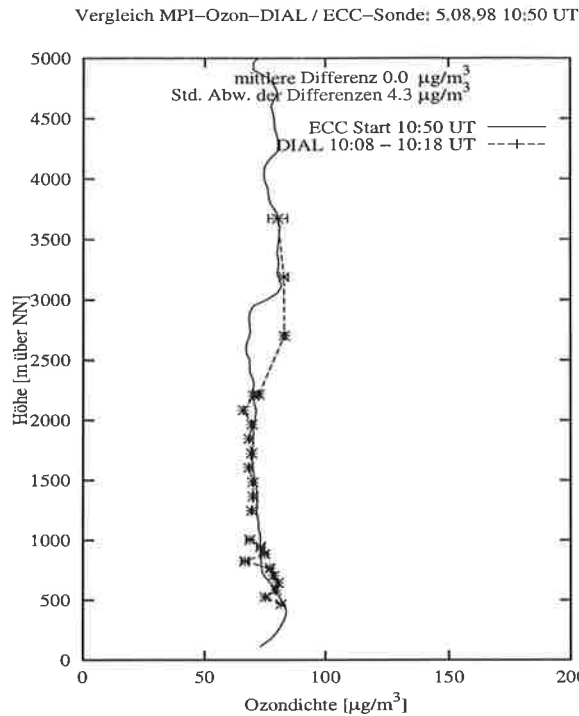


Abbildung 6.6: Vergleich DIAL / frei fliegende ECC-Sonde; links: 5.8.98, Sondenstartzeit 10:50, rechts: 8.8.98, Sondenstartzeit 10:45.

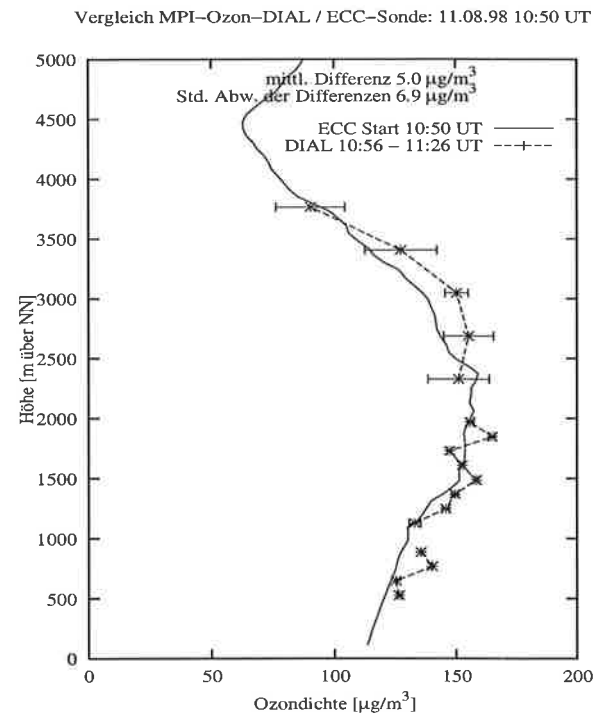
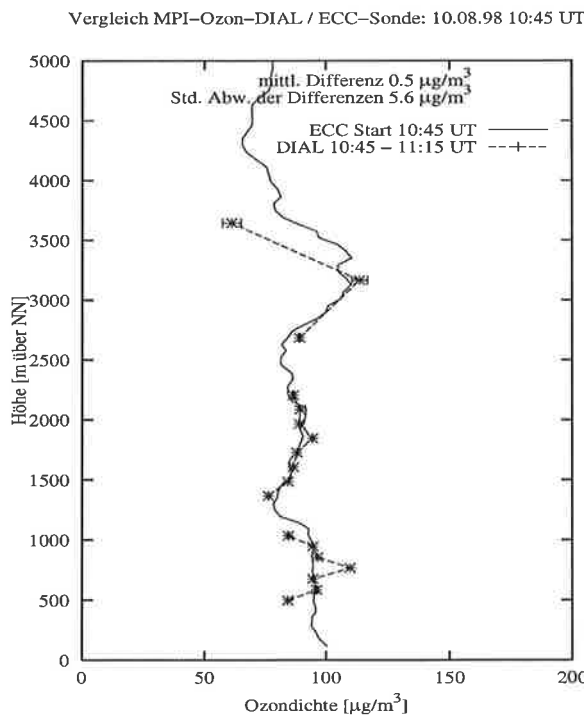


Abbildung 6.7: Vergleich DIAL / frei fliegende ECC-Sonde; links: 10.8.98, Sondenstartzeit 10:45, rechts: 11.8.98, Sondenstartzeit 10:50.

Kapitel 7

Verbesserung von Ozon-DIAL-Messungen

Ozon-DIAL-Messungen bedürfen einer Aerosolkorrektur, sowohl bezüglich des Gradienten in der Rückstreuung als auch bezüglich der Aerosolextinktion. Diese Korrekturen werden meist mit Hilfe einiger Annahmen über die Eigenschaften der streuenden Aerosolpartikel gewonnen. Zu diesen Annahmen gehören die Wellenlängenabhängigkeiten der Aerosolextinktion und -rückstreuung sowie das Lidar-Verhältnis und ein Eichwert für die Aerosolrückstreuung in einer festen Höhe. Sind diese Parameter etwa richtig gewählt, so läßt sich mit Hilfe eines Inversionsalgorithmus nach Klett (1981) oder Fernald (1972, 1984) ein Aerosolrückstreuprofil bestimmen, das die tatsächliche Aerosolverteilung genau genug wiedergibt, um den Fehler der Ozonkorrektur zumindest für das Wellenlängenpaar 268 nm/292 nm klein zu halten. Er ist in den meisten Fällen kleiner als $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$, wie die Messungen während LACE'98 und BERLIOZ in Lindenberg, die bei verschiedensten Aerosolverteilungen durchgeführt wurden, gezeigt haben (Matthias et al., 1999).

Probleme ergeben sich allerdings in speziellen Situationen, z.B. bei bedecktem Himmel oder bei durchbrochener Cumulusbewölkung, bei sehr scharfen Aerosolgradienten an der Oberkante der Grenzschicht oder bei höhenabhängigem Lidar-Verhältnis. Die Verwendung zusätzlicher Raman-Messungen kann hier zu besseren Ergebnissen führen.

7.1 Eichung bei bedecktem Himmel

Bei bedecktem Himmel, insbesondere wenn die Wolkenunterkante unterhalb von 2000 m liegt, läßt sich oft kein geeigneter Eichwert für die Aerosolrückstreuung finden. Unter den Wolken nimmt die Rückstreuung durch gequollene Aerosolpartikel oft noch mit der Höhe zu, so daß es oftmals günstiger scheint, in niedrigeren Höhen zu eichen, wo ein Rückstreuwert leichter zu schätzen ist.

Die Auf- und Abwärtsintegration erreichen zwar im Prinzip auch bei falscher Eichung die richtigen Rückstreuwerte, allerdings ist zum einen der Höhenbereich, über den die Iteration erfolgt, relativ klein, so daß der Bereich korrekter Werte unter Umständen gar nicht erreicht wird. Bei der Aufwärtsintegration hat man zudem das Problem von Instabilitäten des Algorithmus, die bei kleinen Signalen zu völlig falschen Werten führen können.

Viel schwerwiegender ist aber die Deformation des Aerosolprofils bei der Iteration von einem falschen Eichwert zum korrekten Rückstreuwert in niedrigeren Höhen. Schließlich

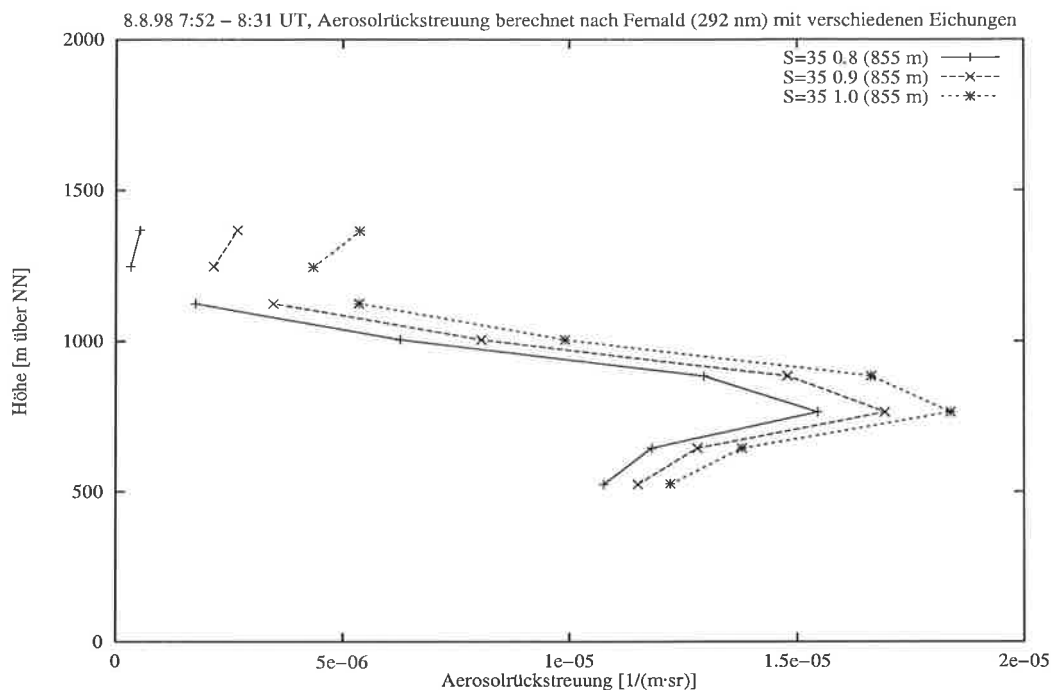


Abbildung 7.1: Rückstreuprofile für unterschiedliche Eichungen ($V = 0.8$, $V = 0.9$, $V = 1.0$ in 855 m) berechnet mit dem Fernald-Algorithmus. Die Eichungen für das Empfangsteleskop II waren ($V = 0.02$, $V = 0.13$, $V = 0.26$ in 1245 m). Sie wurden zwischen 1100 und 1300 m an das Aerosolprofil des Empfangsteleskops I angepaßt.

hängt die Aerosolkorrektur entscheidend vom Gradienten der Aerosolrückstreuung ab, der dann falsch wiedergegeben wird. Eine bloße Verschiebung des Aerosolprofils zu höheren oder niedrigeren Werten bei korrekter Wiedergabe der Gradienten würde nicht so stark ins Gewicht fallen, da der Betrag der dann inkorrekten Extinktionskorrektur meist deutlich kleiner als der der Rückstreukorrektur ist.

Die Verwendung des ramangestützten DIAL-Verfahrens ermöglicht hier Verbesserungen. Zwar muß auch bei diesem Verfahren ein Eichwert vorgegeben werden. Allerdings führt eine falsche Eichung nur zu einer Verschiebung des Aerosolprofils, nicht aber zu einer Änderung der Krümmung. Als Beispiel sei hier eine Messung vom 8. August 1998 gezeigt. Den gesamten Vormittag lag eine Stratocumulusdecke über dem Meßort Lindenberg, die sich erst im Laufe des Nachmittags langsam auflöste. Zwischen 7:52 UT und 8:31 UT lag die Wolkenunterkante bei ca. 1500 m.

Für die Bestimmung des Aerosolprofils nach Fernald wurde ein höhenkonstantes Lidar-Verhältnis von $S = 35$ sr verwendet, wie man es in für maritim verschmutztes Aerosol etwa annehmen würde (siehe Abschnitt 3.3.3). Geeicht wurde nicht zu dicht unter der Wolke, sondern im Bereich hoher Rückstreuung in 855 m über NN. Verschiedene Eichwerte von $V \equiv \beta_{\text{aer}}(z_0)/\beta_{\text{mol}}(z_0) = 0.8$ bis $V = 1.0$ wurden eingesetzt und die verschiedenen Rückstreuprofile berechnet (Abb. 7.1). Für das Empfangsteleskop II, das heißt für Höhen oberhalb 1125 m, wurden die Eichwerte so gewählt, daß die Aerosolprofile von großem und kleinem Empfangsteleskop I zwischen ca. 1000 m und 1300 m annähernd die gleichen Werte hatten.

Insbesondere direkt unter der Wolke ergaben sich merkbliche Unterschiede in Betrag und Verlauf der Rückstreuprofile. Auch das Minimum in ca. 1200 m ist für die unterschied-

lichen Eichungen recht unterschiedlich ausgeprägt. Die Werte reichen von fast 0 bis ca. $4 \cdot 10^{-6}(\text{m} \cdot \text{sr})^{-1}$. Die Ozonprofile zeigen Unterschiede bis zu ca. $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Abb. 7.2). Bezieht man dagegen die Messung der Raman-Streuung bei 286 nm mit ein und berechnet die Aerosolrückstreuprofile, die Aerosolextinktionsprofile und die Ozonprofile mit der ramangestützten Methode, so ergibt sich ein anderes Bild.

Die Aerosolrückstreuprofile weichen für die unterschiedlichen Eichungen auch voneinander ab (Abb. 7.3), allerdings wird das Minimum in ca. 1200 m längst nicht so ausgeprägt dargestellt wie bei der Fernald-Methode. Der Effekt auf die Ozondichte ist zudem merklich kleiner (Abb. 7.4), die Profile zeigen kaum Differenzen. Vergleicht man die Ozonprofile, die mit den unterschiedlichen Methoden bestimmt wurden, miteinander, so zeigen die mit Fernald-Korrektur berechneten Profile höhere Werte als die mit der ramangestützten Methode. Die Ursache für diese Unterschiede wird klar, wenn man das mit der ramangestützten Methode berechnete Lidar-Verhältnis betrachtet (Abb. 7.5). Es zeigt, je nach Eichung, hohe Werte von ca. 38 bis 50 sr im unteren Höhenbereich. Verwendet man zur Berechnung des Aerosolprofils nach Fernald den Eichwert $V = 0.9$ und das Lidar-Verhältnis $S = 45$ sr, so zeigen die Aerosolprofile nach unterschiedlichen Berechnungsmethoden geringere Differenzen (Abb. 7.6). Für das Empfangsteleskop II wurde die Berechnung alternativ zu den Werten $S = 35$ sr, $V = 0.13$ in 1245 m mit den aus dem ramangestützten Verfahren ermittelten Werten von $S = 20$ sr und $V = 0.34$ durchgeführt. Hier zeigten sich nur geringe Unterschiede durch die Neuberechnung. Sie bestätigen das schon in den Modelluntersuchungen gefundene Ergebnis, daß eine Überschätzung des Lidar-Verhältnisses weniger Einfluß auf die richtige Bestimmung der Aerosolkorrektur hat als eine Unterschätzung des Lidar-Verhältnisses.

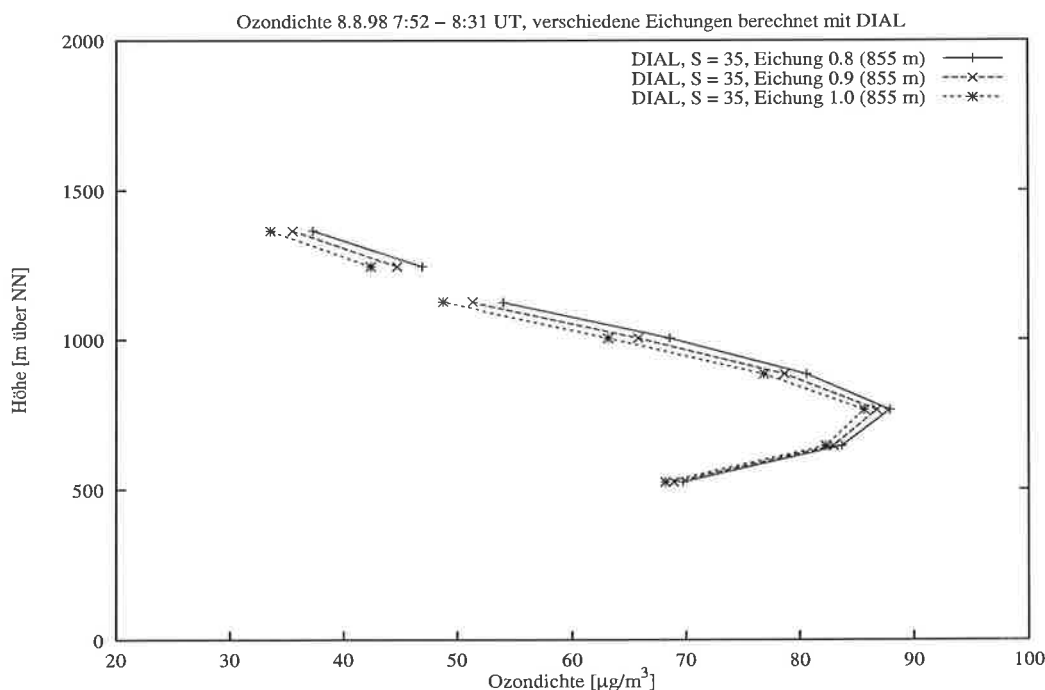


Abbildung 7.2: Korrigierte Ozonprofile für unterschiedliche Eichungen ($V = 0.8$, $V = 0.9$, $V = 1.0$ in 855 m) berechnet mit dem Fernald-Algorithmus. Die Eichungen für das Empfangsteleskop II waren $V = 0.02$, $V = 0.13$, $V = 0.26$ in 1245 m. Sie wurden zwischen 1100 und 1300 m an das Aerosolprofil des Empfangsteleskops I angepaßt.

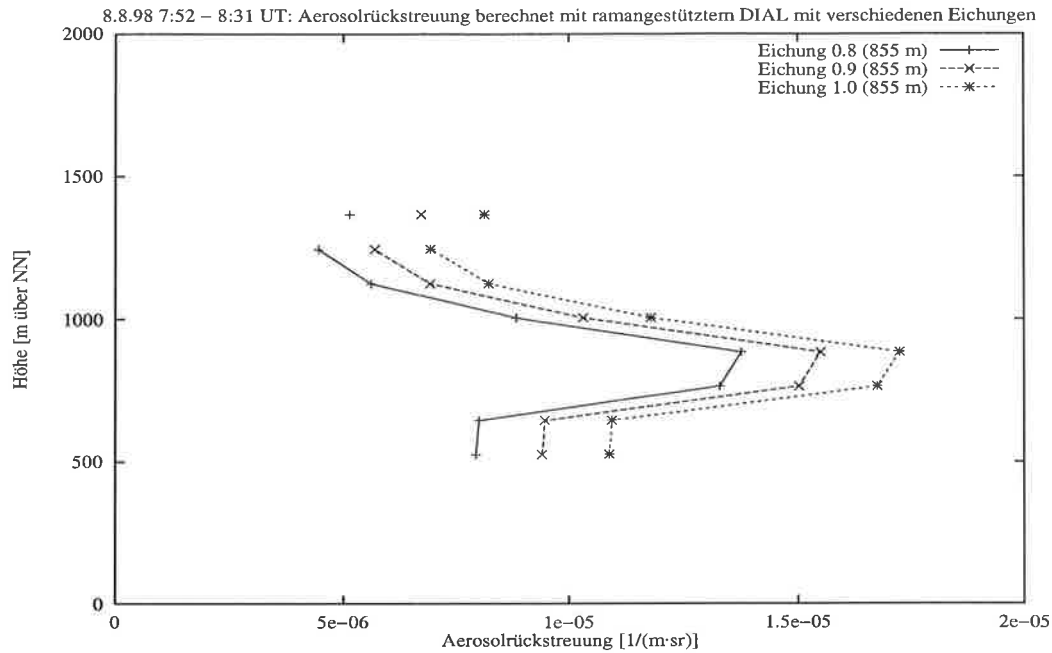


Abbildung 7.3: Rückstreuprofile für unterschiedliche Eichungen ($V = 0.8$, $V = 0.9$, $V = 1.0$ in 855 m) berechnet mit der ramangestützten Methode. Die Eichungen für das Empfangsteleskop II waren $V = 0.25$, $V = 0.34$, $V = 0.42$ in 1245 m. Sie wurden zwischen 1100 und 1300 m an das Aerosolprofil des Empfangsteleskops I angepaßt.

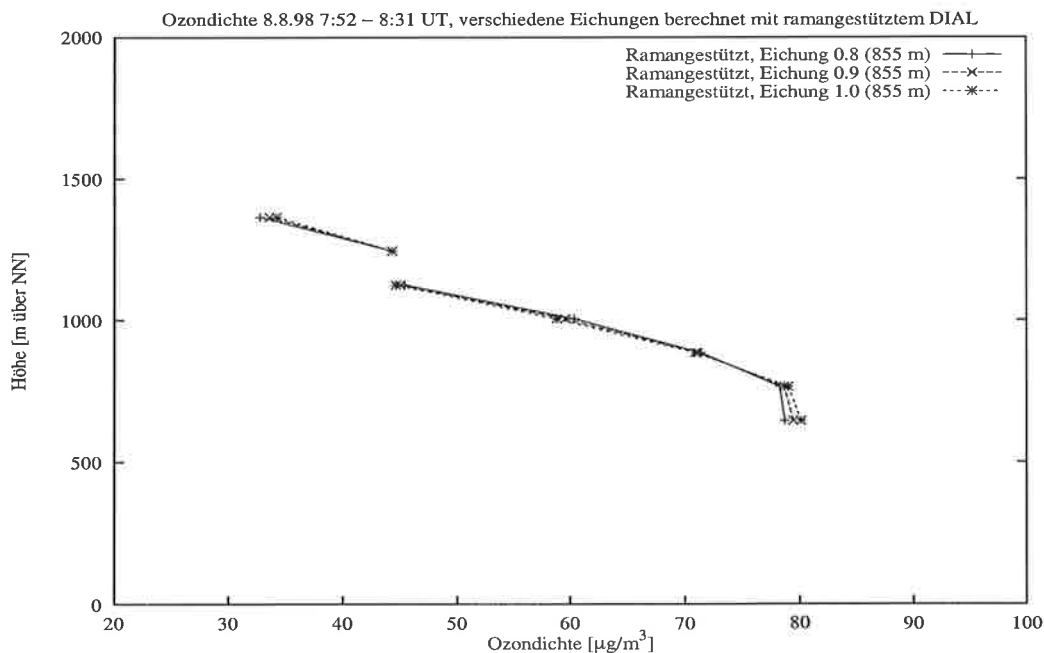


Abbildung 7.4: Ozonprofile für unterschiedliche Eichungen ($V = 0.8$, $V = 0.9$, $V = 1.0$ in 855 m) berechnet mit der ramangestützten Methode. Die Eichungen für das Empfangsteleskop II waren $V = 0.25$, $V = 0.34$, $V = 0.42$ in 1245 m. Sie wurden zwischen 1100 und 1300 m an das Aerosolprofil des Empfangsteleskops I angepaßt.

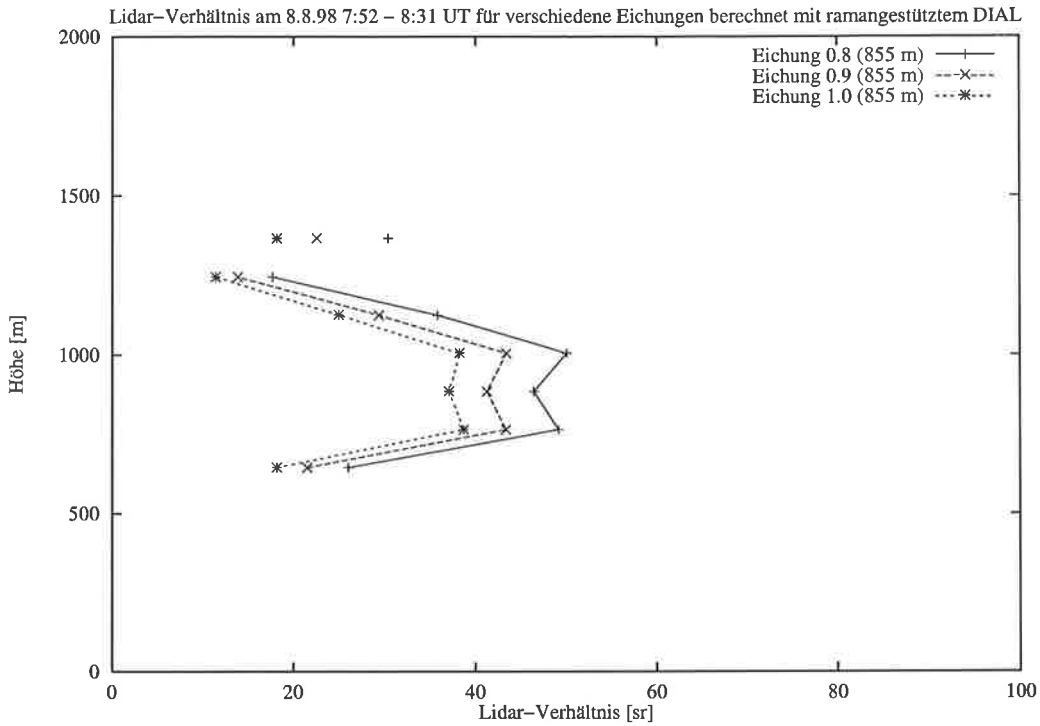


Abbildung 7.5: Lidar-Verhältnisse für unterschiedliche Eichungen, berechnet mit der ramangestützten Methode.

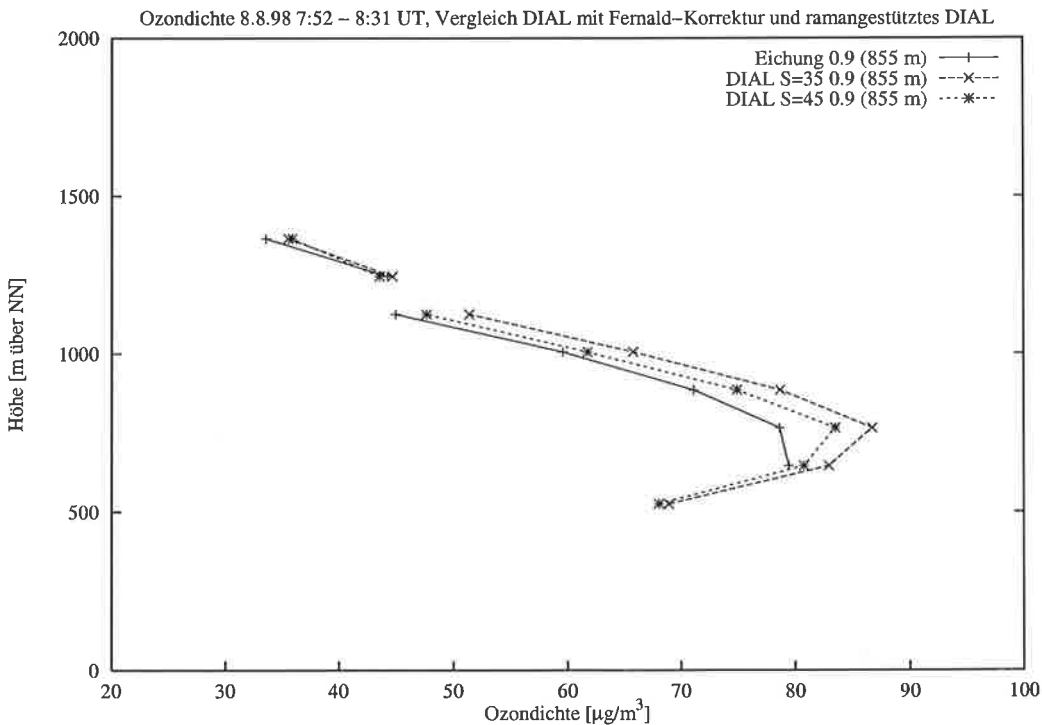
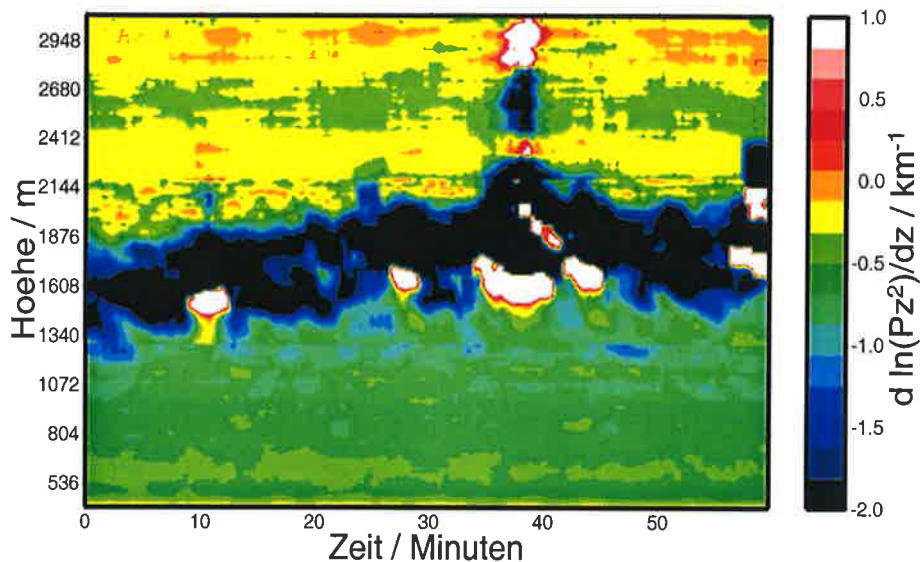


Abbildung 7.6: Vergleich der Ozonprofile aus DIAL mit Fernald-Korrektur und ramangestütztem DIAL-Verfahren.



$\frac{d}{dz} \ln(Pz^2), \lambda = 320 \text{ nm}; \text{ Startzeit } 98/08/08 \text{ 12:57 UT, Aufl. } 120 \text{ s} / 120 \text{ m}$

Abbildung 7.7: Gradient des logarithmierten höhenkorrigierten Rückstreusignals. Hohe negative Werte des Gradienten repräsentieren eine starke Abnahme der Aerosolrückstreuung. Daraus läßt sich die Höhe der planetaren Grenzschicht ablesen. Eine starke Zunahme des Signals tritt hier an Wolken auf (weiße Bereiche).

Bei höhenabhängigem Lidar-Verhältnis, wie hier, entstehen weniger Fehler in der Berechnung des Aerosolprofils nach Fernald, wenn das Lidar-Verhältnis hoch angesetzt wird. Der Eichwert stellt sich für die Ozonkorrektur im ramangestützten Verfahren als weniger kritisch heraus als im DIAL mit Fernald-Korrektur.

7.2 Aerosolkorrektur an der Oberkante der Grenzschicht

Starke Gradienten in der Aerosolrückstreuung treten besonders an der Oberkante der planetaren Grenzschicht auf. Die hier meist vorhandene Temperaturinversion sorgt für nur sehr geringen Austausch von Luftmassen, die verschmutzte partikelhaltige Luft der planetaren Grenzschicht liegt oft nur 100 bis 200 m unter relativ sauberer Luft in der unteren freien Troposphäre. Da auch die relative Feuchte in der Grenzschicht meist deutlich höher als oberhalb ist und zudem typischerweise mit der Höhe ansteigt, weisen die Aerosolpartikel innerhalb der Grenzschicht ganz andere Streueigenschaften auf als oberhalb.

Für die Bestimmung der Ozondichte ist dieser Bereich besonders kritisch auszuwerten. Der starke Gradient in der Rückstreuung bedeutet eine besonders hohe Korrektur bezüglich des differentiellen Rückstreuterm B in der DIAL-Gleichung. Auch kleine Fehler in der Rückstreuung können also zu hohen Fehlern in der Ozonkorrektur führen. Eine besondere Schwierigkeit bildet dabei die Änderung der Aerosoleigenschaften an dieser Schichtgrenze. Da der Inversionsalgorithmus nach Fernald bisher nur mit konstantem Lidar-Verhältnis gerechnet wird, wird dieser Änderung der Aerosoleigenschaften bei der Berechnung des Rückstreuprofils keine Rechnung getragen. Verbesserungen sind hier mit der ramangestützten Methode möglich.

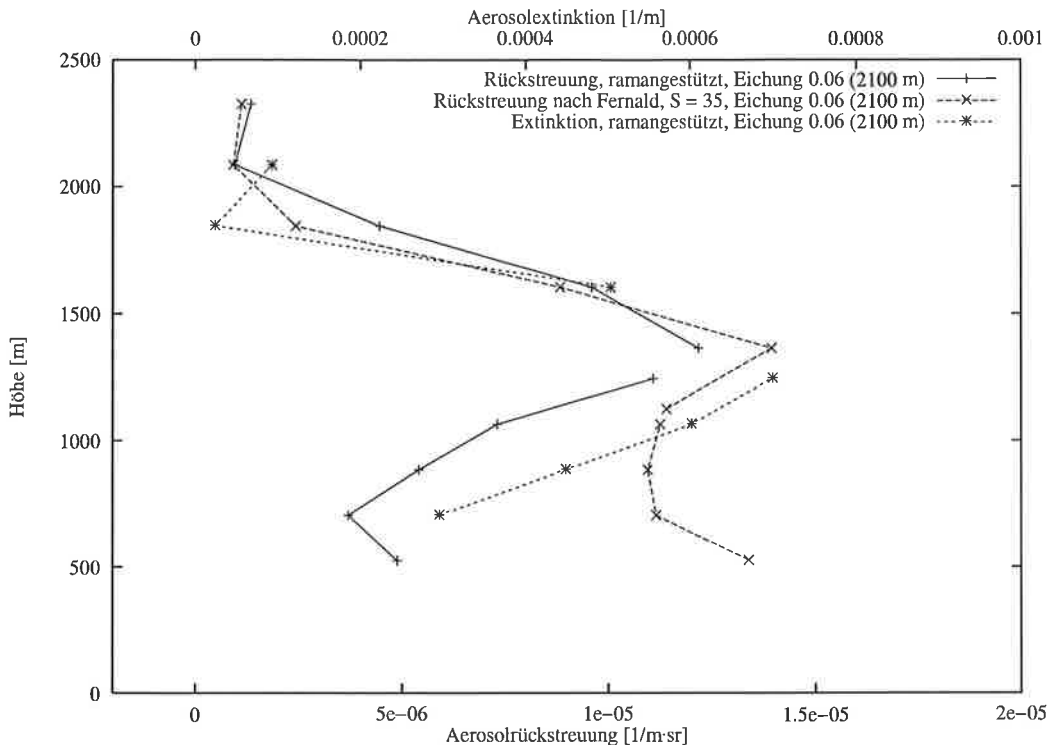


Abbildung 7.8: Rückstreuprofile aus der ramangestützten Methode bzw. mit dem Fernald-Algorithmus vom 8.8.98, 12:57 - 13:54 UT. Außerdem Extinktionsprofil mit der ramangestützten Methode.

