

Laser-Fernerkundung der planetaren Grenzschicht

Dissertation
am Fachbereich Physik
der Freien Universität Berlin

vorgelegt von
Steffen Frey

Berlin, April 2002

Erster Gutachter: Professor Dr. Ludger Wöste
Zweiter Gutachter: Professor Dr. Klaus-Dieter Kramer
Datum der Disputation: 3. 6. 2002

Inhaltsverzeichnis

Einführung	1
Kapitel 1 Die planetare Grenzschicht	5
1.1 Zusammensetzung der Atmosphäre	6
1.1.1 Trockene Luft	6
1.1.2 Wasser	8
1.1.3 Aerosol	10
1.2 Die Schichtung der Erdatmosphäre	17
1.2.1 Luftdruck	18
1.2.2 Lufttemperatur	20
1.2.3 Stabilität der atmosphärischen Schichtung	22
1.3 Dynamik der Grenzschicht und Turbulenz	25
1.4 Strahlungsbilanz	28
1.4.1 Klimarelevanz von Spurengasen und Aerosol	30
1.5 Luftchemie in der planetaren Grenzschicht	35
1.5.1 Das photochemische Ausbreitungsmodell CALGRID	39
1.5.1.1 Bestimmung meteorologischer Parameter mit CALMET	42
1.5.2 Wirkung von Luftverunreinigungen auf Menschen und Pflanzen	47
Kapitel 2 Laser-Fernerkundung	51
2.1 Streuung von Licht in der Atmosphäre	51
2.1.1 Streuung an Luftmolekülen	53
2.1.1.1 Der Rayleigh-Streuquerschnitt	54
2.1.1.2 Absorption	58
2.1.1.3 Raman-Streuung	65
2.1.2 Aerosol-Streuung	76
2.1.2.1 Mie-Theorie	78
2.1.2.2 Modell der Aerosol-Streuung	84
2.1.3 Lichttransmission durch die turbulente planetare Grenzschicht	91
2.2 Laser-Fernerkundungsmethoden	93
2.2.1 Numerischer Umgang mit Rückstreusignalen	94
2.2.2 Elastische Rückstreusignale	97
2.2.2.1 Aerosol	100
2.2.2.2 Depolarisation	103
2.2.2.3 Spurengase	104
2.2.3 Raman-Rückstreusignale	108
2.2.3.1 Aerosol	111
2.2.3.2 Spurengase	112
2.2.3.3 Temperatur	118
2.2.4 Das Doppler-Lidar	123
2.3 Berechnung sekundärer Größen	124
2.3.1 Die Mischungsschichthöhe	124
2.3.2 Die Sichtweite	125
2.3.3 Aerosol-Größenverteilung und Brechzahl	127

Kapitel 3 Die Messgeräte	129
3.1 Bestandteile eines Lidar	130
3.1.1 Der Laser	130
3.1.2 Sendeoptik	132
3.1.3 Empfangsoptik	136
3.1.3.1 Das Teleskop	136
3.1.4 Tageslichtfilter	142
3.1.4.1 Monochromator	143
3.1.4.2 Interferenzfilter	143
3.1.5 Detektoren und digitale Erfassung der Messdaten	144
3.1.6 Infrastruktur	148
3.2 Die Lidar-Station Charité	149
3.2.1 Das Aerosol-Lidar der Charité-Station	150
3.2.2 Spurengas-Lidar	154
3.2.2.1 Der abstimmbare Zwei-Wellenlängen-Festkörperlaser	155
3.2.2.2 Signalempfang und Erfassung	159
3.3 Das Kilohertz-Lidar	161
3.3.1 Vorteile und Grenzen hoher Pulswiederholraten	161
3.3.2 Das Raman-Aerosol-Ozon-Wasserdampf-Lidar	164
3.3.2.1 Laser und Drei-Wellenlängen-Sendeoptik	165
3.3.2.2 Multispektrale Empfangsoptik	167
3.3.2.3 Signalaufnahme	169
3.3.3 Das 1-kHz-Absorptions-Lidar	172
3.3.3.1 Der Ce:LiCaF-Ultraviolett-Festkörperlaser	172
3.4 Ergänzende und Vergleichs-Messungen	174
3.4.1 Fesselballonsystem	175
3.4.2 Flugzeugmessungen	177
3.4.3 In-Situ-Ozon- und Aerosol-Messungen der Charité-Station	181
3.4.4 Berliner Luftgüte-Messnetz	182
Kapitel 4 Die planetare Grenzschicht aus der Sicht des Lidar	185
4.1 Aerosol	185
4.2 Mischungsschichthöhe	195
4.3 Spurengase	199
4.4 Temperatur	211
Zusammenfassung	213
Verzeichnis verwendeter Symbole	221
Literaturverzeichnis	225
Danksagung	235
Lebenslauf	239
Veröffentlichungen	240

Einführung

Die Menschen und mit ihnen alle anderen Lebewesen auf der Erde können seit der Industrialisierung der Produktion in zunehmendem Maße erleben, wie es ist, der Belastbarkeitsgrenze der überlebensnotwendigen natürlichen Ressourcen unseres Planeten näherzukommen [IPCC, 2001]. Der Chemie-Nobelpreisträger Prof. Paul J. Crutzen, ein führender Wissenschaftler auf dem Gebiet der Klima- und Umweltforschung, hat für unser Erdzeitalter den Namen „Anthropozän“ vorgeschlagen. Er will damit auf den dominierenden Einfluss der Menschheit auf die Entwicklung unseres Planeten aufmerksam machen. Erdzeitalter dauern für gewöhnlich zehntausende Jahre. Die Warmzeit der vergangenen zehn- bis zwölftausend Jahre wird Holozän genannt. Sie folgte auf eine ca. einhunderttausend Jahre dauernde Eiszeit mit extremen Schwankungen der Temperatur, des CO₂-Gehalts und anderer Parameter der Atmosphäre. Nicht zuletzt wegen dieser ausgesprochen günstigen Bedingungen in der letzten Zeit eroberten verschiedene hochentwickelte Lebensformen fast den gesamten Planeten und passten sich den regionalen, stabilen Lebensbedingungen an. Während der letzten 6 Jahrhunderte hat sich die Anzahl der Menschen verzehnfacht und nun die Marke von 6 Milliarden erreicht. Der Verbrauch natürlicher Ressourcen wuchs noch schneller als die Menschheit. Einige Generationen werden die fossilen Brennstoffe verbraucht haben, die hunderte Millionen Jahre für ihre Entstehung brauchten. Dabei werden Mengen an CO₂ und anderen anthropogenen Stoffen produziert, die alles bisher Dagewesene überbieten und das in einer Zeitspanne, die weit unterhalb des Auflösungsvermögens der Bestimmungsmethoden atmosphärischer Parameter vergangener Epochen liegt. Die Menge des durch Menschen erzeugten Schwefeldioxids von ca. 160 Teragramm/Jahr übersteigt die natürlichen Schwefelquellen bereits um über das Doppelte [Houghton et al., 1990]. Die Beispiele ließen sich fortsetzen, doch hier ist nicht der richtige Ort dafür. Sie sollen nur verdeutlichen, in welchem beängstigendem Maße menschliche Aktivitäten in der Lage sind, die Entwicklung der Erde mitzubeeinflussen.

Die Reaktion auf die beschriebenen Gefahren reicht von unsinniger Panik bis zu völliger

Ignoranz. Letzteres trifft insbesondere auf einige Regierungen zu, die den „Glauben“ an die Erhaltung des Lebensstandards Weniger durch Fortschritte in der technischen Entwicklung und rückhaltlose Ausbeutung natürlicher Ressourcen propagieren und damit angeblich auch die Mehrheitsmeinung ihrer Bevölkerung repräsentieren. Andere betrachten das Problem differenzierter und verlangen nach möglichst genauen Statusberichten und Vorhersagen der Zukunft unseres Planeten, damit ihre Entscheidungen effektiv Veränderungen herbeiführen, und sie nicht durch Fehlversuche die Unterstützung der Mehrheit der Bevölkerung auf diesem Weg verlieren.

Die Komplexität dieser Thematik erfordert eine fachübergreifende Behandlung. Verschiedene Naturwissenschaftler müssen ihre Analyseergebnisse und Messwerte in die Diskussion der Gesellschaftswissenschaften einbringen. Schon die Bearbeitung eines kleinen Teilproblems in der Atmosphärenforschung erfordert interdisziplinäres Arbeiten. Einerseits kann eine Methode zur Messung eines Parameters nur dann wirklich von Nutzen sein, wenn auch jemand danach fragt. Andererseits erfordert die Entwicklung der Methode auch ein umfangreiches Wissen über den Gegenstand der Messung, was aufgrund der hohen Spezialisierung, deren Grundstein in den modernen Naturwissenschaften bereits in der Ausbildung gelegt wird, nicht unbedingt vorausgesetzt werden kann. An dieser Schnittstelle sehe ich meine Verantwortung als Physiker, der ich mit dieser Arbeit versuche, gerecht zu werden.

Der Gegenstand meiner Untersuchungen ist die planetare Grenzschicht. Sie bildet den Übergang zwischen der vergleichsweise starren Erdkruste und der Atmosphäre und zeichnet sich im Vergleich zu anderen Schichten der planetaren Lufthülle durch eine besondere Vielfalt an Inhaltsstoffen und deren Vermischung durch Turbulenz aus. In ihr liegt der größte Teil der Biosphäre, die auch unser Lebensraum ist.

Als Messverfahren verwende ich die Laser-Fernerkundung zur räumlich aufgelösten Bestimmung von Aerosol-Eigenschaften, Spurengaskonzentrationen und Temperatur. Durch eine Analyse der Eigenschaften sowohl der planetaren Grenzschicht als auch der physikalischen Wechselwirkungen und der technisch-physikalischen Umsetzung in Messinstrumente sollen die bestehenden Grenzen der Methode ausgeleuchtet und gegebenenfalls erweitert werden.

Das *erste Kapitel* der Arbeit widmet sich Begriffen und Methoden zur Beschreibung der planetaren Grenzschicht und ihrer Einordnung in die Atmosphäre. Dabei bleibt es auf die

Themen beschränkt, die einen Einfluss auf die Entwicklung der Messmethode oder die Auswertung von Messergebnissen haben.

Die Turbulenz der Strömung sorgt in der planetaren Grenzschicht für eine Mischung der Luft mit Stoffen und Energie vom Erdboden. Dabei entsteht eine Struktur in der Verteilung, die insbesondere von regionalen Bedingungen und von der Tages- und Jahreszeit abhängig ist. Ab einer bestimmten Höhe wird die Atmosphäre dann wieder viel homogener und auch sauberer. Wegen ihrer Inhomogenität ist gerade der Zustand der planetaren Grenzschicht schwer durch einzelne Punktmessungen zu bestimmen.

Das *zweite Kapitel* ist der Laser-Fernerkundung gewidmet, deren Domäne die orts aufgelöste Messung von Zeitreihen einer Vielzahl von Parametern der Atmosphäre ist. Sie wird im Rahmen dieser Arbeit dazu benutzt, die sich ändernde dreidimensionale Struktur der planetaren Grenzschicht anhand von Aerosol, Spurengasen und Temperatur sichtbar zu machen. Dabei liegt der Schwerpunkt auf Methoden zur Trennung der sich unvermeidlich überlagernden Wechselwirkungen des verwendeten Lichts mit den unterschiedlichen Bestandteilen der Atmosphäre.

Wie in der Experimentalphysik üblich, beansprucht auch in der Laser-Fernerkundung die Entwicklung und der Aufbau der Messapparatur die meiste Arbeitszeit. Um die Besonderheiten der erforderlichen Laser, Optik und Elektronik geht es im *dritten Kapitel*. Außergewöhnlich für diese Art der Laser-Spektroskopie ist insbesondere, dass die Geräte nicht nur im Labor verwendet werden. Die eigentliche Messung findet nicht selten unter erschwerten äußeren Bedingungen statt und sie ist auch nicht unter ähnlichen Bedingungen wiederholbar, da die Atmosphäre nicht entsprechend beeinflussbar ist. Diesem Problem lässt sich nur durch konsequente Umsetzung der besten Ideen der angewandten Physik in handhabbare Technik begegnen.

Jeder Fehler bei der technisch-physikalischen Umsetzung wird sehr bald sichtbar, wenn mit dem Gerät gemessen wird. Deshalb, und um die Verwendung der Messergebnisse für Meteorologen und Chemiker zu demonstrieren, werden im *vierten Kapitel* einige Resultate präsentiert und mit den im ersten Kapitel vorgestellten Konzepten verglichen. Erst wenn die Ergebnisse und deren Fehlerbereiche die Anwender überzeugen können, ist das Ziel der Arbeit erreicht.

1 Die planetare Grenzschicht

Die unterste Schicht unserer Atmosphäre steht in direkter Wechselwirkung mit der Erdoberfläche. Sie ist im Sinne der Strömungsdynamik eine Grenzschicht und wird als *planetare Grenzschicht* (PGS oder auch PBL¹, ABL², MBL³) bezeichnet. Ihre Mächtigkeit ist einem täglichen Rhythmus unterworfen und schwankt zwischen einigen Metern und 5 km. Die Strömung der Luft ist hier turbulent. Dafür gibt es mechanische und thermische Ursachen, insbesondere Scherströmungen und Konvektion. Da sich unser Leben weitgehend innerhalb der planetaren Grenzschicht abspielt, sind wir mit ihren Eigenschaften gefühlsmäßig vertraut. Fragen nach ihrer vertikalen Struktur und Ausdehnung und danach, worin sie sich genau von anderen Schichten der Atmosphäre unterscheidet, können jedoch in zunehmendem Maße erst durch moderne Fernerkundungsmethoden seit der zweiten Hälfte des 20. Jahrhunderts beantwortet werden [Schwiesow, 1984].