In den Nachmittagsstunden des 8. August 1998 war über Lindenberg eine solche markante Grenzschichtoberkante zu finden. Nachdem der Vormittag weitgehend bedeckt geblieben war, löste sich diese Bewölkung aber nach und nach auf, so daß zwischen 12:57 und 13:54 UT schon deutliche Lücken in der Wolkendecke waren (Abb. 7.7). Um den statistischen Fehler durch Einbeziehung der Raman-Messung klein zu halten, wurden drei wolkenfreie Bereiche zusammengemittelt ausgewertet. Es handelt sich um die Zeiten 12:57:30 - 13:06:30 UT, 13:09:50 - 13:20:50 UT und 13:42:50 - 13:53:50 UT, insgesamt 30.7 Minuten. Da die Raman-Messungen über 60 s gemittelt werden und zum Speichern der 60 s Werte 1-2 s Zeit benötigt wird, sind Anfangs- und Endzeiten der gemittelten Bereiche bei den Raman-Messungen und den elastischen Messungen nicht völlig gleich. Es kommt aber nur zu maximalen Zeitdifferenzen in einem Abschnitt von 10 s. Der Effekt auf den halbstündigen Mittelwert dürfte zu vernachlässigen sein, da das Intervall nach Homogenität in der Schichtung ausgesucht worden ist.

Abbildung 7.8 zeigt Extinktions- und Rückstreuprofile, wie sie nach der ramangestützten Auswertemethode berechnet worden sind. Bis 1300 m nehmen Extinktion und Rückstreuung stark zu und erreichen hohe Maximalwerte von $\alpha_{\text{aer}} = 7 \cdot 10^{-4} \text{m}^{-1}$ und $\beta_{\text{aer}} = 1.4 \cdot 10^{-5} (\text{m} \cdot \text{sr})^{-1}$. Bis 1800 m gehen beide Werte stark zurück, β liegt je nach Eichung im Bereich $1 \cdot 10^{-6} (\text{m} \cdot \text{sr})^{-1}$ und α bei $5 \cdot 10^{-5} \text{m}^{-1}$. Innerhalb der Grenzschicht zeigt das mit dem Fernald-Algorithmus berechnete Profil einen ganz anderen Verlauf als das aus der ramangestützten Methode. Bei beiden Profilen wurde die Eichung so gewählt, daß in 1000 m eine Übereinstimmung der Werte der beiden Teleskope vorliegt.

Die Ozonprofile mit den unterschiedlichen Methoden zeigen ebenfalls Differenzen von

zum Teil $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$, die auf die unterschiedlichen Aerosolkorrekturen zurückzuführen sind. Zunächst läßt sich allerdings schwer entscheiden, welches der Profile realistischer sein wird. Um die genauen Unterschiede zu erfassen, muß man das Lidar-Verhältnis betrachten. Es läßt sich mit der ramangestützten Methode berechnen und ist stark höhenvariabel. Es weist in der planetaren Grenzschicht hohe Werte von 60 bis 80 sr auf. In der unteren freien Troposphäre liegen sie mit ca. 40 - 50 sr niedriger, allerdings wird der Fehler hier durch die Signalstatistik und aufgrund der kleinen Extinktion enorm hoch, so daß gesicherte Aussagen über seinen tatsächlichen Wert nicht möglich sind. Der unterste Wert in der freien Troposphäre liegt bei ca. 10 sr, was aber nur als Hinweis auf ein kleines Lidar-Verhältnis gesehen werden kann.

Mit diesen Werten des Lidar-Verhältnisses wurden nun Neuberechnungen des Rückstreuprofiles mit der Fernald-Methode vorgenommen. Für das Empfangsteleskop II wurde der Eichwert in 2100 m bei $V = 0.06$ belassen, das Lidar-Verhältnis wurde einmal auf den niedrigen Wert von $S = 15$ sr und einmal auf den hohen Wert von $S = 60$ sr gesetzt.

Abbildung 7.11 zeigt einen deutlich unterschiedlichen Verlauf des Aerosolprofils für die einzelnen Lidar-Verhältnisse. Ein geringes Lidar-Verhältnis ($S = 15$ sr) entspricht einer geringen Extinktion, die Rückstreuung wird erhöht berechnet. Ein hohes Lidar-Verhältnis ($S = 60$ sr) entspricht einer hohen Extinktion, die Rückstreuung wird entsprechend geringer berechnet. Die Auswirkungen auf den Gradienten sind nicht unerheblich. In Abbildung 7.12 sind die berechneten Aerosolkorrekturen für die unterschiedlichen Aerosolprofile zu sehen. Dabei nähern sich die Korrekturen aus dem Fernald Algorithmus an den Stellen denen aus der ramangestützten Methode an, wo das Lidar-Verhältnis so gewählt wurde, wie es hiermit berechnet wurde. Im oberen Höhenbereich liegt die Korrektur für $S = 15$ sr

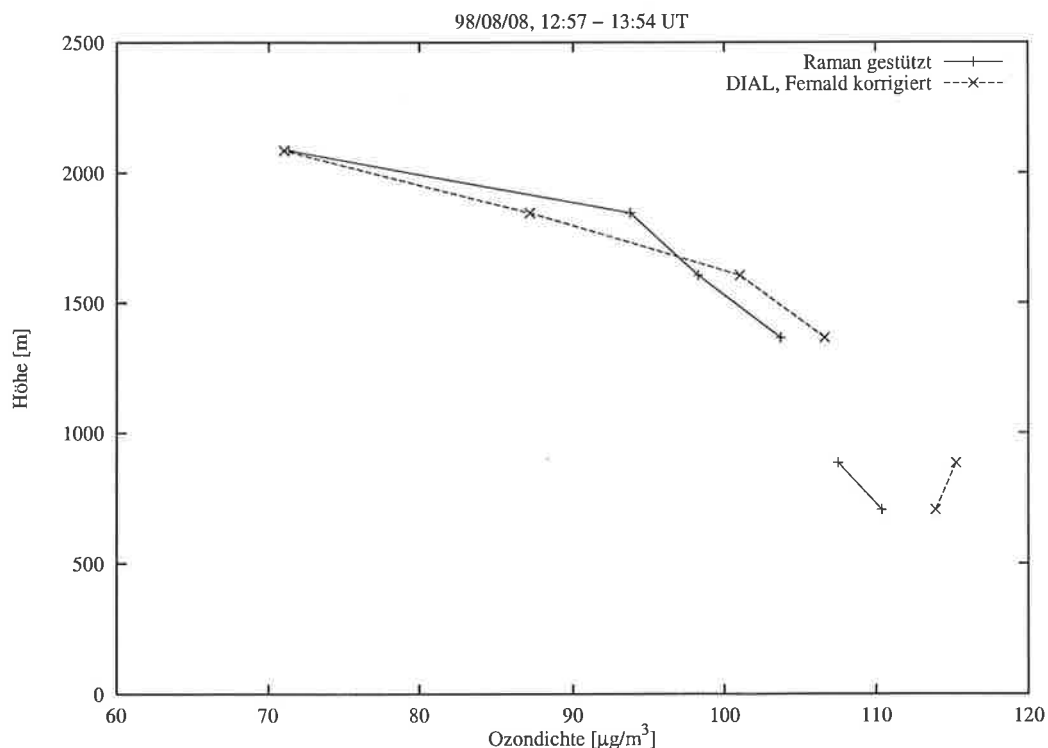


Abbildung 7.9: Ozonprofile aus der ramangestützten Methode bzw. mit dem Fernald-Algorithmus vom 8.8.98, 12:57 - 13:54 UT.

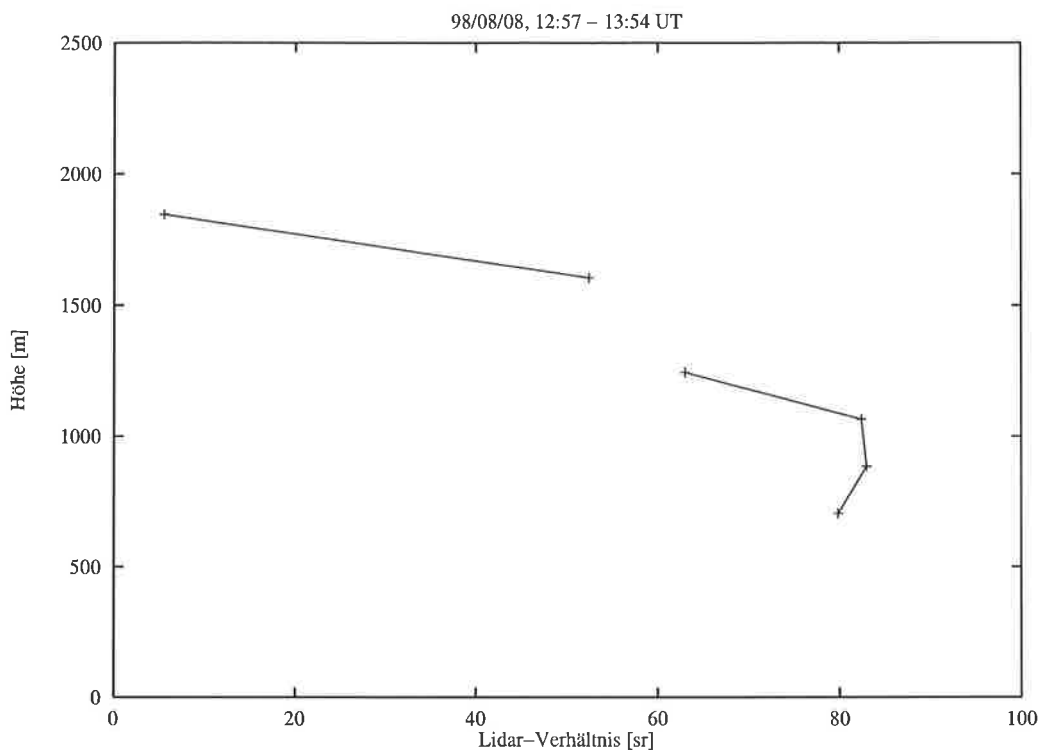


Abbildung 7.10: Lidar-Verhältnis aus der ramangestützten Methode vom 8.8.98, 12:57 - 13:54 UT.

dichter an der ramangestützten Korrektur, im unteren Bereich ist es umgekehrt. Der Verlauf der Korrektur aus der ramangestützten Methode kann mit einem höhenkonstanten Lidar-Verhältnis im Fernald-Algorithmus nicht gut wiedergegeben werden. Ein Ergebnis, das nicht sonderlich überraschend ist, aber noch einmal zeigt, wie wichtig es ist, ein höhenvariables Lidar-Verhältnis zuzulassen und dabei die Werte aus der ramangestützten Methode zu berücksichtigen.

Für den unteren Höhenbereich mit dem Empfangsteleskop I kann man ebenso verfahren. Hier wurde zum Vergleich einmal genauso geeicht wie in der ramangestützten Methode ($V = 0.38$ in 1000 m) und das Lidar-Verhältnis bei $S = 35$ sr belassen. Mit der Fernald-Methode hatte man die beste Anpassung für ein Lidar-Verhältnis von $S = 35$ sr gesucht, der Eichwert betrug dann $V = 0.65$ in 1000 m. Außerdem wurde neben dem Eichwert von $V = 0.38$ in 1000 m das Lidar-Verhältnis auf $S = 80$ sr geändert. Diese Variante führt zum Ergebnis mit den geringsten Abweichungen vom Profil aus der ramangestützten Methode. Die Gradienten werden noch etwas schwächer dargestellt. Bei höhenkonstantem Lidar-Verhältnis, wie hier in der Grenzschicht, sind die Verfahren also weitgehend kompatibel.

Das zeigt sich auch in den unterschiedlichen Ozonkorrekturen. Die Unterschiede in den Korrekturen sind nur noch etwa halb so groß wie in dem herkömmlichen Ansatz. Eine bloße Übernahme des Lidar-Verhältnisses aus der ramangestützten Methode, ohne Berücksichtigung von Höhenabhängigkeiten, führt dagegen zu beträchtlich höheren Unterschieden der beiden Korrekturverfahren.

Aus diesen Betrachtungen erkennt man die Nützlichkeit einer zusätzlichen Raman-Messung und der damit verbundenen Berechnung der Aerosolextinktion und damit des Lidar-Verhältnisses. Zwar läßt sich nicht unmittelbar zeigen, daß die so berechneten Ozon-

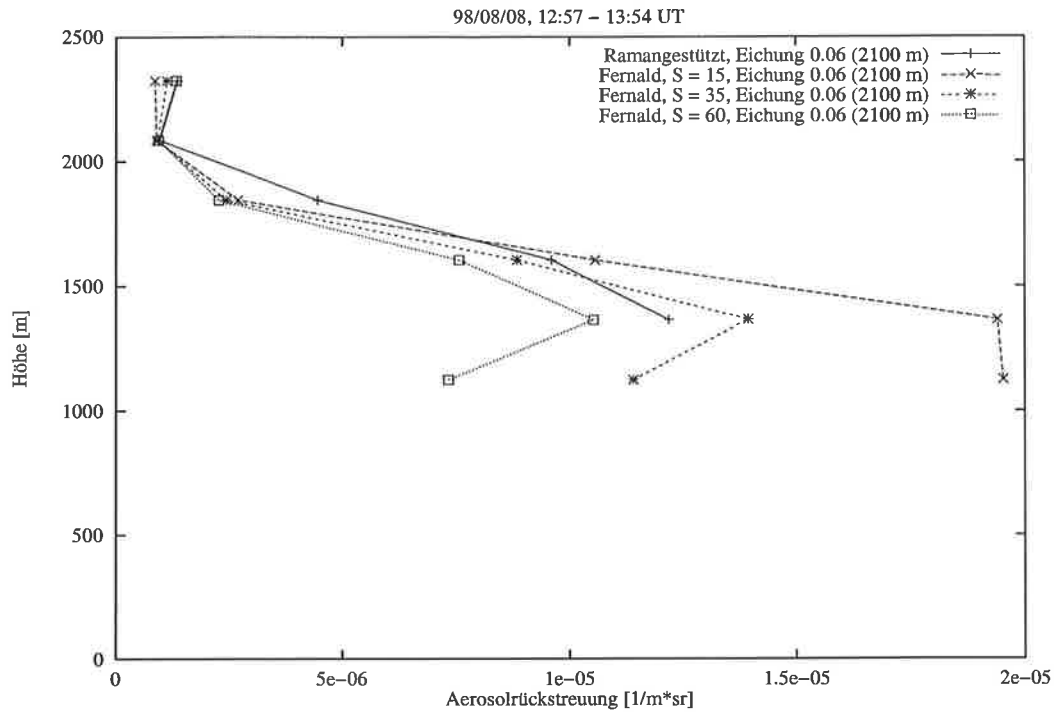


Abbildung 7.11: Rückstreuprofile mit der Fernald-Methode und unterschiedlichen Lidar-Verhältnissen berechnet (oberer Höhenbereich).

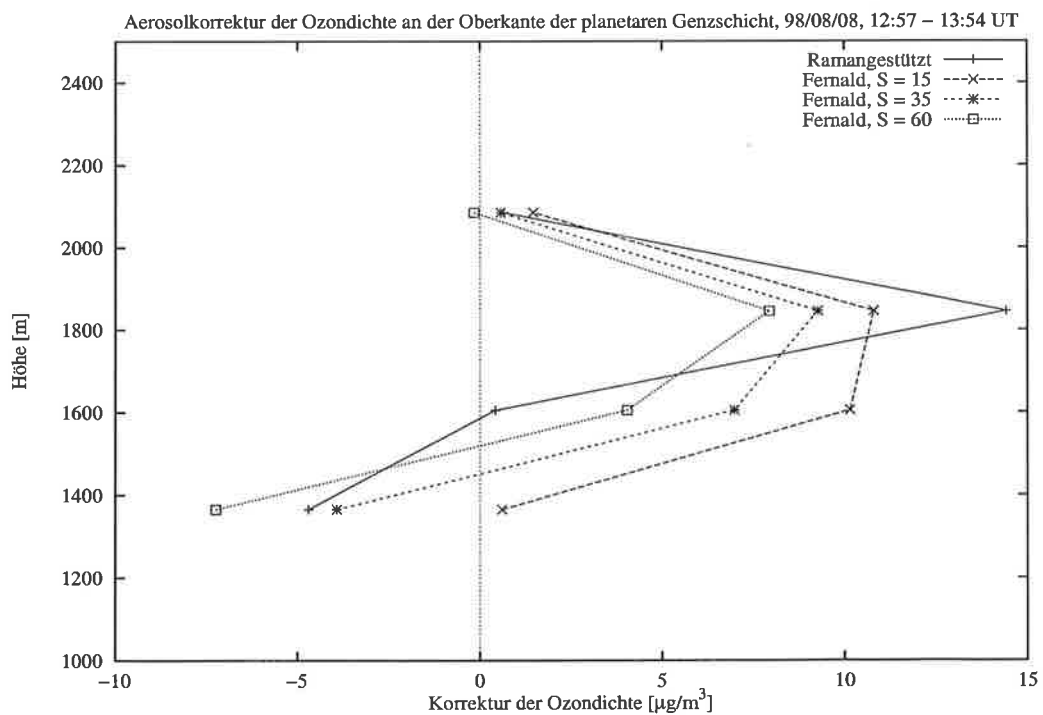


Abbildung 7.12: Aus den mit unterschiedlichen Lidar-Verhältnissen berechneten Rückstreuprofilen resultierende Ozonkorrektur im oberen Höhenbereich, 8.8.98, 12:57 – 13:54 (wolkenfrei).

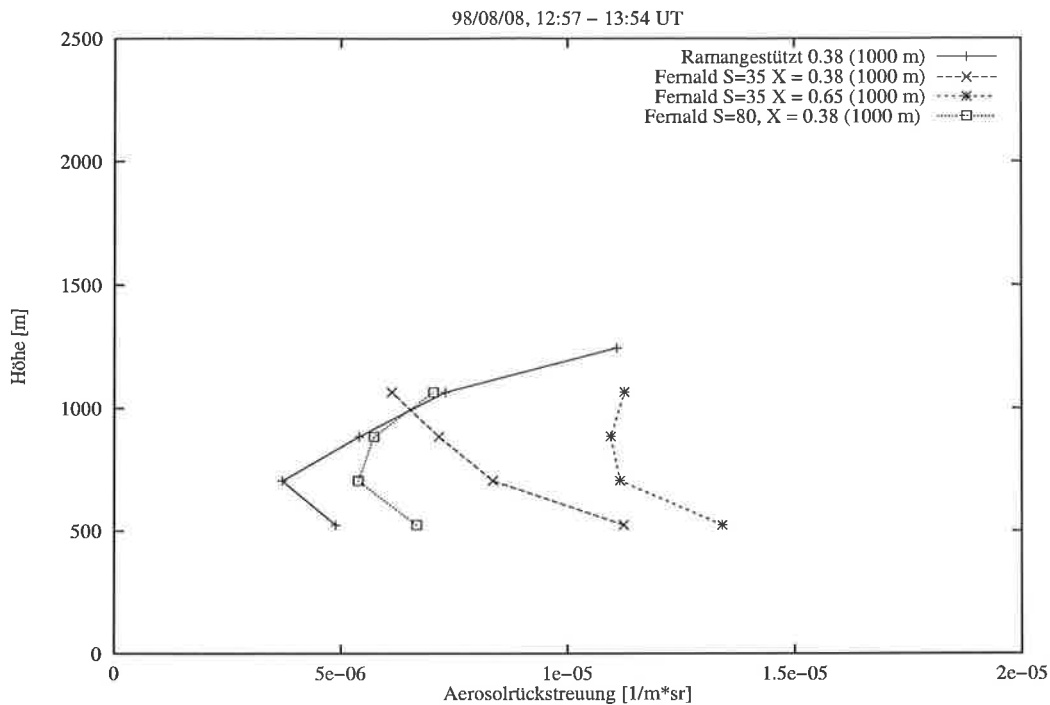


Abbildung 7.13: Rückstreuprofile mit der Fernald-Methode und unterschiedlichen Lidar-Verhältnissen bzw. Eichwerten berechnet (unterer Höhenbereich).

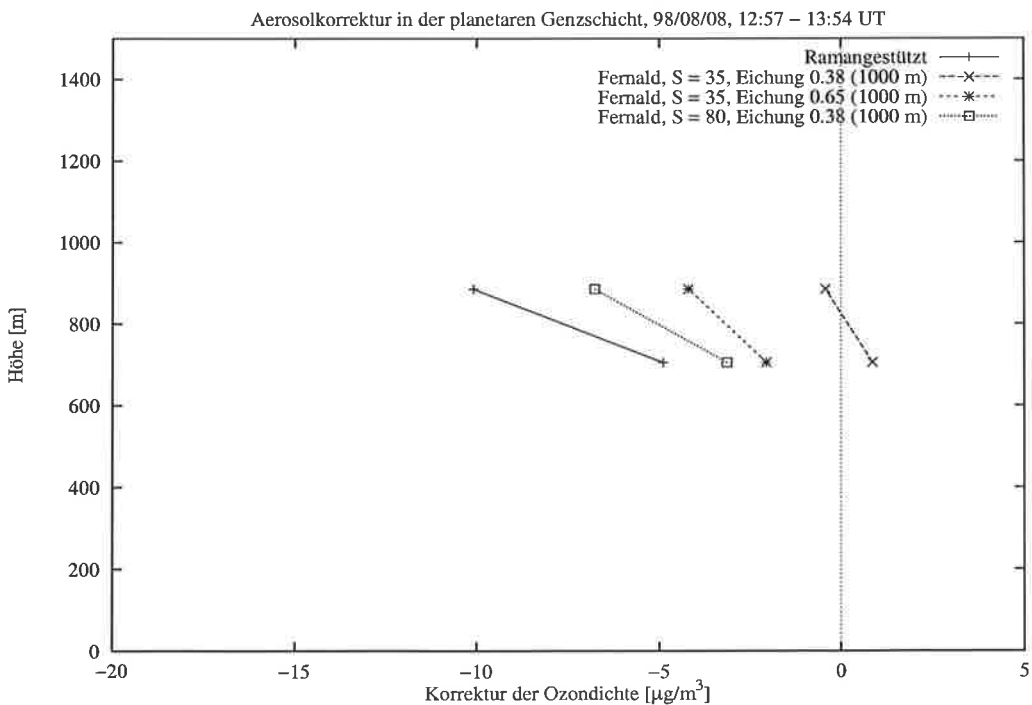


Abbildung 7.14: Aus den mit unterschiedlichen Lidar-Verhältnissen bzw. Eichwerten berechneten Rückstreuprofilen resultierende Ozonkorrektur im unteren Höhenbereich, 8.8.98, 12:57 - 13:54 (wolkenfrei).

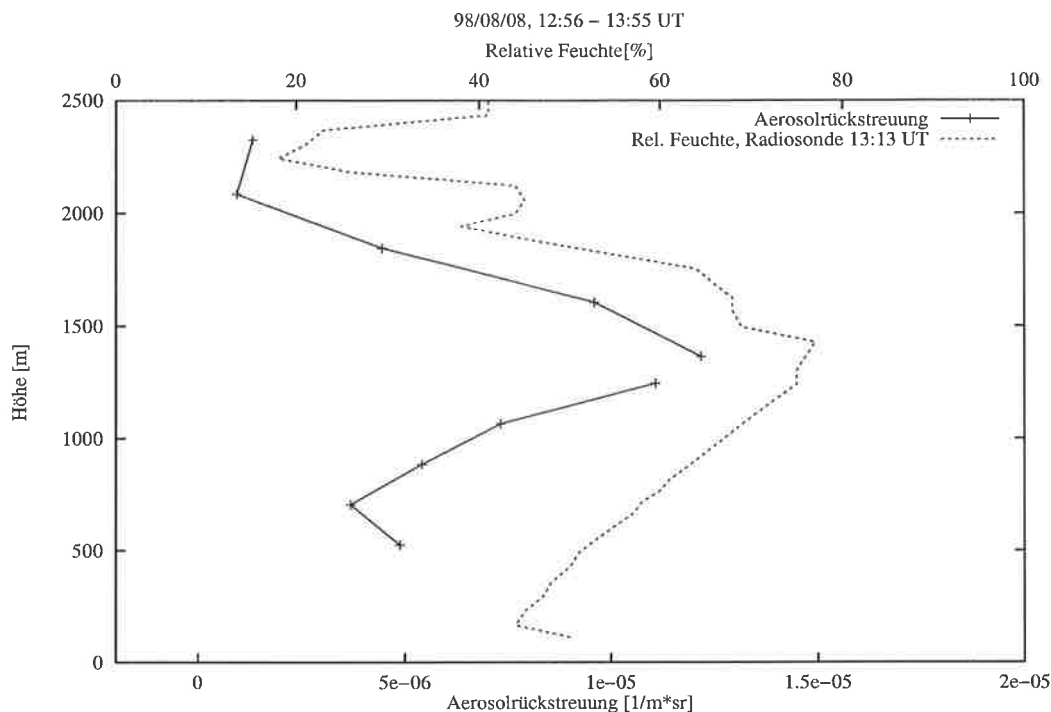


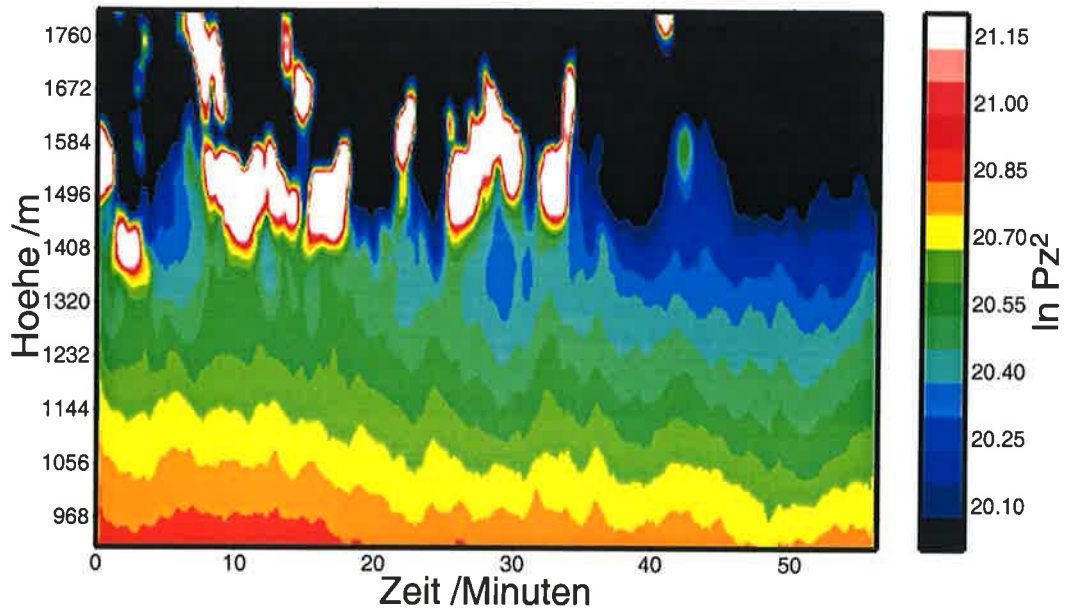
Abbildung 7.15: Rückstreuprofile mit der Fernald-Methode und der ramangestützten Methode im Vergleich zur relativen Feuchte aus einem Radiosondenaufstieg um 13:13, durchgeführt vom Meteorologischen Observatorium Lindenberg.

werte näher an den tatsächlichen liegen als die mit der herkömmlichen Methode ermittelten. Die Unsicherheit, die Vergleichsmessungen mit Sonden oder Flugzeug-getragenen Meßsystemen noch haben, liegen in der gleichen Größenordnung wie die Unterschiede in den Korrekturen. Jedoch ist es offensichtlich, daß die Annahme eines höhenvariablen Lidar-Verhältnis zu Verbesserungen führt, schließlich ist ein weiterer Parameter der Aerosolpartikeleigenschaften gemessen worden.

Der sehr unterschiedliche Verlauf der Rückstreuprofile zeigt nicht nur die Vorteile des ramangestützten Verfahrens bei der Verbesserung der Ozonkorrektur von DIAL-Messungen. Er zeigt auch, daß die Bestimmung von Aerosolprofilen mit dem Fernaldschen Inversionsalgorithmus zu erheblich falschen Ergebnissen führen kann. Bei der Messung von Aerosolprofilen mit einem Lidar kann die zusätzliche Bestimmung der Aerosolextinktion also von großem Nutzen sein, nicht nur weil damit eine wirkliche Messung der Aerosolextinktion möglich ist, sondern auch weil diese Information erst zu verbesserten Rückstreuprofilen führen kann.

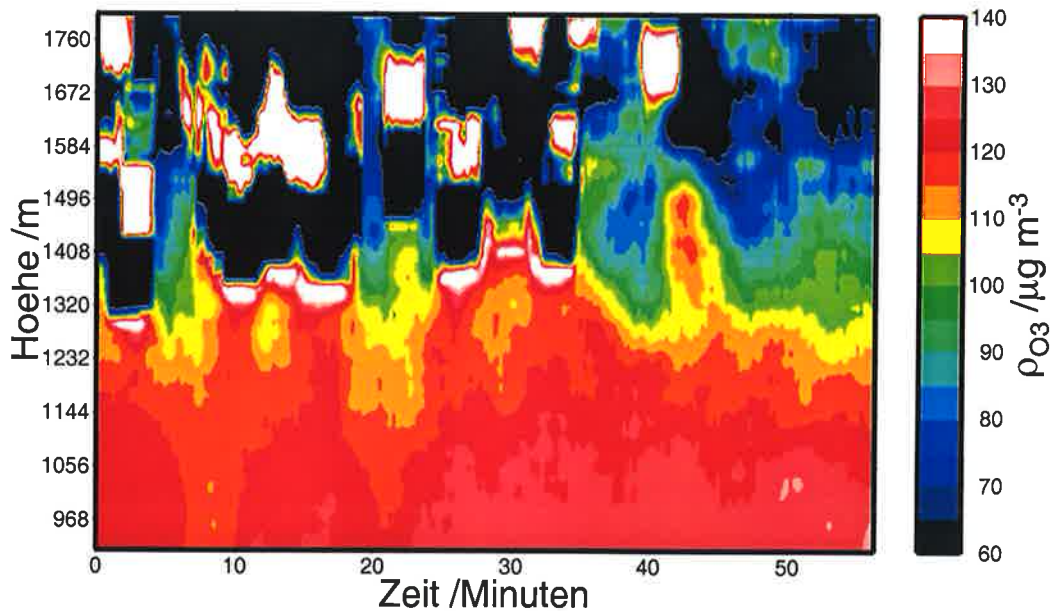
7.3 Messungen bei Cumulusbewölkung

Mit einem Ozon-DIAL mit optimierter Aerosolkorrektur, wie es in den vorhergehenden Abschnitten gezeigt worden ist, kann man versuchen, Spezialuntersuchungen unter schwierigen Meßbedingungen zu machen. Wie in Kapitel 2 bereits erläutert, gibt es Modelluntersuchungen (Lelieveld und Crutzen, 1990), die einen Ozonabbau durch veränderte Flüssigphasenchemie in Wolken zeigen. Daher ist es von Interesse, mit dem Ozon-DIAL in der Umgebung von Cumuluswolken die Ozondichte zu bestimmen.