Eine charakteristische Größe der planetaren Grenzschicht ist die *Mischungsschichthöhe*. Bis hier werden Emissionen vom Boden vertikal gut durchmischt und verteilt. Von der Bestimmung ihrer genauen räumlichen und zeitlichen Struktur hängt nicht nur die Qualität der Vorhersage meteorologischer Größen ab, sondern in ganz entscheidendem Maße auch die Vorhersage der Konzentration von unliebsamen Luftbeimengungen. Für gewöhnlich ist die Mischungsschicht wesentlich stärker verschmutzt als andere Luftschichten. Das Verdünnungspotenzial für bodennah emittierte Spurenstoffe ist von der vertikalen Mächtigkeit

-
1. Planetary Boundary Layer
 2. Atmospheric Boundary Layer
 3. Marine Boundary Layer

des konvektiv durchmischten Raumes am Tage abhängig. Eine niedrige Mischungsschichthöhe führt zu einer Ausprägung bzw. Verschärfung lufthygienisch ungünstiger Bedingungen. Die Mischungsschichthöhe ist eine wesentliche Skalierungsgröße bei der Modellierung des vertikalen turbulenten Austauschkoefizienten und der zugehörigen turbulenten Vertikalflüsse von Wärme, Feuchtigkeit, Impuls und Stoffkonzentrationen. Nach Sonnenuntergang sinkt die Obergrenze auf wenige hundert Meter ab, und es bleibt eine *nächtliche Residualschicht*. Sie ist mitbestimmend für die Menge des verfügbaren Ozons, das in der Phase des Übergangs von der nächtlichen stabilen zur tagsüber meist labil geschichteten planetaren Grenzschicht eingemischt werden kann. Dieser Vorgang ist für die Modellierung des Eintrages von Luftbeimengungen aus der freien Troposphäre in die planetare Grenzschicht bedeutsam. Die *Entrainment-Geschwindigkeit* ergibt sich aus der totalen zeitlichen Änderung der Mischungsschichthöhe.

In diesem Kapitel werden die für die planetare Grenzschicht charakteristischen dynamischen und chemischen Prozesse beschrieben, soweit sie von Belang für das Verständnis der Ergebnisse der verwendeten Laser-Fernerkundungsverfahren sind. Gute ausführliche Darstellungen finden sich in Lehrbüchern [Stull, 1989, Seinfeld und Pandis, 1997, Roedel, 1994, Arya, 1988].

1.1 Zusammensetzung der Atmosphäre

Bei der Betrachtung der Zusammensetzung der Atmosphäre empfiehlt sich eine Einteilung in trockene Luft, Wasser und atmosphärisches Aerosol.

1.1.1 Trockene Luft

Stickstoff und Sauerstoff haben zusammen einen Anteil von über 99 % am Volumen der trockenen Luft. Nimmt man noch das Edelgas Argon dazu, so sind bereits 99,97 % erreicht. Zusammen mit dem Kohlendioxid, dessen Konzentration viel niedriger und etwas variabler ist, sind 99,997 % der trockenen Luft erfasst. Die übrigen 0,003 %, bzw. 30 ppm sind allerdings wichtig, da es sich dabei um reaktive Gase, wie z. B. Ozon und Stickoxide, handelt. In Tabelle 1-1 sind die aktuellen mittleren Konzentrationen der wichtigsten Gase der Troposphäre aufgeführt. Neben dem Volumenanteil eines Gases gibt es noch eine Reihe weiterer sinnvoller Klassifizierungen, insbesondere nach der Masse, der Variabilität der Konzentration, den chemischen Bestandteilen, der Aufenthaltsdauer in der Atmosphäre oder der Herkunft (z. B. natürlich, anthropogen, biologisch, chemische Bildung in der Atmosphäre). Das

Gas	Name	Molekülmasse g/mol	Mischungsverhältnis	Aufenthaltsdauer
Ar	Argon	39,9	0,934 %	
Ne	Neon	20,2	18 ppm ^a	
Kr	Krypton	83,8	1,1 ppm	5 - 10 Jahre
Xe	Xenon	131,3	90 ppb	
He	Helium	4,0	5,2 ppm	
CO ₂	Kohlendioxid	44,0	355 ppm	
N ₂	Stickstoff	28,0	78,0840 %	20 Millionen Jahre
O ₂	Sauerstoff	32,0	20,9460 %	
CH ₄	Methan	16,0	1,72 ppm	3 Jahre
C ₂ H ₆	Ethan	30,1	0 - 100 ppb	
C ₂ H ₄	Ethen	28,1	0 - 100 ppb	
C ₃ H ₆	Propen	42,1	0 - 50 ppb	
C ₅ H ₈	Isopren	68,1	0,2 - 30 ppb	
CH ₃ COCH ₃	Azeton	58,1	0 - 10 ppb	
CFCl ₃	CFC-11	136,4	268 ppm	
CF ₂ Cl ₂	CFC-12	119,9	503 ppm	
CCl ₄	Tetrachlorkohlenstoff	153,8	132 ppm	
CH ₃ CCl ₃	Methyl-Chloroform	133,4	160 ppm	
CF ₂ HCl	HCFC-22	86,5	105 ppm	
CO	Kohlenmonoxid	28,0	180 ppb	0,35 Jahre
H ₂	Wasserstoff	2,0	580 ppb	< 200 Jahre
N ₂ O	Lachgas	44,0	311 ppb	
SO ₂	Schwefeldioxid	64,1	10 - 100 ppt	10 Tage
NH ₃	Amoniak	17,0	0,1 - 1 ppb	5 Tage
NO	Stickstoffmonoxid	30,0	1 ppt - 10 ppb	
NO ₂	Stickstoffdioxid	46,0	1 ppt - 10 ppb	2 - 8 Tage
O ₃	Ozon	48,0	10 - 10000 ppb	
H ₂ S	Schwefelwasserstoff	34,1	3,6 - 840 ppt	
H ₂ O	Wasser	18,0	~ 1 % sehr variabel	

Tab. 1-1 Gase der Atmosphäre (nach [Seinfeld und Pandis, 1997])

a. ppm: parts per million (z B. Molekül pro 10^{-6} Moleküle)

Mischungsverhältnis der chemisch stabilen Gase (wie Sauerstoff, Stickstoff und Edelgase) bleibt in der unteren Atmosphäre bis zu einer Höhe von ca. 80 km konstant.

Die trockene Luft kann als ideales Gas angesehen werden [Pruppacher und Klett, 1980]. Bei Standarddruck und -temperatur ($p_s = 1013,25 \text{ hPa}$, $T_s = 288,15 \text{ K}$) am Boden ergibt die Zustandsgleichung eine Konzentration von $2,546 \cdot 10^{19}$ Molekülen pro cm^3 .

$$p \cdot V = N \cdot k \cdot T \quad \text{oder} \quad \rho = \frac{p}{k \cdot T} \quad \text{Gl. 1-1}$$

Dabei bezeichnet p den Druck, V das Volumen, N die Anzahl der Moleküle, k die Boltzmann-Konstante, ρ die Dichte und T die Temperatur.

1.1.2 Wasser

Wasser tritt als einzige Substanz unter natürlichen Bedingungen auf der Erde in allen drei Aggregatzuständen auf. Als Wasserdampf wird die Gasphase und nicht etwa der Tröpfchennebel, wie er über dem Kochtopf entsteht, bezeichnet. Wegen des Wärmeumsatzes bei den Phasenübergängen und wegen seiner hohen Wärmekapazität spielt Wasser eine bedeutende Rolle in der Thermodynamik der Atmosphäre. Durch starke Absorptionsbanden im infraroten Bereich des Spektrums der Sonnen- und Erdstrahlung beeinflusst Wasserdampf entscheidend den Strahlungshaushalt der Erde.

Um für bestimmte thermodynamische Bedingungen den Wasserdampfgehalt der Atmosphäre zu berechnen, benötigt man den Sättigungsdampfdruck $p_{\text{H}_2\text{O}}^s$. Er ist etwas unterschiedlich über Oberflächen aus flüssigem Wasser und Eis (vgl. Abbildung 1-1). Für die Temperaturabhängigkeit des Sättigungsdampfdrucks über Wasser gilt näherungsweise die Magnus-Formel [Warnecke, 1991] mit den Konstanten a und b aus Tabelle 1-2:

$$p_{\text{H}_2\text{O}}^s [\text{hPa}] = 6,107 \cdot 10^{\frac{a \cdot T [^\circ\text{C}]}{b + T [^\circ\text{C}]}} \quad \text{Gl. 1-2}$$

	a	b / °C
bei Sättigung über Wasser		
oberhalb des Gefrierpunktes	7,5	235
unterhalb des Gefrierpunktes	7,6	240,7
bei Sättigung über Eis	9,5	265,5

Tab. 1-2 Konstanten der Magnus-Formel [Warnecke, 1991]

Die Temperatur, bei der Wasserdampfsättigung eintritt, wird Taupunkt-Temperatur τ genannt. Bei Radiosonden-Aufstiegen und anderen meteorologischen Wasserdampfmessun-

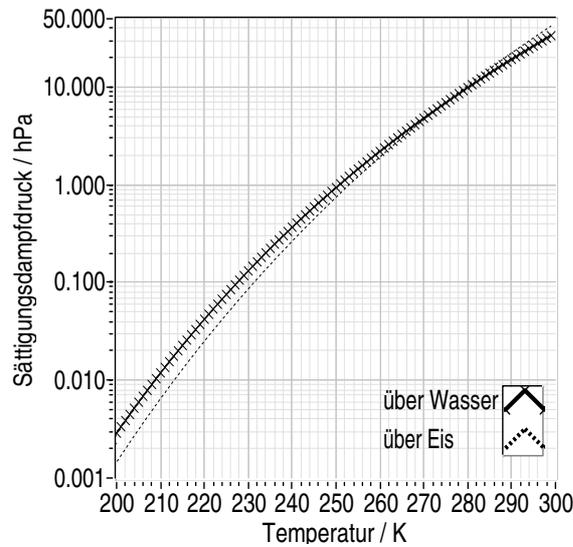


Abb. 1-1 Sättigungsdampfdruck über flüssigem und gefrorenem Wasser nach Gleichung 1-2

gen ist dies die am häufigsten bestimmte Messgröße. Für die Wasserdampfkonzentrationen werden auch folgende Größen häufig verwendet:

- Dampfdruck (Partialdruck des Wasserdampfes): $p_{\text{H}_2\text{O}} / \text{hPa}$
- relative Luftfeuchtigkeit: $\text{RH} / \% = p_{\text{H}_2\text{O}} / p_{\text{H}_2\text{O}}^{\text{S}} \cdot 100$
- Mischungsverhältnis: $\xi_{\text{H}_2\text{O}} / \text{ppm} = 10^4 \cdot \text{RH} \cdot p_{\text{H}_2\text{O}}^{\text{S}} / p$

Feuchte Luft hat bei gleicher Temperatur und gleichem Druck eine geringere Dichte als trockene Luft. Die Differenz wird durch die Einführung der virtuellen Temperatur T_{V} in der Gasgleichung ausgeglichen [Warnecke, 1991]:

$$\rho = \frac{p}{k \cdot T \cdot [1 - (3/8 \cdot p_{\text{H}_2\text{O}}/p)]^{-1}} = \frac{p}{k \cdot T_{\text{V}}}, \quad T_{\text{V}} = \frac{T}{1 - (3/8 \cdot p_{\text{H}_2\text{O}}/p)}. \quad \text{Gl. 1-3}$$

Die virtuelle Temperatur T_{V} ist die Temperatur, die ein Volumen trockener Luft annehmen müsste, um bei gleichem Druck die gleiche Dichte zu haben wie feuchte Luft.

Für die Berechnung der Streuintensität von Laserstrahlung in der Atmosphäre benötigt man das Dichteprofil. Wenn die Messungen von Radiosonden, die täglich an vielen Stellen der Erde durchgeführt werden, zur Berechnung benutzt werden, bietet sich das Konzept der virtuellen Temperatur an, um die Dichteschwankungen durch inhomogene Wasserdampfverteilung zu berücksichtigen. In § 1.1.3 wird das Aufquellen des Aerosols in feuchter Luft behandelt. Die dadurch hervorgerufenen Veränderungen sind auch bei der Simulation von Laserlicht-Streuung nicht vernachlässigbar.

1.1.3 Aerosol

Neben den gasförmigen Bestandteilen kommen in der Atmosphäre auch Partikel vor, die sehr viel größer sind als Einzelmoleküle, aber noch so klein, dass sie wegen ihrer geringen Sinkgeschwindigkeit lange schweben. Die Größe dieser Partikel liegt in der Troposphäre zwischen 10 nm und 100 μm und ihre Konzentration variiert zwischen 10^2 und 10^5 pro cm^{-3} . Diese Schwebeteilchen werden *atmosphärisches Aerosol*, im Folgenden kurz *Aerosol*, genannt. In Abbildung 1-3 sind Teilchengrößenverteilungen atmosphärischer Aerosol-Typen [Jänicke, 1993] dargestellt. Man erkennt hier, dass Partikel mit einem Radius von ca. 0,1 μm besonders häufig vorkommen, größere Partikel als 10 μm hingegen äußerst selten. Ihre Sinkgeschwindigkeit ist so groß, dass sie schon nahe der Quelle wieder zur Erdoberfläche zurückkehren. Auch sehr kleine Partikel kommen nicht häufig vor, da sie sich schnell zu größeren zusammenlagern. Die Aerosol-Konzentration ist in der planetaren Grenzschicht am höchsten und nimmt darüber stark ab. Laser-Fernerkundungsverfahren sind prädestiniert, die optischen und mikrophysikalischen Eigenschaften dieses sehr ungleichmäßig verteilten Bestandteils der Atmosphäre zu untersuchen. Auch Messungen anderer Größen (z. B. Spurengaskonzentrationen) mit diesen Messverfahren erfordern Kenntnisse über die Streueigenschaften des Aerosols. An dieser Stelle werden zunächst wichtige Eigenschaften wie Zusammensetzung und Größenspektrum behandelt, bevor im nächsten Kapitel in § 2.1.2 die Lichtstreuung betrachtet wird.

Nun zunächst zur Entstehung von Aerosol. Grundsätzlich kann es auf zwei verschiedene Arten in die Atmosphäre gelangen.

- Zum einen entsteht Aerosol durch *homogene Nukleation*, d. h. durch Kondensation übersättigter Dämpfe. Dabei kann es sich z. B. um Schwefeldioxid handeln, aus dem sich Schwefelsäure bildet. Eine andere wichtige Reaktion beginnt mit der Bildung von atomarem Sauerstoff und Hydroxylradikalen (OH) bei der Umwandlung von Stickoxiden zu Ozon. Diese reaktiven Substanzen oxidieren dann die in Abgasen enthaltenen Kohlenwasserstoffe und bilden eine Vielzahl von organischen Verbindungen wie z. B. Säuren, Peroxide und Aldehyde. Die zum Teil als übersättigte Dämpfe vorliegenden Reaktionsprodukte kondensieren zu Aerosol und bilden die als Los-Angeles-Smog¹ berüchtigte giftige und trübe Luftbrühe. Die durch homogene Kondensation entstandenen Primärteilchen stellen die kleinste Fraktion im Größenspektrum des Aerosols.

1. SMOG: SMOke + foG

- Zum anderen führt Aufwirbelung von Material von der Erdoberfläche, wobei es sich z. B. um Mineralstaub oder Seesalz-Spray handeln kann, zur Aerosolbildung. Dieser Vorgang wird als *Dispersion* bezeichnet. So gebildetes Aerosol stellt mit Durchmessern zwischen 1 und 20 μm die größeren Partikel im Größenspektrum.

Für die Partikelbildung durch homogene Nukleation ist die Überschreitung einer gewissen Mindestgröße einer zufälligen Ansammlung aus mehreren Molekülen notwendig. Das kann durch thermodynamische Betrachtung des Prozesses verstanden werden. Damit das Partikel spontan weiter wächst, muss die freie Enthalpie $G = U + p \cdot V - T \cdot S$ bei dem Prozess abnehmen. Dabei ist U die innere Energie, V das Volumen und S die Entropie. Für die Veränderung der freien Enthalpie bei der Kondensation gilt folgende Gleichung [Roedel, 1994]:

$$\Delta G = -N \cdot k \cdot T \cdot \ln \frac{p_x}{p_x^s} + \sigma \cdot A = -\frac{4\pi r^3 \cdot \rho_{\text{Fl}}}{3M} \cdot R \cdot T \cdot \ln \frac{p_x}{p_x^s} + 4\pi \cdot r^2 \cdot \sigma. \quad \text{Gl. 1-4}$$

Dabei steht p_x für den Partial- und p_x^s für den Sättigungsdampfdruck der Substanz x , N für die Anzahl der kondensierten Moleküle, σ für die Oberflächenspannung, A für die Oberfläche, ρ_{Fl} für die Dichte der Tröpfchenflüssigkeit, M für die Molmasse und R für die Gaskonstante. Durch Berechnung des Sattelpunktes der freien Enthalpie ($d\Delta G/dr|_{r=r^*} = 0$) erhält man das kritische Dampfdruckverhältnis $(p_x/p_x^s)^*$ bzw. den kritischen Radius r^* für die Nukleation.

$$r^* = \frac{2 \cdot \sigma \cdot M}{R \cdot T \cdot \rho_{\text{Fl}} \cdot \ln(p_x/p_x^s)^*}, \quad \frac{p_x}{p_x^s} = e^{\frac{2\sigma M}{RT\rho_{\text{Fl}}r^*}} \quad \text{Gl. 1-5}$$

Dieser Zusammenhang ist auch als Kelvin-Gleichung bekannt. Kommt es durch eine Überschreitung des kritischen Radius zur Nukleation, ist ein neues Partikel geboren.

Durch Nukleation und Dispersion entsteht also das Primär-Aerosol. Einmal gebildet, führen *Koagulation, heterogene Kondensation, Wolken- und Nebelbildung* und *chemische Reaktionen* zur allmählichen Veränderung. Entstehen keine kleinen Partikel mehr durch Nukleation, so verschwindet der Nukleationsmode, die kleinste Fraktion aus der Größenverteilung, da die Teilchen durch Koagulation anwachsen. An seiner Abwesenheit erkennt man älteres Aerosol. Das Aerosol mit den größten Teilchendurchmessern ist durch Dispersion in die Atmosphäre gelangt. Je größer die Partikel werden, desto schneller sinken sie nach unten.

So halten sich drei Größenklassen die Waage. Trimodale Spektren mit Nukleations-, Koagulations- und Dispersionsmode werden als Whitby-Spektren bezeichnet.

Woraus besteht nun das Aerosol? Aerosol hat gegenüber vielen Gasen eine sehr kurze Verweildauer in der Atmosphäre - die Lebenszeit einer Aerosol-Wolke liegt im Bereich von Minuten bis Wochen, im Gegensatz zu der von CO₂-Molekülen, die Jahrzehnte bis Jahrhunderte überleben. Daher ist die Zusammensetzung stark regional durch die kurze Entstehungsgeschichte geprägt. Die Partikel der *Nukleations- und Koagulations-Mode* enthalten vor allem Wasser, Sulfat-, Nitrat-, Ammonium- und Wasserstoff-Ionen, elementaren Kohlenstoff (Ruß), organische Verbindungen und Metalle (Pb, Cd, V, Ni, Cu, Zn, Mn, Fe u. a.). Sie entstehen bei Verbrennungsprozessen von Kohle, Öl, Benzin, Diesel und Holz, durch Feinstaub in der Nähe von Schmelzhütten und Mühlen und durch Gas-zu-Partikel-Konvertierung, insbesondere aus NO_x, SO₃ und flüchtigen Kohlenwasserstoffen. Während ihrer Lebenszeit von Tagen bis Wochen werden sie über hunderte bis tausende Kilometer weit verbreitet. Die groben Partikel der *Dispersionsmode* entstehen durch Wiederaufwirbelung von Industriestaub und Boden in der Landwirtschaft, auf unbefestigten Straßen und im Bergbau, aus biologischen Quellen, bei Errichtung und Abriss von Bauwerken oder durch Sandstürme und Salzwasser-Spray. Bei hoher Windgeschwindigkeit entstehen an der Ozeanoberfläche Luftblasen, die beim Platzen viele kleine Wassertropfen freisetzen. Wenn diese verdunsten, bleibt Seesalz-Aerosol übrig. Die Bestandteile groben Aerosols sind vor allem Staub, Kohlen- und Öl-Flugasche, Elemente der Erdkruste (Si, Al, Ti, Fe), Oxide, Kalk, Speisesalz, Pollen, Schimmel, Sporen, Pflanzen- und Tiererteile und Reifenabrieb. Durch ihre Größe werden sie schneller am Boden deponiert und haben bei einer durchschnittlichen Lebenserwartung von Minuten bis Tagen einen Ausbreitungsradius von weniger als einigen 100 km.

Neben der Kenntnis der chemischen Zusammensetzung, die auch die effektive Brechzahl des Aerosols bestimmt, ist eine quantitative Beschreibung des Größenspektrums zur Ableitung der Wechselwirkung zwischen Licht und Aerosol notwendig. Es gibt mehrere Ansätze, die Aerosol-Größenverteilung durch analytische Funktionen darzustellen. Christian Junge schlug eine einfache Potenzfunktion vor [Junge, 1963]:

$$n_N(\log D_p) = \frac{dn_N(D_p)}{d(\log D_p)} = \frac{C}{(D_p)^j} \quad \text{Gl. 1-6}$$

Die Partikelgrößenverteilung n_N in Abhängigkeit vom Logarithmus des Durchmessers D_p wird so durch die Konstanten C und j beschrieben. Der Index N zeigt an, dass es sich um eine Anzahlverteilung und nicht um die im Folgenden ebenfalls betrachteten Volumen-, Oberflächen- und Massenverteilungen handelt. Mit dem Junge-Spektrum können Verteilungen in beschränkten Größenbereichen, besonders für größere Teilchen, recht gut angenähert werden. Da die Funktion jedoch eine monotone Abnahme der Partikelanzahl mit zunehmendem Durchmesser voraussetzt, wird das Maximum nicht wiedergegeben. In einer doppelt logarithmischen Darstellung passt die der Junge-Verteilung entsprechende Gerade mit dem Anstieg j aber recht gut an die Flanke der gemessenen Verteilungen auf der Seite großer Partikeldurchmesser.

Außerdem wird gelegentlich ein Ansatz mit einer etwas modifizierten Gammafunktion benutzt [Seinfeld und Pandis, 1997]. Die vier wählbaren Parameter bieten ausreichend Flexibilität, die Funktion an Messwerte anzupassen. Das Ergebnis ist aber schwer zu deuten. Die im Bereich der Luftreinhalte häufig verwendete kumulative Einteilung fasst alle Partikel zu einer Klasse zusammen, die kleiner oder gleich einer bestimmten Größe sind (z. B. PM 10 $\Rightarrow D_p \leq 10 \mu\text{m}$, PM 2,5 $\Rightarrow D_p \leq 2.5 \mu\text{m}$). Diese Vorgehensweise entspricht den bisher eingesetzten einfachen Filter-Messverfahren bei der Routineüberwachung der Luftverschmutzung.

Die Größenverteilung vieler beobachteter Aerosoltypen lässt sich durch die Summe mehrerer Lognormal-Verteilungen sehr gut beschreiben:

$$n(\log D_p) = \frac{dN}{d \log D_p} = \sum_{i=1}^m \left\{ \frac{N_i}{\sqrt{2\pi} \log(\sigma_g)_i} e^{-\frac{[\log(D_p/D_p^{\text{med}})_i]^2}{2(\log(\sigma_g)_i)^2}} \right\}. \quad \text{Gl. 1-7}$$

Es wird sowohl der dekadische als auch der natürliche Logarithmus verwendet. Diese Art der analytischen Behandlung besticht durch die mathematische Eleganz der Funktion und die damit verbundene einfache Interpretierbarkeit der Ergebnisse. Der Medianwert D_p^{med} und der Breitenparameter σ_g sind mit den gewohnten Parametern Mittelwert \bar{D} und Standardabweichung σ der Gauß-Verteilung folgendermaßen verknüpft:

$$\bar{D}_p = D_p^{\text{med}} e^{\frac{1}{2}(\ln \sigma_g)^2}, \quad \sigma = \sqrt{(D_p^{\text{med}})^2 e^{2(\ln \sigma_g)^2} - D_p^{\text{med}^2}}. \quad \text{Gl. 1-8}$$

Typen	Mode I			Mode II			Mode III		
	N / cm^{-3}	$D_p / \mu\text{m}$	$\log \sigma$	N / cm^{-3}	$D_p / \mu\text{m}$	$\log \sigma$	N / cm^{-3}	$D_p / \mu\text{m}$	$\log \sigma$
Urban	$9,93 \cdot 10^4$	0,013	0,245	$1,11 \cdot 10^3$	0,014	0,666	$3,64 \cdot 10^4$	0,05	0,337
Maritim	133	0,008	0,657	66,6	0,266	0,210	3,1	0,58	0,396
Rural	6650	0,015	0,225	147	0,054	0,557	1990	0,084	0,266
Reinluft, kontinental	3200	0,02	0,161	2900	0,116	0,217	0,3	1,8	0,380
Freie Troposphäre	129	0,007	0,645	59,7	0,25	0,253	63,5	0,52	0,425
Polar	21,7	0,138	0,245	0,186	0,075	0,3	$3 \cdot 10^{-4}$	8,6	0,291
Wüste	726	0,002	0,247	114	0,038	0,77	0,178	21,6	0,438

Tab. 1-3 Parameter für typische dreimodale Größenverteilungen verschiedener Aerosoltypen der planetaren Grenzschicht und der freien Troposphäre [Jänicke, 1993], Darstellung siehe Abbildung 1-3.

Genau die Hälfte der Partikel einer solchen Verteilung ist kleiner und die andere Hälfte größer als der Medianradius. Der Breitenparameter entspricht der geometrischen Standardabweichung, d. h. 67 % der Partikel haben eine Größe im Bereich $\bar{D}_p / \sigma_g < D_p < \bar{D}_p \cdot \sigma_g$ und 95 % im Bereich $\bar{D}_p / 2\sigma_g < D_p < 2\bar{D}_p \cdot \sigma_g$.

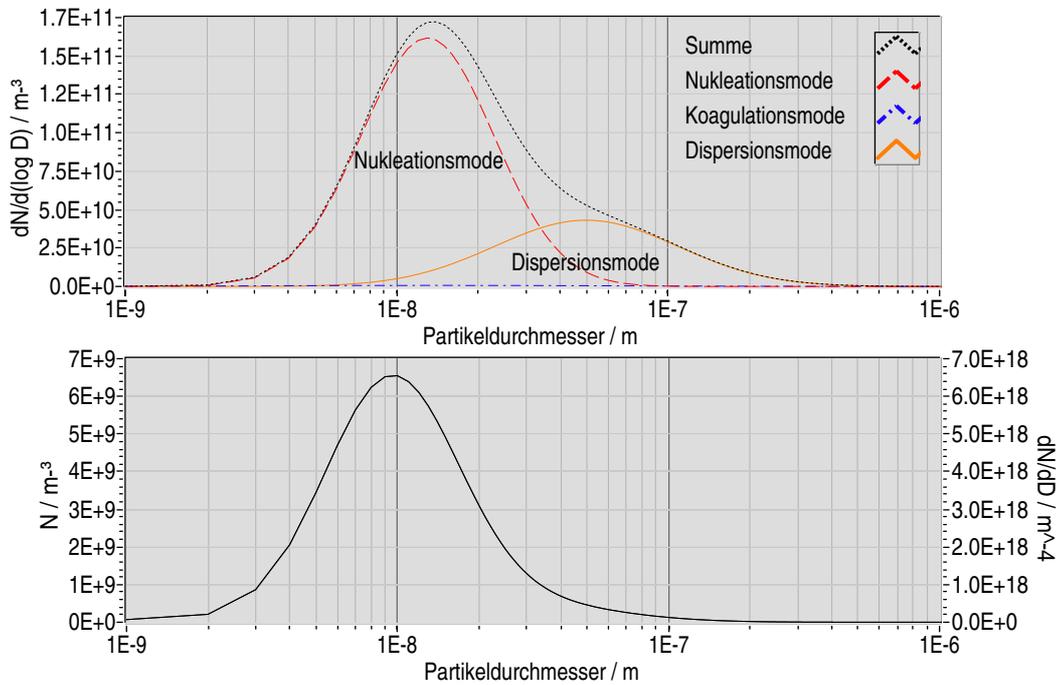
Die einer lognormalen Größenverteilung entsprechende Oberflächenverteilung $n_S(D_p) = \pi D_p^2 n_N(D_p)$ und Volumenverteilung $n_V(D_p) = (\pi/6) D_p^3 n_N(D_p)$ sind ebenfalls Lognormal-Verteilungen und haben den gleichen Breitenparameter. Für Teilchen gleicher Dichte ρ_p lässt sich nun auch die Massenverteilung $n_M(D_p) = \rho_p / 10^6 \cdot n_V(D_p) = \rho_p / 10^6 \cdot \pi / 6 \cdot D_p^3 n_N(D_p)$ angeben.