$\ln Pz^2$, 292 nm; Startzeit 97/09/01 14:50 UT, Aufl. 90 s / 120 m

Abbildung 7.16: *Logarithmiertes höhenkorrigiertes Rückstreusignal bei 292 nm im Bereich der Oberkante der planetaren Grenzschicht am 1.9.97, 14:50 - 15:45 UT. Weiße Bereiche repräsentieren Wolken.*



Ozondichte DIAL 268/292 nm; Startzeit 97/09/01 14:50 UT, Aufl. 90 s / 120 m

Abbildung 7.17: *Ozondichteverteilung am 1.9.97, 14:50 - 15:45 UT. Die Werte sind nicht aerosolkorrigiert.*

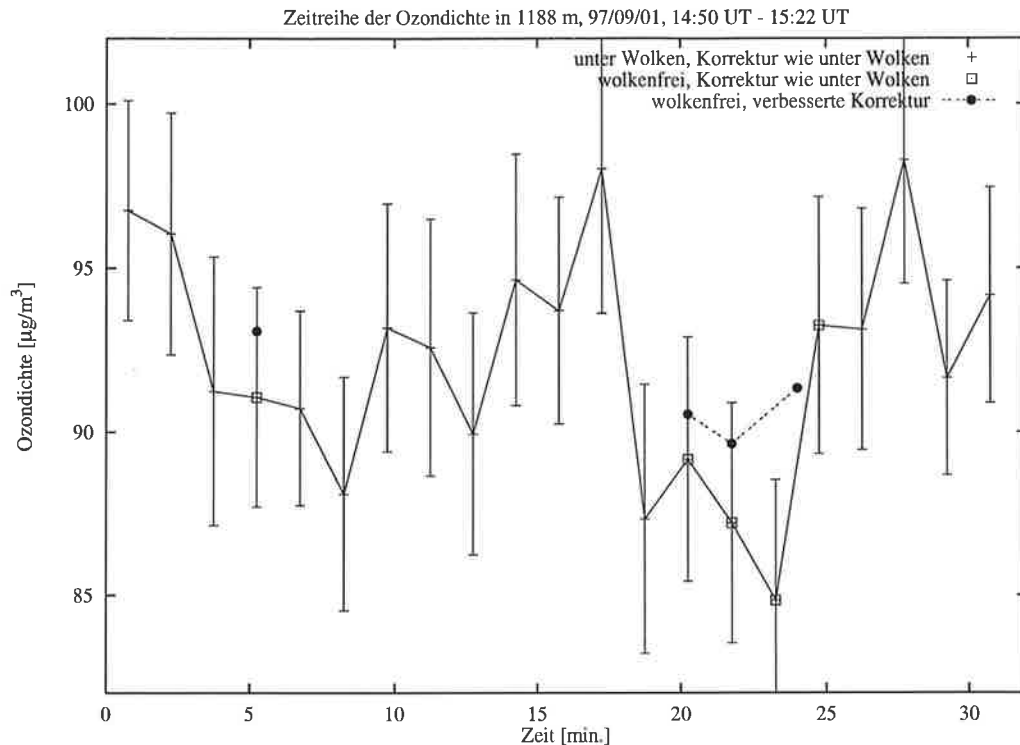


Abbildung 7.18: Zeitreihe der Ozondichte am 1.9.97, 14:50 - 15:22. Die Werte sind unterschiedlichen Korrekturen unterzogen worden.

Die Schwierigkeiten in der Auswertung von Ozon-DIAL-Messungen in Gegenwart von Cumuluswolken liegen darin, daß die Aerosolpartikel unter der Wolke und in den wolkenfreien Bereichen unterschiedliche Quellungszustände und damit unterschiedliche Streueigenschaften aufweisen. Es müssen also jeweils unterschiedliche Lidar-Verhältnisse und auch Eichkonstanten angenommen werden. Insbesondere kann eine Eichung im wolkenfreien Bereich, wo oberhalb der Grenzschicht geeicht werden kann, nicht auf bewölkte Fälle übertragen werden, da die Aerosolpartikel ihre Eigenschaften geändert haben.

Dagegen liegt es bei durchbrochener Bewölkung nahe anzunehmen, daß unter einzelnen Wolken jeweils ähnliche Streueigenschaften der Aerosole angenommen werden können. Dies gilt analog in den wolkenfreien Bereichen mit allerdings anderen Aerosoleigenschaften. Um für die Nutzung von Raman-Signalen genügend lange Zeitabschnitte zu erhalten, kann man Zeiten mit Wolken über dem Lidar und solche ohne Wolken über dem Lidar zusammenmitteln.

Geeignete Bedingungen für ramangestützte Ozon-DIAL-Messungen bei Cumulusbewölkung sind allerdings selten vorzufinden. Zum einen beschränkt sich der Zeitraum auf sommerliche Lagen mit genügend hoher Ozonproduktion. Zum anderen sollten soviel Wolken vorhanden sein, daß in etwa der Hälfte eines ein- bis zweistündigen Zeitraumes Wolken über dem Lidar sind und dazwischen wolkenfreie Bereiche auftreten, zudem sollten die Wolken nicht in zu großer Höhe sein, um in den wolkenfreien Bereichen auch oberhalb der Wolkenunterkante noch Ozondichten bestimmen zu können. Optimal ist bei einer Reichweite des DIALs von ungefähr 2000 m eine Höhe der Wolkenunterkante von ca. 1500 m. Leider reicht die Grenzschicht und damit die Wolkenunterkante in den Sommermonaten auch in Hamburg oft darüber hinaus.

So fanden die hier gezeigten Messungen an einem sehr warmen Spätsommertag, dem 1. September 1997 statt. Die Bodentemperaturen erreichten an diesem Tag nochmals 27°C , die Wolkenunterkante befand sich am späten Nachmittag bei voll ausgebildeter Grenzschicht in ca. 1400 m. Abbildung 7.16 zeigt das höhenkorrigierte logarithmierte Signal bei 292 nm. Dort, wo sich Wolken befinden, steigt das Signal stark an (weiße Bereiche), eine DIAL-Auswertung ist nur bis zur Unterkante der Wolken möglich. In den wolkenfreien Bereichen kann dagegen auch bis in größere Höhen ausgewertet werden. Die unkorrigierte Ozondichte zeigt bereits einige Auffälligkeiten (Abb. 7.17). Bis ca. 1100 m liegen die Werte zwischen 105 und $115 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und weisen dabei keine hohen Fluktuationen auf, allenfalls einen leicht ansteigenden Trend. In den wolkenfreien Bereichen liegt die Ozondichte oberhalb der Höhe der Wolkenunterkante, also auch oberhalb der Grenzschicht bei deutlich geringeren Dichten von weniger als $70 \mu\text{g}/\text{m}^3$, ein typischer Wert in der unteren freien Troposphäre (Grabbe, 1995). In ca. 1200 m, knapp unterhalb der Wolkenunterkante, zeigt die Ozondichte hohe zeitliche Fluktuationen, die in diesem Fall mit der Anwesenheit von Wolken über dem Lidar korreliert sind. In den wolkenfreien Bereichen erkennt man deutlich niedrigere Ozondichten als in den Bereichen mit einer Wolke über dem Lidar. Zu klären ist hier, ob die in den unkorrigierten Daten sichtbaren, durch die Wolken verursachten Inhomogenitäten des Ozons „echt“ sind oder durch eine richtige Aerosolkorrektur der Lidar-Daten kompensiert werden und es in diesem Bild nur scheinbare Effekte der Wolken auf die Ozondichte gibt.

Hierzu wurde die hier dargestellte Messung in wolkenfreie und bewölkte Zeitabschnitte eingeteilt, einige Zeiten im Übergang von bewölkt zu wolkenfrei wurden dabei nicht berücksichtigt. Insgesamt ergaben sich so zwei ca. 25-minütige Zeitabschnitte, in denen jeweils ähnliche Aerosolstreueigenschaften angenommen wurden. Diese Abschnitte ergaben mittlere Profile der Aerosolextinktion und -rückstreuung und daraus resultierend des Lidar-Verhältnisses, wie sie mit der ramangestützten Methode berechnet wurden. In den bewölkten Bereichen wurden höhere Werte der Aerosolextinktion gefunden als in den wolkenfreien Bereichen, unter Wolken stieg auch die Rückstreuung durch Aerosolpartikel stärker an als unter wolkenfreien Bedingungen.

Für die Höhe 1188 m zeigt Abbildung 7.18 eine Zeitreihe der Ozondichte mit zweiminütiger Auflösung, die einer Aerosolkorrektur unterzogen wurde, die sich auf den Zustand der Aerosolpartikel unter Wolken bezieht. Im Fernald-Algorithmus wurden das Lidar-Verhältnis und der Eichwert wie in der ramangestützten Auswertung unter Wolken gewählt. Man erkennt auch mit der Aerosolkorrektur dort, wo es über dem Lidar wolkenfrei war, einen Bereich niedrigerer Ozondichten. Nun müssen diese Werte allerdings mit einem anderen Aerosolprofil korrigiert werden als dem mittleren unter Wolken gültigen Profil. Berücksichtigt man dies, so ergeben sich im wolkenfreien Bereich tatsächlich etwas höhere Ozonwerte, die Unterschiede zwischen bewölkten und wolkenfreien Bereichen werden etwas kleiner. Selbst im zwei-Minuten-Mittelwert sind sie allerdings noch signifikant, etwas höher als der statistische Fehler der Ozondichte. Die Anhebung der Ozonwerte durch die veränderte Korrektur ist allerdings kleiner als der statistische Fehler des zwei-Minuten-Mittelwertes.

Auch mit einer verbesserten Aerosolkorrektur bleibt das Bild von niedrigen Ozondichten in den wolkenfreien Bereichen bei durchbrochener Cumulusbewölkung bestehen, auch wenn die Unterschiede nicht ganz so groß sind wie bei einer Standardkorrektur. Der Betrag, um den die Ozondichte in den wolkenfreien Bereichen vermindert ist, ist mit ca. $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$, entsprechend 4%, nur wenig größer als die Meßgenauigkeit des Systems. Eine

Interpretation im Hinblick auf den Effekt von Wolken auf die Ozonchemie bleibt nur mit diesen Messungen schwierig. Naheliegender ist, daß es sich in diesem Fall um Transport ozonarmer Luft von oben nach unten handelt. Unterhalb von Cumuluswolken findet man Aufwindschläuche, die ozonreiche Luft aus der Grenzschicht nach oben transportieren, in den wolkenfreien Bereichen am Rande und zwischen den Wolken dominieren abwärts gerichtete Winde, die ozonarme Luft nach unten transportieren. Da in diesem Fall oberhalb der Grenzschicht geringere Ozondichten als innerhalb der Grenzschicht zu finden sind, hat auch der durch die Wolken angeregte Luftaustausch an der Oberkante der Grenzschicht einen großen Einfluß auf die Ozondichteverteilung. Der Nettoeffekt der durch die Wolken verursachten Änderung der Ozonchemie läßt sich nur quantifizieren, wenn man die Effekte von Transport, Strahlungsfeld und Chemie trennen kann. Hierzu bedarf es zusätzlicher Messungen, z.B. des Vertikalwindes mit einem Radar/RASS oder Lidar und der Photolyserate unterhalb und oberhalb der Wolke. Wünschenswert wäre ebenfalls eine höhere Meßgenauigkeit des Lidars, die für die Raman-Messungen nur durch eine wesentliche Erhöhung der Wiederholrate des Lasers zu erreichen ist. Solche Meßdaten müssten dann mit Modelldaten, die einzelne Cumuli berücksichtigen können, verglichen werden. Mit der verbesserten Aerosolkorrektur können mit dem Ozon-DIAL aber auch kleine Effekte von Wolken auf die Ozonverteilung untersucht werden.

7.4 Raman-DIAL

Unabhängig vom Gradienten in der Aerosolverteilung läßt sich die Ozondichte auch aus zwei ramangestreuerten Signalen berechnen. Dieses Raman-DIAL Verfahren (siehe auch Abschnitt 4.5) bietet den Vorteil sehr geringer systematischer Fehler (siehe dazu Abschnitt 5.5), leidet aber unter dem hohen statistischen Fehler. Eine Verbesserung bietet die Benutzung unterschiedlicher Anregungswellenlängen im UV, z.B. 248 nm und 268 nm. Dazu muß man unterhalb von 270 nm aber die Sauerstoffabsorption berücksichtigen, zudem wird das Signal der Anregungswellenlänge 248 nm sehr schnell absorbiert. Um zu zeigen, daß dieses Verfahren prinzipiell anwendbar ist und bei Lasersystemen mit hoher Repetitionsrate Vorteile bietet, sei hier eine Messung mit dem Wellenlängenpaar 286 nm (Raman-Streuung an Stickstoff der Emissionswellenlänge 268 nm) und 306 nm (Raman-Streuung an Sauerstoff der Emissionswellenlänge 292 nm) im Vergleich zum DIAL bei 268 nm/ 292 nm gezeigt (Abb. 7.19).

Die Profile zeigen zwischen 1400 m und 2100 m gute Übereinstimmung, die mittlere Abweichung beträgt hier $2.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bei einer Standardabweichung von $2.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Das Raman-DIAL-Profil läßt sich bis in große Höhen mit plausiblen Werten auswerten, allerdings nimmt der statistische Fehler dann rasch zu, in 3500 m beträgt er bereits fast $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$, obwohl hier schon über 75 Minuten entsprechend 45000 Pulsen und 240 m in der Höhe gemittelt wurde. An diesem Abend lag eine Aerosolschicht in ca. 3300 m über dem Meßgebiet, darunter war die Atmosphäre nur in geringem Maße mit Aerosolpartikeln belastet. Abweichungen aufgrund von Aerosolgradienten sind daher im Meßbereich des DIALs nicht zu erwarten. Den noch vorhandenen Diskrepanzen wurde nicht im einzelnen nachgegangen, da sie zum einen klein sind und das Raman-DIAL zum anderen aufgrund der langen Mittelungszeiten nur zu Testzwecken angewandt wurde. Während Meßkampagnen wurde bevorzugt mit den beiden Raman-Kanälen bei 286 nm gemessen und wenn nötig die ramangestützte Auswertung benutzt.

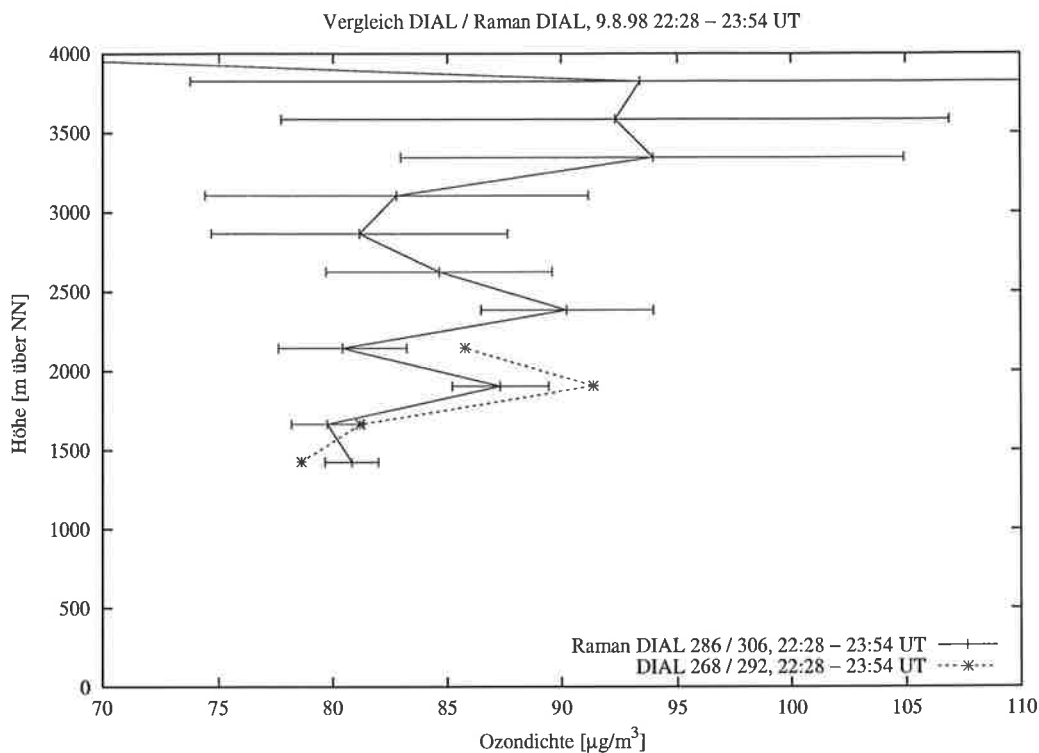


Abbildung 7.19: Vergleich DIAL/Raman-DIAL am 9.8.98, 22:28 - 23:54 UT. Verwendet wurden die Wellenlängenpaare 268 nm/292 nm (DIAL) bzw. 286 nm/306 nm (Raman-DIAL).

Das Raman-DIAL zeigt innerhalb der Aerosolschicht in 3500 m leicht erhöhte Ozonwerte. Eine am nächsten Tag um 10:45 UT gestartete Ozonsonde zeigt in der noch immer vorhandenen Aerosolschicht ebenfalls gegenüber der Umgebung erhöhte Werte von ca. $110 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Das mit dem Raman-DIAL erzielte Ozonprofil ist offensichtlich glaubwürdig. Um zu einer routinemäßigen Anwendung zu gelangen, bedarf es aber zusätzlicher Photonen-zählkanäle sowie eines hochrepetierenden Lasersystems. Dann ist die Methode aber in schwierigen Meßsituationen mit hohen Aerosolgradienten vielversprechend zur Messung mittlerer Profile.

Kapitel 8

Vertikalprofile der Aerosolextinktion

Aerosolprofile lassen sich mit dem MPI-UV-Lidar am besten bei einer Emissionswellenlänge von 351 nm bestimmen. Da diese Wellenlänge mit ausreichend hoher Energie von ca. 50 mJ bei einer Wiederholrate von 10 – 20 Hz emittiert wird, kann ein Aerosolrückstreuprofil über die gesamte Troposphäre bestimmt werden. Auch die Bestimmung der Aerosolextinktion durch Messung der atmosphärischen Raman-Streuung an Stickstoff bei 382.3 nm ist bei Dunkelheit bis in Höhen von 4 - 5 km möglich.

Für Tagesmessungen kann das Lidar als kombiniertes Raman-Lidar/Ozon-DIAL betrieben werden. Die Aerosolextinktion kann dann bei 268 nm unter Berücksichtigung einer Ozonkorrektur bestimmt werden.

Beide Meßverfahren wurden angewandt und während des Lindenberger Aerosol Charakterisierungs Experiments (LACE'98) Qualitätskontrollen in Form von Vergleichsmessungen mit anderen Lidar-Systemen unterzogen. Außerdem wurden die ermittelten optischen Dicken mit denen aus Sternphotometer- oder Sonnenphotometermessungen verglichen.

In Hamburg wurden seit dem 1.12.97 wöchentliche Routinemessungen der Aerosolextinktion bei 351.0 nm Anregungswellenlänge und 382.3 nm Raman-Wellenlänge (N₂) im Rahmen des Aerosolforschungsschwerpunktes (AFS) des BMBF durchgeführt. Da diese Messungen nur bei Dunkelheit durchgeführt werden können, lag der Meßzeitpunkt in der Regel kurz nach Sonnenuntergang.

Es liegt ein größerer Datensatz von 54 gemessenen Extinktionsprofilen in allen Jahreszeiten vor. Diese Daten wurden einer statistischen Untersuchung unterzogen, die den Beginn einer Aerosolklimatologie für Hamburg darstellen. Mit Hilfe von Rückwärtstrajektorien wurde die Herkunft der jeweiligen Luftmasse untersucht und in Beziehung zur gemessenen Aerosolextinktion gesetzt.

Während LACE'98 wurde eine Zeitreihe von Tagesmessungen der Aerosolextinktion während der gut dreiwöchigen Experimentphase aufgenommen. Auch hier wurden statistische Untersuchungen vorgenommen sowie eine Analyse der Luftmassenherkunft durchgeführt.

8.1 Aerosolextinktion über Hamburg

8.1.1 Vergleichsmessungen

In der Nacht vom 11.8.1998 auf den 12.8.1998 wurden in Lindenberg kontinuierliche Messungen der Aerosolextinktion bei 382 nm durchgeführt. In dieser Nacht fanden ebenfalls

Spektrale Abhängigkeit der optischen Dicke des Aerosols aus Sternphotometer und Raman-Lidar-Daten, 98/08/11 22:20 UT – 98/08/12 2:20 UT

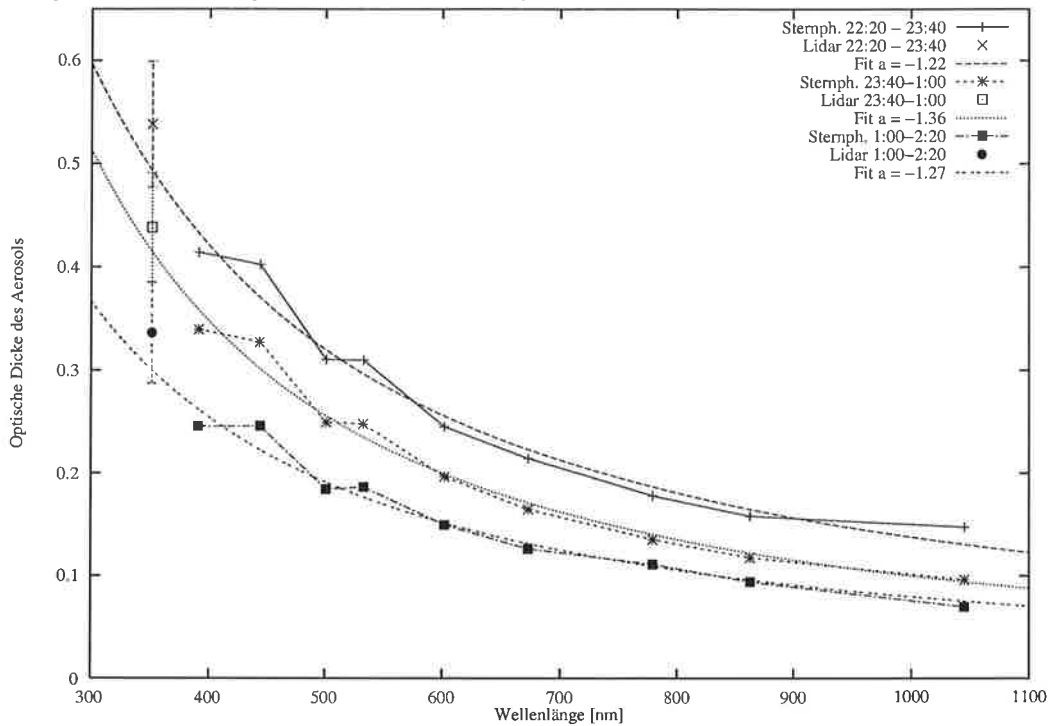


Abbildung 8.1: Spektrale Abhängigkeit der optischen Dicke der Aerosolpartikel vom 11.8.98 22:20 UT bis zum 12.8.98 2:20 UT. Vergleich Sternphotometer / Lidar.

Messungen der optischen Aerosoldicke mit dem Sternphotometer des Meteorologischen Observatoriums Lindenberg (MOL) sowie Messungen der Aerosolextinktion bei 387 nm mit dem Lidar des Instituts für Troposphärenforschung (IfT) aus Leipzig statt. Diese Messungen konnten zu Vergleichszwecken herangezogen werden, um die Qualität der Aerosolextinktionsmessungen zu überprüfen.

Die Nacht war von einer stetigen Abnahme der optischen Dicke durch Aerosolpartikel gekennzeichnet. Abbildung 8.1 zeigt die zeitlich gemittelten spektralen Gänge der optischen Dicke der Aerosolpartikel, wie sie mit dem Sternphotometer ermittelt wurden, zu drei unterschiedlichen Zeitspannen von jeweils 80 Minuten. Diese Messungen umfassen 9 Wellenlängen zwischen 390 und 1045 nm. Die mit dem Lidar gemessene optische Dicke wurde als Integral aus den Aerosolextinktionsprofilen (Abbildung 8.2) bestimmt. Dabei wurde angenommen, daß der unterste Meßwert in ca. 600 m auch repräsentativ für den Boden ist. Diese Annahme ist die bestmögliche, der Fehler in der optischen Dicke in den untersten 600 Metern wurde mit 25% abgeschätzt und zu dem statistischen Fehler hinzugerechnet. Die optische Dicke ab 6000 m Höhe kann als vernachlässigbar angesehen werden, wenn keine Cirrusbewölkung vorhanden ist. Aus den Messungen der Rückstreuprofile bei 351 nm ergibt sich, daß die Aerosolrückstreuung in der gesamten Troposphäre bis ca. 12000 m Höhe im Mittel kleiner als $5 \cdot 10^{-8} (\text{m} \cdot \text{sr})^{-1}$ war, woraus sich bei einem Lidar-Verhältnis von 50 sr eine restliche optische Dicke kleiner als 0.015 ergibt. Auch der Beitrag des stratosphärischen Aerosols zur gemessenen optischen Dicke des Sternphotometers kann vernachlässigt werden, da die Stratosphäre sich im Sommer 1998 in einem extrem sauberen Zustand befand.

Nimmt man an, daß der spektrale Gang der optischen Dicke der Aerosolpartikel einem

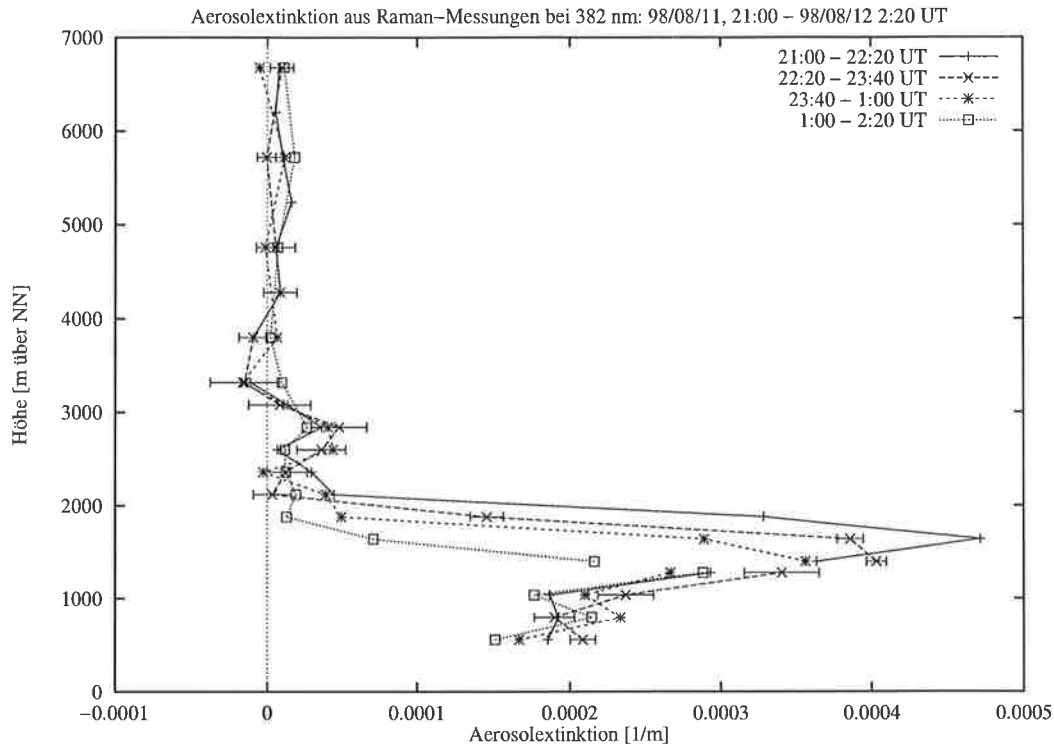


Abbildung 8.2: Extinktionsprofile bei 351 nm vom 11.8.98 21:00 UT bis zum 12.8.98 2:24 UT.

Potenzgesetz gemäß $OD \propto \lambda^a$ folgt, so kann man den besten Wert für a , den sogenannten Ångström-Koeffizienten, bestimmen und eine Approximation für die zu erwartende optische Dicke bei der Lidar-Wellenlänge machen. Innerhalb der Fehler der Lidar-Messung paßt die ermittelte optische Dicke gut zum spektralen Gang der Sternphotometermessungen. Dieser Vergleich kann bereits als Qualitätskontrolle verwendet werden. Zwar wird die Gültigkeit des Potenzgesetzes für den spektralen Gang im UV zunehmend unsicher, aber bei nur 40 nm Wellenlängenabstand zur kleinsten vom Sternphotometer gemessenen Wellenlänge spielt dies noch keine große Rolle. Die aus dem Lidar-Extinktionsprofil ermittelten optischen Dicken passen sehr gut zu den Photometermessungen, so daß grundlegende Fehler hierdurch bereits ausgeschlossen werden können.

Als Ergänzung zu den Photometermessungen lassen die Lidar-Messungen Rückschlüsse auf die Ursachen für die Abnahme der optischen Dicke zu. Diese liegt vor allem in der Abnahme der Dicke der Schicht, in der sich optisch aktive Aerosole befinden. In den untersten 1000 m bleibt die Aerosolextinktion nahezu konstant, während sie darüber stark abnimmt.

Die Qualitätssicherung erfolgt zusätzlich durch direkten Vergleich mit einem anderen Lidar-System. In Lindenberg wurden gleichzeitig drei Lidar-Systeme eingesetzt, die nur wenige hundert Meter voneinander entfernt waren. Das Mehrwellenlängenlidar des IfT aus Leipzig verfügt über einen Raman-Kanal bei 387 nm. Hier wird die atmosphärische Raman-Streuung an Stickstoff der Emissionswellenlänge 355 nm gemessen. Die Wellenlängendifferenz zum MPI-Lidar ist sehr klein und kann vernachlässigt werden. Einen Vergleich der Extinktionsprofile zeigt Abbildung 8.3.

Die Übereinstimmung ist exzellent. Unterhalb von 1000 m zeigt das IfT-Lidar vermutlich

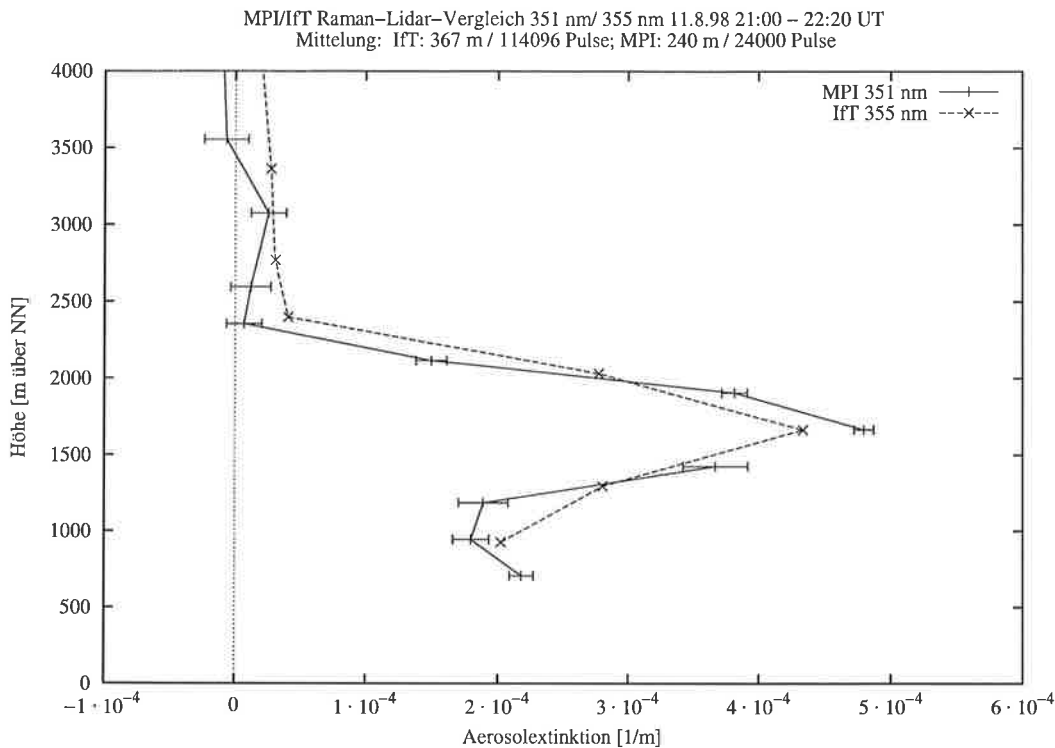


Abbildung 8.3: Vergleich von Extinktionsprofile bei 351 nm MPI und 355 nm (IFT) vom 11.8.98 21:00 UT bis 22:20 UT.

aufgrund von unvollständiger Überlappung von Laserstrahl und Gesichtsfeld des Empfangsteleskops zu geringe Werte. Im oberen Bereich ist das Signal etwas stärker ver-rauscht, da es unter einem Zenitwinkel von 40° gemessen wurde und die vom Laserlicht durchlaufene Wegstrecke daher um 30% größer ist als bei einer Vertikalmessung. Das Signal ist daher bereits deutlich stärker geschwächt. Im optimalen Meßbereich zwischen 1000 m und 2500 m über NN weisen die Absolutwerte und der Verlauf der Aerosol-extinktion kaum Unterschiede auf.

Die Ergebnisse dieser Maßnahmen zur Qualitätskontrolle zeigen, daß die mit dem MPI-Lidar gemessenen Extinktionsprofile bei 351 nm eine hohe Datenqualität haben und das Lidar ein verläßliches Instrument zur Bestimmung der Aerosol-extinktion ist.

8.1.2 Statistische Analyse der Routinemessungen

Die seit dem 1.12.97 im Rahmen des Lidar-Netzes des Aerosolforschungsschwerpunktes (AFS) des Bundesministeriums für Bildung und Forschung (BMBF) durchgeführten Abendmessungen der Aerosol-extinktion am Standort Hamburg ermöglichen statistische Aussagen über die Aerosol-Verteilung, die optische Dicke und die Herkunft des Aerosols in Hamburg.