Mit der Beziehung: $n_N(D_p) = \frac{dN}{d \log(D_p)} = D_p \cdot \ln 10 \cdot \frac{dN}{dD_p}$, kann die lognormale Größenverteilung als Funktion des Partikeldurchmessers ausgedrückt werden. Durch Integration über die Breite der Größenklasse erhält man schließlich die Anzahlkonzentration:
$$N(D_p) = \frac{1}{\ln 10} \cdot \int \frac{n_N(D_p)}{D_p} dD_p.$$

Für weitere Berechnungen werden die in Tabelle 1-3 angegebenen Größenverteilungen troposphärischer Aerosole nach Jänicke [Jänicke, 1993] verwendet. Die Beschränkung auf genau drei Moden für lognormale Größenverteilungen atmosphärischen Aerosols ist durch die beschriebenen physikalischen Bildungs-, Alterungs- und Ausscheidungsprozesse begründet.

Enthält das atmosphärische Aerosol lösliche bzw. hygroskopische Bestandteile, so verändert sich die Größenverteilung in Abhängigkeit von der Luftfeuchtigkeit. Die Situation wird

Urbanes Aerosol



Aerosol der freien Troposphäre

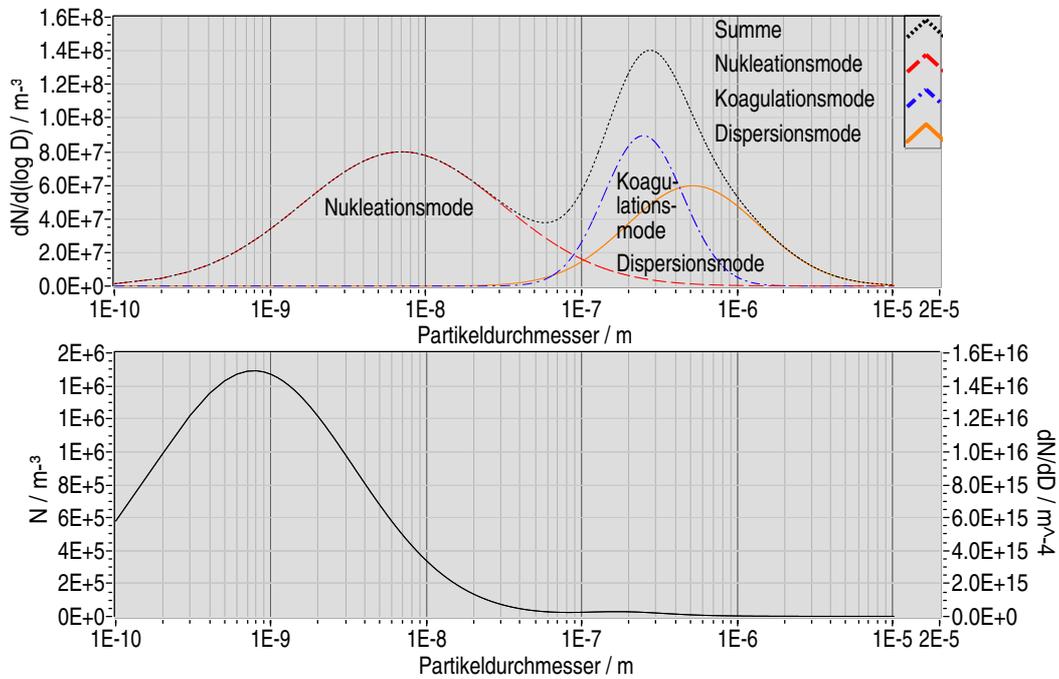


Abb. 1-2 Die wichtigsten Aerosol-typen im Zusammenhang dieser Arbeit sind der urbane und der der freien Troposphäre. Hier sind die einzelnen Moden der lognormalen Verteilung [Jänicke, 1993], deren Summe und die daraus resultierende Partikelanzahl in dem relevanten Größenintervall dargestellt.

durch die Überlagerung von zwei Vorgängen bestimmt: die Lösung von Aerosol-Bestandteilen in Wasser und die Veränderung des Dampfdrucks in Abhängigkeit von der Krümmung der Partikeloberfläche, also dem Durchmesser. Mit der Magnus-Formel (Gleichung 1-2) lässt sich der Sättigungsdampfdruck über einer planen Wasseroberfläche

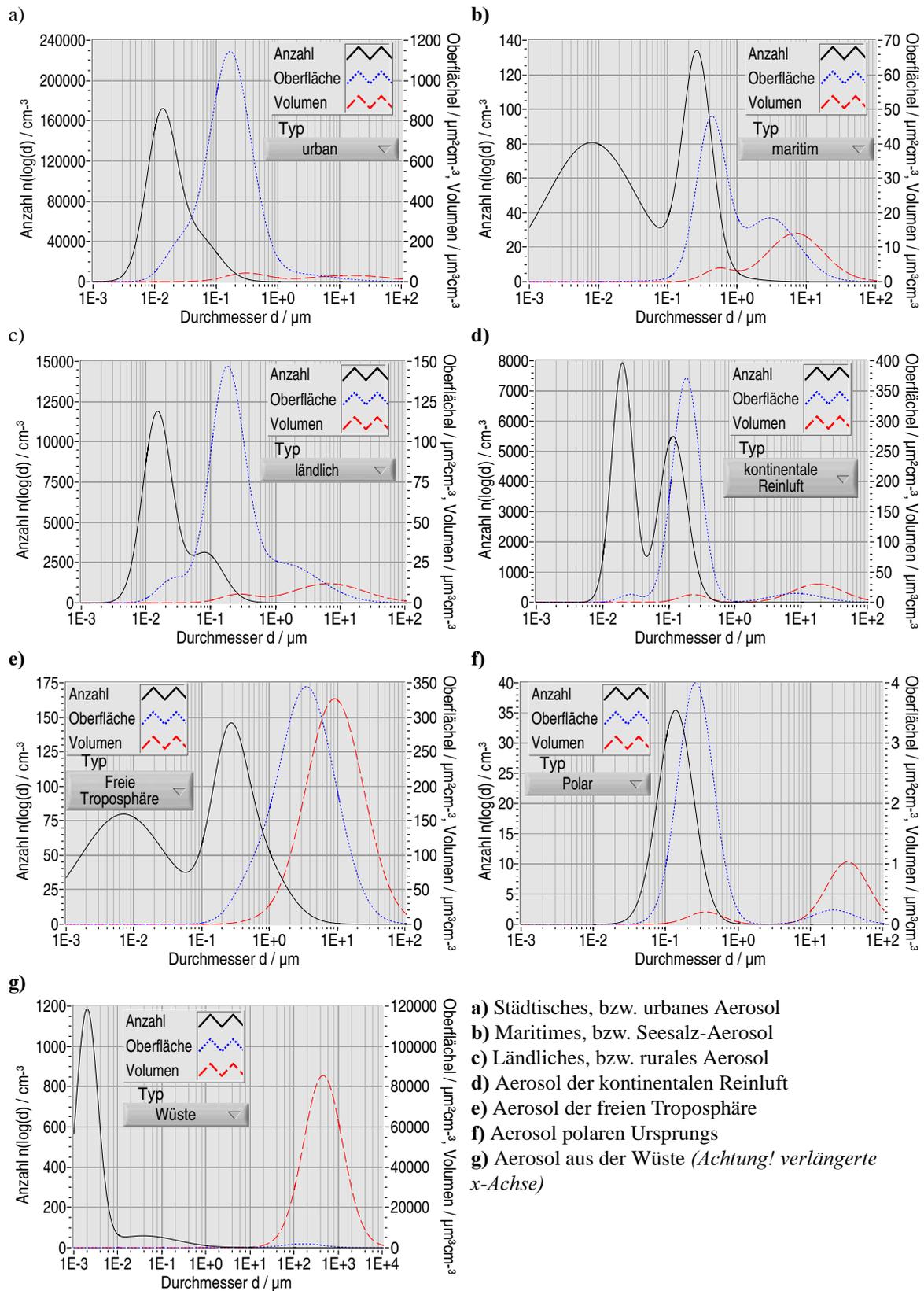


Abb. 1-3 Typische dreimodale Aerosol-Größenverteilungen der Troposphäre. Sie wurden nach den in Tabelle 1-3 angegebenen Parametern [Jänicke, 1993] berechnet. Die durchgezogene schwarze Kurve ist die Anzahlverteilung $n_N(\log D_p)$ (linke Skala), die gepunktete blaue und die gestrichelte rote Kurve sind die entsprechenden Oberflächen- $n_S(\log D_p)$ und Volumenverteilungen $n_V(\log D_p)$ (rechte Skala).

berechnen, und die Kelvin-Gleichung (Gleichung 1-5) ergibt das Dampfdruckverhältnis in Abhängigkeit vom Partikelradius. Die Köhler-Gleichung beschreibt den Dampfdruck über einem Tropfen einer Lösung. Für eine wässrige Lösung gilt [Seinfeld und Pandis, 1997]:

$$\ln\left(\frac{p_{\text{H}_2\text{O}}(D_p)}{p^s}\right) = \ln\left(\frac{\text{RH}}{100}\right) = \frac{A}{D_p} - \frac{B}{D_p^3 - d_u^3}. \quad \text{Gl. 1-9}$$

Die Konstanten A und B,

$$A = \frac{4\sigma_w M_w}{RT\rho_w}, \quad B = \frac{6N_{\text{Mol}} M_w}{\pi\rho_w}, \quad \text{Gl. 1-10}$$

enthalten die molare Masse M_w , die Dichte ρ_w und die Oberflächenspannung σ_w von Wasser, die Gaskonstante R, die Temperatur T der umgebenden Luft und die Anzahl der Ionen N_{Mol} , in welche das Molekül in der Lösung dissoziiert. Der Kelvin-Effekt erhöht den Dampfdruck, und der Lösungs-Effekt verringert ihn. Beide Effekte werden stärker, je kleiner der Tropfendurchmesser ist. Enthält das Partikel auch einen nichtlöslichen Anteil in Form einer Kugel mit dem Durchmesser D_u , so verstärkt das den Lösungseffekt.

Durch den Wasseranteil ξ im feuchten Aerosol verändern sich die effektive Brechzahl und die Größenverteilung, da größere Partikel auch schneller wachsen als kleinere. Das Integral des mit der Größenverteilung des feuchten Aerosols gewichteten Wasseranteils über den gesamten Radiusbereich ergibt den mittleren Wasseranteil:

$$\xi = \int_0^{\infty} \frac{dn_N}{d\log r} \xi(r) dr. \quad \text{Gl. 1-11}$$

Ist $\xi = 0$, so bestehen die Partikel aus reinem Aerosol, sind also nicht gequollen. Ist $\xi = 1$, so bestehen die Partikel aus reinem Wasser.

1.2 Die Schichtung der Erdatmosphäre

Auf Fotos der Erde aus dem Weltall ist die Atmosphäre als hauchdünner blauer Schleier zu erkennen. Aus unserer Perspektive hingegen liegt sie mächtig über uns. Unser Erfahrungsbereich beschränkt sich auf die untersten Meter, Bergsteiger und Flieger dringen auch in ein paar tausend Meter Höhe vor. Die Dichte über den höchsten Bergen ist bereits so gering, dass der Sauerstoff nicht mehr zum Überleben ausreicht. Druck und Dichte nehmen bis zum Weltraum kontinuierlich ab. Betrachtet man den Verlauf der Temperatur, so lassen sich Schichten unterscheiden, in denen sie fällt oder steigt. Daraus ergibt sich die gebräuchlich-

ste Höhereinteilung. Die planetare Grenzschicht hingegen ist nicht durch einen speziellen Temperaturgradienten, sondern durch die Turbulenz gekennzeichnet.

1.2.1 Luftdruck

Der Druck $p(z)$ fällt mit der Höhe z entsprechend der abnehmenden Erdanziehung:

$$\frac{d}{dz}p(z) = -\rho(z)g = -\frac{M_{\text{Luft}}p(z)}{RT(z)}g. \quad \text{Gl. 1-12}$$

Dabei ist M_{Luft} die molare Masse der Luft (durchschnittlich 28,97 g/mol), R die molare Gaskonstante (8,314 J/mol/K) und g die Erdbeschleunigung (9,81 m/s²). Die Größen auf der rechten Seite werden zur Skalenhöhe $H(z)$ zusammengefasst.

$$\frac{d}{dz}\ln p(z) = -\frac{1}{H(z)}, \quad H(z) = \frac{R \cdot T(z)}{M_{\text{Luft}} \cdot g} = \frac{k \cdot T(z)}{m \cdot g} \quad \text{Gl. 1-13}$$

Das Einsetzen der Standardwerte ergibt eine Skalenhöhe von ca. 8 km. Die Integration von Gleichung 1-13 unter Einbeziehung der Höhenabhängigkeit der Temperatur ergibt das Integral $\int_0^z (1/T)dz = \overline{(1/T)}$, das sogenannte harmonische Mittel von T . Da sich die Temperatur insgesamt nur um weniger als einen Faktor 2 ändert, der Druck im gleichen Höhenbereich aber um mehr als 6 Größenordnungen abnimmt, kann man sie in erster Näherung als konstant ansehen. Der sich ergebende Unterschied zwischen der Verwendung des harmonischen und des arithmetischen Mittels ist vernachlässigbar [Roedel, 1994]. Die barometrische Höhenformel lautet somit:

$$p(z) = p_0 e^{-\frac{z}{H}}. \quad \text{Gl. 1-14}$$

Ausgehend vom Bodendruck p_0 folgt eine exponentielle Abnahme des Drucks mit der Höhe. In Abbildung 1-4 ist der Druckverlauf der US-Standard-Atmosphäre [Seinfeld und Pandis, 1997] in schwarz mit logarithmischer Skala eingezeichnet.

Die Skalenhöhe H ist auf den ersten Blick nur die Höhe, bei der der Druck auf den e-ten Teil abgefallen ist. Eine weitere Bedeutung erschließt sich, wenn man mit Hilfe der barometrischen Höhenformel die Gesamtmasse $M_0 = \int_0^\infty \rho(z)dz = \rho_0 \int_0^\infty e^{-z/H} dz = \rho_0 H$ der Atmosphäre berechnet. Eine homogene Atmosphäre mit der Dichte ρ_0 hätte also gerade eine Mächtigkeit entsprechend der Skalenhöhe H .