Die Messungen wurden einmal pro Woche an einem festen Wochentag in den Abendstunden innerhalb eines Zeitfensters von 1 Stunde vor Sonnenuntergang bis 4 Stunden nach Sonnenuntergang durchgeführt. Meist liegt der Meßbeginn kurz nach Sonnenuntergang. Der niedrigste Meßpunkt des Lidars liegt bei ca. 600 m über Grund, so daß davon ausgegangen werden kann, daß dieser Meßpunkt in der nachmittags gut durchmischten Schicht liegt und nicht von der möglichen Ausbildung einer nächtlichen Grenzschicht beeinflusst

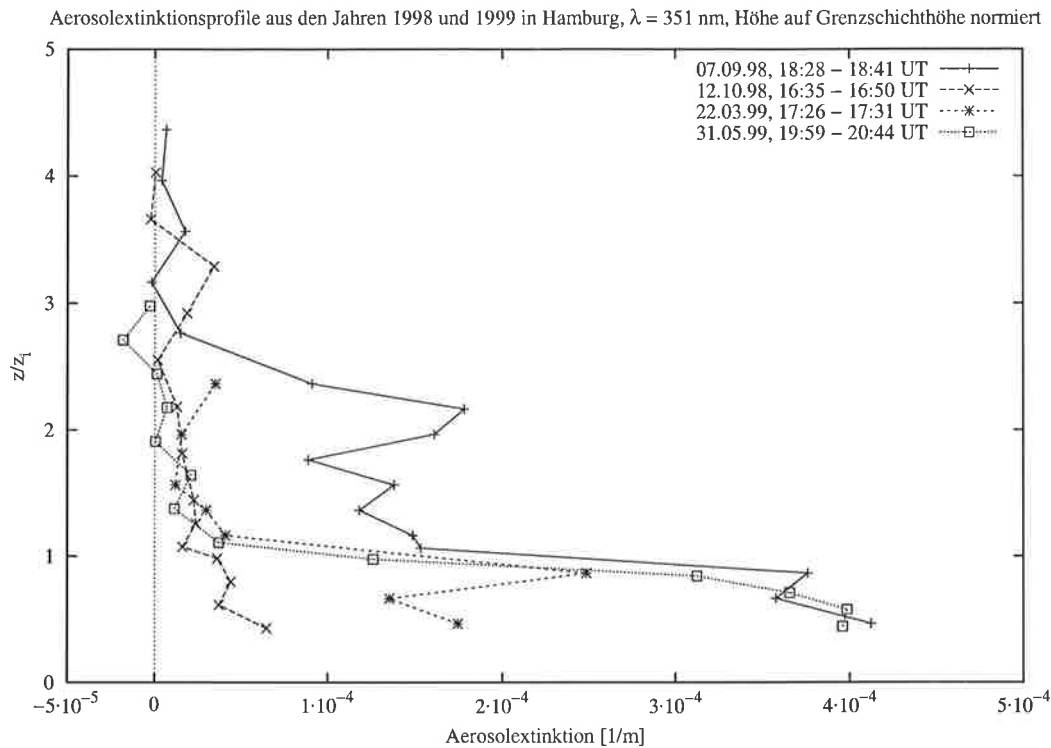


Abbildung 8.4: Beispiele für Aerosolextinktionsprofile bei 351 nm wie sie mit dem MPI-Lidar in Hamburg gemessen wurden. Die Höhennormierung erfolgte auf die Grenzschichthöhe.

ist.

Abbildung 8.4 zeigt als Beispiel vier Extinktionsprofile aus verschiedenen Jahreszeiten bei unterschiedlichem Aerosolgehalt. Man erkennt deutlich, daß die Grenzschicht gut erfaßt wird und sich hier die meisten streuenden Partikel befinden. Am 7.9.98 befand sich eine zweite Aerosolschicht oberhalb der Grenzschicht, an den anderen Tagen hingegen liegt die Aerosolextinktion hier bei sehr kleinen Werten.

Von den in den Jahren 1998 und 1999 104 möglichen Meßterminen konnten an 54 Tagen Messungen durchgeführt werden. An den anderen Terminen gab es entweder technische Schwierigkeiten (6 Tage), das Lidarsystem war wegen des Feldexperiments LACE'98 nicht in Hamburg einsatzbereit (10 Tage) oder es herrschten Regen oder niedrige Bewölkung, so daß nicht gemessen werden konnte (34 Tage). Eine tabellarische Aufstellung der Meßtermine mit den gemessenen mittleren Aerosolextinktionen und optischen Dicken in der Grenzschicht befindet sich im Anhang. Es wurde eine Klassifizierung der Messungen nach Bedeckung vorgenommen. War es wolkenlos oder existierten Lücken, die mindestens eine fünfminütige Messung bis in Höhen oberhalb 3000 m erlaubten, so wurde die Messung in die Klasse 0 (wolkenlos) eingeteilt. Verhinderten Wolken oberhalb 2000 m eine Messung in größeren Höhen, so wurde diese Messung als Klasse 1 bezeichnet, bei vollständiger Bedeckung mit einer Wolkenunterkante unterhalb 2000 m war die Meßklasse 2. Diese Einteilung erfolgte, um bei der statistischen Auswertung festzustellen, ob die Zunahme von Messungen bei vollständiger Bedeckung den Mittelwert signifikant beeinflussen, ob man also umgekehrt einen hohen Fehler macht, wenn nur Fälle mit mindestens durchbrochener Bewölkung betrachtet werden.

Der statistischen Auswertung der Aerosolextinktionsprofile liegen folgende Annahmen zugrunde: In der planetaren Grenzschicht befindet sich in der Regel der größte Teil der optisch aktiven Aerosolpartikel. Da diese ihre Quelle meist am Boden oder in Bodennähe haben, sind sie am Nachmittag in einer gut durchmischten Grenzschicht annähernd homogen verteilt. An der Grenzschichtoberkante nimmt die Anzahl der optisch aktiven Aerosolpartikel drastisch ab, so daß sich ein prägnanter Gradient in der Aerosolrückstreuung und -extinktion ausbildet. Dieser Gradient ist in Lidarmessungen ebenso deutlich zu sehen wie einzelne Turbulenzelemente, die Vertikalbewegungen der Grenzschichtoberkante verursachen und ein Hinweis darauf sind, daß turbulente Austauschprozesse mit bodennahen Schichten stattfinden. Mit einer nachmittäglichen Lidar-Messung läßt sich somit die Grenzschichtoberkante meistens eindeutig identifizieren. Es läßt sich außerdem sehen, daß diese Aerosolschicht bei Sonnenuntergang nicht abgesunken ist. Bei einer konvektiven Grenzschicht nimmt zwar die Turbulenz ab oder kommt sogar zum Erliegen, es bilden sich aber keine zusätzlichen Gradienten in der Aerosolverteilung heraus, so daß die homogene Durchmischung erhalten bleibt. Mit einer Lidar-Messung bei Sonnenuntergang kann also die Aerosolextinktion in der durchmischten Grenzschicht erfaßt werden. Ist die Grenzschicht nicht konvektiv gebildet, so spielt es ohnehin keine Rolle, zu welcher Tageszeit die Messung durchgeführt wird.

Oberhalb der Grenzschicht befinden sich meist nur wenige Aerosolpartikel, das Rückstreuprofil aus den Lidar-Messungen ist dann sehr nah an einem berechneten Rayleigh-Rückstreuprofil, das Aerosolextinktionsprofil zeigt sehr kleine Werte von fast Null. In Ausnahmefällen erkennt man Aerosolstreuung auch in großen Höhen, man kann dann aber ausschließen, daß diese Schicht zum Zeitpunkt der Messung Kontakt mit dem Boden hat, so daß sie nicht der planetaren Grenzschicht zuzurechnen ist.

Für die statistische Betrachtung des Grenzschichtaerosols wurde nun aus den gemessenen Aerosolextinktionsprofilen die Höhe der planetaren Grenzschicht abgelesen. Ihre Höhe wurde so festgelegt, daß sie mit dem höchsten negativen Gradienten in der Aerosolextinktion und -rückstreuung übereinstimmt. Durch Integration des Extinktionsprofils bis zur Grenzschichthöhe wurde die optische Dicke der Grenzschicht berechnet. Dabei wurde der unterste Meßwert als repräsentativ für die Schicht bis zum Boden angenommen. Diese Annahme ist die bestmögliche für gute Durchmischung der Grenzschicht. Ein Mittelwert für die Aerosolextinktion in der Grenzschicht ergibt sich dann als Quotient der optischen Dicke der Grenzschicht und der Grenzschichthöhe.

Bei übereinander liegende Aerosolschichten wurde nur die untere Schicht in die Statistik miteinbezogen, obwohl die darüberliegende Schicht einen signifikanten Beitrag zur gesamten optischen Dicke leisten kann. Eine solche Struktur konnte aber nur in 8 der 53 untersuchten Fälle beobachtet werden.

Für die so bestimmte Grenzschicht ergeben sich die in Tabelle 8.1 angegebenen Mittelwerte für die Aerosolextinktion, die optische Dicke und die Grenzschichthöhe. Die Werte unterscheiden sich nur wenig zwischen den beiden untersuchten Jahren 1998 und 1999. Die Variabilität der mittleren Aerosolextinktion in der Grenzschicht ist 1998 mit 73% Standardabweichung des Einzelwertes vom Mittelwert gegenüber 56% 1999 höher. Im Mittel über beide Jahre liegt sie bei 63%. Die Variabilität der optischen Dicke ist mit etwas mehr als 80% deutlich höher als die der Aerosolextinktion. Hier geht zusätzlich die Variabilität der Grenzschichthöhe ein. Die etwas niedrigeren Grenzschichthöhen im Jahr 1998 lassen sich durch die wenigen Messungen im Sommer 1998 erklären, da sich das Meßsystem im Juli und August in Lindenberg befand. Auch die geringeren mittleren

Jahr	Mittlere Extinktion [10^{-4}m^{-1}]	Mittlere Grenzschichthöhe [m]	Optische Dicke Grenzschicht
1998	2.05 ± 1.50	1243 ± 434	0.26 ± 0.21
1999	2.09 ± 1.18	1306 ± 476	0.30 ± 0.25
1998/1999	2.07 ± 1.31	1279 ± 455	0.28 ± 0.23

Tabelle 8.1: *Mittlere Werte der Aerosolextinktion in der Grenzschicht, der Grenzschichthöhe, der optischen Dicke der Grenzschicht sowie der gesamten optischen Dicke bei 351 nm, unterschieden nach Meßjahren.*

Jahreszeit	Mittlere Extinktion [10^{-4}m^{-1}]	Mittlere Grenzschichthöhe [m]	Optische Dicke Grenzschicht
Sommer	2.64 ± 1.47	1446 ± 522	0.40 ± 0.28
Winter	1.52 ± 0.86	1118 ± 313	0.17 ± 0.09
alle	2.07 ± 1.31	1279 ± 455	0.28 ± 0.23

Tabelle 8.2: *Mittlere Werte der Aerosolextinktion in der Grenzschicht, der Grenzschichthöhe, der optischen Dicke der Grenzschicht sowie der gesamten optischen Dicke bei 351 nm, unterschieden nach Jahreszeiten.*

optischen Dicken lassen sich so erklären.

Ein Teil dieser jährlichen Variabilität ist jahreszeitlich bedingt. Unterscheidet man die Messungen nach Sommerhalbjahr (April bis September) und Winterhalbjahr (Oktober bis März), so erkennt man einige deutliche Unterschiede (Tabelle 8.2). Die Werte für mittlere Extinktion, Grenzschichthöhe und optische Dicke der Grenzschicht sind im Sommer deutlich höher als im Winter. Die Variabilitäten der einzelnen Werte nehmen ab, wenn man die Jahreshälften getrennt betrachtet.

Interessante Aufschlüsse erhält man auch, wenn man sich den Jahresgang der mittleren Aerosolextinktion in der Grenzschicht ansieht (Abbildung 8.5). Sehr kleine Werte unterhalb $1 \cdot 10^{-4}\text{m}^{-1}$ werden fast nur im Winterhalbjahr beobachtet, sehr hohe Werte findet man dagegen eher im Sommer. Auffällig ist die Häufung hoher Werte im September (36. – 39. Woche), die auch im gleitenden Mittel sehr prägnant ist. Jedoch kann dies bei nur zwei betrachteten Jahren auch zufällig sein, da insbesondere der September 1999 ungewöhnlich warm war. Im Juni und Juli findet man dagegen kaum überdurchschnittliche Werte, allerdings ist hier nur das Jahr 1999 ausreichend repräsentiert. Der Jahresgang der optischen Dicke (Abbildung 8.6) zeigt einen grundsätzlich gleichen Verlauf wie die mittlere Aerosolextinktion, wobei der Abfall zu niedrigeren Werten im Winter etwas stärker ist. In dieser Abbildung ist zusätzlich die über 6 Wochen gleitend gemittelte totale optische Dicke zu sehen, wie sie aus den Lidardaten bestimmt wurde. Sie unterscheidet sich im Sommer etwas stärker als im Winter von der optischen Dicke der Grenzschicht, da hier in einigen Fällen mehrere übereinander liegende Aerosolschichten beobachtet wurden. Die aufliegende Schicht trägt in diesen Fällen zwischen 30 und 60% zur totalen optischen Dicke bei. Solche Lagen wurden in insgesamt 8 Fällen beobachtet, die alle zwischen dem

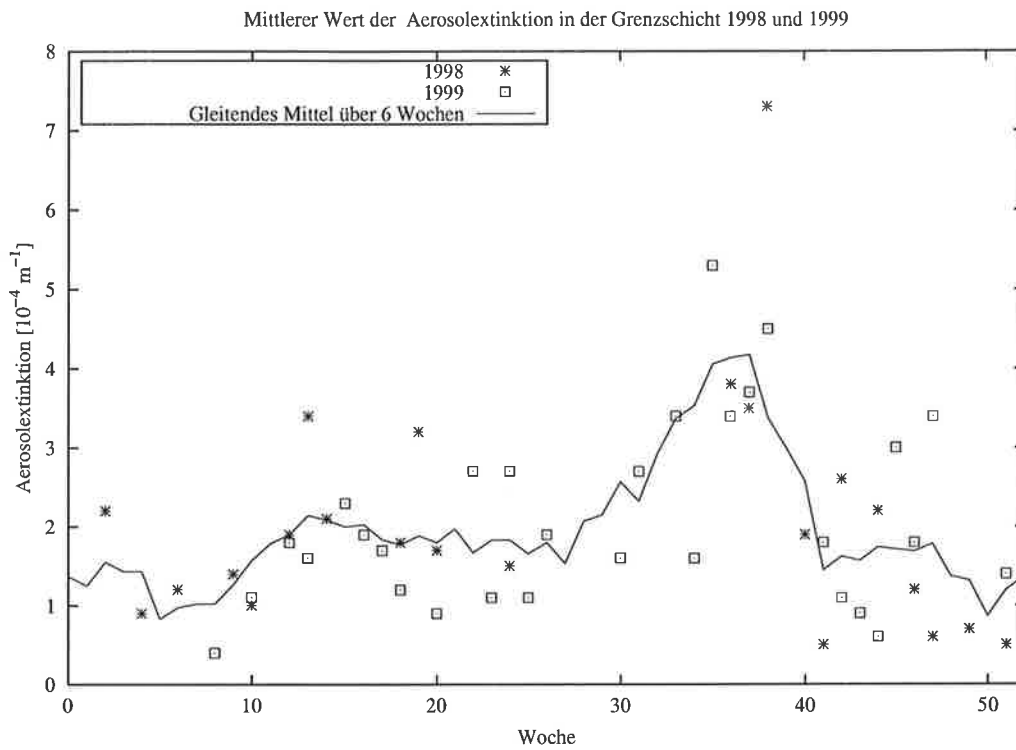


Abbildung 8.5: Jahresgang der mittleren Aerosolextinktion in der Grenzschicht in Hamburg für die Jahre 1998 und 1999.

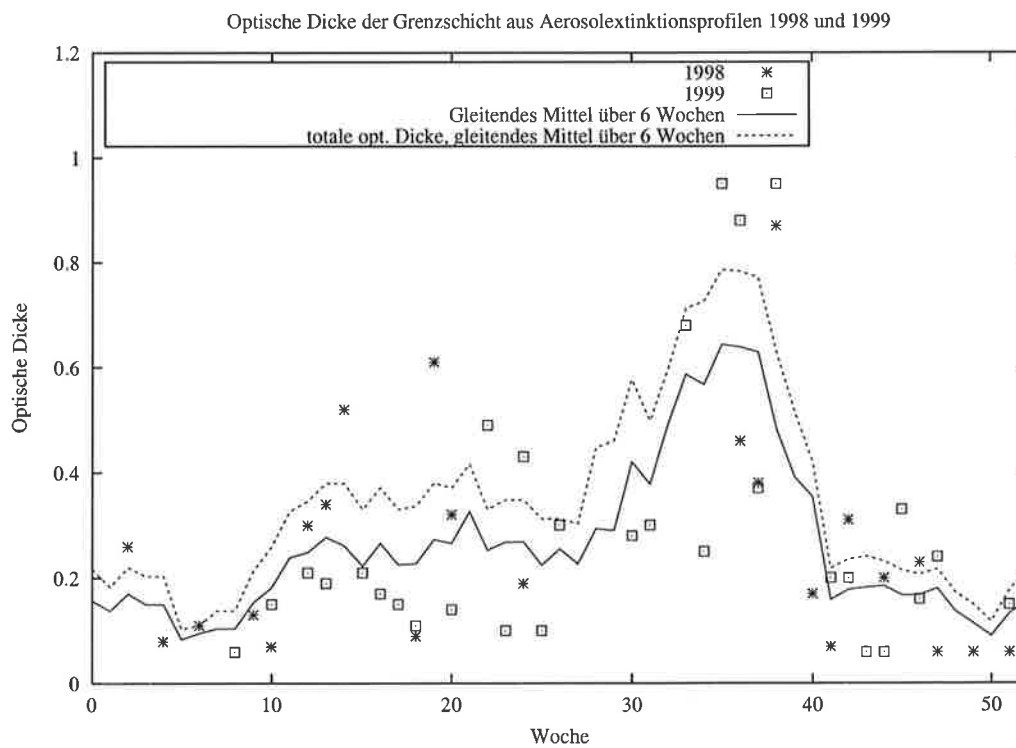


Abbildung 8.6: Jahresgang der optischen Dicke der Grenzschicht sowie der totalen optischen Dicke in Hamburg für die Jahre 1998 und 1999.

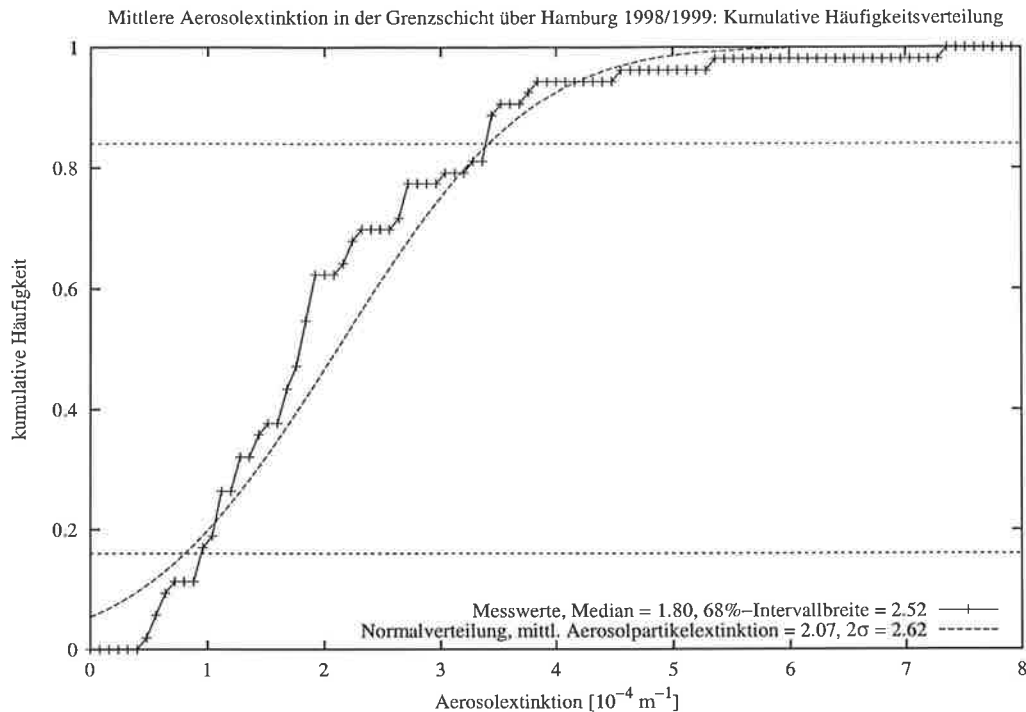


Abbildung 8.7: Kumulative Häufigkeitsverteilung der mittleren Aerosolextinktion in der Grenzschicht in Hamburg für die Jahre 1998 und 1999. Zum Vergleich die Normalverteilung für den arithmetischen Mittelwert mit der Standardabweichung des Einzelwertes.

30.3 und dem 14.9. auftraten.

Für allgemeinere Aussagen, insbesondere wenn feinere Unterscheidungsmerkmale als die grobe Jahreszeiteinteilung zur Klassifizierung heran gezogen werden sollen, muß die Zeitreihe noch verlängert werden. Dies ist innerhalb des europäischen Projektes „A European Aerosol Research Lidar Network to establish an Aerosol Climatology – EARLINET“, das bis Ende 2002 laufen wird, vorgesehen. Hier werden dann insgesamt 18 Stationen in Europa Lidar-Messungen der Aerosolrückstreuung und zum Teil auch der -extinktion durchführen.

Aus dem Jahresgang der optischen Dicke und der mittleren Aerosolextinktion erkennt man bereits, daß die Werte keineswegs symmetrisch verteilt sind. Sehr vielen kleinen und mittleren Werten stehen einige sehr hohe gegenüber, die weit mehr als 100% vom Mittelwert nach oben abweichen. Die Verteilungsfunktion hat daher ihr Maximum etwas niedriger als der arithmetische Mittelwert, und dann eine langen „Schwanz“ mit gegenüber einer Normalverteilung erhöhten Wahrscheinlichkeiten für hohe und sehr hohe Werte. Diese Abweichung von der Normalverteilung läßt sich am besten durch eine kumulative Häufigkeitsverteilung (Abbildung 8.7) darstellen. Hier ergibt sich der Median, als der Wert mit 50% kleineren und 50% größeren Werten, zu $1.80 \cdot 10^{-4} \text{ m}^{-1}$ mit einer Breite des 68%-Konfidenzintervalls von $2.52 \cdot 10^{-4} \text{ m}^{-1}$ für die Aerosolextinktion in der Grenzschicht. Für die optische Dicke (Abbildung 8.8) erhält man einen Median von 0.20, der damit deutlich kleiner als der arithmetische Mittelwert von 0.28 ist bei einer Breite des 68%-Konfidenzintervalls von 0.38 gegenüber 0.46, wenn man die Streuung der Einzelwerte um das arithmetische Mittel zugrunde legt.

In Tabelle 8.3 sind die Kenngrößen der Verteilungen für die optische Dicke und die

mittlere Aerosolextinktion in der Grenzschicht angegeben. Bei den Unterteilungen nach Jahren und Klassen erkennt man keine drastischen Abweichungen dieser Verteilungen vom Mittelwert der Jahre 1998 und 1999. Die Unterscheidung nach Jahreszeiten zeigt neben den sehr unterschiedlichen Mittelwerten eine kleinere Schiefe der getrennten Verteilungen. Insbesondere im Winter hat man näherungsweise eine Normalverteilung der Werte. Median und Mittelwert liegen nah beieinander und der 2σ -Wert stimmt mit dem 68%-Konfidenzintervall gut überein. Die Schiefe der Verteilung beträgt hier nur 0.38. Bei den Sommermessungen ergibt sich ebenfalls eine bessere Übereinstimmung mit einer Normalverteilung, die Schiefe beträgt 0.82 gegenüber 1.57, wenn man alle Werte betrachtet.

Mit dem Lidar können Messungen der Aerosolextinktion nur bis zur Wolkenunterkante durchgeführt werden. Daher könnte man es mit gewissen Einschränkungen als „Schönwetterinstrument“ bezeichnen. Schließlich konnten von 88 Terminen, an denen das Lidar in Hamburg meßbereit war, nur 54 für Messungen genutzt werden. Von diesen 54 Meßtagen konnte wiederum an 40 Tagen ein wolkenfreies Profil bis über 3000 m Höhe bestimmt werden. In einem Fall konnte dabei aber die Grenzschicht nicht erfaßt werden, da sie nur bis in 350 m Höhe reichte und der unterste Meßpunkt für ein Aerosolextinktionsprofil in ca. 500 m liegt. An 14 Tagen wurde die oberste Meßhöhe durch Wolken begrenzt, an 10 von diesen Tagen lag sie dabei unterhalb 2000 m. Möglicherweise macht man einen Fehler für den Ganzjahresmittelwert, wenn man den Mittelwert der Aerosolextinktion nur unter wolkenfreien Bedingungen bestimmt. Allerdings läßt sich ein solcher Wert bei Regen nur schwer definieren und kaum messen. Aus den Lidarmessungen kann man ableiten, ob man einen signifikanten Fehler macht,

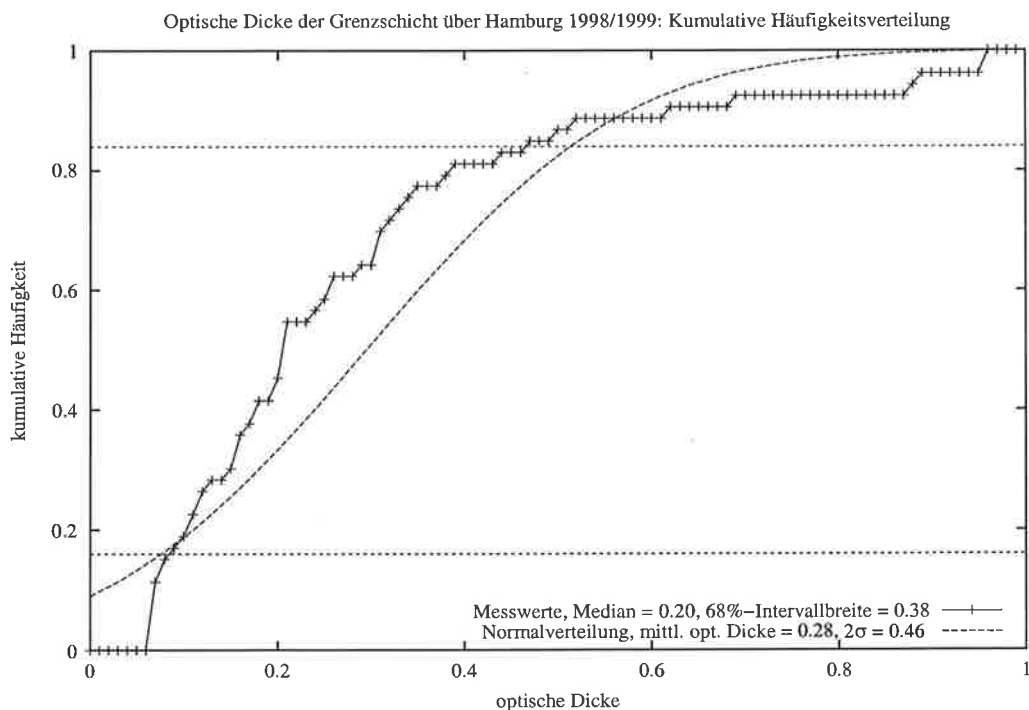


Abbildung 8.8: Kumulative Häufigkeitsverteilung der optischen Dicke der Grenzschicht in Hamburg für die Jahre 1998 und 1999. Zum Vergleich die Normalverteilung für den arithmetischen Mittelwert mit der Standardabweichung des Einzelwertes.

Opt. Dicke							
Kategorie	μ	σ	γ	σ_μ	Median	68%-Konf.	n
1998/1999	0.28	0.23	1.57	0.03	0.20	0.38	53
1998	0.26	0.21	1.30	0.04	0.195	0.39	23
1999	0.30	0.25	1.58	0.05	0.205	0.39	30
Sommer	0.40	0.28	0.82	0.05	0.305	0.54	26
Winter	0.17	0.09	0.38	0.02	0.155	0.195	27
Klasse 0	0.29	0.23	1.46	0.04	0.205	0.36	39
Klasse 1,2	0.24	0.26	1.86	0.07	0.175	0.19	14
Aerosolextinktion							
Kategorie	μ [10^{-4}m^{-1}]	σ [10^{-4}m^{-1}]	γ	σ_μ [10^{-4}m^{-1}]	Median [10^{-4}m^{-1}]	68%-Konf. [10^{-4}m^{-1}]	n
1998/1999	2.07	1.31	1.54	0.18	1.80	2.52	53
1998	2.05	1.50	1.87	0.31	1.72	2.72	23
1999	2.09	1.18	0.91	0.21	1.80	2.32	30
Sommer	2.64	1.47	1.36	0.29	2.12	2.20	26
Winter	1.52	0.86	0.73	0.17	1.24	1.60	27
Klasse 0	2.19	1.33	1.51	0.21	1.80	2.32	39
Klasse 1,2	1.74	1.27	1.69	0.34	1.44	1.60	14

Tabelle 8.3: Kenngrößen der Verteilungen der optischen Dicke sowie der Aerosolextinktion in der Grenzschicht, unterschieden nach Jahren, Jahreszeiten und Meßklassen. Es bedeuten μ : Mittelwert, σ : Standardabweichung des Einzelwertes, γ : Schiefe, σ_μ : Standardabweichung des Mittelwertes. Angegeben sind auch die aus der kumulativen Häufigkeitsverteilung ermittelten Werte des Medians und der Breite des 68%-Konfidenzintervalls sowie die Anzahl der zugrunde liegenden Messungen n .

wenn nur Messungen unter wolkenfreien Bedingungen betrachtet werden (als Klasse 0 bezeichnet) oder wenn bewölkte Fälle (bis 2000 m: Klasse 2, oberhalb 2000 m: Klasse 1) hinzugenommen werden. Die Wolkenunterkante darf dabei nicht unter 800 - 900 m liegen. Aus Tabelle 8.3 läßt sich auch entnehmen, daß sich die Mittelwerte der nach Meßklassen sortierten Messungen der Aerosolextinktion und der optische Dicke in der Grenzschicht nicht stark unterscheiden. Ebenso verhält es sich bei den Werten für die Grenzschichthöhe. Zwar sind die Werte für bewölkte Fälle etwas niedriger, jedoch unterscheiden sie sich nicht innerhalb der Standardabweichungen der Mittelwerte. Die Unterschiede sind daher im Bereich der vorhandenen Streuung als nicht signifikant anzusehen. Hieraus kann man schließen, daß man auch keine signifikanten Fehler im Mittelwert der Aerosolextinktion machen würde, wenn man nur Messungen, die zumindest Wolkenlücken enthalten, betrachtet. Allerdings läßt sich der Datensatz beträchtlich vergrößern, wenn Messungen bei vollständiger Bedeckung miteinbezogen werden.

8.1.3 Herkunftsanalyse

Wie der Jahresgang und auch die ermittelten Varianzen zeigen, gibt es erhebliche Unterschiede in den gemessenen Werten der Aerosolextinktion von Meßtag zu Meßtag. Um der Frage nachzugehen, woher diese Unterschiede rühren, wurde einer Analyse der Herkunft der Luftmasse am Meßort durchgeführt. Grundlage hierfür waren vom Deutschen Wetterdienst (DWD) berechnete Rückwärtstrajektorien für den Standort Hamburg. Diese Trajektorien geben den Schwerpunkt eines Luftpaketes bis zu 96 Stunden, bevor es den Meßort erreicht, für verschiedene Druckniveaus am Ankunftsort an. Als Eingangsdaten stehen die Wetteranalysen des DWD zur Verfügung, die Berechnungen erfolgen im 6-Stunden-Abstand auf Basis des Europamodells (Kottmeier und Fay, 1998). Ihre Genauigkeit ist unter Verwendung von dreidimensionalen numerischen Wettervorhersagemodellen sehr hoch. Je nach Entfernung der Trajektorie beträgt sie ca. 10% des von der Luftmasse zurückgelegten Weges (Stohl, 1998), bei kleinen Windgeschwindigkeiten können die Ungenauigkeiten aber auch höher sein. Eng begrenzte Quellen für Aerosolpartikel lassen sich somit nicht indentifizieren, Quellregionen hingegen schon.

Für eine erste Analyse wurde zunächst nur das 975-hPa-Niveau, das sich in jedem Fall innerhalb der Grenzschicht befindet, und der Verlauf der Trajektorien 36 Stunden vor der Ankunft in Hamburg um 12 UT des Meßtages betrachtet. Abbildung 8.9 zeigt die Trajektorien bereits differenziert nach Sommer und Winter für die Jahre 1998 und 1999. Zunächst erkennt man, wie bereits im Jahresgang, daß sehr niedrige Werte der Aerosolextinktion vornehmlich im Winter auftreten, sehr hohe dagegen vornehmlich im Sommer. Im Winter sind höhere Werte der Aerosolextinktion oft mit westlicher oder südlicher Strömung verbunden, im Sommer mit südwestlicher oder südöstlicher Strömung sowie mit sehr kurzen Trajektorien.

Zwar sind in den Trajektorien nicht alle Informationen über die in Hamburg untersuchte Luftmasse enthalten, z.B. gibt es keine Informationen über Niederschläge und es gibt Unsicherheiten im genauen Verlauf. Zudem sind Vertikalbewegungen zwar bekannt aber hier nicht dargestellt, so daß ähnliche Trajektorien dennoch unterschiedliche Luftmassen repräsentieren können. Trotzdem sind zwei Kriterien, mit denen die Aerosolextinktion in der Grenzschicht am Meßort zusammenhängt, offensichtlich: Herkunft der Luftmasse und Verweildauer über Land. Oder zusammengefaßt: Verweildauer der Luftmasse über einem Gebiet, in dem eine Anreicherung mit Aerosolpartikeln erfolgen kann. Dies dürften zumeist die Landoberflächen sein, die Quellen von Aerosolen sowohl anthropogenen als auch biogenen Ursprungs und von mineralischem Krustenmaterial sind. Maritime Aerosole führen offenbar nicht zu sehr hohen Werten der Aerosolextinktion.

Aufgrund dieser offensichtlichen Merkmale wurden die Trajektorien nach ihrer Herkunft aus 7 verschiedenen Sektoren wie folgt eingeteilt:

- Sektor NW: Nordsee, Atlantik, nördliches Großbritannien
- Sektor W: Großbritannien, Irland, Nordfrankreich
- Sektor SW: Frankreich, Benelux, südl. Deutschland, Schweiz
- Sektor SE: Österreich, Ungarn, Tschechien, Slowakei, südöstliches Deutschland, südl. Polen
- Sektor E: nordöstliches Deutschland, nördliches Polen, Baltikum

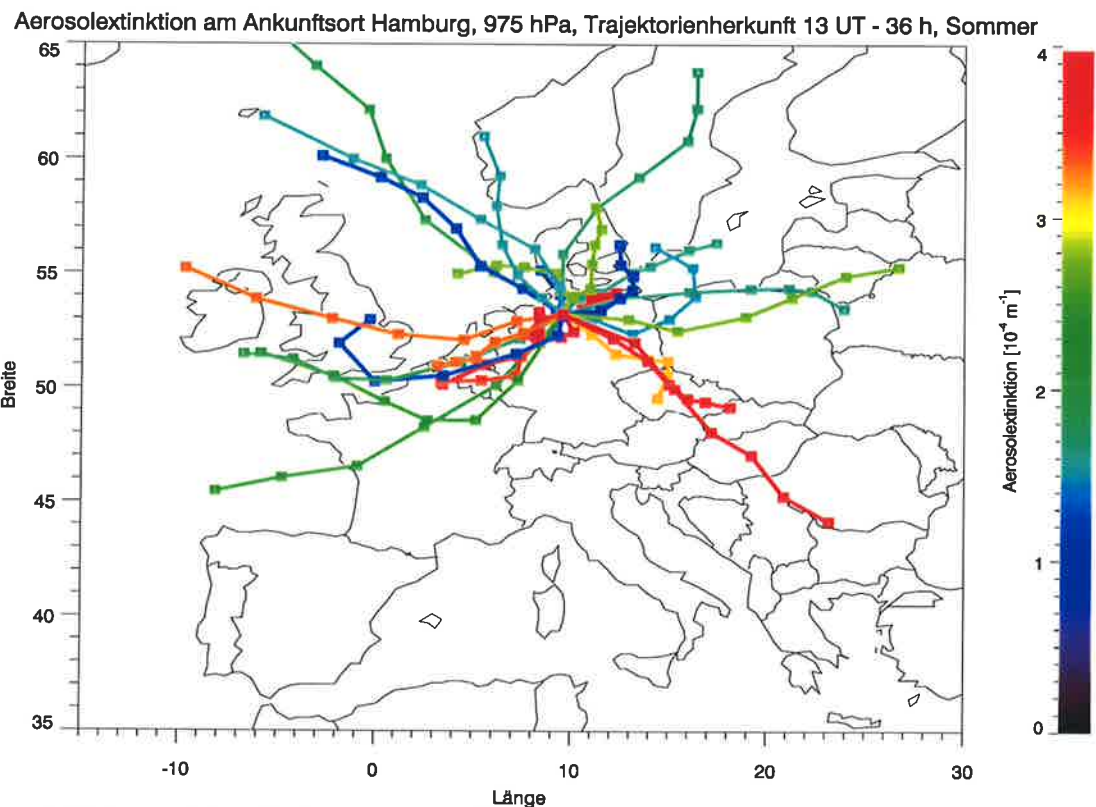
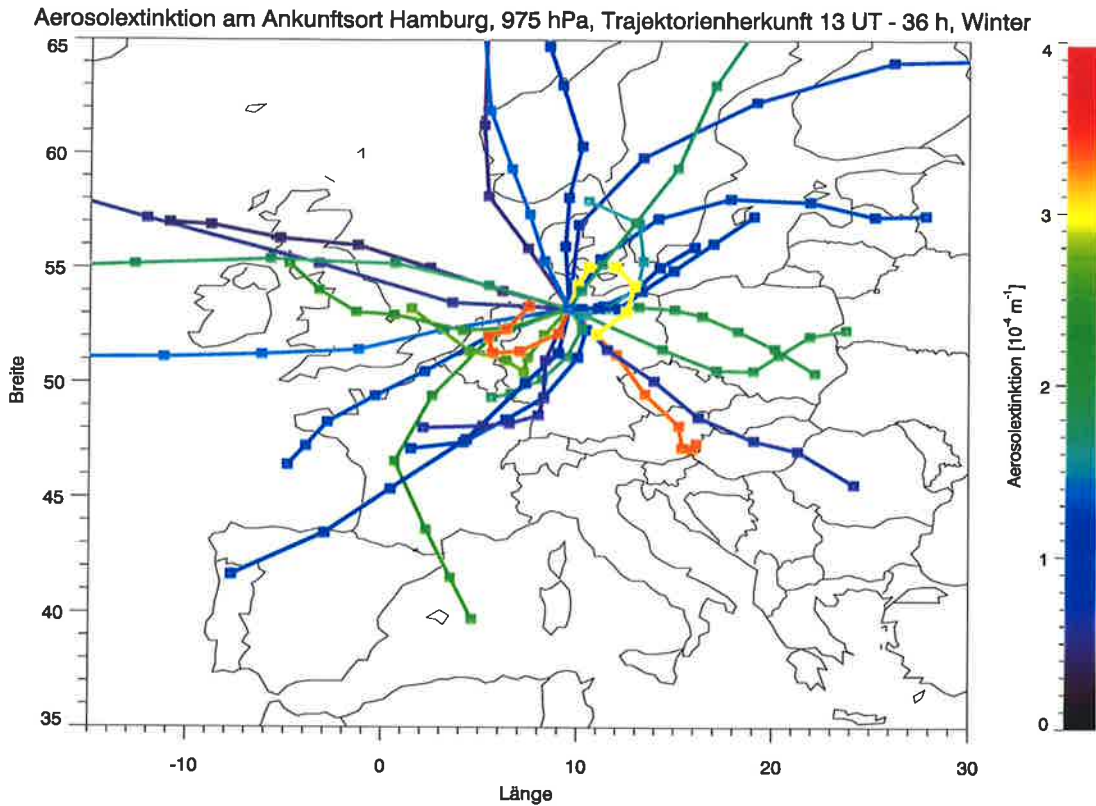


Abbildung 8.9: Herkunft aerosolhaltiger Luftmassen in Hamburg, Monate Oktober bis März (oben, Winter) und April bis September (unten, Sommer) der Jahre 1998 und 1999. Der Weg ist für die letzten 36 Stunden bei Ankunft im 975 hPa Niveau eingezeichnet. Die Farbkodierung entspricht dem Wert der mittleren in Hamburg gemessenen Aerosol-extinktion in der Grenzschicht.

- Sektor NE: Schweden, Ostseeraum
- Sektor „lokal“: nördliches Deutschland, Dänemark, sehr kurze Trajektorie

Für diese Sektoren wurden dann Mittelwerte der Aerosolextinktion und die Standardabweichungen der Einzelwerte vom Mittelwert berechnet. Eine Unterscheidung nach Jahreszeiten wurde hier nicht mehr vorgenommen, da ohnehin nur zwischen 6 und 12 Messungen pro Sektor berücksichtigt werden konnten und eine weitere Unterteilung einen für einige Sektoren zu kleinen Datensatz ergeben hätte. In den meisten Sektoren sind Sommer- und Wintermessungen etwa gleich vorhanden. Eine Ausnahme bildet der Sektor „lokal“ mit 5 Sommermessungen und nur 1 Wintermessung. Bei einem größeren Datensatz sollte aber eine Unterteilung nach Jahreszeiten *und* Herkunft vorgenommen werden, wodurch sich die Variabilität der einzelnen Gruppen vermutlich noch weiter vermindern würde. Zudem könnten dann auch Kriterien wie Vertikalbewegung und Geschwindigkeit miteinbezogen werden.

Einige Trajektorien waren nur schwer zuzuordnen, insbesondere wenn sie auf der Grenze zwischen zwei Sektoren liegen oder wenn sie ihre Richtung innerhalb kurzer Zeit stark ändern. Dann wurde auch der Ort der Luftmasse mehr als 36 Stunden vor der Ankunft am Meßort zur Luftmassenidentifizierung herangezogen.

Die Mittelwerte für die einzelnen Sektoren sind mit ihren Standardabweichungen in Abbildung 8.10 zu sehen. Man erkennt deutlich die Abhängigkeit der gemessenen Aerosolextinktion von der Herkunft der Luftmasse. Besonders hohe Werte wurden bei sehr kurzen

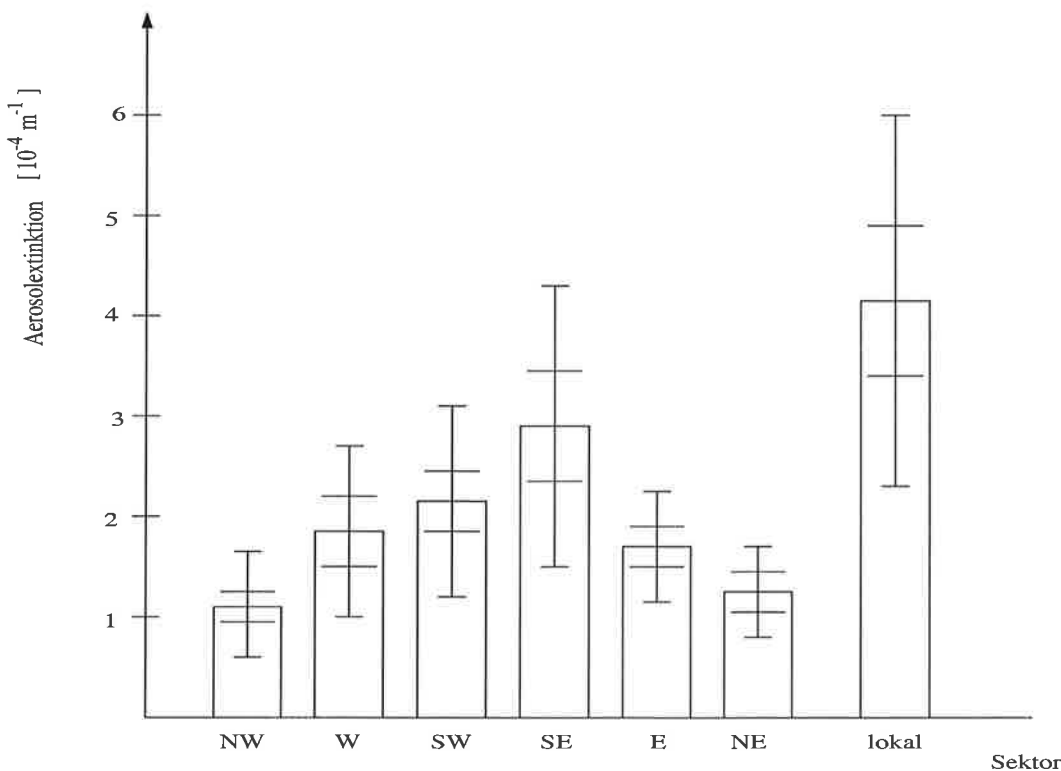


Abbildung 8.10: Mittlere Aerosolextinktion in der planetaren Grenzschicht in Hamburg nach Herkunft der Luftmasse für die Sektoren NW, W, SW, SE, E, NE und „lokal“. Die inneren Fehlerbalken bezeichnen die Standardabweichung des Mittelwertes, die äußeren die des Einzelwertes.

Trajektorien $((4.1 \pm 1.8) \cdot 10^{-4} \text{ m}^{-1})$ und bei Südostanströmung $((2.9 \pm 1.4) \cdot 10^{-4} \text{ m}^{-1})$ gemessen. Besonders niedrige Werte treten bei Anströmung aus NW $((1.1 \pm 0.5) \cdot 10^{-4} \text{ m}^{-1})$ und NO $((1.3 \pm 0.5) \cdot 10^{-4} \text{ m}^{-1})$ auf. Die Variabilität der Mittelwerte für die einzelnen Sektoren liegt mit Werten zwischen 31% (Sektor E) und 49% (Sektor SE) deutlich unter der Variabilität des Gesamtmittelwertes (63%), diese Einteilung sortiert also ähnliche Werte zueinander und erklärt einen Teil der Gesamtvariabilität.

Die Resultate sind nicht überraschend, allerdings können hiermit erstmals mittlere Werte der Aerosolextinktion in Abhängigkeit von der Herkunft der Luftmasse angegeben werden. Außerdem zeigt diese Analyse deutlich, daß es wichtig für die Interpretation einer Messung ist, die Herkunft der Luftmasse zu kennen. Die gemessenen Aerosolpartikel sind somit auch in der Grenzschicht nicht nur lokaler Herkunft. Vielmehr spielt ihr Transport über mehrere hundert Kilometer Entfernung eine entscheidende Rolle für die Aerosolextinktion am Meßstandort Hamburg.

8.1.4 Lidar-Verhältnis

Wie bereits in Kapitel 4 erläutert, ermöglicht die unabhängige Messung von Aerosolextinktion und -rückstreuung die Berechnung des Lidar-Verhältnisses, das bei den meisten Aerosol-Lidar-Messungen mit ausschließlich elastischer Rückstreuung stets vorgegeben werden muß. Da viele Lidar-Systeme nicht über Möglichkeiten zur Bestimmung des Lidar-Verhältnisses verfügen und eine quantitative Bestimmung der Aerosolstreuung entscheidend von dieser Größe abhängt, ist es von großem Nutzen, Richtwerte des Lidar-Verhältnisses bei bestimmten Wellenlängen unter verschiedenen Bedingungen zu kennen. Dies gilt insbesondere für geplante Lidar-Messungen vom Satelliten (Marini et al., 1996), die nur über elastische Kanäle verfügen.

Bei den Abendmessungen mit dem MPI-Lidar bei 351 nm wurden Aerosolextinktion und -rückstreuung unabhängig voneinander bestimmt. Das Lidar-Verhältnis kann dennoch nur unter bestimmten Bedingungen angegeben werden. Zum einen muß es möglichst wolkenfrei sein, da nur dann eine sichere Bestimmung der Systemkonstanten in einem nahezu aerosolfreien Höhenbereich, wie sie zur Bestimmung der Aerosolrückstreuung immer nötig ist, durchgeführt werden kann. Zum anderen dürfen die Werte von Aerosolrückstreuung und -extinktion nicht zu klein sein, da ihr Quotient sonst aufgrund der hohen relativen Fehler der einzelnen Meßgrößen sehr fehlerbehaftet ist. Eine zuverlässige Bestimmung ist daher meist auf die Grenzschicht beschränkt. In einzelnen Fällen läßt sich das Lidar-Verhältnis aber auch in Aerosolschichten oberhalb der Grenzschicht bestimmen. Die folgenden Betrachtungen beziehen sich nur auf Daten aus der Grenzschicht.

Für alle im vorigen Abschnitt verwendeten Fälle der Klasse 0 wurden Lidar-Verhältnisse berechnet und eine Häufigkeitsverteilung erstellt. Dabei stellte sich heraus, daß die meisten Werte etwa zwischen 30 sr und 90 sr liegen (69%), nur in wenigen Fällen (4%) wurden Lidar-Verhältnisse größer als 150 sr gefunden, so daß diese Daten als „Ausreißer“ gesehen werden können.

Abbildung 8.11 zeigt die Häufigkeitsverteilung der in der Grenzschicht gemessenen Lidar-Verhältnisse in Intervallen von 10 sr. Man erkennt wie schon im vorigen Abschnitt bei der optischen Dicke und der Aerosolextinktion von der Normalverteilung abweichende relativ hohe Wahrscheinlichkeiten für große Werte, so daß der arithmetische Mittelwert von 71 ± 40 sr nicht den wahrscheinlichsten Wert wiedergibt. Mehr Aufschluß gibt erneut die kumulative Häufigkeitsverteilung in Abbildung 8.12. Hier liegt der Median bei 64 sr

und die Verteilung ist innerhalb des 68%-Konfidenzintervalls mit 66 sr etwas schmäler als die der Standardabweichung des arithmetischen Mittelwertes (80 sr). Die Schiefe der Verteilung liegt bei $\gamma = 2.07$.

Der mittlere statistische Fehler des ermittelten Lidar-Verhältnisse beträgt 8.5 sr, entsprechend 12% des Mittelwertes. Weitere systematische Fehler kommen im Nahbereich durch die Entfernungsbestimmung sowie für das gesamte Profil durch Wahl des Eichwertes für das Rückstreuprofil hinzu.

Statistisch hängt das Lidar-Verhältnis von der Jahreszeit ab. Fast alle Lidar-Verhältnisse kleiner als 25 sr wurden im Winterhalbjahr gemessen, hohe Werte größer als 100 sr kommen hingegen hauptsächlich im Sommer vor. Mit 79 sr (Median 68 sr) ist der Mittelwert im Sommer höher als im Winter mit 52 sr (Median 44 sr), allerdings weisen beide Werte weiterhin hohe Variabilität auf. Im Winter ist die Schiefe der Verteilung mit $\gamma = 0.96$ deutlich kleiner als im Sommer mit $\gamma = 2.45$. Dies ist Ausdruck dafür, daß sehr hohe Werte, die die Schiefe der Verteilung bewirken, vornehmlich im Sommer auftreten.

Da für diese Statistik alle unabhängigen in der Grenzschicht gemessenen Lidar-Verhältnisse eingehen, ist der Sommer statistisch deutlich überrepräsentiert. Auf ihn entfallen 70% aller Werte. Aufgrund der im Sommer im Mittel mächtigeren Grenzschicht gehen pro Meßtermin bei gleicher vertikaler Mittelungslänge mehr Werte ein als im Winter. Zudem gehen hier nur Fälle der Meßklasse 0 ein, da sonst aufgrund der notwendigen Eichung keine gute Bestimmung der Aerosolrückstreuung möglich ist. Diese treten im Sommer mit 22 von 27 Meßtagen (81%) häufiger als im Winter mit nur 17 von 27 Meß-

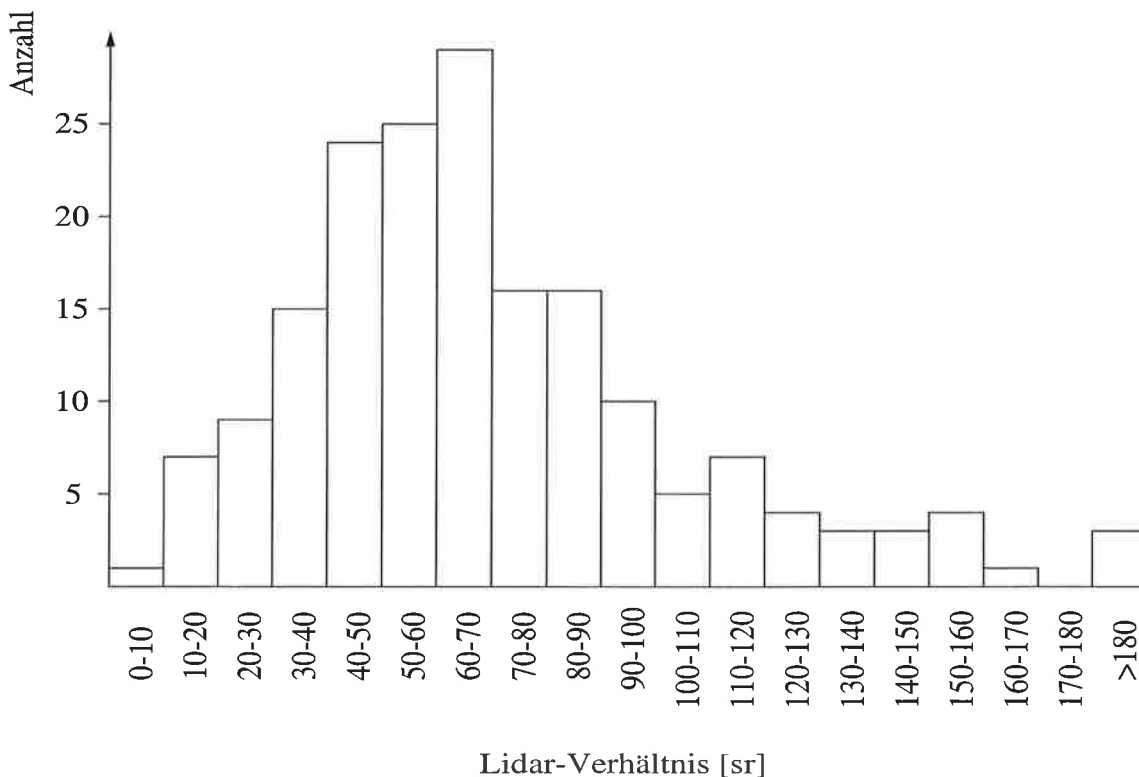


Abbildung 8.11: Häufigkeitsverteilung des Lidar-Verhältnisses in der planetaren Grenzschicht in Hamburg, gemessen bei 351 nm. Insgesamt wurden 182 unabhängige Meßpunkte berücksichtigt.

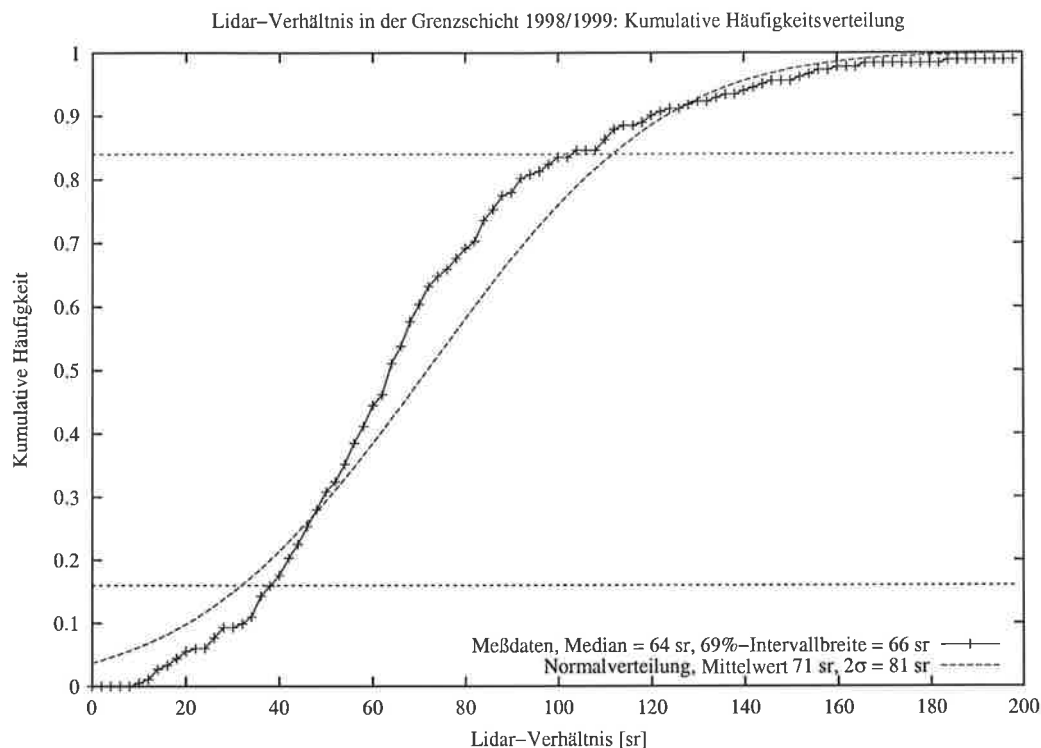


Abbildung 8.12: Kumulative Häufigkeitsverteilung des Lidar-Verhältnisses in Schritten von 2 sr sowie zum Vergleich eine Normalverteilung um den arithmetischen Mittelwert mit der Standardabweichung des Einzelwertes. Alle unabhängigen Meßpunkte aus Messungen der Klasse 0.

tagen (62%) auf.

Eine Untersuchung zur Abhängigkeit des Lidar-Verhältnisses von der Herkunft der Luftmasse wurde ebenfalls durchgeführt, siehe dazu Abbildung 8.14. Es lassen sich hier nur wenige Dinge ablesen. Der Wert für den Sektor NW ist deutlich niedriger als für alle anderen. Aus diesem Sektor kommen in Hamburg die Aerosole mit der geringsten Extinktion und dem kleinsten Lidar-Verhältnis. Dies ist mit einem hohen Anteil maritimen Aerosols, das nach Ackermann (1998) und den in Kapitel 3 durchgeführten Rechnungen kleine Lidar-Verhältnisse von 25 - 30 sr aufweist, zu erklären.

Es fällt außerdem die ungewöhnlich kleine Standardabweichung für den Sektor „lokal“ auf. Dies kann mehrere Ursachen haben. Zum einen treten bei diesen Fällen sehr hohe Werte der Aerosolextinktion auf, wodurch der Fehler bei der Bestimmung des Lidar-Verhältnisses und damit auch ein Teil seiner Variabilität verringert wird. Die Lidar-Verhältnisse dieses Datensatzes haben mit im Mittel 8.6% den geringsten statistischen Fehler aller Sektoren. Zum anderen ist in diesen Fällen möglicherweise immer ein ähnliches Aerosol gemessen worden, das stark aus lokalen Quellen stammt. In allen anderen Sektoren kommt ein größeres Gebiet als Quellregion für die gemessenen Aerosole in Betracht. Außerdem sind hier fast nur Messungen aus dem Sommer enthalten, so daß die zwar geringe aber offensichtlich doch vorhandene jahreszeitliche Variabilität nicht stark zum Tragen kommt. Der Wert von 59 sr paßt wiederum gut zu den mit OPAC (siehe Kapitel 3.3.3) durchgeführten Rechnungen für urbanes und kontinentales Aerosol, die zu Lidar-Verhältnissen von 60 - 70 sr führen.

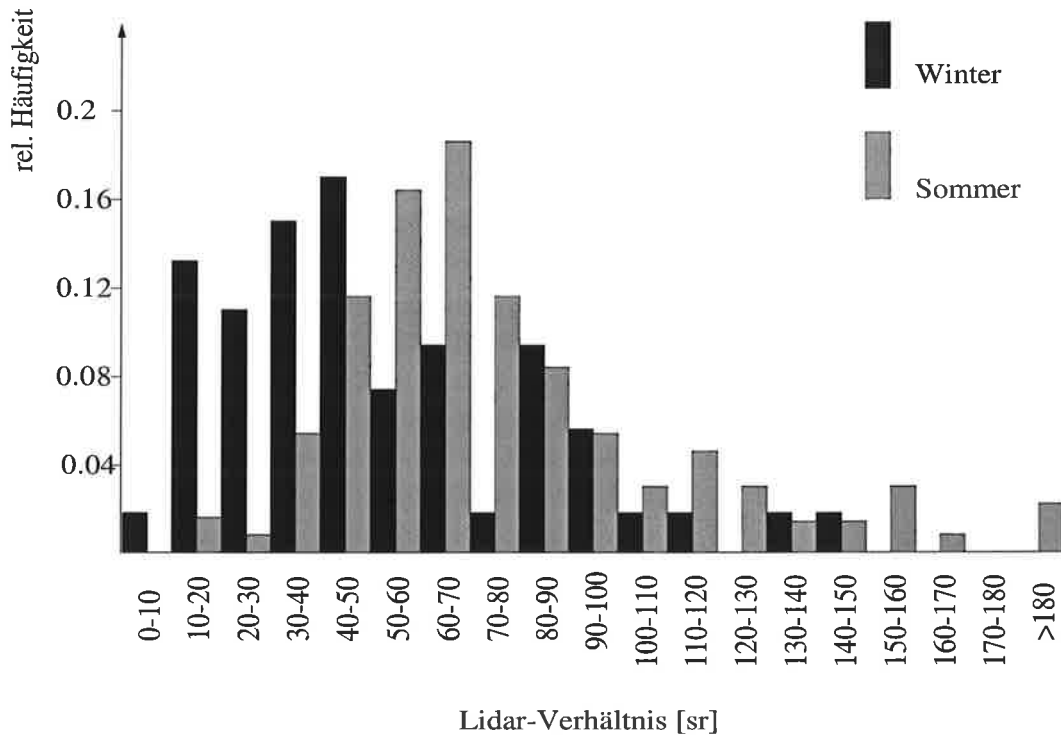


Abbildung 8.13: Relative Häufigkeitsverteilung des Lidar-Verhältnisses in Schritten von 10 sr für Sommer (insgesamt 129 Werte) und Winter (insgesamt 53 Werte).

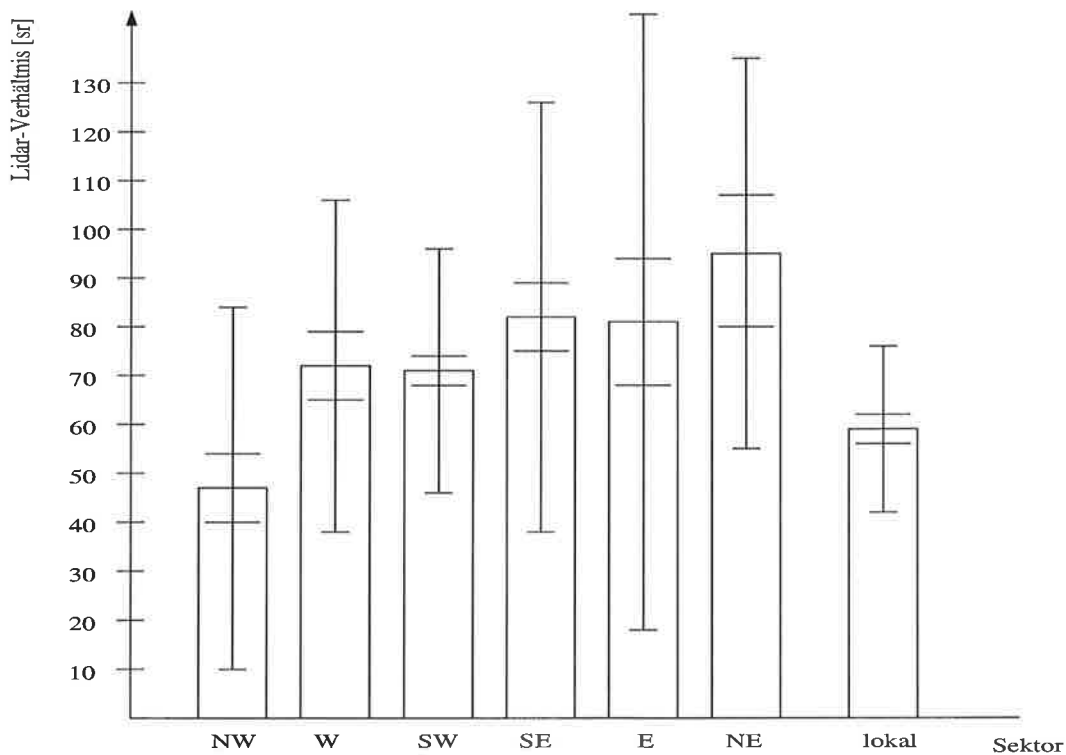


Abbildung 8.14: Lidar-Verhältnis in Abhängigkeit von der Herkunft der Luftmasse. Die inneren Fehlerbalken bezeichnen die Standardabweichung des Mittelwertes, die äußeren die des Einzelwertes.

Lidar-Verhältnis						
Kategorie	μ	σ	γ	μ/σ	σ_μ	n
1998/1999	71	40	2.07	0.56	3.0	182
Sommer	79	41	2.45	0.52	3.6	129
Winter	52	32	0.96	0.62	4.4	53
„lokal“	59	17	0.80	0.29	3.3	28
NW	47	38	1.34	0.81	7.2	27
W	72	35	0.54	0.49	7.2	23
SW	72	25	0.43	0.35	4.1	36
SE	82	44	1.06	0.54	7.5	35
E	81	64	2.84	0.79	13.5	22
NE	95	40	-0.03	0.42	12.1	11

Tabelle 8.4: Kenngrößen der Verteilungen des Lidar-Verhältnisses, unterschieden nach Jahreszeiten und Herkunftssektoren der Luftmasse. Es bedeuten μ : Mittelwert, σ : Standardabweichung des Einzelwertes, γ : Schiefe, μ/σ : relative Abweichung des Einzelwertes, σ_μ : Standardabweichung des Mittelwertes, n : Anzahl der zugrunde liegenden Messungen.

Alle anderen Sektoren zeigen keine Auffälligkeiten im ersten und zweiten Moment der Verteilung, dem Mittelwert und der Varianz, allenfalls ist im Sektor SW die Varianz erniedrigt. Allerdings weisen alle Sektoren bis auf E eine deutlich niedrigere Schiefe (3. Moment) der Verteilung auf (siehe Tabelle 8.4). Das ist darauf zurückzuführen, daß die meisten sehr geringen Lidar-Verhältnisse kleiner als 30 sr mit dem Sektor NW verbunden sind, die sehr hohen Werte größer als 150 sr mit den Sektoren SE und E. Die anderen Sektoren weisen dann deutlich geringere Schiefen als die Gesamtverteilung auf.

Wird diese Gesamtheit von Messungen in „Ähnliche“ unterteilt, so sollte die Breite der Verteilung nach der Unterteilung kleiner sein als zuvor. Die Standardabweichung hat aber nur in den Sektoren „lokal“ und SW deutlich gegenüber der gesamten Verteilung abgenommen (Tabelle 8.4). Auch bei der Unterscheidung nach Jahreszeiten sieht man zwar signifikante Unterschiede im Mittelwert des Lidar-Verhältnisses, allerdings hat die relative Breite der Verteilung nicht abgenommen, wie es bei der optischen Dicke und der mittleren Aerosolextinktion der Fall war.

Aus dem bisherigen Datensatz lassen sich daher nur wenig Aussagen darüber machen, von welchen Faktoren ein bestimmtes Lidar-Verhältnis abhängt. Allerdings passen die beobachteten Werte durchaus zu Rechnungen für typische Aerosole in Mitteleuropa.

8.2 Tagesmessung von Extinktionsprofilen im Solar-Blind

Am Tage sind mit den meisten Raman-Lidar-Systemen keine Messungen der Aerosolextinktion möglich, da der solare Hintergrund das sehr schwache Raman-Signal völlig verdeckt. Ein Ausweg ist eine sehr schmalbandige Detektion des elastisch gestreuten Lichts, die die Aerosolstreuung von der Molekülstreuung trennt, das sogenannte „High Spectral Resolution Lidar (HSRL)“ (Shipley et al., 1983; Sroga et al., 1983). Dies ist

aber besonders auf der Empfangsseite technisch sehr aufwendig. Zudem bedarf es einer schmalbandigen Emission, wie sie mit dem Excimer Laser des MPI-Lidars nicht möglich ist.