Eine formal äquivalente Beziehung lässt sich herleiten, wenn man statt der Gesamtmasse aller Moleküle für jedes einzelne im Schwerfeld der Erde eine potentielle Energie

$E = m \cdot g \cdot z$ mit einer Boltzmann-Verteilung im Energieintervall E bis $E + dE$ annimmt. Auf diese Weise erhält man für die Molekülanzahl pro Volumen $N(z)$ folgende Beziehung:

$$N(z) = n_0 e^{-\frac{z}{H}} \quad \text{Gl. 1-15}$$

Die Äquivalenz wird ersichtlich, sobald man N durch p nach der Beziehung $N(z)/N_0 = p(z)/p_0$ ersetzt. Die in der Schicht bis zur Skalenhöhe enthaltene Masse ist nun aufgeteilt auf die einzelnen Moleküle mit unterschiedlichen Massen. Da es somit für jedes Molekül eine andere Skalenhöhe gibt, sollte es zu einer Entmischung der verschiedenen Gase der Atmosphäre kommen. Dieser Effekt kann aber in der unteren Atmosphäre bis in eine Höhe von etwa 80 km nicht beobachtet werden. Dies beweist zwingend, dass für die Mischungs- und Transportvorgänge in der Atmosphäre turbulente Prozesse verantwortlich sind und dass diesen gegenüber molekular-kinetische Prozesse ganz in den Hintergrund treten [Roedel, 1994].

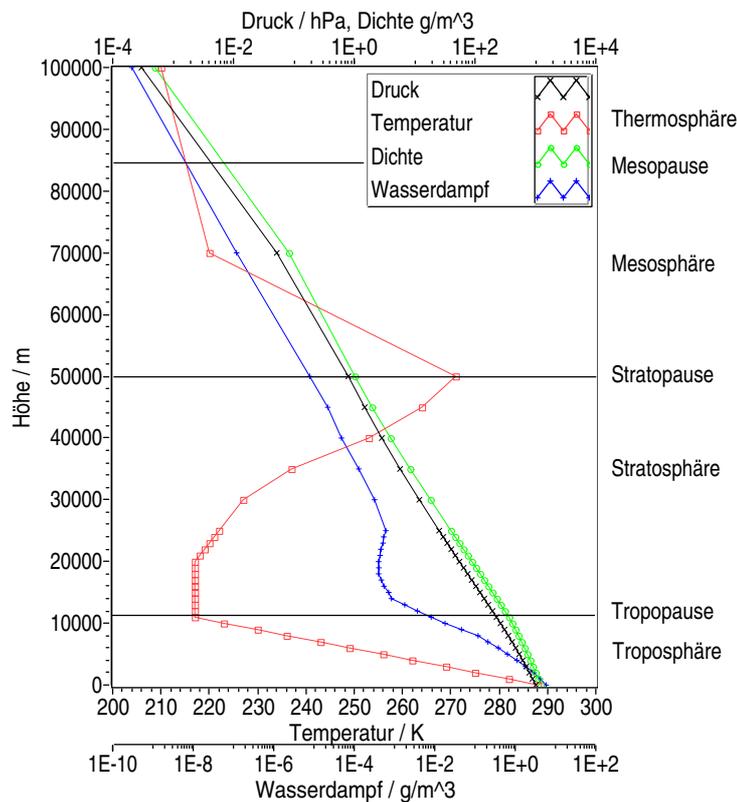


Abb. 1-4 Druck, Temperatur, Dichte und Wasserdampfkonzentration der US-Standard-Atmosphäre 1976 [Seinfeld und Pandis, 1997].
 Als Referenz hat sich die in den USA definierte Standard-Atmosphäre für mittlere Breiten durchgesetzt. Luftdruck auf Meeresniveau 1013.25 hPa, Lufttemperatur auf Meeresniveau 15 °C, Tropopausenhöhe 11 km, Temperatur an der Tropopause -56.5 °C, Temperaturabnahme mit der Höhe 0.65 K/100 m.

1.2.2 Lufttemperatur

Mit zunehmender Entfernung vom Erdboden nimmt die Temperatur zunächst annähernd adiabatisch ab. Diese unterste Schicht bezeichnet man als *Troposphäre*. Die Höhe der Tropopause, ihrer Obergrenze, ist abhängig von Wettersystemen, Breitengrad und Jahreszeit. Die in Abbildung 1-5 dargestellten Ballonsondierungen des Alfred-Wegener-Instituts für Polar- und Meeresforschung wurden zum einen in den Tropen und zum anderen im hohen Norden aufgenommen. Hier sind Beispiele für extrem unterschiedliche Profile der wichtigsten atmosphärischen Parameter dargestellt. In den Tropen liegt die Tropopause in einer Höhe von bis zu 18 km, an den Polen dagegen bereits bei ca. 8 km. Die Temperaturen an der Tropopause liegen zwischen -50 °C und -80 °C. Etwa 2 km oberhalb endet mit der Hygropause auch der wasserdampfhaltige Bereich der Atmosphäre (relative Feuchtigkeit in grün in Abbildung 1-5).

Darüber befindet sich die *Stratosphäre*. Der Transmission des ultravioletten Anteils des Sonnenlichts wird dort ein jähes Ende gesetzt. Strahlung mit Wellenlängen kleiner als 240 nm führt zur Photodissoziation von molekularem Sauerstoff. Der entstandene freie Sauerstoff reagiert dann mit molekularem Sauerstoff zu Ozon. Das Absorptionsspektrum von Ozon schließt an das des molekularen Sauerstoffs bei 240 nm an und weist eine breite, starke Bandenstruktur bis 340 nm auf. So entsteht eine absorbierende Schicht, die ein idealer Schutzschild gegenüber dem ultravioletten Anteil des Sonnenspektrums ist. Durch die Absorption wird die Stratosphäre erwärmt. Gleichzeitig wird die Stratosphäre von unten wegen des Wasserdampfgradienten am oberen Ende der Wasserdampfsphäre gekühlt .

Über der Stratosphäre, die durch die Stratopause begrenzt wird, liegt die *Mesosphäre*. Darüber beginnt die obere Atmosphäre. An der Mesopause herrschen die tiefsten Temperaturen der Erdatmosphäre. In der darüberliegenden *Thermosphäre* steigen die Temperaturen wegen der Absorption des ultravioletten Sonnenlichts durch Sauerstoff- und Stickstoffmoleküle wieder an. Die *Ionosphäre* erstreckt sich von der oberen Mesosphäre bis in die untere Thermosphäre. Dort reicht die Energie der Sonnenstrahlung aus, um Moleküle zu ionisieren. Der äußerste Bereich der Atmosphäre beginnt bei einer Höhe von ca. 500 km und wird als *Exosphäre* bezeichnet. Molekülen mit ausreichender kinetischer Energie gelingt es von hier aus, unsere Atmosphäre in Richtung Weltall zu verlassen.

Obwohl die Troposphäre die geringste Ausdehnung hat, befinden sich hier 80 % der Gesamtmasse der Luft. Wegen der direkten Wechselwirkung der Atmosphäre mit der Erd-

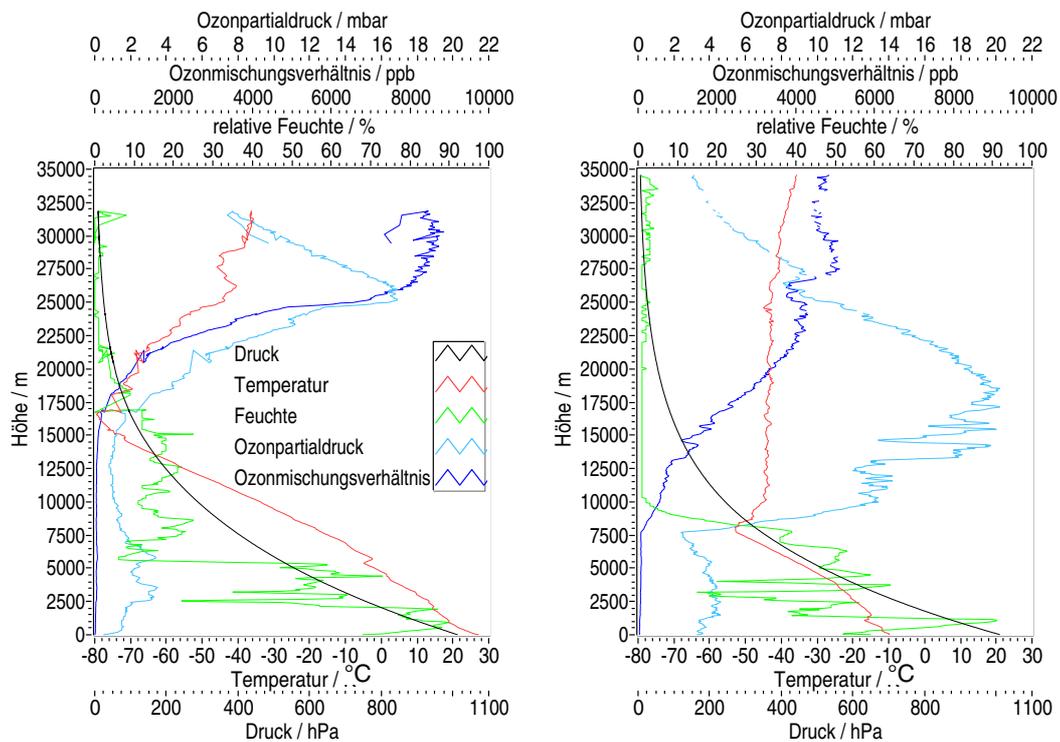


Abb. 1-5 Druck, Temperatur, relative Feuchte, Ozon-Partialdruck und -Mischungsverhältnis, gemessen mit Ballonsonden des Alfred-Wegener-Instituts während gemeinsamer Expeditionen.
links: Tropen-Forschungsschiff „Polarstern“ N 1° 86,48'' W 25° 44,414'', 24. Oktober 1996,
rechts: Arktis, Ny Ålesund Spitzbergen N 78° 55'' W 11° 57'', 7. Mai 1996.

oberfläche bildet sich am Boden eine Schicht mit besonderen Eigenschaften, die planetare Grenzschicht. Somit unterteilt man die Troposphäre noch einmal in die *planetare Grenzschicht* und die *freie Troposphäre*.

Viele Eigenschaften der Atmosphäre, wie Druck, Temperatur, Windgeschwindigkeit und Konzentrationen, sind weder vertikal noch horizontal homogen. Deshalb nimmt man für die Modellierung sogenannte Lagrange-Luftpakete an, innerhalb derer hinreichende Homogenität gewährleistet ist. Für die Ausbildung des lokalen Temperaturprofils in der Troposphäre ist die Konvektion, das heisst das Aufsteigen solcher Pakete, verantwortlich. Am Boden entstehen durch lokale Temperaturunterschiede Luftblasen unterschiedlicher Dichte. Eine Blase mit erhöhter Temperatur bekommt positiven Auftrieb und steigt nach oben. Das geschieht für gewöhnlich so langsam, dass die Energieumwandlung adiabatisch erfolgt. Als Vergleichsgröße für den Energieinhalt verschiedener Luftpakete verwendet man die potentielle Temperatur θ mit der Einheit Kelvin. Sie ist definiert als die Temperatur, die ein Luftpaket annehmen würde, wenn man es trocken-adiabatisch auf den Normaldruck der Atmosphäre, d. h. $p_0 = 1013,25 \text{ hPa}$, zwingen würde. Hierbei bedeutet trocken, dass der tat-

sächlich immer gegenwärtige Wasserdampf vernachlässigt wird; adiabatisch, dass die Summe aus potentieller und thermischer Energie konstant bleibt. Unter solchen Umständen gilt die Poisson-Gleichung für adiabatische Zustandsänderungen:

$$\frac{T^\chi}{p^{\chi-1}} = \text{const.} \quad \text{Gl. 1-16}$$

Das Verhältnis der Wärmekapazität trockener Luft bei konstantem Druck (c_p) und bei konstantem Volumen (c_v) wird mit $\chi = c_p/c_v$ abgekürzt. Als Konstante kann man nun den Normaldruck p_0 und die potentielle Temperatur θ einsetzen und erhält durch Umstellung nach θ deren Definitionsgleichung:

$$\theta = T \left(\frac{p}{p_0} \right)^{\frac{\chi-1}{\chi}}. \quad \text{Gl. 1-17}$$

Die potentielle Temperatur ist, wie die Entropie, eine eindeutige Funktion von Druck und Temperatur und wird verwendet, um Flächen gleicher Entropie durch die Isentropen zu identifizieren. Daher wird sie in der Meteorologie häufig als Höhenmaß benutzt. Der Zusammenhang und die Äquivalenz von Entropie und potentieller Temperatur kann einfach abgeleitet werden [Roedel, 1994].

Beim adiabatischen Aufsteigen eines Luftpaketes wird thermische in potentielle Energie umgewandelt. Durch diesen Wärmetransport passt sich das mittlere Temperaturprofil dem trocken-adiabatischen Gradienten Γ ,

$$\Gamma = \frac{dT}{dz}_{\text{adiabatisch}} = -\frac{g}{c_p} \sim \frac{1\text{K}}{100\text{m}}, \quad \text{Gl. 1-18}$$

an, den man durch Einsetzen der idealen Gasgleichung in die adiabatische Energiegleichung ($dQ = 0$) herleiten kann.

Bei adiabatischen Zustandsänderungen wasserdampfhaltiger Luft ändert sich nichts Wesentliches an den bisher angestellten Überlegungen, solange kein Phasenübergang stattfindet. Der Unterschied liegt lediglich in der höheren Wärmekapazität feuchter Luft.

1.2.3 Stabilität der atmosphärischen Schichtung

Der trocken-adiabatische Temperaturgradient Γ entsteht durch adiabatische Anpassung aufsteigender Luftpakete an ihre Umgebung. Die Stabilität der Schichtung hängt vom Verhält-

nis dieses theoretischen Gradienten Γ zum real existierenden Gradienten γ in der Umgebung des Luftpakets ab.

- $\gamma < \Gamma$: stabil
- $\gamma > \Gamma$: labil
- $\gamma = \Gamma$: neutral

Die Schichtung ist also stabil, wenn $\partial\theta/\partial z > 0$ ist. Wenn der in der Troposphäre normalerweise negative Temperaturgradient positiv wird, spricht man von einer Inversion, was einer besonders stabilen Schichtung gleichkommt. In diesem Fall wird kältere Luft durch wärmere überlagert, und der vertikale Austausch kommt fast völlig zum Erliegen.