Eine andere Möglichkeit ist die Messung der atmosphärischen Raman-Streuung im Solar-Blind, also unterhalb von 300 nm, wo es keinen störenden Hintergrund gibt. Dies bietet sich insbesondere in Kombination mit einem Ozon-DIAL an, da diese Messungen den Nachteil haben, stets mit einem bekannten Ozonprofil hoher Genauigkeit korrigiert werden zu müssen. Dadurch entstehen zusätzliche Fehler, wie sie in Kapitel 5 bereits betrachtet wurden. Die Messung der atmosphärischen Raman-Streuung im Solar-Blind ermöglicht aber zudem eine verbesserte Aerosolkorrektur der Ozon-DIAL-Profile. Aus diesem Grunde wurde sie beim MPI-Lidar realisiert.

8.2.1 Vergleiche

Auch die Raman-Messungen im Solar-Blind wurden während LACE'98 einer Qualitätskontrolle unterzogen. Es wurden sowohl Vergleiche am Tage mit dem Sonnenphotometer des MOL als auch eine nächtliche Vergleichsmessung mit dem IfT-Lidar durchgeführt. Beide Vergleiche erlauben nur qualitative Aussagen über die Genauigkeit der Extinktionsmessungen bei 286 nm, da keine direkten Vergleiche bei der gleichen Wellenlänge möglich sind und die Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolrückstreuung und -extinktion im UV nicht genau angegeben werden kann. Vielmehr hängt sie nach theoretischen Untersuchungen (siehe dazu Kapitel 2) vom Aerosoltyp ab und hat unterhalb von 350 nm ein anderes Verhalten als im Sichtbaren.

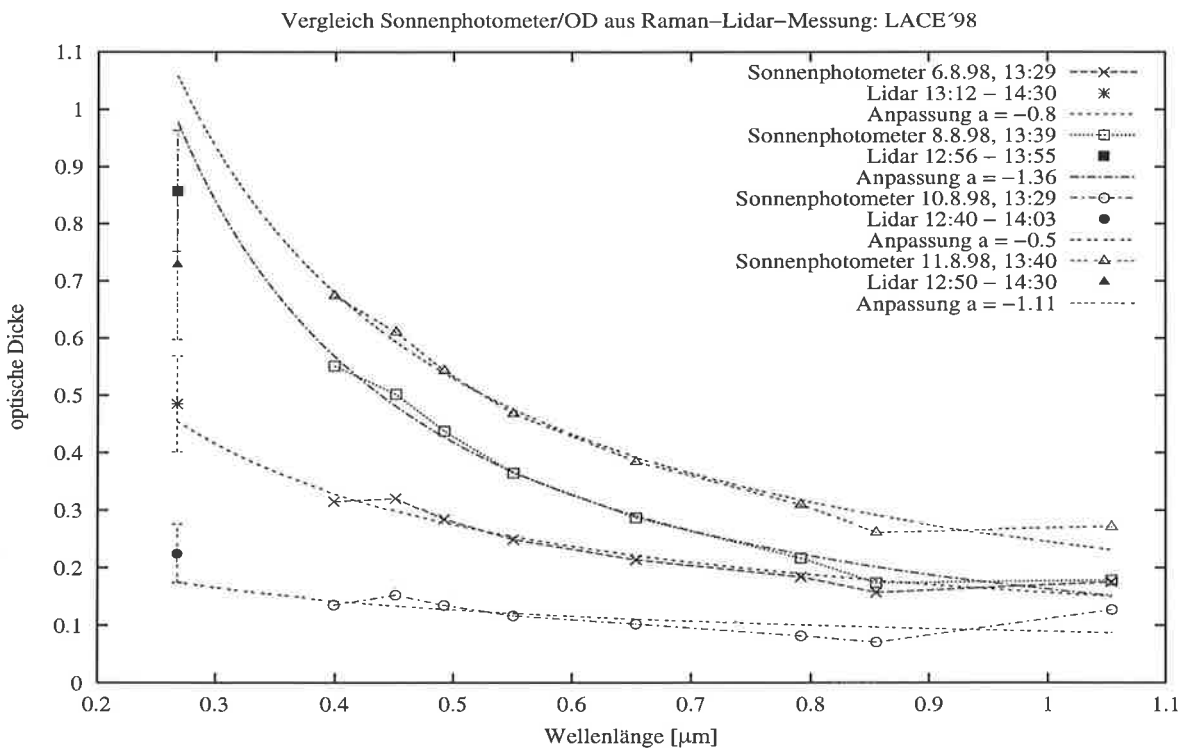


Abbildung 8.15: Optische Dicke aus Sonnenphotometermessungen des Meteorologischen Observatoriums Lindenberg (MOL) und optische Dicken bei 268 nm aus Raman-Lidar-Daten.

MPI/IfT Raman-Lidar-Vergleich: 268 nm (MPI)/ 387 nm (IfT), 05.08.98, 23:08 – 23:47 UT
 Mittelung: IfT: 225 m / 72469 Pulse, MPI: 240 m / 45000 Pulse

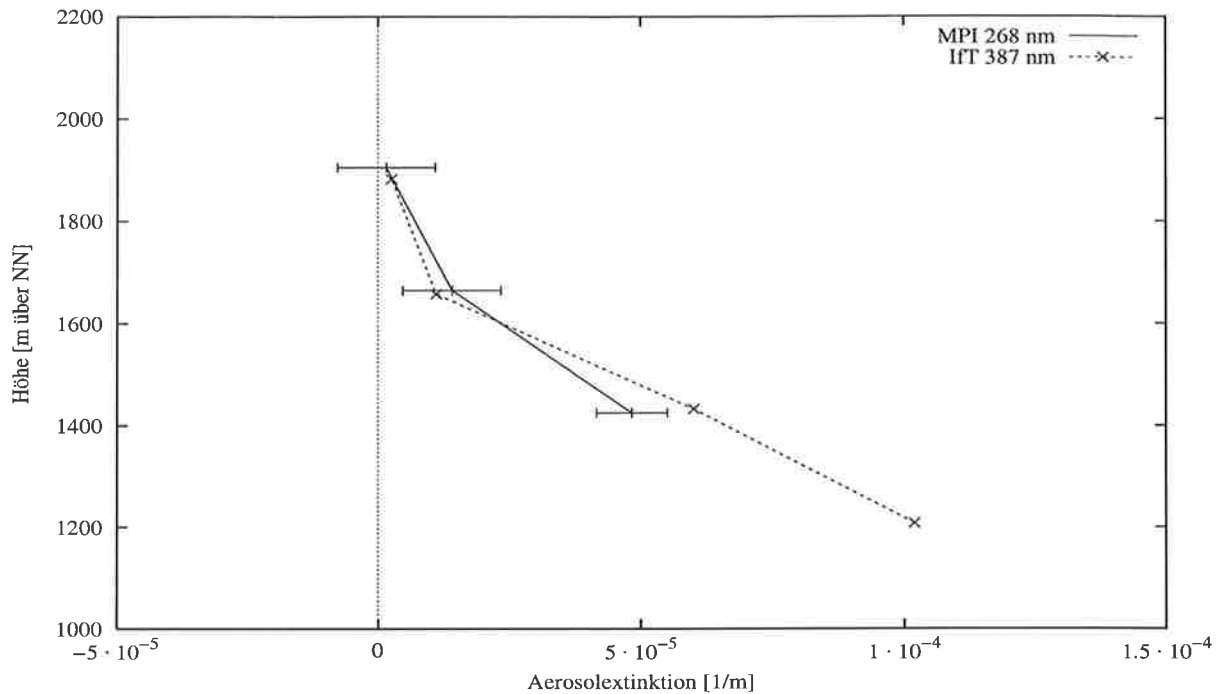


Abbildung 8.16: Vergleich gemessener Extinktionsprofile des MPI-Lidar bei 268 nm und des IfT-Lidar bei 355 nm.

Abbildung 8.15 zeigt vier Vergleiche am Mittag des 6.8.98, des 8.8.98, des 10.8.98 sowie des 11.8.98 mit unterschiedlichen optischen Dicken und spektralen Gängen der optischen Dicke im Sichtbaren. Bei den geringen optischen Dicken und flachen spektralen Gängen des 6.8.98 ($a = -0.9$) und des 10.8.98 ($a = -0.5$) passen die aus den Lidar-Daten berechneten optischen Dicken recht gut zu den anderen Werten des Sonnenphotometers. Am 8.8.98 und am 11.8.98 hingegen ist der spektrale Gang im Sichtbaren mit $a = -1.36$ (8.8.) bzw. $a = -1.11$ (11.8.) steiler, die aus den Lidar-Daten ermittelte optische Dicke der Aerosole liegt deutlich niedriger als eine Approximation der Sonnenphotometerdaten ins UV es erwarten lassen sollte. Möglicherweise ändert sich die spektrale Abhängigkeit der Aerosolpartikel in diesen Fällen im UV hin zu einem flacheren Verlauf. Dies würde sich auch mit den im Modell berechneten spektralen Abhängigkeiten der Aerosolrückstreuung und -extinktion im UV decken. Die Messung der Aerosolextinktion unterhalb von 300 nm liefert also zusätzlich zu Sonnenphotometerdaten die Höhenauflösung der Aerosolverteilung und einen weiteren Meßpunkt der optischen Dicke im UV, der neue Erkenntnisse über das spektrale Verhalten der Aerosolstreuung ermöglicht. Eine solche Messung kann mit Sonnenphotometern nicht erzielt werden.

Der Vergleich des Aerosolextinktionsprofils bei 286 nm mit dem von einem anderen Lidar bei 387 nm gemessenen Profil beinhaltet zwar die gleichen Schwierigkeiten in Bezug auf die spektrale Abhängigkeit wie der Vergleich mit den Sonnenphotometerdaten, jedoch lassen sich mit einer solchen Messung zusätzlich die Höhenabhängigkeiten vergleichen. Während LACE'98 konnte am 5.8.98, 23:08 - 23:47 UT eine solche nächtliche Vergleichsmessung durchgeführt werden. Da die Raman-Messung beim MPI-Lidar nur mit dem Empfangsteleskop II durchgeführt wurde, ist der Meßbereich eingeschränkt, der unterste Meßpunkt

liegt aber noch innerhalb der Grenzschicht. Die Aerosolextinktion war an diesem Abend sehr gering, so daß hohe relative Fehler entstehen, insbesondere die Ozonkorrektur muß sehr genau durchgeführt werden.

Für die in Abbildung 8.16 gezeigten Profile wurde über 240 m (MPI) bzw. 225 m (IFT) in der Höhe gemittelt. Das IFT-Profil wurde unter einem Zenitwinkel von 40° aufgenommen, die statistischen Fehler wurden oberhalb 1500 m mit $> 50\%$ spezifiziert. Man erkennt die gute Übereinstimmungen im Verlauf der Profile und in der Größe der Absolutwerte, auch wenn keine sehr hohen Genauigkeiten der einzelnen Profile vorliegen. Für den spektralen Verlauf scheint ein kleiner Ångström-Koeffizient am besten zu sein, jedoch sind die Fehler der Einzelmessungen zu groß um einen Wert angeben zu können. Gleichzeitige Sternphotometermessungen zeigen ein sehr flaches Spektrum mit einem Ångström-Koeffizienten $a \approx -0.2$ und einer optischen Dicke von 0.08 bei 451 nm.

8.2.2 Tagesmessung während LACE'98

Während des Feldexperimentes LACE'98 wurde das UV-DIAL des MPI für Meteorologie zwischen dem 9. Juli 1998 und dem 12. August 1998 auf dem Meßfeld des Meteorologischen Observatoriums Lindenberg (MOL) betrieben. Es wurden intensive Messungen der Aerosolextinktion und -rückstreuung unter verschiedenen sommerlichen Wetterlagen durchgeführt. Das DIAL wurde so betrieben, daß auch die Ozondichte bestimmt wurde, das heißt die Meßwellenlängen waren in der Regel 268 nm, 292 nm und 320 nm. Die Raman-Streuung an Stickstoff wurde dann bei 286 nm detektiert.

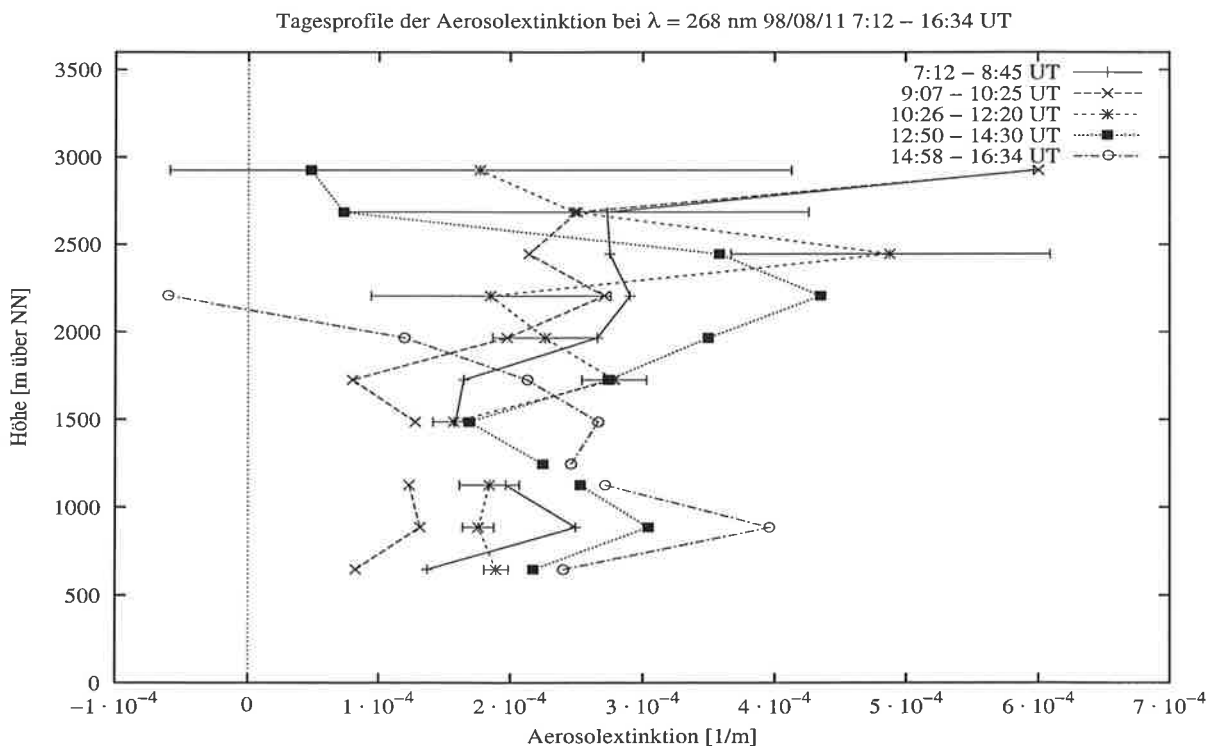


Abbildung 8.17: Tagesgang der Aerosolextinktion am 11.08.98 in Lindenberg zwischen 7:12 und 16:34 UT.

Exemplarisch sollen hier zunächst die Tagesmessungen der Aerosolextinktion bei 286 nm am 11. August 1998 gezeigt werden. Der Tag war sommerlich warm mit Maximaltemperaturen von ca. 30°C am 11.8.1998. Der Bodenwind kam aus südöstlichen Richtungen mit Windgeschwindigkeiten von bis zu 7 m/s.

Der 11. August war von sehr inhomogenen Strukturen geprägt, wie die Aerosolextinktionsprofile zeigen. Die Aerosolschicht reichte bis fast 4000 m herauf, dazwischen waren immer wieder andere Schichtgrenzen zu erkennen. Zum Teil bildeten sich auch kleinere Quellwolken an der Oberkante der stark belasteten Schicht in 2500 bis 3000 m Höhe heraus. Am Nachmittag sank die Oberkante der verschmutzten Schicht wieder auf ca. 2000 m ab, die Wolken hatten sich aufgelöst.

Am Vormittag konnte mit den Solar-Blind Raman-Messungen nicht der gesamte Bereich hoher Aerosolstreuung erfaßt werden, dann geben zusätzlich die Rückstreuprofile Auskunft über die Schichtung. Bis ca. 3000 m wurden aber hohe Werte der Aerosolextinktion gemessen, insbesondere oberhalb von 2500 m nahm die Aerosolextinktion kräftig zu und erreichte Werte von bis zu $6 \cdot 10^{-4} \text{m}^{-1}$. Im Laufe des Tages nahm die vertikale Ausdehnung der mit Aerosolpartikeln stark belasteten Luft ab, gegen Abend reichte die Grenzschicht nur noch bis in 2000 m Höhe. Im unteren Höhenbereich bis 1500 m ergab sich ein gegenläufiger Effekt. Hier nahm die Aerosolextinktion von morgens ca. $1 \cdot 10^{-4} \text{m}^{-1}$ auf ca. $3 \cdot 10^{-4} \text{m}^{-1}$ am Abend zu. Messungen der optischen Dicke zeigen an diesem Tag eine Abnahme der optischen Dicke im Laufe des Tages, während Bodenmessungen der Aerosolstreuung mit einem Nephelometer eine Zunahme der Aerosolstreuung zeigen. Diese zunächst widersprüchlichen Resultate lassen sich mit Hilfe der Lidar-Messungen auflösen.

8.2.3 Statistik der Aerosolextinktion während LACE'98

Während LACE'98 wurde das MPI-Lidar an nahezu allen Meßtagen als Ozon-DIAL mit zusätzlichem Raman-Kanal bei 286 nm betrieben. Bei den regelmäßigen Nachmittagsmessungen konnte eine Zeitreihe von 18 Extinktionsprofilen bei voll entwickelter Grenzschicht zwischen dem 21.7. und dem 11.8.1998 bestimmt werden. Nur an drei Tagen während dieses Zeitraumes wurden keine Messungen durchgeführt, da die Wetterlage dieses nicht erlaubte.

Analog zu den Routinemessungen in Hamburg wurde ein mittlerer Wert der Aerosolextinktion in der Grenzschicht durch Aufintegration des Extinktionsprofils bis zur Grenzschichtoberkante und anschließende Division durch die Grenzschichthöhe bestimmt. Allerdings können hier größere Unsicherheiten als bei den Messungen bei 351 nm auftreten, da zum Teil nur mit dem Empfangsteleskop II gemessen wurde und die Messungen dann von einer untersten Meßhöhe von ca. 1200 m bis zum Boden extrapoliert wurden.

Dennoch zeigen der zeitliche Verlauf der optischen Dicke aus Sonnenphotometerdaten bei 451 nm und die optische Dicke der Grenzschicht aus Lidardaten eine gute Übereinstimmung (Abbildung 8.18).

Allerdings müssen bei diesem Vergleich die unterschiedlichen Meßwellenlängen beachtet werden. Betrachtet man den spektralen Verlauf der mit dem Sonnenphotometer bestimmten optischen Dicken und extrapoliert dann bis 268 nm weiter ins UV, so liegen die dann zu erwartenden optischen Dicken in der Regel deutlich über den mit dem Lidar gemessenen Werten. Hier findet sich also ein deutlicher Hinweis darauf, daß diese Extrapolation nicht zulässig ist, sondern unterhalb von 400 nm eine flacher spektraler Verlauf mit einem

Opt. Dicke der Grenzschicht (Lidar, 268 nm) / ges. opt. Dicke Sonnenphotometer (451 nm, 268 nm extrapol.), 20.7 - 11.8.98

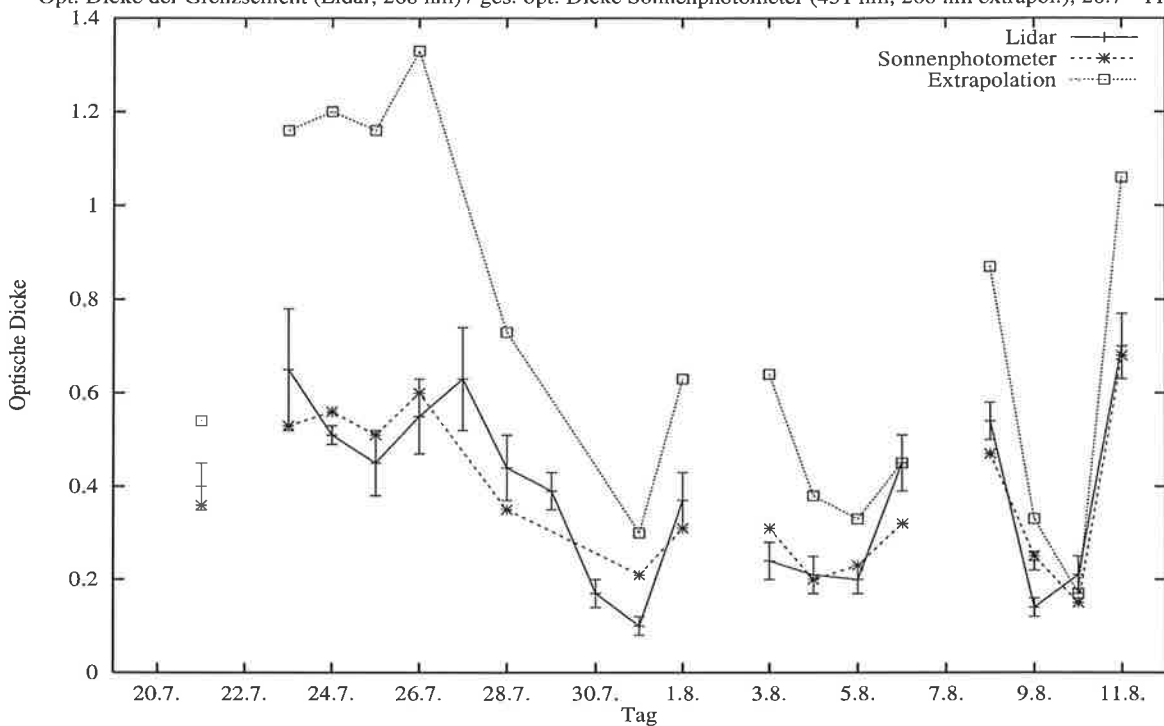


Abbildung 8.18: Zeitreihe der optischen Dicke am Nachmittag zwischen dem 21.07.1998 und dem 11.08.1998 in Lindenberg. Die extrapolierten Werte sind die optischen Dicken bei 268 nm, wie man sie bei einer Fortsetzung der spektralen Sonnenphotometermessungen ins UV erhalten würde.

Ängström-Koeffizienten von $a \approx 0$ vorherrscht. Das zeigte sich auch in Mie-Rechnungen, die den Bereich bis 250 nm miteinbezogen (Völger, 1993). Daher liegen die Lidar-Daten nur bei ohnehin flachen Spektralverläufen mit Ängström-Koeffizienten zwischen -0.5 und -0.9 nah an den aus der Extrapolation bestimmten Werten (6.8., 9.8., 10.8.).

Zu beachten sind aber auch die Fehlerquellen. Bei der Bestimmung der optischen Dicke aus den Lidardaten treten Fehler durch die Extrapolation des Profils bis zum Boden auf, außerdem sind die Unsicherheiten des Extinktionsprofils selbst durch die Ozonkorrektur und den statistischen Fehler insbesondere bei kleinen Werten der optischen Dicke unsicher. In einem Fall (dem 9.8.98) lag oberhalb der Grenzschicht eine Aerosolschicht mit einer signifikanten optischen Dicke (von hier ca. 0.1), die vom Sonnenphotometer mitgemessen wird, bei der optischen Dicke der Grenzschicht aus Lidardaten aber keine Beachtung findet. Daher wurde hier ein korrigierter Datenpunkt in die Abbildung eingefügt. Auch bei der Bestimmung des Ängström-Koeffizienten aus den Sonnenphotometerdaten können signifikante Fehler auftreten, wenn auch nur geringfügige Cirrus-Bewölkung die optischen Dicken im Infrarot anhebt.

Für den Experimentzeitraum wurden die Mittelwerte und die Variabilität der Aerosol-extinktion, der optischen Dicke sowie der Grenzschichthöhe analog zu den Hamburger Messungen bestimmt. Sie sind in Tabelle 8.5 zu sehen. Die mittleren optischen Dicken sowie die mittlere Extinktion sind bei etwa gleicher mittlerer Grenzschichthöhe während LACE'98 deutlich niedriger als im Mittel in Hamburg. Allerdings umfaßt der Meßzeitraum von drei Wochen nur einen kleinen Ausschnitt der möglichen optischen Dicken des

	Mittlere Extinktion [10^{-4}m^{-1}]	Mittlere Grenzschichthöhe [m]	Optische Dicke Grenzschicht
LACE'98	2.35 ± 0.91	1620 ± 434	0.38 ± 0.18
Sommer Hamburg	2.64 ± 1.47	1446 ± 522	0.40 ± 0.28

Tabelle 8.5: *Mittlere Werte der Aerosolextinktion in der Grenzschicht, der Grenzschichthöhe und der optischen Dicke der Grenzschicht bei 268 nm während LACE'98, zum Vergleich die Mittelwerte der Sommermessungen der Jahre 1998 und 1999 in Hamburg.*

Aerosols über Lindenberg. Trotzdem zeigen die Messungen ähnlich hohe Variabilitäten der einzelnen Werte wie die gemittelten Sommermessungen in Hamburg. Dies zeigt, daß auch innerhalb eines kurzen Zeitraumes starke Änderungen der optischen Wirkung der Aerosole an einem Meßort auftreten können, die Strahlungswirkung von Aerosolpartikeln an einem festen Ort somit stark variabel ist und von der Geschichte der beobachteten Luftmasse abhängig.

In Lindenberg herrschten zwischen dem 29.7. und dem 10.8.1998 Anströmungen aus West und später Nordost, die zumeist relativ saubere Luft heran transportierten. Nur an 6 von 19 Meßtagen, entsprechend 31% wurde Luft aus den mit hoher Aerosolextinktion verbundenen Sektoren Südwest, Südost oder „lokal“ advehiert. Bei allen Hamburger Messungen im Sommerhalbjahr waren diese Sektoren mit 50% vertreten. Relativ niedrige Werte der Aerosolextinktion und der optischen Dicke sind auch hier in der Regel mit Luftmassen aus West, Nordwest, Nordost und Ost verbunden. Das bedeutet wiederum, daß lokale Quellen für die mittlere Aerosolextinktion in der Grenzschicht nur eine untergeordnete Rolle spielen.

Kapitel 9

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde ein kombiniertes UV Raman-Lidar/Ozon-DIAL zur Messung von Ozon- und Aerosolvertikalprofilen vorgestellt. Im Gegensatz zu den meisten anderen Raman-Lidar-Systemen kann mit diesem Instrument aufgrund der Raman-Wellenlängen unterhalb von 300 nm auch tagsüber ein quantitatives Vertikalprofil der Aerosolextinktion und -rückstreuung bestimmt werden. In Kombination mit anderen Meßgeräten, wie z.B. Sonnenphotometern können durch einen Meßpunkt im Solar-Blind Informationen über das spektrale Extinktionsverhalten des Aerosols gewonnen werden, die bisher nicht zugänglich waren.

Die Bestimmung von Aerosolextinktions- und rückstreuprofilen ohne Vorgabe eines Lidar-Verhältnisses ermöglicht eine Verbesserung der beim Ozon-DIAL notwendigen Aerosolkorrektur der Ozonprofile. Zwar sind diese auch bei der herkömmlichen Methode, Bestimmung eines Aerosolrückstreuprofils aus der elastischen Rückstreuung bei einer Wellenlänge unter Vorgabe eines Lidar-Verhältnisses, schon recht genau. Jedoch gibt es immer wieder Meßbedingungen wie vollständige Bedeckung mit niedrigen Wolken oder eine extrem stark ausgeprägte Abnahme der Aerosolstreuung an der Oberkante der planetaren Grenzschicht, in denen signifikante Verbesserungen erzielt werden können. Eine sehr genaue Aerosolkorrektur ist auch dann nötig, wenn der Einfluß von Wolken auf die Ozonverteilung untersucht werden soll, da in der Umgebung von Cumuluswolken sehr unterschiedliche Zustände des streuenden Aerosols vorliegen können, je nachdem ob es sich um stark gequollene Aerosolpartikel unterhalb einer Wolke oder um bereits wieder getrocknete, aber durch die Wolke modifizierte Aerosolpartikel in den Abwindschläuchen neben der Wolke handelt. In solchen Fällen können mit dem kombinierten UV-Raman-Lidar/Ozon-DIAL exaktere Ergebnisse erzielt werden.

Das aufgebaute Meßsystem läßt sich auch bei einer Emissionswellenlänge von 351 nm mit einem Raman-Kanal bei 382 nm betreiben. Zwar kann es dann auch nur nachts zur Messung der Aerosolextinktion eingesetzt werden, jedoch besitzt es so eine erheblich größere Reichweite, als wenn die Raman-Wellenlänge zusätzlich vom Ozon absorbiert wird. Mit einer solchen Anordnung wurden im Rahmen des vom BMBF geförderten AFS-Lidar-Netzes wöchentliche Routinemessungen der Aerosolextinktion durchgeführt. Dieser Datensatz erlaubt statistische Untersuchungen, aus denen sich mittlere Werte der Aerosolextinktion sowie der optischen Dicke insbesondere für die Grenzschicht ableiten lassen. Die Standardabweichungen geben Aufschluß über die Variabilität dieser Größen. Eine jahreszeitliche Abhängigkeit der optischen Dicke der Aerosolpartikel ist mit höheren Werten in den Sommermonaten klar erkennbar, insbesondere der Monat September weist

bei den bisher untersuchten Jahren 1998 und 1999 sehr hohe Werte auf.

In Kombination mit Rückwärtstrajektorien lassen die Profile des Aerosolextinktionskoeffizienten Rückschlüsse auf Quellregionen der Aerosolpartikel zu. Der zwar noch begrenzte Datensatz aus 2 Jahren Routinemessungen läßt bereits erkennen, daß die Herkunft einer Luftmasse und ihre Verweildauer über industrialisiertem Gebiet entscheidende Parameter für die am Standort Hamburg gemessene Aerosolpartikelextinktion sind. Die höchsten gemessenen Werte treten im Spätsommer bei sehr kurzen Trajektorien, also stark lokalem Einfluß, oder bei südöstlicher Anströmung auf. Die niedrigsten Werte werden im Winter in Zusammenhang mit nordwestlicher Anströmung gemessen.

Die Daten ermöglichen auch eine statistische Auswertung des gemessenen Lidar-Verhältnisses und damit eine bessere Vorhersage des Lidar-Verhältnisses bei der Auswertung rein elastischer Rückstreumessungen. Noch immer verfügen die meisten Lidar-Systeme nicht über Raman-Kanäle und sind auf eine möglichst genaue Schätzung des Lidar-Verhältnisses bei der Datenauswertung angewiesen. Dies gilt insbesondere für solche, die vom Flugzeug aus messen oder vom Satelliten aus messen sollen, da hier Raman-Kanäle aufgrund der benötigten langen Mittelungszeiten nicht verwendbar sind.

Für das Lidar-Verhältnis ergab sich ein Median von 64 sr, im Winter waren die Werte dabei deutlich niedriger (Median 44 sr) als im Sommer (Median 68 sr). Werte zwischen 60 und 70 sr passen dabei gut zu Modellergebnissen für urbanes Aerosol, niedrige Werte sind mit maritimem Aerosol, das nach Mie-Rechnungen Werte von ca. 30 sr aufweist, in Verbindung zu bringen. Bei der Herkunftsanalyse zeigten aus Nordwest herantransportierte Luftmassen die geringsten Lidar-Verhältnisse, bei sehr kurzen Trajektorien erhielt man eine auffällig verringerte Variabilität des Lidar-Verhältnisses, was auf eine wohldefinierte Zusammensetzung des gemessenen Aerosols hindeutet.

Die Messungen der Aerosolextinktion, sowohl tagsüber im Solar-Blind als auch nachts bei 351 nm, wurden Qualitätskontrollen in Form von Vergleichsmessungen mit anderen Lidar-Systemen oder mit passiven Instrumenten zur Bestimmung der optischen Dicke unterworfen. Es zeigte sich beim Lidar-Vergleich eine exzellente Übereinstimmung der ermittelten Extinktionsprofile bei 351 nm. Auch die abgeschätzte optische Dicke bei 351 nm paßte in mehreren Vergleichen plausibel zu den bei längeren Wellenlängen gemessenen optischen Dicke aus Sternphotometerdaten. Bei 286 nm ergaben sich zum Teil niedrigere Werte als dies eine Approximation mit dem Ångström-Koeffizienten ins UV erwarten ließe, jedoch paßt dies sehr gut zu den Vorhersagen aus Mie-Rechnungen, so daß diese durch die Messungen bestätigt werden. Der Lidar-Vergleich ergab wiederum gute Übereinstimmung der Profile.

Neben den Messungen wurde in dieser Arbeit eine ausführliche Untersuchung der zur Auswertung der Lidar-Daten zur Verfügung stehenden Methoden vorgenommen. Sämtliche relevanten Fehler wurden bestimmt und eine quantitative Abschätzung angegeben. Wenn eine analytische Lösung der Fehlergleichungen nicht möglich war oder nicht sinnvoll erschien, so wurde der Fehler anhand einer Simulationsrechnung mit einer Beispielatmosphäre bestimmt. Ergebnis dieser Untersuchung waren die Vorteile bei der Auswertung von Ozonprofilen mit drei Wellenlängen, wobei die Wahl der Wellenlängen eine entscheidende Rolle spielt. Die mit dem MPI-Ozon-DIAL nutzbaren Wellenlängen 268 nm/292 nm/320 nm erwiesen sich als wesentlich weniger fehleranfällig als die andere Kombination 248 nm/277 nm/313 nm. Der verwendete Raman-Kanal liegt vorzugsweise bei 286 nm (Raman-Streuung an atmosphärischem Stickstoff), die Raman-Streuung an Sauerstoff bei 280 nm kann aber bei etwas geringeren Rückstreuintensitäten ebenfalls benutzt werden.

Mit dem Raman-DIAL bei zwei unterschiedlichen Anregungswellenlängen wurde ein Verfahren vorgestellt, das praktisch frei von systematischen Fehlern ist. Einen großen Nachteil stellt allerdings die notwendige lange Mittelungszeit dar. Dies führt dazu, daß diese Methode zur Bestimmung von Ozonprofilen mit heute verfügbaren Lasersystemen nicht sinnvoll ist. Insbesondere die Benutzung eng benachbarter Raman-Wellenlängen (also Raman-Streuung an Sauerstoff und Stickstoff von einer Anregungswellenlänge) läßt den statistischen Fehler im Photonenzählbetrieb sehr schnell extrem groß werden. Für zukünftige diodengepumpte Festkörperlasersysteme mit hohen Repetitionsraten und hoher Einzelpulsenergie ist diese Methode allerdings attraktiv, da sie vollständig automatisierbar ist und keine Annahmen über ein Aerosolprofil mehr gemacht werden müssen.

Der Ersatz des bisher benutzten Excimerlasers durch einen Festkörperlaser stellt für die Ozon- und Aerosolmessungen eine wesentliche Verbesserung dar. Blitzlampengepumpte Nd:YAG-Laser mit anschließender Frequenzverdopplung, -verdreifachung und -vervierfachung ermöglichen vergleichbare oder höhere Ausgangsenergien bei Repetitionsraten von typischerweise 30 Hz. Es werden dann vier Wellenlängen bei 266 nm, 355 nm, 532 nm und 1064 nm emittiert, die zusätzliche Informationen über spektrale Abhängigkeiten der Aerosolextinktion und -rückstreuung liefern können. Durch weitere Frequenzkonversion der 266 nm mit z.B. einem Cer:LiCAF Kristall oder wie bisher einer mit Deuterium gefüllten Ramanzelle können Wellenlängen in der Nähe von 290 – 295 nm erreicht werden, so daß dann auch ein fehlerunempfindliches Wellenlängenpaar für die Ozonmessung zur Verfügung steht. Unter Umständen kommen auch andere Methoden wie optisch parametrische Oszillatoren (OPO) mit anschließender Frequenzverdoppelung oder Mischung mit einer anderen Laserwellenlänge zur Erzeugung einer zweiten Ozon-DIAL-Wellenlänge um 295 nm in Betracht.

Solche Systeme bedürfen allerdings immer noch einiger Wartung, da die zum Pumpen des Nd:YAG-Kristalls erforderlichen Blitzlampen nur eine begrenzte Lebensdauer haben und bei 30 Hz Repetitionsrate nach ca. 300 Betriebsstunden ausgetauscht werden müssen. Will man stärker zu kontinuierlich laufenden Systemen übergehen, so müssen diodengepumpte Laser (z.B. auch Nd:YAG) mit Repetitionsraten von 1 kHz und mehr eingesetzt werden. Hier liegen die Lebensdauern der Dioden bei ca. 5000 Stunden. Die Ausgangsleistung dieser Laser von ca. 8 W bei 1064 nm und noch 1-3 W bei 355 nm reicht für die Aerosolmessungen bereits aus, für den Ozonbereich unterhalb 300 nm verbleibt durch die häufige Frequenzkonversion aber nur noch sehr geringe Energie (unter 1 mJ) im Einzelpuls. Für eine hohe Reichweite der Messungen sowie hohe zeitliche und räumliche Auflösung der Ozonprofile scheint dies noch nicht ausreichend zu sein. Insbesondere Raman-Messungen sind bei diesen geringen Einzelpulsenergien schwer zu realisieren, so daß das zukünftige MPI-UV-Lidar auf einem vier Wellenlängen emittierenden blitzlampengepumpten Nd:YAG-Laser basieren wird. Es wird voraussichtlich in der Lage sein, ohne größere Umbauten Tag- und Nachtprofile der Aerosolextinktion und -rückstreuung bei mehreren Wellenlängen sowie Ozonprofile zu liefern. Nahezu kontinuierliche Messungen der Aerosolextinktion im augensicheren Betrieb des Lidars bei 355 nm scheinen mit einem solchen System ebenfalls durchführbar. Hierdurch könnte der bisherige Datensatz erheblich erweitert werden, so daß eine genauere Analyse als bisher möglich ist.

Anhang A

Gleichungen zur Fehlerbetrachtung

A.1 Inversionsalgorithmus

Der statistische Fehler bei der Bestimmung der Aerosolrückstreuung läßt sich basierend auf dem von Fernald (1984) angegebenen Iterationsverfahren berechnen. Es gilt (siehe Abschnitt 4.1):

$$\beta_{aer}(i-1) = -\beta_{mol}(i-1) + \frac{X(i-1) \exp(+A(i, i-1))}{\frac{X(i)}{\beta_{aer}(i)+\beta_{mol}(i)} + S_1 \left(X(i) + X(i-1) \exp[+A(i, i-1)] \right) \Delta z} \quad (A.1)$$

mit den Abkürzungen $A(i, i-1) = (S_1 - S_2)[\beta_{mol}(i) + \beta_{mol}(i-1)]\Delta z$ und $X(i) = P(i)z_i^2$. Setzt man statt $X(i)$ wieder $P(i)z_i^2$ ein, so gilt

$$\beta_{aer}(i-1) = -\beta_{mol}(i-1) + \frac{P(i-1)z_{i-1}^2 \exp(+A(i, i-1))}{\frac{P(i)z_i^2}{\beta_{aer}(i)+\beta_{mol}(i)} + S_1 \left(P(i)z_i^2 + P(i-1)z_{i-1}^2 \exp[+A(i, i-1)] \right) \Delta z} \quad (A.2)$$

Für die Berechnung des statistischen Fehlers durch den Fehler in den Signalen $P(i)$ und $P(i-1)$ müssen die partiellen Ableitungen nach den Signalen berechnet werden. Der Übersichtlichkeit halber werden die Abkürzungen

$$Z \equiv P(i-1)z_{i-1}^2 \exp(+A(i, i-1)) \quad (A.3)$$

und

$$N \equiv \frac{P(i)z_i^2}{\beta_{aer}(i) + \beta_{mol}(i)} + S_1 \left(P(i)z_i^2 + P(i-1)z_{i-1}^2 \exp[+A(i, i-1)] \right) \Delta z \quad (A.4)$$

für Zähler und Nenner des Bruches eingeführt. Dann gilt

$$\begin{aligned} \delta\beta_{aer}^i &= \frac{\partial\beta_{aer}(i-1)}{\partial P(i)} \delta P(i) \\ &= \frac{-\left(\frac{z_i^2}{\beta_{aer}(i)+\beta_{mol}(i)} + S_1 z_i^2 \Delta z\right) Z}{N^2} \delta P(i) \end{aligned} \quad (A.5)$$

und

$$\begin{aligned}\delta\beta_{aer}^{i-1} &= \frac{\partial\beta_{aer}(i-1)}{\partial P(i-1)}\delta P(i-1) \\ &= \frac{z_{i-1}^2 \exp(A(i, i-1))N - S_1 z_{i-1}^2 \Delta z \exp(A(i, i-1))Z}{N^2} \delta P(i-1).\end{aligned}\quad (\text{A.6})$$

Daraus ergibt sich der Gesamtfehler zu

$$\delta\beta_{aer} = \sqrt{(\delta\beta_{aer}^i)^2 + (\delta\beta_{aer}^{i-1})^2} \quad . \quad (\text{A.7})$$

A.2 Raman-Lidar

Die Gleichung zur Bestimmung der Aerosolextinktion lautet

$$\begin{aligned}\alpha_{aer}(\lambda_{on}) &= \frac{1}{(1 + (\frac{\lambda_R}{\lambda_{on}})^a)} \cdot \left(\frac{d}{dz} \ln\left(\frac{N(z)}{P_R(z)z^2}\right) - \alpha_{mol}(\lambda_{on}, z) - \alpha_{mol}(\lambda_R, z) \right. \\ &\quad - \alpha_{O_3}(\lambda_{on}, z) - \alpha_{O_3}(\lambda_R, z) \\ &\quad \left. - \alpha_{O_2}(\lambda_{on}, z) - \alpha_{O_2}(\lambda_R, z) \right) \quad .\end{aligned}\quad (\text{A.8})$$

Das läßt sich wiederum als Summe aus einem Signalterm und einer Reihe von Korrekturtermen schreiben, deren Fehler dann einzeln betrachtet werden können.

$$\begin{aligned}\alpha_{aer}(\lambda_{on}) &= \frac{1}{(1 + (\frac{\lambda_R}{\lambda_{on}})^a)} \times \\ &\quad \left(\frac{d}{dz} \ln(N(z)) \right. \\ &\quad - \frac{d}{dz} \ln(P_R(z)z^2) \\ &\quad - \alpha_{mol}(\lambda_{on}, z) - \alpha_{mol}(\lambda_R, z) \\ &\quad \left. - \alpha_{O_3}(\lambda_{on}, z) - \alpha_{O_3}(\lambda_R, z) - \alpha_{O_2}(\lambda_{on}, z) - \alpha_{O_2}(\lambda_R, z) \right) \quad .\end{aligned}\quad (\text{A.9})$$

Zur Berechnung der Aerosolextinktion muß die Ableitung des Logarithmus der Signale nach der Höhe gebildet werden. Da das Meßsignal nur zu bestimmten Zeitpunkten, die einer Höhenauflösung Δz entsprechen vorliegt, bildet man die Ableitung nach der Höhe meist als Differenzenquotient zwischen den Höhen z_1 und z_2 . Hier wird also angenommen, daß

$$\frac{d}{dz} \ln(N(z)) = \frac{\ln N(z_2) - \ln N(z_1)}{z_2 - z_1} \quad (\text{A.10})$$

und

$$\frac{\partial}{\partial z_i} \frac{d}{dz} \ln(N(z)) = \frac{1}{z_2 - z_1} \frac{1}{N(z_i)} \quad i = 1, 2 \quad . \quad (\text{A.11})$$

Mit $\Delta z = z_2 - z_1$ und $N(z_1) + N(z_2) \approx 2N(z)$, wobei $z = \frac{z_1+z_2}{2}$ erhält man die Gleichung für den Fehler durch die Anzahldichtebestimmung. Für die Fehler aller einzelnen Summanden ergeben sich unter Berücksichtigung der Bildung der Ableitung als Differenzenquotient folgende Gleichungen:

1. Fehler in der Anzahldichte des Rückstreuers Stickstoff oder Sauerstoff

$$\frac{\partial \alpha_{aer}(\lambda_{on})}{\partial N} \delta N = \frac{1}{(1 + (\frac{\lambda_R}{\lambda_{on}})^a)} \cdot \frac{\sqrt{2}}{\Delta z} \cdot \frac{\delta N(z)}{N(z)} \quad . \quad (A.12)$$

2. Statistischer Fehler im Signal

$$\frac{\partial \alpha_{aer}(\lambda_{on})}{\partial P} \delta P = \frac{1}{(1 + (\frac{\lambda_R}{\lambda_{on}})^a)} \cdot \frac{\sqrt{2}}{\Delta z} \cdot \frac{\delta P(z)}{P(z)} \quad . \quad (A.13)$$

3. Fehler in der Abstandsbestimmung

$$\frac{\partial \alpha_{aer}(\lambda_{on})}{\partial z} \delta z = \frac{1}{(1 + (\frac{\lambda_R}{\lambda_{on}})^a)} \cdot \frac{2 \cdot \sqrt{2}}{\Delta z} \cdot \frac{\delta z}{z} \quad . \quad (A.14)$$

4. Fehler in der Rayleigh-Streukorrektur

$$\frac{\partial \alpha_{aer}(\lambda_{on})}{\partial N} \delta N = \frac{1}{(1 + (\frac{\lambda_R}{\lambda_{on}})^a)} \cdot \delta N(\sigma_{mol}(\lambda_{on}) + \sigma_{mol}(\lambda_R)) \quad , \quad (A.15)$$

$$\frac{\partial \alpha_{aer}(\lambda_{on})}{\partial \sigma_{ray}} \delta \sigma_{ray} = \frac{1}{(1 + (\frac{\lambda_R}{\lambda_{on}})^a)} \cdot \sqrt{(N \delta \sigma_{mol}(\lambda_{on}))^2 + (N \delta \sigma_{mol}(\lambda_R))^2} \quad . \quad (A.16)$$

5. Fehler in der Ozonkorrektur

$$\frac{\partial \alpha_{aer}(\lambda_{on})}{\partial N_{O_3}} \delta N_{O_3} = \frac{1}{(1 + (\frac{\lambda_R}{\lambda_{on}})^a)} \cdot \delta N_{O_3}(\sigma_{O_3}(\lambda_{on}) + \sigma_{O_3}(\lambda_R)) \quad , \quad (A.17)$$

$$\frac{\partial \alpha_{aer}(\lambda_{on})}{\partial \sigma_{O_3}} \delta \sigma_{O_3} = \frac{1}{(1 + (\frac{\lambda_R}{\lambda_{on}})^a)} \cdot \sqrt{(N_{O_3} \delta \sigma_{O_3}(\lambda_{on}))^2 + (N_{O_3} \delta \sigma_{O_3}(\lambda_R))^2} \quad . \quad (A.18)$$

6. Fehler in der Sauerstoffkorrektur

$$\frac{\partial \alpha_{aer}(\lambda_{on})}{\partial N_{O_2}} \delta N_{O_2} = \frac{1}{(1 + (\frac{\lambda_R}{\lambda_{on}})^a)} \cdot \delta N_{O_2}(\sigma_{O_2}(\lambda_{on}) + \sigma_{O_2}(\lambda_R)) \quad , \quad (A.19)$$

$$\frac{\partial \alpha_{aer}(\lambda_{on})}{\partial \sigma_{O_2}} \delta \sigma_{O_2} = \frac{1}{(1 + (\frac{\lambda_R}{\lambda_{on}})^a)} \cdot \sqrt{(N_{O_2} \delta \sigma_{O_2}(\lambda_{on}))^2 + (N_{O_2} \delta \sigma_{O_2}(\lambda_R))^2} \quad . \quad (A.20)$$

A.3 DIAL

1. Statistischer Fehler

Zur Bestimmung des Ozons aus der DIAL-Gleichung muß wiederum die Ableitung des Logarithmus der Signale nach der Höhe gebildet werden. Für das Meßsignal der on- und offline Wellenlänge $P(\lambda_i, z)$ ($i = 1, 2$, wobei 1 für online und 2 für offline steht) bildet man die Ableitung nach der Höhe wieder als Differenzenquotient zwischen den Höhen z_1 und z_2 . Für die partielle Ableitung der Anzahldichte des Ozons nach dem Meßsignal $P(\lambda_i, z_j)$ ($i = 1, 2; j = 1, 2$) gilt also

$$\frac{\partial N_{O_3}}{\partial P(\lambda_i, z_j)} = \frac{1}{2 \Delta \sigma_{O_3}} \times \quad (A.21)$$

$$\frac{\partial}{\partial P(\lambda_i, z_j)} \frac{\ln P(\lambda_2, z_2) - \ln P(\lambda_1, z_2) - (\ln P(\lambda_2, z_1) - \ln P(\lambda_1, z_1))}{z_2 - z_1} \\ = \frac{1}{2 \Delta \sigma_{O_3} \Delta z} \frac{\delta P(\lambda_i, z_j)}{P(\lambda_i, z_j)} \quad . \quad (A.22)$$

Nimmt man an, daß in dem Höhenintervall Δz , über das die Ableitung gebildet wird keine sehr starke Änderung des Meßsignals vorhanden ist, so gilt in guter Näherung

$$\left(\frac{\delta P(\lambda_i, z_1)}{P(\lambda_i, z_1)}\right)^2 + \left(\frac{\delta P(\lambda_i, z_2)}{P(\lambda_i, z_2)}\right)^2 = 2\left(\frac{\delta P(\lambda_i, z)}{P(\lambda_i, z)}\right)^2, \quad (\text{A.23})$$

mit $z = \frac{z_1+z_2}{2}$.

Für den statistischen Fehler des Ozons gilt dann

$$\delta N_{O_3}(z) = \frac{\sqrt{2}}{2\Delta\sigma_{O_3}\Delta z} \sqrt{\left(\frac{\delta P(\lambda_{off}, z)}{P(\lambda_{off}, z)}\right)^2 + \left(\frac{\delta P(\lambda_{on}, z)}{P(\lambda_{on}, z)}\right)^2}. \quad (\text{A.24})$$

2. Fehler der Rayleigh-Korrektur

Für die Rayleigh-Korrektur gilt

$$R \equiv \frac{1}{2\Delta\sigma_{O_3}}(-2\Delta\alpha_{mol}(z)) = \frac{\Delta\alpha_{mol}(z)}{\Delta\sigma_{O_3}} = \frac{N(z)\Delta\sigma_{mol}}{\Delta\sigma_{O_3}}. \quad (\text{A.25})$$

Die Rayleigh-Wirkungsquerschnitte sind mit sehr hoher Genauigkeit bekannt, der hauptsächlichste Fehler liegt in der Bestimmung der Anzahldichte, wenn keine Radiosonden-daten vorliegen. Dann läßt diese sich aus Bodendaten für Druck und Temperatur unter Annahme einer Standardatmosphäre approximieren.

Man erhält als Gesamtfehler

$$\delta R = \sqrt{\left(\frac{\Delta\sigma_{mol}}{\Delta\sigma_{O_3}}\delta N(z)\right)^2 + \left(\frac{N(z)}{\Delta\sigma_{O_3}}\delta(\Delta\sigma_{mol})\right)^2} \quad (\text{A.26})$$

$$= \sqrt{\left(\frac{\delta N(z)}{N(z)}R\right)^2 + \left(\frac{\delta(\Delta\sigma_{mol})}{\Delta\sigma_{mol}}R\right)^2} \quad (\text{A.27})$$

$$= R \cdot \sqrt{\left(\frac{\delta N(z)}{N(z)}\right)^2 + \left(\frac{\delta(\Delta\sigma_{mol})}{\Delta\sigma_{mol}}\right)^2}. \quad (\text{A.28})$$

Der Fehler hängt also von der Größe der Korrektur sowie von den relativen Genauigkeiten der Anzahldichte und des differentiellen Rayleigh-Streuquerschnitts ab.

3. Fehler der Aerosolrückstreukorrektur

Die Fehler für die Korrekturterme B und E hängen vom Algorithmus zur Bestimmung des Aerosolprofils aus einer nicht oder nur schwach vom Ozon absorbierten Wellenlänge ab. Sie lassen sich nur aus Simulationsrechnungen ersehen. Es läßt sich jedoch ermitteln, welche Wellenlängenkombination zu besonders kleinen Fehlern bei gleichem Aerosolprofil führt. Eine numerische Abschätzung kann dann mit Hilfe der in Abschnitt 5.1 bei den Untersuchungen zu Inversionsverfahren erzielten Ergebnisse gemacht werden.

Sei

$$\Lambda = \frac{\lambda_{on}}{\lambda_{off}}, \quad (\text{A.29})$$

$$S_r = \frac{\beta_{aer}(\lambda_{off})}{\beta_{mol}(\lambda_{off})} \quad (\text{A.30})$$

und

$$\beta_{aer}(\lambda_{on}) = \beta_{aer}(\lambda_{off})\Lambda^b \quad . \quad (\text{A.31})$$

Dann gilt

$$B = -\frac{1}{2\Delta\sigma_{O_3}} \frac{d}{dz} \ln \left(\frac{1 + S_r}{\Lambda^{-4}(1 + S_r\Lambda^{b+4})} \right) \quad , \quad (\text{A.32})$$

was man vereinfachen kann zu (Browell et al., 1985; Bösenberg et al., 1997a)

$$B = -\frac{\Delta\lambda}{2\Delta\sigma_{O_3}\lambda_{off}}(4 + b) \frac{d}{dz} \left(\frac{S_r}{1 + S_r} \right) \quad (\text{A.33})$$

mit $\Delta\lambda = \lambda_{off} - \lambda_{on}$. Die einzelnen Fehlerterme lauten

$$\delta B(\delta b) = \delta b \cdot \frac{-\Delta\lambda}{2\Delta\sigma_{O_3}\lambda_{off}} \frac{d}{dz} \left(\frac{S_r}{1 + S_r} \right) = B \cdot \frac{\delta b}{4 + b} \quad (\text{A.34})$$

und

$$\delta B(\delta S_r) = \frac{-\Delta\lambda}{2\Delta\sigma_{O_3}\lambda_{off}}(4 + b) \frac{\sqrt{2}}{\Delta z} \frac{\delta S_r}{(S_r + 1)^2} \quad . \quad (\text{A.35})$$

Der gesamte Fehler in der Aerosolrückstreuungkorrektur ergibt sich als Quadratsumme der Einzelfehler.

4. Fehler durch Aerosolextinktionskorrektur

Der Fehler durch die Korrektur der Aerosolextinktion läßt sich wie folgt hinschreiben:

Mit

$$\alpha_{aer}(\lambda_{on}, z) = \left(\frac{\lambda_{on}}{\lambda_{off}} \right)^a \alpha_{aer}(\lambda_{off}, z) \quad (\text{A.36})$$

kann man wie folgt vereinfachen:

$$E \approx \frac{-1}{\Delta\sigma_{O_3}} \alpha_{off} \cdot a \cdot \frac{\Delta\lambda}{\lambda_{off}}, \quad \Delta\lambda \ll \lambda \quad . \quad (\text{A.37})$$

Damit ergeben sich die durch Wellenlängenabhängigkeit und Fehler im Extinktionsprofil verursachten Fehler zu

$$\delta E(\delta a) = \delta a \cdot \frac{-\alpha_{off}\Delta\lambda}{\Delta\sigma_{O_3}\lambda_{off}} = \frac{\delta a}{a} \cdot E \quad (\text{A.38})$$

und

$$\delta E(\delta\alpha_{off}) = \delta\alpha_{off} \cdot \frac{-a\Delta\lambda}{\Delta\sigma_{O_3}\lambda_{off}} = \frac{\delta\alpha_{off}}{\alpha_{off}} \cdot E \quad . \quad (\text{A.39})$$

Der Gesamtfehler ist auch hier wiederum die Quadratsumme der Einzelfehler. Er hängt wie schon bei der Korrektur B von einem wellenlängenabhängigen Teil $\frac{-\Delta\lambda}{\Delta\sigma_{O_3}\lambda_{off}}$, vom Ångström-Koeffizienten a und vom Extinktionsprofil $\alpha_{off}(z)$ ab.

A.4 Ramangestütztes DIAL / Dreiwellenlängenverfahren

Die Gleichung zur Bestimmung der Ozondichte beim ramangestützten DIAL unterscheidet sich von der DIAL-Gleichung hauptsächlich dadurch, daß die Aerosolextinktion nicht

berücksichtigt werden muß, da sie zuvor aus den Gleichungen eliminiert wurde. Gleichung (4.24) läßt sich wie folgt umformulieren:

$$N_{O_3}(z) = \frac{-1}{\Delta\sigma} \left(\frac{d}{dz} \left(\lambda_2^a \ln(P_1 z^2) - \lambda_1^a \ln(P_2 z^2) \right) \right. \\ \left. \frac{d}{dz} \left(\lambda_2^a \ln(\beta_{mol}(\lambda_1, z) + \beta_{aer}(\lambda_1, z)) - \lambda_1^a \ln(\beta_{mol}(\lambda_2, z) + \beta_{aer}(\lambda_2, z)) \right) + \right. \\ \left. \lambda_2^a \alpha_{mol}(\lambda_1) - \lambda_1^a \alpha_{mol}(\lambda_2) \right) \quad (\text{A.40})$$

Dabei bedeutet

$$\Delta\sigma = (\sigma_{O_3}(\lambda_1) \cdot \lambda_2^a - \sigma_{O_3}(\lambda_2) \cdot \lambda_1^a) \quad (\text{A.41})$$

den differentiellen Wirkungsquerschnitt.

Signalfehler, Rückstreuungfehler und Rayleigh-Korrekturf Fehler lassen sich getrennt untersuchen.

Bei den Signalen läßt sich der statistische Fehler berechnen, elektronisches Rauschen kann in den statistischen Fehler miteinbezogen werden, da es auch statistischer Natur ist und in den aufgezeichneten Quadraten der Signale enthalten ist. Für den Fehler erhält man

$$\delta N_{O_3}^{stat}(z) = \frac{\sqrt{2}}{\Delta\sigma \Delta z} \sqrt{\left(2\lambda_2^a\right)^2 \left(\frac{\delta P_1}{P_1}\right)^2 + \left(2\lambda_1^a\right)^2 \left(\frac{\delta P_2}{P_2}\right)^2} \quad (\text{A.42})$$

Der Fehler der Rayleigh-Korrektur R läßt sich analog zur DIAL-Gleichung sehr einfach hinschreiben. Es ist

$$R = 2\lambda_2^a \alpha_{mol}(\lambda_1) - 2\lambda_1^a \alpha_{mol}(\lambda_2) = N \cdot \Delta\sigma_{ray} \quad , \quad (\text{A.43})$$

mit

$$\Delta\sigma_{ray} = 2\lambda_2^a \sigma_{ray}(\lambda_1) - 2\lambda_1^a \sigma_{ray}(\lambda_2) \quad . \quad (\text{A.44})$$

Dann gilt

$$\delta R = R \sqrt{\left(\frac{\delta N}{N}\right)^2 + \left(\frac{\delta \Delta\sigma_{ray}}{\Delta\sigma_{ray}}\right)^2} \quad . \quad (\text{A.45})$$

Der Fehler der Rückstreuungkorrektur läßt sich ebenso wie beim DIAL nur durch Simulationsrechnungen bestimmen, da er wesentlich von der Genauigkeit in der Bestimmung des Aerosolprofils abhängt.

Allerdings enthält die berechnete Aerosolrückstreuung bereits einen statistischen Fehler, der groß werden kann, falls auch ein Raman-Signal zur Auswertung mit herangezogen wird. Deshalb soll an dieser Stelle der statistische Fehler in der Bestimmung der Aerosolrückstreuung für einen einfachen Fall abgeleitet werden. Unter Benutzung der Abkürzungen

$$A_i = P_N(\lambda_i, z) \exp\left(2 \int_0^z \alpha_{mol}(\lambda_i, \zeta) d\zeta\right) \quad , \quad i = 1, 2, 3 \quad , \quad (\text{A.46})$$

$$B_i = \beta_{mol}(\lambda_i, z) \quad , \quad i = 1, 2, 3 \quad (\text{A.47})$$

und den bereits definierten σ_i , $i = 1, 2, 3$, lautet die Dreiwellenlängengleichung für drei elastisch gestreute Signale

$$\left(\frac{A_1}{D_{aer}\lambda_1^b + B_1}\right)^{\sigma_1} \cdot \left(\frac{A_2}{D_{aer}\lambda_2^b + B_2}\right)^{\sigma_2} \cdot \left(\frac{A_3}{D_{aer}\lambda_3^b + B_3}\right)^{\sigma_3} = 1 \quad . \quad (A.48)$$

Für den Fall, in dem eine Raman-Lidar-Gleichung miteinbezogen wird kann man einfach statt $D_{aer}\lambda_3^b + B_3$ im Nenner des dritten Terms $\beta_R(\lambda_1)$ einsetzen, überall wo $2\lambda_3$ steht setzt man $\lambda_1 + \lambda_R$ ein und statt $\sigma_{O_3}(\lambda_3)$ schreibt man $\sigma_{O_3}(\lambda_1) + \sigma_{O_3}(\lambda_R)$. Der weitere Fortgang ist dann äquivalent.

Durch Logarithmusbildung erhält man

$$\sigma_1 \ln \left(\frac{A_1}{D_{aer}\lambda_1^b + B_1}\right) + \sigma_2 \ln \left(\frac{A_2}{D_{aer}\lambda_2^b + B_2}\right) + \sigma_3 \ln \left(\frac{A_3}{D_{aer}\lambda_3^b + B_3}\right) = 0 \quad . \quad (A.49)$$

Die Quotienten im Logarithmus können aufgelöst werden und die Nenner auf die andere Seite der Gleichung geschrieben werden.

$$\begin{aligned} \sigma_1 \ln A_1 + \sigma_2 \ln A_2 + \sigma_3 \ln A_3 = \\ \sigma_1 \ln(D_{aer}\lambda_1^b + B_1) + \sigma_2 \ln(D_{aer}\lambda_2^b + B_2) + \sigma_3 \ln(D_{aer}\lambda_3^b + B_3) \quad . \quad (A.50) \end{aligned}$$

An dieser Stelle läßt sich die Gleichung nicht weiter nach D_{aer} auflösen, da der Summand im Logarithmus nicht weiter aufzulösen ist. Zur Berechnung des statistischen Fehlers von D_{aer} kann man aber eine Näherung machen, die eine analytische Lösung der Gleichung ermöglicht. Für viele Fälle wird die Aersolpartikelrückstreuung sehr viel kleiner als die Rayleigh-Streuung sein ($\frac{D_{aer}\lambda_i^b}{B_i} = \frac{\beta_{aer}}{\beta_{mol}} < 0.2$), dann läßt sich der Logarithmus wie folgt in eine Reihe entwickeln, die nach dem ersten Glied abgebrochen wird:

$$\begin{aligned} \ln(D_{aer}\lambda_i^b + B_i) &= \ln\left(B_i \left(\frac{D_{aer}\lambda_i^b}{B_i} + 1\right)\right) \\ &= \ln B_i + \ln\left(\frac{D_{aer}\lambda_i^b}{B_i} + 1\right) \\ &\approx \ln B_i + \frac{D_{aer}\lambda_i^b}{B_i} \quad (A.51) \end{aligned}$$

Diese Näherung enthält bis $D_{aer}\lambda_i^b/B_i < 0.2$ einen Fehler von ca. 10 %, für kleine β_{aer} existiert also eine direkte Lösung für D_{aer} . Allerdings sind die Fälle bei denen das Lösungsverfahren mit drei Wellenlängen angewandt werden soll, solche mit hohem β_{aer} für die diese Näherung nicht gilt.

Man erhält aus Gleichung (A.50)

$$\sigma_1 \ln \frac{A_1}{B_1} + \sigma_2 \ln \frac{A_2}{B_2} + \sigma_3 \ln \frac{A_3}{B_3} = D_{aer} \left(\frac{\sigma_1 \lambda_1^b}{B_1} + \frac{\sigma_2 \lambda_2^b}{B_2} + \frac{\sigma_3 \lambda_3^b}{B_3} \right) \quad , \quad (A.52)$$

also

$$D_{aer} = \frac{1}{\frac{\sigma_1 \lambda_1^b}{B_1} + \frac{\sigma_2 \lambda_2^b}{B_2} + \frac{\sigma_3 \lambda_3^b}{B_3}} \cdot \left(\sigma_1 \ln \frac{A_1}{B_1} + \sigma_2 \ln \frac{A_2}{B_2} + \sigma_3 \ln \frac{A_3}{B_3} \right) \quad . \quad (A.53)$$

In die Berechnung des statistischen Fehlers gehen nur die Signale P_i ein, die in den A_i stehen. Alle im Logarithmus stehenden Faktoren lassen sich in eine Summe von Logarithmen

auftrennen, so daß für die statistischen Fehler durch die einzelnen Signale gilt:

$$\begin{aligned}\delta_i^{stat} D_{aer} &= \frac{\partial D_{aer}}{\partial P_i} \delta P_i = \frac{\partial}{\partial P_i} \left(\frac{1}{\frac{\sigma_1 \lambda_1^b}{B_1} + \frac{\sigma_2 \lambda_2^b}{B_2} + \frac{\sigma_3 \lambda_3^b}{B_3}} \cdot \sigma_i \ln P_i \right) \delta P_i \\ &= \frac{1}{\frac{\sigma_1 \lambda_1^b}{B_1} + \frac{\sigma_2 \lambda_2^b}{B_2} + \frac{\sigma_3 \lambda_3^b}{B_3}} \cdot \sigma_i \frac{\delta P_i}{P_i} .\end{aligned}\quad (\text{A.54})$$

Als Gesamtfehler erhält man

$$\delta^{stat} D_{aer} = \frac{1}{\frac{\sigma_1 \lambda_1^b}{B_1} + \frac{\sigma_2 \lambda_2^b}{B_2} + \frac{\sigma_3 \lambda_3^b}{B_3}} \cdot \sqrt{\sum_{i=1}^3 \left(\sigma_i \frac{\delta P_i}{P_i} \right)^2} .\quad (\text{A.55})$$

A.5 Raman-DIAL

1. Statistischer Fehler

Der statistische Fehler in der Ozondichte ergibt sich mit $z_2 - z_1 = \Delta z$ und der Annahme, daß die Signale nur der Poissonstatistik unterliegen (also $\delta P = \sqrt{P}$) zu

$$\begin{aligned}\delta N_{O_3}^{stat}(z) &= \\ &= \frac{1}{\Delta \sigma \Delta z} \left(\sqrt{K_2^2 \left(\left(\frac{\delta P_{R_2}(z_2)}{P_{R_2}(z_2)} \right)^2 + \left(\frac{\delta P_{R_2}(z_1)}{P_{R_2}(z_1)} \right)^2 \right) + K_1^2 \left(\left(\frac{\delta P_{R_1}(z_2)}{P_{R_1}(z_2)} \right)^2 + \left(\frac{\delta P_{R_1}(z_1)}{P_{R_1}(z_1)} \right)^2 \right)} \right) \\ \delta N_{O_3}^{stat}(z) &= \frac{1}{\Delta \sigma \Delta z} \left(\sqrt{\frac{K_2^2}{P_{R_2}(z_2)} + \frac{K_2^2}{P_{R_2}(z_1)} + \frac{K_1^2}{P_{R_1}(z_2)} + \frac{K_1^2}{P_{R_1}(z_1)}} \right) .\end{aligned}\quad (\text{A.56})$$

Für langsam abfallende Signale und kleine Höhenstufen, über die die Ableitung gebildet wird kann dies wie folgt genähert werden

$$\delta N_{O_3}^{stat}(z) = \frac{\sqrt{2}}{\Delta \sigma \Delta z} \left(\sqrt{\frac{K_2^2}{P_{R_2}(z)} + \frac{K_1^2}{P_{R_1}(z)}} \right) ,\quad (\text{A.57})$$

da dann $\frac{1}{P_{R_i}(z_1)} + \frac{1}{P_{R_i}(z_2)} \approx \frac{2}{P_{R_i}(z)}$ wegen $z \approx \frac{z_1+z_2}{2}$.