Das alles gilt nur, solange kein Wasserdampf kondensiert. Steigt ein Luftpaket in einer neutralen oder sogar schwach stabil geschichteten Atmosphäre auf, so wird seine Temperatur nach Überschreiten des Kondensations-Niveaus mit zunehmender Höhe wesentlich langsamer abnehmen als es dem Temperaturgradienten seiner Umgebung entspricht. Es bleibt lange wärmer als die Umgebung und behält seine positive Auftriebskraft. Die Schichtung ist bezüglich des feuchten Luftpakets labil - man sagt dann, sie ist feucht-labil. Als quantitatives Maß wird die Äquivalenz-Temperatur verwendet. Das ist die Temperatur, die ein Luftpaket annehmen würde, wenn die gesamte in ihm gespeicherte latente Wärme in fühlbare Wärme umgesetzt werden würde. Die Kondensationsenergie pro Volumeneinheit ist $\rho_w \cdot Q_k$, das Produkt aus Wasserdampfdichte und Kondensationswärme pro Masseinheit. Die zusätzliche Erwärmung erhält man durch Division durch die Wärmekapazität der trockenen Luft $\rho_L \cdot c_p$. Damit ergibt sich die Äquivalenz-Temperatur T_a als Differenz zwischen der aktuellen Temperatur T und dem eben beschriebenen Verhältnis:

$$T_a = T - \frac{\rho_w}{\rho_L} \cdot \frac{Q_k}{c_p}. \quad \text{Gl. 1-19}$$

Der Temperaturüberschuss kann leicht einige zehn Grad betragen. Gerät ein feuchtes Luftpaket also in eine kalte Umgebung, z. B. in großen Höhen oder in einer Kaltfront, kondensiert immer mehr Wasserdampf, und der somit verstärkte Auftrieb ermöglicht es, sogar ausgeprägte Inversionen zu überwinden. Dieses Phänomen kann gut bei der Bildung von Gewitterwolken beobachtet werden.

Um zu einem quantitativen Maß für die atmosphärische Stabilität zu gelangen, geht man zunächst von der Auftriebskraft aus, die ein Luftpaket der Dichte ρ in einer Umgebung mit der Dichte ρ' hat.

$$\rho \frac{dv_z}{dt} = g(\rho' - \rho) \quad \text{Gl. 1-20}$$

Da der Druckunterschied zwischen Luftpaket und Umgebungsluft marginal ist, kann die Dichte durch $1/T$ ersetzt werden. Für die Vertikal-Beschleunigung erhält man somit:

$$\frac{dv_z}{dt} = g \cdot \frac{\gamma - \Gamma}{T} \Delta z = -\frac{g}{\theta} \cdot \frac{d\theta}{dz} \cdot \Delta z = -B^2 \cdot \Delta z \Rightarrow -B^2 = \frac{1}{\Delta z} \cdot \frac{dv_z}{dt} = -\frac{g}{\theta} \cdot \frac{d\theta}{dz} \quad \text{Gl. 1-21}$$

mit dem Stabilitätsmaß $-B^2$.

- $-B^2 < 0$: stabile Schichtung
- $-B^2 = 0$: neutrale Schichtung
- $-B^2 > 0$: labile Schichtung (B ist dann imaginär)

Für stabile Schichtung erhält die Bewegungsgleichung durch Einsetzen von $-B^2$ die Form der Schwingungsgleichung eines harmonischen Oszillators:

$$\rho \cdot \frac{dv_z}{dt} + \rho \cdot B^2 \Delta z = 0 \Rightarrow v_v = \frac{B}{2\pi} = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{g}{\theta} \cdot \frac{d\theta}{dz}} \quad \text{Gl. 1-22}$$

Die „Federkonstante“ ist $\rho \cdot B^2$ und die Frequenz v_v wird *Brunt-Väisälä-Frequenz* genannt. Durch die Visualisierung solcher Schwingungen durch Laser-Fernerkundungsverfahren sollte es möglich sein, zu einer Charakterisierung der Stabilität der planetaren Grenzschicht zu gelangen.

Bevor das Thema Turbulenz behandelt wird, soll noch die Richardson-Zahl als Stabilitäts-Kriterium und dynamischer Faktor zur Abschätzung der Turbulenz eingeführt werden:

$$\text{Ri} = \frac{g}{\langle T \rangle} \frac{\frac{\partial}{\partial h} \langle T \rangle}{\left(\frac{\partial}{\partial h} \langle v \rangle \right)^2} \quad \text{Gl. 1-23}$$

$\langle T \rangle$ ist die mittlere Temperatur und $\langle v \rangle$ die Windgeschwindigkeit. Die Richardson-Zahl kann als Verhältnis von Auftriebs- zu Schwerkraft interpretiert werden.

- $\text{Ri} > 0$: stabile Schichtung, Auftriebskräfte wirken der Turbulenz entgegen
- $\text{Ri} = 0$: neutrale Schichtung, die Turbulenz ist unbeeinflusst von Auftriebskräften
- $\text{Ri} < 0$: labile Schichtung, Auftriebskräfte verstärken die Turbulenzentstehung

1.3 Dynamik der Grenzschicht und Turbulenz

In Abbildung 1-6 sind die atmosphärischen Bewegungsformen nach ihrer charakteristischen Länge und Zeit bzw. Geschwindigkeit angeordnet. Die Längenskala reicht von der größtmöglichen Ausdehnung von 40.000 km, die dem Erdumfang entspricht, bis zu kleinsten Strukturen von ca. 1 mm. Man unterscheidet grob zwischen Mikro-, Meso-, Makro- und synoptischer Skala. Phänomene im Bereich der synoptischen Skala sind z. B. die Zyklonen und Antizyklonen, die unser Wetter bestimmen. Zu den mesoskaligen Prozessen gehören z. B. Land-See-Wind-Zirkulationen, Leewellen hinter Gebirgen und normale Gewitterwolken. In der planetaren Grenzschicht herrscht *mikroskalige Turbulenz*.

Die horizontale Grundströmung in der Erdatmosphäre, auch geostrophischer Wind genannt, wird durch regionale Druckunterschiede bewirkt. Die Windrichtung verläuft wegen der Erddrehung und der damit verbundenen Coriolis-Kraft aber nicht direkt in Richtung des Druckgradienten. Im Gleichgewicht, wenn also die Luftmasse nicht durch Trägheit beschleunigt oder durch Reibung gebremst ist, bläst der geostrophische Wind tangential zu den Isobaren. In der planetaren Grenzschicht wird dieses Gleichgewicht durch die Reibung am Boden gestört. Das führt zu einem Geschwindigkeitsgradienten, der bei Null am Boden bzw. der Strömungsgeschwindigkeit des Wassers endet. Da die Coriolis-Kraft nun aber von der Geschwindigkeit abhängig ist, ändert sich auch die Windrichtung hin zum Druckgradienten. Dadurch entsteht eine Spirale der Windrichtung, die nach ihrem Entdecker Ekman-Spirale genannt wird. Der Höhenbereich der planetaren Grenzschicht, in dem sich die Windrichtung dem geostrophischen Wind spiralförmig anpasst, wird daher auch Ekman-Schicht genannt. Die Windrichtungsänderung über dem Boden und die Konvektion führen zu Scherströmungen. Dadurch wird die Strömung turbulent und chaotisch.

Doch auch in diesem Chaos gibt es eine Ordnung. Der britische Hydrodynamiker Lewis Fry Richardson entdeckte in den 1920er Jahren, dass sich alle Bewegungsformen in einem doppelt logarithmischen Geschwindigkeits-Zeit-Diagramm (Abbildung 1-6) entlang einer Linie $v \sim L^{1/3}$ gruppieren. L wird äußere Skalenlänge oder Monin-Obuchov-Länge genannt und gibt die größte Ausdehnung von Turbulenzzellen an, die unabhängig vom Gesamtfluss der Luft sind. Der Diffusionskoeffizient $K \sim L \cdot v$ ist dann proportional zu $L^{4/3}$. Die Proportionalitätskonstante $v \cdot L^{1/3} = \text{const}$ ist ein charakteristischer Wert für die Energiedissipation pro Zeit- und Masseinheit. Bewegungsvorgänge, die entlang derselben gestrichelten Geraden in Abbildung 1-6 angeordnet sind, erleiden die gleiche Dissipation von kinetischer Energie

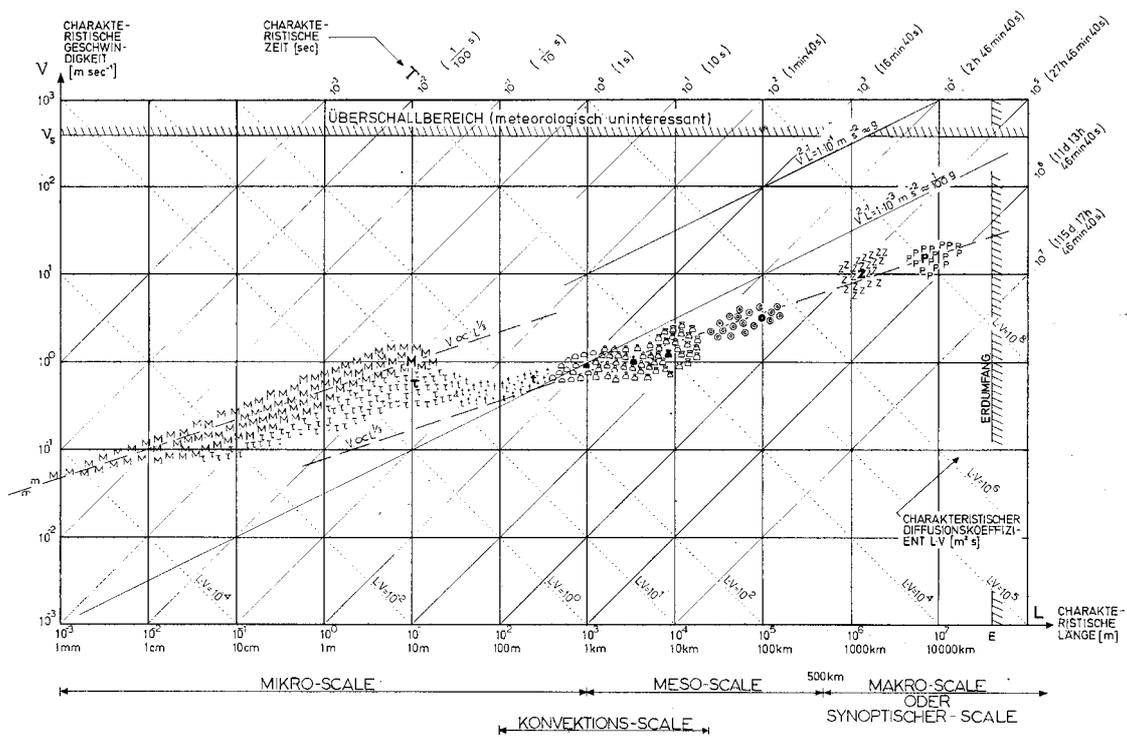


Abb. 1-6 Charakteristische Zeit- und Geschwindigkeitsskalen atmosphärischer Prozesse [Wippermann, 1971]

durch Turbulenz. Für die höher gelegene Linie in Abbildung 1-6 ist dieser Wert $0,1 \text{ m}^2/\text{s}^3$ und für die tiefere $0,001 \text{ m}^2/\text{s}^3$. Kleine Turbulenzstrukturen setzen weit mehr kinetische Energie pro Masseinheit um als konvektive bzw. großräumige Turbulenz. Eine für mikroskalige Prozesse entscheidende Schlussfolgerung formulierte Richardson als Vierzeiler [Richardson, 1920]:

*„Big whorls have little whorls
that feed on their velocity,
little whorls have smaller whorls
and so on to viscosity.“*

Einmal entstandene Turbulenzzellen zerfallen zu immer kleineren Strukturen, bis ihre kinetische Energie verbraucht ist, und sie sich auflösen. Die kleinste mögliche Größe hängt von der Viskosität des Mediums ab und wird als innere Skalengröße l_0 bezeichnet. Dieser dissipative Prozess wird Energiekaskade genannt.

Die charakteristische Länge L , die Geschwindigkeit v und die kinematische Viskosität ν können zu einer dimensionslosen Zahl, der Reynolds-Zahl, zusammengefasst werden:

Bewegungsform	Symbol	horizontale Ausdehnung	vertikale Ausdehnung	Erstreckungs-Verhältnis	Charakteristische			
					Länge	Dauer	Zeit	Geschwindigkeit
Mechanische Turbulenz	M	<20 m	< 20 m	1:1	10 m	<30 s	10 s	1 m/s
Kleinräumige, thermisch bedingte Turbulenz	τ	<10 m	< 20 m	2:1	10 m	< 30 s	15 s	0,7 m/s
Thermik	t	10-50 m	20-500 m	10:1	250 m	2-10 min	6 min	0,7 m/s
Schwache Kumuluskonvektion		50-500 m	0,5-2 km	5:1	1 km	10-30 min	20 min	0,8 m/s
Mäßige Konvektion		0,5-2 km	2-5 km	2:1	2,5 km	$\frac{1}{3}$ -1 h	40 min	1 m/s
Starke Konvektion		1-20 km	3-12 km	1:1	8 km	$\frac{1}{2}$ -3 h	100 min	1,3 m/s
Wolken Cluster		20-200 km	3-15 km	1:10	100 km	3-18 h	10 h	3 m/s
Zyklonen / Antizyklonen	Z	500-3000 km	3-12 km	1:500	1500 km	1-3 d	2 d	10 m/s
Planetarische Wellen	P	3000- $1 \cdot 10^4$ km	5-12 km	1:1000	6000 km	2-8 d	5 d	15 m/s

Tab. 1-4 Erklärung zu Abbildung 1-6 und der dort vorgenommenen Einteilung der atmosphärischen Bewegungsformen entsprechend ihren charakteristischen Geschwindigkeiten- und Längenskalen [Wippermann, 1971].

$$Re = \frac{v \cdot L}{\nu} \quad \text{Gl. 1-24}$$

Wird ein bestimmter kritischer Wert dieser Zahl überschritten, beginnt eine laminare Strömung turbulent zu werden. Reynolds definierte diese Konstante durch Ähnlichkeitsbetrachtungen oder, anders gesagt, auf der Suche nach dimensionslosen Größen. Diese Methode hat sich in den frühen Jahren der Turbulenzforschung sehr bewährt, um systembeschreibende Merkmale aus dem Chaos herauszufiltern. Heute ist die Theorie zur Beschreibung stochastischer Prozesse sehr weit fortgeschritten und gestattet ein tiefes Verständnis der Turbulenz auf der Basis der Navier-Stokes-Gleichung [Grossmann, 1990, Stull, 1989]. Auf die mathematische Behandlung in chemischen Ausbreitungsmodellen wird in § 1.5.1.1 kurz eingegangen.

1.4 Strahlungsbilanz

Die Sonnenstrahlung ist die einzige bedeutende Energiequelle der Erde. Durch die ungleichmäßige Intensitätsverteilung der eingestrahnten Energie über den Globus entstehen in der Atmosphäre und in den Ozeanen Ausgleichsströmungen. Die Hauptflussrichtung der Energie geht vom Äquator zu den beiden Polen. Jahreszeitliche Schwankungen des globalen Windsystems entstehen durch die nicht senkrechte Position der Erdachse zur Umlaufbahn um die Sonne.

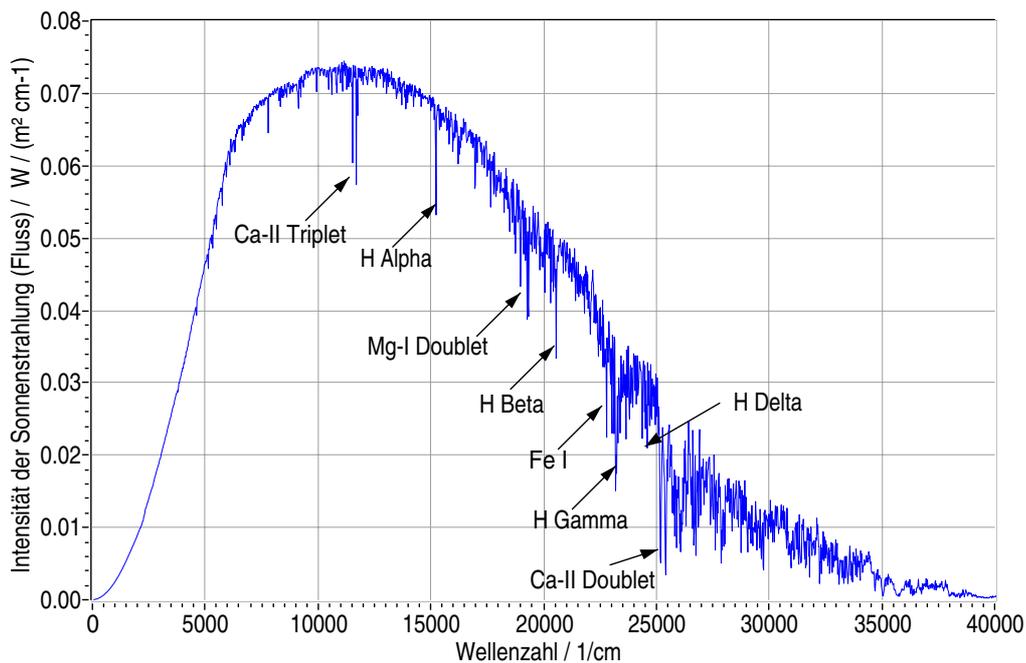


Abb. 1-7 Sonnenspektrum im Abstand von einer astronomischen Einheit, berechnet von Gail Anderson (ganderson@plh.af.mil) vom Phillips Lab. Es wurde linienweise von Bob Kurucz von der Harvard-Smithsonian Astrophysical Institution in Cambridge, Mass. berechnet und mit allen bekannten Datenquellen abgeglichen. Die Absorptionslinienbreiten aus der MODTRAN-Datenbank wurden auf 10 Wellenzahlen verbreitert. Die Daten stammen vom NASA-ftp-server: <ftp://climate.gsfc.nasa.gov/pub/wiscombe/>.

Abbildung 1-7 zeigt ein von Gail Anderson berechnetes extraterrestrisches Spektrum. Die Intensität ist auf eine Kugeloberfläche mit einem Radius von einer astronomischen Einheit normiert. Das Maximum der Intensität liegt im sichtbaren Bereich. Der größte Teil der solaren Energie, die auf der Erde ankommt, stammt aus der Photosphäre der Sonne. Durch Absorption in der etwas kälteren äußeren Photosphäre entstehen die sogenannten Fraunhofer-Linien.

In Abbildung 1-8 wird ein extraterrestrisches Spektrum mit einem an der Erdoberfläche in mittleren Breiten gemessenen verglichen. Die dritte Kurve wurde entsprechend der Planck-

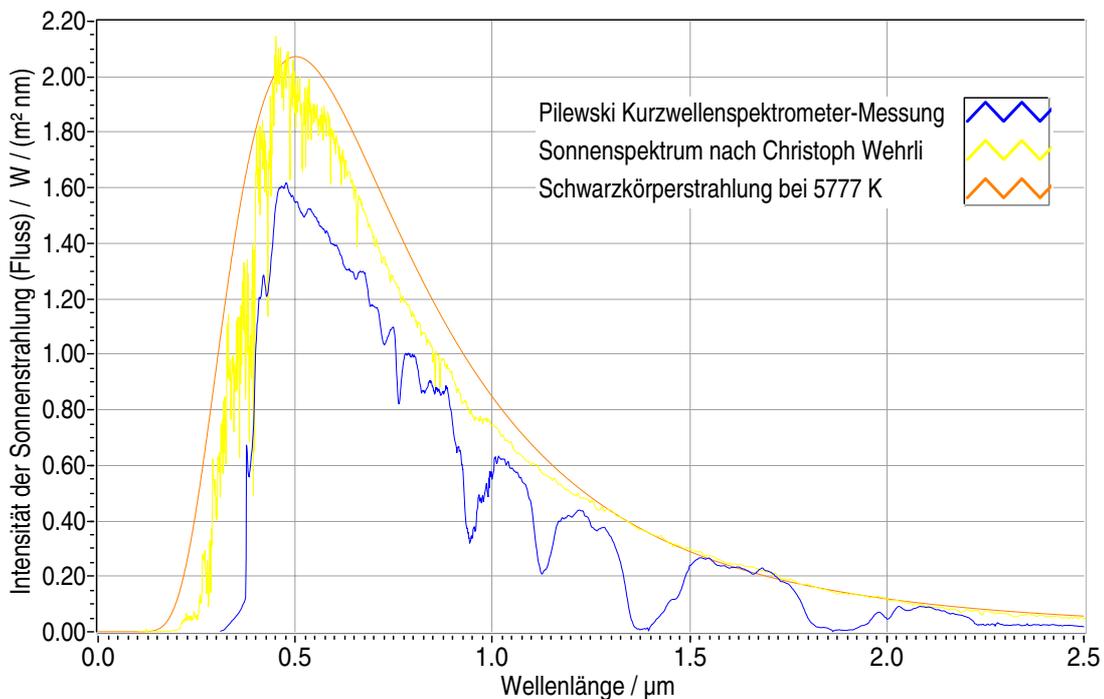


Abb. 1-8 Sonnenspektrum von Christoph Wehrli (chwehrli@pmodwrc.ch) vom World Radiation Center in Davos [Wehrli, 1985] und Transmissionsspektrum der Atmosphäre von Peter Pilewski vom NASA Ames Research Center gemessen mit einem Strahlungsfluss-Spektrometer. Die Strahlungs-Intensitätskurve eines schwarzen Körpers mit der Temperatur von 5777 K, berechnet nach der Planckschen Strahlungsformel, gibt Anlass zu der Annahme, dass die Sonne in erster Näherung als solcher betrachtet werden kann. Die Daten stammen vom NASA-ftp-server: <ftp://climate.gsfc.nasa.gov/pub/wiscombe/>.

schen Strahlungsformel für einen schwarzen Strahler mit einer Temperatur von 5770 K berechnet und auf die Amplitude der Messkurve skaliert. Da der Strahlungsfluss der Sonne in alle Richtungen des Raumes emittiert wird, trifft nur ein kleiner Teil auf die Erde. Somit ist dieser Wert vom Sonnenabstand der Erde abhängig, und der mit der Planckschen Formel berechnete Strahlungsfluss muss entsprechend dem Raumwinkелеlement der Erde angepasst werden.

Am Erdboden sieht das Spektrum schon ganz anders aus. Besonders im infraroten und ultravioletten Bereich gibt es Regionen, in denen die Atmosphäre nahezu undurchsichtig ist. Die Intensität des Lichts wird bei der Transmission durch die Atmosphäre durch Streuung und Absorption an Atomen, Molekülen und Aerosol geschwächt. Die starken Einbrüche im Spektrum im nahen Infrarot-Bereich entstehen vor allem durch Wasserdampf-Absorption in der Troposphäre. Im ultravioletten Spektralbereich wird das Sonnenlicht vor allem durch molekularen Sauerstoff und Ozon absorbiert. Aerosol besitzt keine so strukturierte Streu-Charakteristik. Ein großer Teil der breitbandigen Differenz zwi-

schen den Spektren ist auf Aerosol-Streuung zurückzuführen. In jeder Höhe und insbesondere am Erdboden und an Wolken wird ein Teil der Strahlung zurück in Richtung Weltall gestreut. Wird Licht absorbiert, erwärmt sich die Umgebung des Absorbers. Obwohl der größte Teil der Strahlung an der Erdoberfläche absorbiert wird, ist ihre Reflektivität doch zu hoch, um die mittlere Oberflächentemperatur der Erde von 15 °C zu erklären. Ein Teil des reflektierten Lichts muss also diesen Beitrag leisten, indem es auf dem Rückweg in Richtung Weltall doch noch absorbiert oder wieder zurückgestreut wird. So entsteht der natürliche Treibhauseffekt, dem wir die Anhebung der Durchschnittstemperatur der Erdoberfläche von ca. -30 °C auf angenehme 15 °C zu verdanken haben.

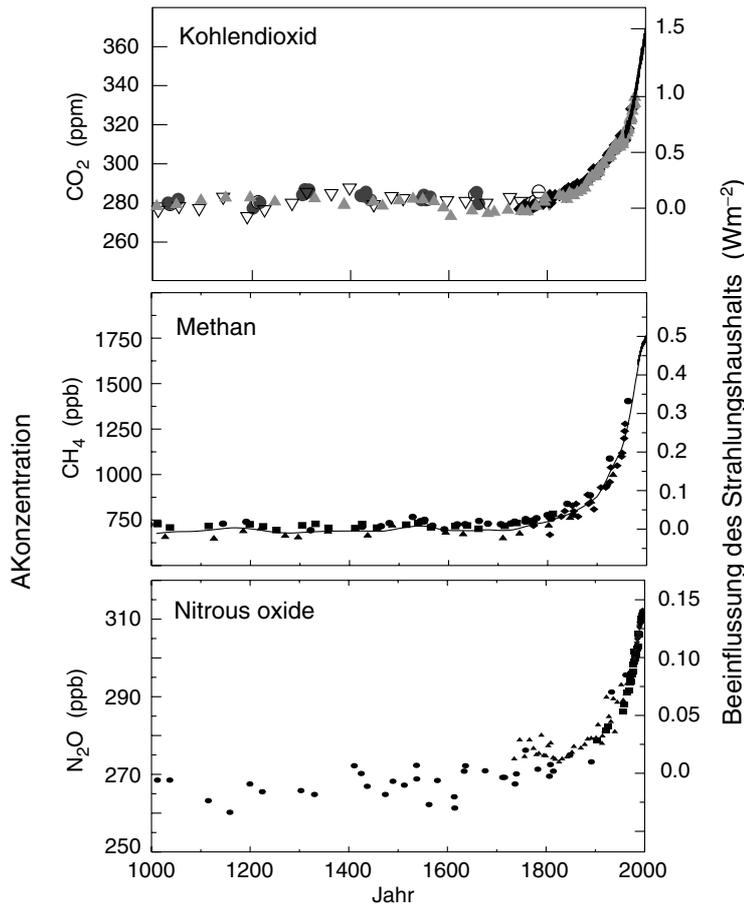
1.4.1 Klimarelevanz von Spurengasen und Aerosol

Die für den natürlichen Treibhauseffekt wichtigsten Spurengase sind Wasserdampf, Kohlendioxid, Ozon, N₂O (Distickstoffoxid bzw. Lachgas) und Methan. Der anthropogene Anteil des Treibhauseffekts wird vor allem durch die Gase Kohlendioxid, Fluorchlorkohlenwasserstoffe (FCKW) sowie Halone, Methan, N₂O und Ozon verursacht. In geringerem Ausmaß sind auch perfluorierte Fluorkohlenwasserstoffe (FKW, darunter insbesondere CF₄ und C₂F₆), Schwefelhexafluorid (SF₆), teilhalogenierte FCKW (H-FCKW), wasserstoffhaltige Fluorkohlenwasserstoffe (HFKW) sowie Wasserdampf aus dem Flugverkehr beteiligt. Sulfat-Aerosole wirken durch Streuung und Absorption der einfallenden Sonnenstrahlung und Wolkenbildung dem zusätzlichen Treibhauseffekt ebenso entgegen wie Staub aus Vulkanen. Die Auswirkungen von Aerosol mit hohem Ruß-Anteil, das vor allem in urbanen Gegenden und über brennenden Wäldern (biomass burning) entsteht, sind noch umstritten. Bei der Beurteilung der Klimawirksamkeit der einzelnen Treibhausgase und des Aerosols ist, neben der Wechselwirkung mit der Strahlung, die Verweildauer in der Atmosphäre zu beachten.

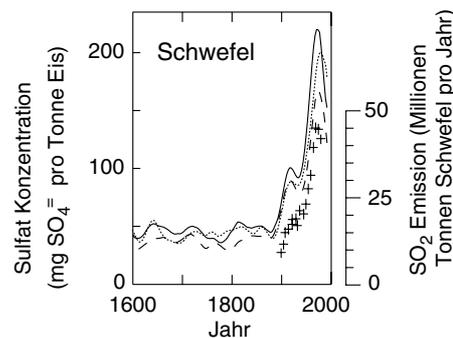
Anthropogene Treibhausgase entstehen bei der Verbrennung von fossilen Energieträgern (Kohle, Öl, Gas) und Holz, außerdem in der chemischen Industrie, der Landwirtschaft und der Abfallwirtschaft. Diese menschlichen Aktivitäten haben die Atmosphäre gegenüber ihrer natürlichen Zusammensetzung verändert. Die Messkurven in Abbildung 1-9 zeigen die Entwicklung der Konzentrationen einiger anthropogener Treibhausgase und von Sulfat im grönländischen Eis im vergangenen Jahrtausend und in den letzten 400 Jahren als Indikatoren für eine anthropogene Beeinflussung des Klimasystems [IPCC, 2001].