Durch zeitliche und räumliche Mittelung kann dieser Fehler weiter verringert werden. Zeitliche Mittelung über ave Laserpulse verringert den Fehler um $ave^{-\frac{1}{2}}$, räumliche Mittelung über das h -fache des Intervalls Δz verringert ihn sogar um $h^{-\frac{3}{2}}$, da nicht nur mehr Photonen zusammen gemittelt werden, sondern auch das Ableitungsintervall Δz um den Faktor h grösser wird.

2. Fehler in der Anzahldicke

Alle Fehler der Korrekturterme hängen im wesentlichen vom Fehler in der Bestimmung der Anzahldicke der Luft δN ab:

Der Rückstreuungfehler δB beträgt

$$\delta B = \frac{\sqrt{2}(K_1 - K_2) \delta N}{\Delta z N} .\quad (\text{A.58})$$

3. Fehler in der Abstandsbestimmung

Bildet man die Ableitung in der Raman-DIAL-Gleichung wie üblich als Differenzenquotient, so gilt

$$N_{O_3}(z) = \frac{1}{\Delta\sigma} \times \left(K_2 \left(\frac{\ln(P_{R_2}(z_2)z_2^2) - \ln(P_{R_2}(z_1)z_1^2)}{\Delta z} \right) - K_1 \left(\frac{\ln(P_{R_1}(z_2)z_2^2) - \ln(P_{R_1}(z_1)z_1^2)}{\Delta z} \right) + B + R + O \right) \quad (A.59)$$

Daraus folgt

$$\begin{aligned} \delta N_{O_3}^{z_2}(z) &= \frac{\partial N_{O_3}}{\partial z_2} \delta z \\ &= \frac{1}{\Delta\sigma} \left(\frac{2 K_2}{z_2 \Delta z} - \frac{2 K_1}{z_2 \Delta z} \right) \delta z \\ &= \frac{2(K_2 - K_1)}{z_2 \Delta\sigma \Delta z} \delta z \quad (A.60) \end{aligned}$$

Analog bildet man die partielle Ableitung nach z_1 und erhält als näherungsweise Gesamtfehler

$$\delta N_{O_3}^z(z) = \frac{2\sqrt{2} (K_2 - K_1)}{z_2 \Delta\sigma \Delta z} \delta z \quad (A.61)$$

4. Fehler in der Rayleigh-Korrektur

Der Fehler in der Rayleigh-Korrektur beträgt

$$\delta R = \left((K_2 - K_1)\sigma_{ray}(\lambda_{on}, z) + K_2\sigma_{ray}(\lambda_{R_2}, z) - K_1\sigma_{ray}(\lambda_{R_1}, z) \right) \delta N \quad (A.62)$$

wobei $\alpha_{mol}(\lambda, z) = \sigma_{ray}(\lambda)N(z)$ und der Fehler in der Bestimmung des Rayleigh-Absorptionsquerschnitts σ_{ray} vernachlässigbar ist.

5. Fehler in der Sauerstoffkorrektur

Die Sauerstoffkorrektur stellt den problematischsten Korrekturterm dar, da es nur ungenügend Informationen über den Absorptionsquerschnitt des Sauerstoffs im Ultraviolett gibt. Zudem ist die Korrektur recht groß, so daß auch kleine Fehler in der Anzahldichte des Sauerstoffs wesentlich zum Gesamtfehler beitragen können.

Der Fehler der Sauerstoffkorrektur beträgt

$$\delta O = \sqrt{\left(c \delta N \right)^2 + N(z) \left((K_2 - K_1)\delta\sigma_{O_2}(\lambda_{on}) + K_2\delta\sigma_{O_2}(\lambda_{R_2}) - K_1\delta\sigma_{O_2}(\lambda_{R_1}) \right)^2} \quad (A.63)$$

$$c = (K_2 - K_1)\sigma_{O_2}(\lambda_{on}) + K_2\sigma_{O_2}(\lambda_{R_2}) - K_1\sigma_{O_2}(\lambda_{R_1}) \quad (A.64)$$

Er spielt zwar nur für Wellenlängen kleiner als 270 nm eine Rolle, allerdings muß beim Raman-DIAL mindestens die online Wellenlänge in diesem Bereich liegen, wenn das Verfahren auch bei Tageslicht durchführbar sein soll.

Anhang B

Verzeichnis der Aerosolmessungen

1998						
Woche	Datum	Grenz- / Aerosol- schichthöhe [m]	Meß- klasse	Opt. Dicke PBL	Ae aus OD [10 ⁻⁴ m ⁻¹]	Gesamt OD
1	5.1.	600	2	–	–	–
2	12.1.	1200	0	0.26	2.2	0.36
3	19.1.	–	–	–	–	–
4	26.1.	900	0	0.08	0.9	0.08
5	2.2	–	–	–	–	–
6	9.2.	900	0	0.11	1.2	0.17
7	16.2.	–	–	–	–	–
8	23.2.	600	2	–	–	–
9	2.3.	900	2	0.13	1.4	0.13
10	9.3.	800	1	0.07	1.0	0.15
11	16.3.	–	–	–	–	–
12	23.3.	1600	0	0.30	1.9	0.50
13	30.3.	1000/2600	0	0.34	3.4	0.54
14	6.4.	2500	0	0.52	2.1	0.60
15	13.4.	–	–	–	–	–
16	20.4.	–	–	–	–	–
17	27.4.	–	–	–	–	–
18	4.5.	800	0	0.09	1.8	0.16
19	11.5.	1800/3100	0	0.61	3.2	0.75
20	18.5.	1900	0	0.32	1.7	0.45
21	25.5.	700	2	–	–	–
22	1.6.	–	–	–	–	–
23	8.6.	–	–	–	–	–
24	15.6.	1300	2	0.19	1.5	0.20
25	22.6.	600	–	–	–	–
LACE'98						
35	31.8.	–	–	–	–	–
36	7.9.	1200/2800	0	0.46	3.8	0.71
37	14.9.	1100/2200	0	0.38	3.5	0.53
38	21.9.	1200	0	0.87	7.3	0.96
39	28.9.	–	–	–	–	–

40	5.10.	900	2	0.17	1.9	0.17
41	12.10.	1500	0	0.07	0.5	0.13
42	19.10.	1200	0	0.31	2.6	0.34
43	26.10.	–	–	–	–	–
44	2.11.	900	0	0.20	2.2	0.23
45	9.11.	–	–	–	–	–
46	16.11.	1900	2	0.23	1.2	0.23
47	23.11.	1000	2	0.06	0.6	0.06
48	30.11.	–	–	–	–	–
49	7.12.	1000	2	0.06	0.7	0.06
50	14.12.	–	–	–	–	–
51	21.12.	1100	0	0.06	0.5	0.09

Tabelle B.1: Meßtermine für Aerosolextinktion am Standort Hamburg 1998. Es bedeuten: OD: Optische Dicke, PBL: planetary boundary layer (Grenzschicht), Ae: Aerosolextinktion, Ae aus OD: mittlere Aerosolextinktion in der Grenzschicht.

1999						
Woche	Datum	Grenz- / Aerosol- schichthöhe [m]	Meß- klasse	Opt. Dicke PBL	Ae aus OD [10 ⁻⁴ m ⁻¹]	OD gesamt
1	4.1.	–	–	–	–	–
2	11.1.	–	–	–	–	–
3	18.1.	350	0	< 0.1	n. ber.	< 0.1
4	25.1.	–	–	–	–	–
5	1.2.	–	–	–	–	–
6	8.2.	–	–	–	–	–
7	15.2.	–	–	–	–	–
8	22.2.	1000	0	0.06	0.4	0.06
9	1.3.	–	–	–	–	–
10	8.3.	1400	2	0.15	1.1	0.18
11	15.3.	700	2	–	–	–
12	22.3.	1200	1	0.21	1.8	0.26
13	29.3.	1300	0	0.19	1.6	0.25
14	5.4.	–	–	–	–	–
15	12.4.	900	2	0.21	2.3	0.29
16	19.4.	900/1700	0	0.17	1.9	0.22
17	26.4.	800/2500	0	0.15	1.7	0.37
18	3.5.	900	0	0.11	1.2	0.21
19	10.5.	–	–	–	–	–
20	17.5.	1600	0	0.14	0.9	0.19
21	24.5.	–	–	–	–	–
22	31.5.	1800	0	0.49	2.7	0.53
23	7.6.	900/2700	0	0.1	1.1	0.31
24	14.6.	1600	0	0.43	2.7	0.48
25	21.6.	900	0	0.1	1.1	0.15
26	28.6.	1600	0	0.30	1.9	0.42

	5.7. - 19.7.	Laser defekt				
30	26.7.	1700	0	0.28	1.6	0.34
31	2.8.	1100/2600	0	0.30	2.7	0.58
32	9.8.	800	2	—	—	—
33	16.8.	2000	1	0.68	3.4	0.81
34	23.8.	1600	2	0.25	1.6	0.26
35	30.8.	1800	2	0.95	5.3	0.99
36	6.9.	2600	0	0.88	3.4	0.92
37	13.9.	1000/3500	0	0.37	3.7	0.86
38	20.9.	2100	0	0.95	4.5	
	27.9. - 4.10.	Laser defekt				
41	11.10.	1100	0	0.20	1.8	0.36
42	18.10.	1900	0	0.20	1.1	0.26
43	25.10.	700	0	0.06	0.9	0.12
44	1.11.	1000	1	0.06	0.6	0.13
45	8.11.	1100	0	0.33	3.0	0.38
46	15.11.	900	0	0.16	1.8	0.23
47	22.11.	700	0	0.24	3.4	0.34
48	29.11.	—	—	—	—	—
51	20.12.	1100	0	0.15	1.4	0.20

Tabelle B.2: Meßtermine für Aerosolextinktion am Standort Hamburg 1999. Es bedeuten: OD: Optische Dicke, PBL: planetary boundary layer (Grenzschicht), Ae: Aerosolextinktion, Ae aus OD: mittlere Aerosolextinktion in der Grenzschicht.

Literaturverzeichnis

- Acker, K., Wieprecht, W., Möller, D., Mauersberger, G., Naumann, S. und Oestreich, A. (1995). Evidence of ozone destruction in clouds. *Naturwissenschaften*, 82:86 – 89.
- Ackermann, J. (1998). The extinction-to-backscatter ratio of tropospheric aerosols: A numerical study. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 15:1043 – 1050.
- Andreae, M. O. und Crutzen, P. J. (1997). Atmospheric aerosols: Biogeochemical sources and their role in atmospheric chemistry. *Science*, 276:1052–1058.
- Ansmann, A., Wandinger, U., Riebesell, M., Weitkamp, C. und Michaelis, W. (1992). Independent measurement of extinction and backscatter profiles in cirrus clouds by using a combined Raman elastic-backscatter lidar. *Applied Optics*, 31:7113–7131.
- Arshinov, Y. F. und Bobrovnikov, S. M. (1983). Remote determination of the atmospheric temperature by a lidar measurement employing the rotational Raman scattering spectrum. *Izvestiya, Atmospheric and Oceanic Physics*, 19:319–322.
- Bissonnette, L. R. (1986). Sensitivity analysis of lidar inversion algorithms. *Applied Optics*, 25:2122–2125.
- BMBF (1996). Sommersmog. Druckschrift des Bundesministeriums für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie, Bonn.
- Bösenberg, J. (1997). Remote sensing of the troposphere using differential absorption lidar. MPI-Report 236, Max-Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg.
- Bösenberg, J. (1998). Ground-based differential absorption lidar for water vapor and temperature profiling: methodology. *Applied Optics*, 37:3845 – 3860.
- Bösenberg, J., Ancellet, G., Apituley, A., Bergwerff, H., von Cossart, G., Edner, H., Fiedler, J., Galle, B., de Jonge, C. N., Mellquist, J., Mitev, V., Schaberl, T., Sonnemann, G., Spaakman, J., Swart, D. J. P. und Wallinder, E. (1993). Tropospheric Ozone Lidar Intercomparison Experiment, TROLIX '91, Field Phase Report. MPI-Report 102, Max-Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg.
- Bösenberg, J., Brassington, D. und Simon, P., editors (1997a). *Instrument Development for Atmospheric Research and Monitoring. Lidar Profiling, DOAS and Tunable Diode Laser Spectroscopy*, Band 8 of *Transport and Chemical Transformation of Pollutants in the Troposphere*. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg.
- Bösenberg, J., Timm, R. und Wulfmeyer, V. (1997b). Study on retrieval algorithms for a backscatter lidar. Final report. MPI-Report 226, Max-Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg.

- Brassington, D. J. (1981). Sulphur dioxide absorption cross section measurements from 290 nm to 317 nm. *Applied Optics*, 20:3774–3779.
- Browell, E. V., Ismail, S. und Shipley, S. T. (1985). Ultraviolet DIAL measurements of O₃ profiles in regions of spatially inhomogeneous aerosols. *Applied Optics*, 24:2827–2836.
- Cann, M. W. P., Shinn, J. B. und Nicholls, R. W. (1984). Oxygen absorption in the spectral range 180–300 nm for temperatures to 3000 K and pressures to 50 atm. *Canadian Journal of Physics*, 62:1738–1751.
- Collis, R. T. H. und Russell, P. B. (1976). Lidar measurement of particles and gases by elastic backscattering and differential absorption. In Hinkley, E. D., editor, *Laser monitoring of the atmosphere*, Band 14 of *Topics in applied physics*. Springer Verlag, Berlin, Heidelberg.
- d’Almeida, G., Koepke, P. und Shettle, E. P. (1991). *Atmospheric aerosols: global climatology and radiative characteristics*. Deepak Publ., Hampton, Virginia, USA.
- Edlen, B. (1953). The dispersion of standard air. *Journal of the Optical Society of America*, 43:339.
- Elterman, L. (1968). UV, visible, and IR attenuation for altitudes to 50 km, 1968. Environmental Research Papers 285, AFCRL-68-0153, Air Force Cambridge.
- Etzkorn, T., Klotz, B., Sørensen, S., Patroescu, I. V., Barnes, I., Becker, K. H. und Platt, U. (1999). Gas-phase absorption cross sections of 24 monocyclic aromatic hydrocarbons in the UV and IR spectral ranges. *Atmospheric Environment*, 33:525 – 540.
- Fernald, F. G. (1984). Analysis of atmospheric lidar observations: Some comments. *Applied Optics*, 23:652–653.
- Fernald, F. G., Herman, B. M. und Reagan, J. A. (1972). Determination of aerosol height distributions by lidar. *Journal of Applied Meteorology*, 11:482–489.
- Finlayson-Pitts, B. J. und Pitts Jr., J. N. (1997). Tropospheric air pollution: Ozone, airborne toxics, polycyclic aromatic hydrocarbons, and particles. *Science*, 276:1045–1052.
- Grabbe, G. C. (1995). *Untersuchungen troposphärischen Ozons mit DIAL*. Dissertation, Universität Hamburg.
- Grabbe, G. C., Bösenberg, J., Dier, H., Görzdorf, U., Matthias, V., Peters, G., Schaberl, T. und Senff, C. (1996). Intercomparison of ozone measurements between lidar and ECC-Sondes. *Contributions to Atmospheric Physics*, 69(1):189–203.
- Graßl, H. (1988). What are the radiative and climatic consequences of the changing concentration of atmospheric aerosol particles? In Rowland, F. S. und Isaksen, I. S. A., editors, *The Changing Atmosphere*, Seite 187 – 199. John Wiley & Sons.
- Hale, G. M. und Querry, M. R. (1973). Optical constants of water in the 200nm to 200µm wavelength region. *Applied Optics*, 12:555–563.
- Hamatsu (1996). Photon counting using photomultiplier tubes. Technical Information.
- Hess, M., Köpke, P. und Schult, I. (1998). Optical properties of aerosols and clouds: The software package opac. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 79:831 – 844.

- Inaba, H. (1976). Detection of atoms and molecules by Raman-scattering and resonance fluorescence. In *E. D. Hinkley, Laser monitoring of the atmosphere*, Band 26, Seite 153 – 199. Springer-Verlag, Berlin.
- IPCC (1996). Climate change 1995: The science of climate change. Technical Summary of the Working Group I Report, World Meteorological Organization, Genf.
- Jaenicke, R. (1987). Aerosol physics and chemistry. In *Landolt-Börnstein: Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaft und Technik, Bd.4 Meteorologie, Teilbd. b: Physikalische und chemische Eigenschaften der Luft*, Seite 391–457. Springer Verlag.
- Johnson, F. A., Jones, R., McLean, T. P. und Pike, E. R. (1966). Dead-time corrections to photon counting distributions. *Physical Review Letters*, 16:589 – 592.
- Junge, E. (1963). *Air chemistry and radioactivity*. Academic Press, New York, London.
- Klett, J. D. (1981). Stable analytical inversion solution for processing lidar returns. *Applied Optics*, 20:211–220.
- Kohlrausch, F. (1968). *Praktische Physik*. Teubner Verlag, Stuttgart.
- Komhyr, W. (1969). Electrochemical concentration sondes for gas analysis. *Annales Geophysicae*, 25:203.
- Köpke, P., Hess, M., Schult, I. und Shettle, E. (1997). Global aerosol data set. MPI-Report 243, Max-Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg.
- Kottmeier, C. und Fay, B. (1998). Trajectories in the antarctic lower troposphere. *Journal of Geophysical Research*, 103, D9:10947 – 10959.
- Kovalev, V. A. und Moosmüller, H. (1994). Distortion of particulate extinction profiles measured with lidar in a two-component atmosphere. *Applied Optics*, 33:6499–6507.
- Krekov, G. (1993). Models of atmospheric aerosols. In Jennings, S. G., editor, *Aerosol Effects on Climate*, Seite 9 – 72. The University of Arizona Press, Tucson & London.
- Lambda Physik (1984). *Excimer Laser EMG 201 MSC, Instruction manual*. Göttingen.
- Lelieveld, J. und Crutzen, P. (1990). Influence of cloud photochemical processes on the tropospheric ozone. *Nature*, 343:227 –233.
- Liou, K. (1980). *An introduction to atmospheric radiation*. Academic Press, San Diego.
- Marini, A., Armandillo, E., Culoma, A. und Norrie, C. (1996). Spaceborne lidar activities at the European Space Agency. In Ansmann, A., Neuber, R., Rairoux, P. und Wandinger, U., editors, *Advances in Atmospheric Remote Sensing with Lidar*, Seite 209 – 212.
- Matsumoto, M. und Takeuchi, N. (1994). Effects of misestimated far-end boundary values on two common lidar inversion solutions. *Applied Optics*, 33:6451–6456.
- Matthias, V. (1993). Messung der atmosphärischen Ramanstreuung mit Hilfe eines UV-LIDAR-Systems. Diplomarbeit, Universität Hamburg.
- Matthias, V. und Bösenberg, J. (1998). Daytime measurements of aerosol particle extinction and ozone profiles with a combined elastic DIAL / Raman DIAL. In *19th International Laser Radar Conference, Annapolis, USA*.

- Matthias, V., Bösenberg, J. und Andersson, S. (1999). Vergleichsmessungen zwischen MPI Ozon-DIAL und Vaisala ECC-Sonde während BERLIOZ. Arbeitsergebnisse aus Forschung und Entwicklung 59, Deutscher Wetterdienst, Offenbach.
- Matthias, V., Bösenberg, J. und Wulfmeyer, V. (1994). Improvement of Ozone Measurements with DIAL by using an Additional Raman Channel. In *The Proceedings of EUROTRAC Symposium '94*, Seite 326–329, Garmisch-Partenkirchen.
- Matthijsen, J., Bultjes, P. J. H., Meijer, E. W. und Boersen, G. (1997). Modelling cloud effects on ozone on a regional scale: A case study. *Atmospheric Environment*, 31:3227 – 3238.
- Mie, G. (1908). Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen. *Annalen der Physik*, 25:377–455.
- Milton, M. J. T., Ancellet, G., Apituley, A., Bösenberg, J., Carnuth, W., Castagnoli, F., Trickl, T., Edner, H., Stefanutti, L., Schaberl, T., Sunesson, A. und Weitkamp, C. (1998). Raman-shifted laser sources suitable for differential-absorption lidar measurements of ozone in the troposphere. *Applied Physics*, B 66:105–113.
- Molina, L. T. und Molina, M. J. (1986). Absolute absorption cross sections of ozone in the 185- to 350-nm wavelength range. *Journal of Geophysical Research*, 91:14501–14508.
- Papayannis, A., Ancellet, G., Pelon, J. und Mégie, G. (1990). Multiwavelength lidar for ozone measurements in the troposphere and the lower stratosphere. *Applied Optics*, 29:467–476.
- Russell, P. B., Morley, B. M., Livingston, J. M., Grams, G. W. und Patterson, E. M. (1982). Orbiting lidar simulations. 1: Aerosol and cloud measurements by an independent-wavelength technique. *Applied Optics*, 21:1541–1553.
- Sasano, Y., Browell, E. V. und Ismail, S. (1985). Error caused by using a constant extinction/backscattering ratio in the lidar solution. *Applied Optics*, 24:3929–3932.
- Schaberl, T. (1990). Aufbau und Erprobung der Sende- und Empfangsoptik für ein Ozon-LIDAR unter Benutzung der stimulierten Raman-Streuung. Diplomarbeit, Universität Hamburg.
- Schaberl, T. (1995). *Messung des Ozonflusses in der unteren Troposphäre mit einem neuen Ozon-DIAL-System und einem Radar-Rass*. Dissertation, Universität Hamburg.
- Schenkel, A. und Broder, B. (1982). Interference of some trace gases with ozone measurements by the KI method. *Atmospheric Environment*, 16(9):2187–2190.
- Schneider, W., Moortgat, G. K., Tyndall, G. S. und Burrows, J. P. (1987). Absorption cross-sections of NO₂ in the UV and visible region (200-700 nm) at 298 K. *Journal of Photochemistry and Photobiology*, A 40:195–217.
- Shettle, E. P. und Fenn, R. W. (1976). Models of atmospheric aerosols and their optical properties. In *Optical properties in the atmosphere, AGARD Conference Proceedings, No.183, AGARD-CP-183*.
- Shettle, E. P. und Fenn, R. W. (1979). Models for the aerosols of the lower atmosphere and the effects of humidity variations on their optical properties. Env. Res. Papers, No. 676, Air Force Geoph. Lab., Proj. 7670, AFGL-TR-79-0214.
- Shiple, S. T., Tracy, D. H., Eloranta, E. W., Trauger, J. T., Sroga, J. T., Roesler, F. L. und Weinman, J. A. (1983). High spectral resolution lidar to measure optical scattering properties of atmospheric aerosols. 1: Theory and instrumentation. *Applied Optics*, 22:3716–3732.

- Sroga, J. T., Eloranta, E. W., Shipley, S. T., Roesler, F. L. und Tryon, P. J. (1983). High spectral resolution lidar to measure optical scattering properties of atmospheric aerosols. 2: Calibration and data analysis. *Applied Optics*, 22:3725–3732.
- Stohl, A. (1998). Computation, accuracy and applications of trajectories – a review and bibliography. *Atmospheric Environment*, 32:947 – 966.
- Takamura, T., Sasano, Y. und Hayasaka, T. (1994). Tropospheric aerosol optical properties derived from lidar, sun photometer, and optical particle counter measurements. *Applied Optics*, 33:7132 – 7140.
- Thomsen, O. (1990). Messung des Absorptionswirkungsquerschnitts von Schwefeldioxid im Wellenlängenbereich von 265 bis 298 nm. Diplomarbeit, GKSS-Forschungszentrum Geesthacht GmbH. GKSS-Veröffentlichung 90/E/36.
- Trakhovsky, E., Ben-Shalom, A., Oppenheim, U. P., Devir, A. D., Balfour, L. S. und Engel, M. (1989). Contribution of oxygen to attenuation in the solar blind UV spectral region. *Applied Optics*, 28:1588–1591.
- United Kingdom Photochemical Oxidants Review Group (1997). Ozone in the United Kingdom. Fourth Report of the Photochemical Oxidants Review Group, Air and Environment Quality Division, Department of the Environment, Transport and the Regions.
- Völger, P. (1993). Optische Eigenschaften von Aerosolpartikeln und deren Auswirkungen auf Ozonmessungen mit einem LIDAR. Diplomarbeit, Universität Hamburg.
- Völger, P., Bösenberg, J. und Schult, I. (1996). Scattering properties of selected model aerosols calculated at UV-wavelengths : Implications for DIAL measurements of tropospheric ozone. *Contributions to Atmospheric Physics*, 69(1):177–187.
- Wandinger, U., Mattis, I., Ansmann, A., Arshinow, Y., Brobovnikov, S. und Serikov, I. (1998). Tropospheric temperature profiling based on detection of stokes and anti-stokes rotational raman lines at 532 nm. In *19th International Laser Radar Conference, Annapolis, USA*, Seite 297 – 299.
- Withby, K. T. (1978). The physical characteristics of sulfur aerosols. *Atmospheric Environment*, 12:135 – 159.
- Yoshino, K., Esmond, J. R., Murray, J. E., Parkinson, W. H., Thorne, A. P., Learner, R. und Cox, G. (1995). Band oscillator strengths of the Herzberg I bands of O₂. *Journal of Chemical Physics*, 103:1243 – 1249.
- Yoshino, K., Murray, J. E., Esmond, J. R., Sun, Y., Parkinson, W. H., Thorne, A. P., Learner, R. und Cox, G. (1994). Fourier transform spectroscopy of the Herzberg I bands of O₂. *Canadian Journal of Physics*, 72:1101 – 1108.

Danksagung

Mein Dank gilt Herrn Dr. Jens Bösenberg, der diese Arbeit angeregt hat und mit vielen wichtigen Diskussionen und Fragen zu ihrem Gelingen beigetragen hat. Sein präziser Sachverstand und seine konstruktiven Bemerkungen waren mir in den letzten Jahren am Max-Planck-Institut für Meteorologie eine große Hilfe bei meinen wissenschaftlichen Arbeiten.

Herrn Prof. Dr. Graß danke ich für die Betreuung dieser Arbeit als Professor der Universität Hamburg.

Besonderer Dank gebührt Margrit Scheller, die mich bei vielen technischen Dingen, bei Feldexperimenten und den Routinemessungen hervorragend unterstützt hat und mir so entscheidende Freiräume zur Fertigstellung dieser Arbeit geschaffen hat.

Bei Holger Linné bedanke ich mich für die Bereitstellung einer analogen Datenerfassung und eines Photonzählers sowie für die von ihm geschriebenen Auswertprogramme. Hinzu kommen die anregenden Diskussionen über alles, was mit Computern und Elektronik zu tun hat.

Friedhelm Jansen danke ich für die aufmerksame Durchsicht dieser Arbeit und seine wertvollen Hinweise in Bezug auf Rechtschreibung und Zeichensetzung, Klaus Ertel hat mir mit seinen IDL-Kenntnissen bei einigen Darstellungen weitergeholfen. Bei der Lidar-Gruppe insgesamt möchte ich mich für das gute Arbeitsklima und alle kleinen Hilfen am Rande bedanken.

Ohne die fein- (und grob-) mechanischen Arbeiten der Werkstatt des MPI wäre diese Arbeit kaum zustande gekommen. Mein besonderer Dank gilt hier Volker Rohde und Sven Deinert, die entscheidende Arbeiten bei Feldexperimenten, beim Umbau des Lidar-Containers und wenn ich gerade mal schnell eine neue Halterung brauchte, geleistet haben.

Für die Bereitstellung von Vergleichsdaten bedanke ich mich bei Ulrich Leiterer und Victor Novikov (Sonnen- und Sternphotometer), sowie bei Sven Andersson (ECC-Sonde) vom Meteorologischen Observatorium Lindenberg. Bei Ulla Wandinger vom Institut für Troposphärenforschung (IfT) Leipzig bedanke ich mich für die Lidar-Vergleichsdaten und bei Ina Mattis für die Übermittlung von Trajektorien.

Die in dieser Arbeit verwendeten Rückwärtstrajektorien wurden dem MPI vom Deutschen Wetterdienst (DWD) im Rahmen des Aerosolforschungsschwerpunktes, Teilprojekt Lidarnetz zur Verfügung gestellt. Ich bedanke mich hier bei Barbara Fay.

Die Arbeit wurde teilweise gefördert durch das BMBF, Fördernummer 07AF108/7. Herzlichen Dank.

Am Schluß bedanke ich mich besonders bei Birte, die immer daran geglaubt und mich dabei unterstützt hat, daß aus „fast fertig“ doch noch „fertig“ wurde und bei meinen Kindern, die schon lange darauf warten, daß das „dicke Buch“ endlich mal geschrieben ist.

- EXAMENSARBEIT Nr. 59**
August 1998
Variability on decadal scales in Pacific sea surface temperatures and atmosphere ocean interaction in the coupled general circulation model ECHAM4/OPYC3
Andreas Bacher
- EXAMENSARBEIT Nr. 60**
August 1998
Development of a Process-Based Model to Derive Methane Emissions from Natural Wetlands for Climate Studies
Bernadette Walter
- EXAMENSARBEIT Nr. 61**
Dezember 1998
On the benefit of the adjoint technique for inversion of the atmospheric transport employing carbon dioxide as an example of a passive tracer
Thomas Kaminski
- EXAMENSARBEIT Nr. 62**
Januar 1999
Modellierung der Chemie der globalen Strato- und Troposphäre mit einem drei-dimensionalen Zirkulationsmodell
Benedikt Steil
- EXAMENSARBEIT Nr. 63**
Januar 1999
Ocean-atmosphere interactions on decadal timescales
Stephan Venzke
- EXAMENSARBEIT Nr. 64**
März 1999
Modes of Variability as Simulated by a Global Climate Model
Axel Timmermann
- EXAMENSARBEIT Nr. 65**
Juli 1999
Numerical Simulation of Scavenging Processes in Explosive Volcanic Eruption Clouds
Christiane Textor
- EXAMENSARBEIT Nr. 66**
Juli 1999
Grobstruktursimulation - eine Methode zur Berechnung turbulenter atmosphärischer Strömungen
Andreas Chlond
- EXAMENSARBEIT Nr. 67**
Dezember 1999
Satellitengestützte Abschätzung der Einflüsse von kühler Haut und Schaumbedeckung des Ozeans auf den globalen CO₂-Fluß zwischen Ozean und Atmosphäre
Stefan Ewald
- EXAMENSARBEIT Nr. 68**
Februar 2000
Die direkte Strahlungswirkung von Aerosolteilchen auf ein Klimamodell
Anke Maria Allner
- EXAMENSARBEIT Nr. 69**
Februar 2000
Räumliche und zeitliche Variabilität von Wasserisotopen im polaren Niederschlag
(Spatial and Temporal Variability of Water Isotopes in Polar Precipitation)
Martin Werner
- EXAMENSARBEIT Nr. 70**
März 2000
Bestimmung des turbulenten Impulsflusses mit Hilfe von Doppler- und Interferometriemessungen eines Radar-RASS-Systems
Lutz Hirsch
- EXAMENSARBEIT Nr. 71**
Mai 2000
Entwicklung und Test eines massenerhaltenden semi-Lagrangischen Transportverfahrens auf einer Kugel
Markus Peter Olk
- EXAMENSARBEIT Nr. 72**
Mai 2000
Quantification of Natural Climate Variability in Paleoclimatic Proxy Data Using General Circulation Models: Application to Glacier Systems
Bernhard K. Reichert

- EXAMENSARBEIT Nr. 73**
Mai 2000
Validation of Clouds in the ECHAM4 Model Using a Dynamical Adjustment Technique
Hans-Stefan Bauer
- EXAMENSARBEIT Nr. 74**
Juni 2000
The Dynamical Link Between the Troposphere and Stratosphere and its Potential to Affect Climate
Judith Perlwitz
- EXAMENSARBEIT Nr. 75**
Juli 2000
Fernerkundung von Eis- und Mehrschichtbewölkung über Meeresuntergrund aus Messungen rückgestreuter Solarstrahlung
Claudio Costanzo
- EXAMENSARBEIT Nr. 76**
Juli 2000
Large-scale SST variability in the midlatitudes and in the tropical Atlantic
Dietmar Dommenges
- EXAMENSARBEIT Nr. 77**
Juli 2000
HOAPS: Eine neue Klimatologie des Süßwasserflusses an der Meeresoberfläche abgeleitet aus Satellitendaten
Volker Jost
- EXAMENSARBEIT Nr. 78**
September 2000
The potential influence of natural climate variability and uncertainty in the design of optimal greenhouse gas emission policies
Victor Ocaña
- EXAMENSARBEIT Nr. 79**
Oktober 2000
Messungen des Reflexionsvermögen der Meeresoberfläche im infraroten Spektralbereich mit dem „Ocean Atmosphere Sounding Interferometer System“ (OASIS)
Lars Fiedler
- EXAMENSARBEIT Nr. 80**
November 2000
Vertikalmessungen der Aerosolextinktion und des Ozons mit einem UV-Raman-Lidar
Volker Matthias