Indikatoren für die antropogene Beeinflussung der Zusammensetzung der Atmosphäre im Industrie-Zeitalter

(a) Globale atmosphärische Konzentrationen von drei gut verteilten Treibhausgasen



(b) Sulfat-Aerosol im Eis von Grönland



a) Änderung der Konzentrationen von Kohlendioxid, Methan und Stickoxid im vergangenen Jahrtausend. Die Daten stammen aus Eisbohrkern- und Firn-Messungen an verschiedenen Stellen der Antarktis und Grönlands (verschiedene Symbole stehen für die Messorte). Die voraussichtliche Verstärkung des Treibhauseffekts ist auf der rechten Skala dargestellt. Da alle diese Gase eine Lebensdauer von mehr als einer Dekade haben, sind sie gut verteilt in der globalen Atmosphäre und spiegeln damit die Emission aus Quellen auf der gesamten Erde wider. Alle drei Zeitreihen zeigen einen Anstieg während des industriellen Zeitalters. b) Dargestellt ist der Einfluss industrieller Schwefel-Emission auf die Sulfatkonzentration in der Atmosphäre, sulfathaltiges Aerosol soll eine abschwächende Wirkung auf den Treibhauseffekt haben. Daten aus Episoden, in denen die Sulfatkonzentration im grönländischen Eis durch Vulkanausbrüche beeinflusst waren, wurden entfernt. In den Daten spiegeln sich stärker als bei a) die regionalen Emissionen auf der Nordhalbkugel wider (durch + gekennzeichnet).

Abb. 1-9 Langfristige Messreihen zur Veränderung der atmosphärischen Zusammensetzung zeigen den Einfluss anthropogener Emissionen [IPCC, 2001].

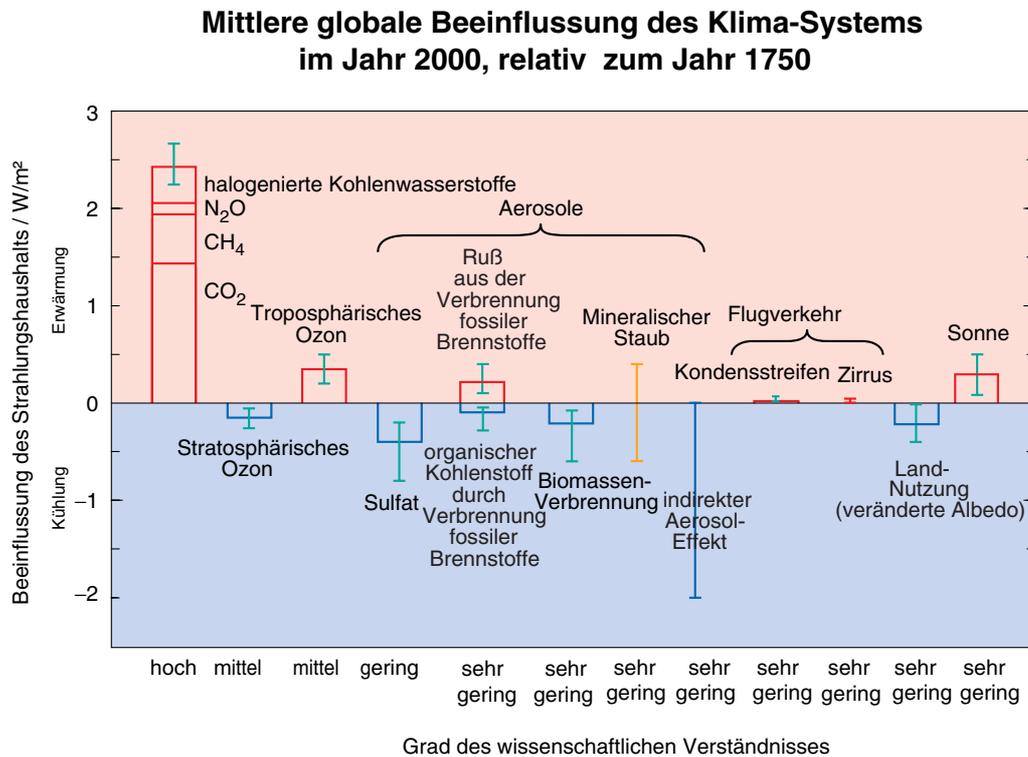


Abb. 1-10 Übersicht über die entscheidenden anthropogenen Effekte auf die Veränderung der Erdtemperatur aus dem 3. IPCC-Report [IPCC, 2001] mit einer Abschätzung ihres Anteils und dem wissenschaftlichen Kenntnisstand.

Die rechteckigen Balken zeigen Abschätzungen der Beiträge der entscheidenden Faktoren. Die kühlende Wirkung von Vulkanausbrüchen wurde wegen der kurzen Zeitdauer der Ereignisse weggelassen. Mit dem indirekten Einfluss der Aerosole ist die Kapazität zur Wolkenbildung gemeint. Die Fehlerbalken zeigen die Streuung der Abschätzungen in verschiedenen Publikationen. Einige Komponenten, z. B. CO₂, sind gut über den Erdball verteilt, haben eine lange Lebensdauer und tragen zur Erwärmung bei, andere, wie z. B. Aerosol, haben einen regionalen Charakter, kurze Lebensdauer, und ihr Beitrag wird widersprüchlich eingeschätzt. Daher kann nicht ohne weiteres die Summe gebildet werden. Die im 3. IPCC-Report zusammengetragenen Simulationen und Messungen zeigen eine Erwärmung durch anthropogene Einflüsse seit 1750.

Abbildung 1-10 gibt einen Überblick über die Anteile der beteiligten Stoffe an der anthropogenen Veränderung des Strahlungshaushalts und den entsprechenden wissenschaftlichen Erkenntnisstand über die Ursachen. Die größte Bedeutung wird hier dem Kohlendioxid mit einem Anteil von ca. 50 % beigemessen [IPCC, 2001]. Hauptverursacher von CO₂-Emissionen sind die Verbrennung fossiler Brennstoffe sowie die großflächige Zerstörung von Wäldern. Wichtigste Senke von CO₂ ist der Ozean. Auch Wälder nehmen CO₂ auf, speichern es aber nur kurzfristig im Vergleich zum Ozean. Hinsichtlich der Senken bestehen noch Unsicherheiten. Die Kohlendioxid-Konzentration in der Erdatmosphäre ist seit Beginn der Industrialisierung von 280 auf 360 ppm, d. h. um etwa 25 % angestiegen. Die Kurve wird ab 1950 deutlich steiler. Die gegenwärtige jährliche Konzentrationszunahme beträgt

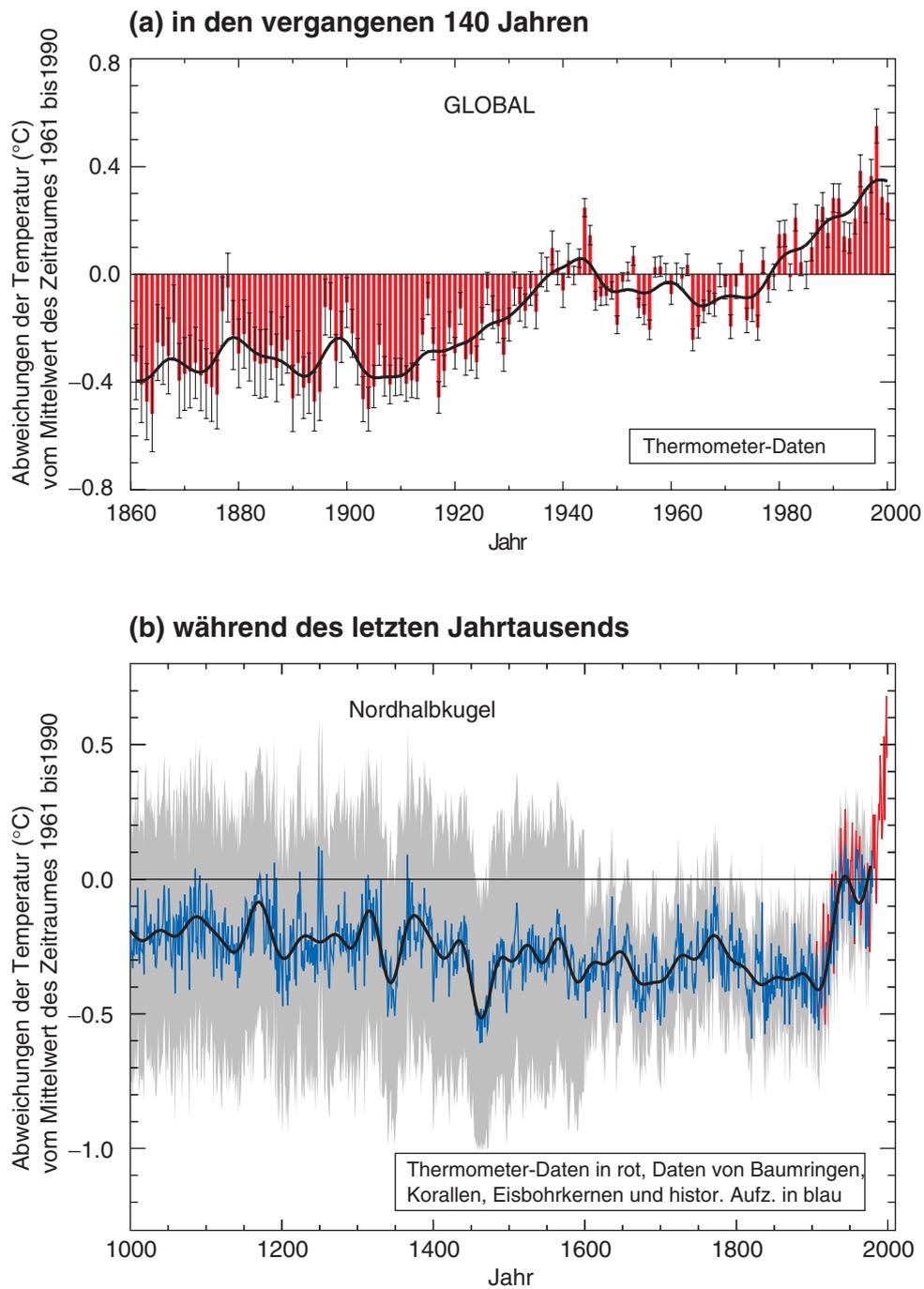


Abb. 1-11 Veränderung der Oberflächentemperatur der Erde in den letzten 140 Jahren und im letzten Jahrtausend (adaptiert aus dem 3. Bericht der Arbeitsgruppe I des IPCC [IPCC, 2001])

a) jährliche Temperatur als rote Balken und Temperatur über 10 Jahre als schwarze Linie. Fehlerbalken geben das 95 %-Intervall an. Unsicherheiten entstehen vor allem durch Datenlücken und statistische Messfehler. Systematische Fehler treten bei der Temperatur der Ozeane und in urbanen Gebieten auf. Die Oberflächentemperatur ist im letzten Jahrhundert um $0,6 \pm 0,2$ °C gestiegen.

b) blau: jährliche Werte, schwarz: 50 Jahre Mittelwert, grau: 95 % Vertrauensintervall. Im 20. Jahrhundert ist die Temperatur stärker als im ganzen Jahrtausend angestiegen, die 90er Jahre waren die wärmste Dekade und 1998 das wärmste Jahr des Jahrtausends.

etwa 0,4 %. Seit 1958 ist dieser Trend durch regelmäßige Messungen auf dem Mauna Loa auf Hawaii belegt [Keeling et al., 1995].

Auch die Messungen von Methan zeigen einen steigenden Trend. Methan entsteht dort, wo organisches Material unter anaeroben Bedingungen abgebaut wird. Die größte natürliche Quelle für Methan sind Feuchtgebiete (Sumpfgas). Die wesentlichen anthropogenen Quellen sind Reisanbau, Viehhaltung, Erdöl- und Erdgasförderung und -verteilung, Bergbau und Mülldeponien. Die wichtigste Abbaureaktion von Methan stellt die Umsetzung mit photochemisch in der Atmosphäre gebildeten OH-Radikalen zu CO_2 und H_2O dar.

Halogenierte Kohlenwasserstoffe und vollhalogenierte Fluorchlorkohlenwasserstoffe sind ausschließlich anthropogenen Ursprungs. Sie wurden und werden zum Teil noch beim Einsatz von Treibmitteln (Sprays), Schaum- und Dämmstoffen, Lösungs- und Reinigungsmitteln sowie von Kältemitteln in Kühlgeräten und Kälteanlagen freigesetzt. Die als FCKW-Ersatzstoffe eingesetzten Verbindungen schädigen die Ozonschicht überhaupt nicht (HFKW) oder in deutlich gemindertem Maße (HFCKW), tragen aber ebenfalls zum Treibhauseffekt bei. Starke Treibhausgase sind außerdem Halone, die neben Fluor- und Chlor-Atomen auch Brom-Atome enthalten. Halone werden fast ausschließlich zur Feuerlöschung und Explosionsunterdrückung verwendet. Die einzige bekannte Senke ist die Photolyse in der Stratosphäre, bei der die gebildeten Chloratome den Abbau des Ozons bewirken.

N_2O entsteht hauptsächlich durch Umsetzungen von Stickstoffverbindungen durch Mikroben im Boden. Die Hauptquelle ist Stickstoffdüngung. Der Eintrag von Stickstoffverbindungen in Böden kann direkt oder über den Wasser- und Luftweg erfolgen. Ein direkter Eintrag von N_2O in die Atmosphäre erfolgt durch die Industrie in der Hauptsache durch Emission bei der Adipinsäureherstellung und in geringem Umfang durch den Verkehr bei der katalytischen Reinigung von Autoabgasen. Photochemische Prozesse bauen das N_2O im Wesentlichen erst in der Stratosphäre ab.

Etwa seit Beginn des 20. Jahrhunderts nimmt die Ozon-Konzentration in der Troposphäre zu. *Ozon* wird selbst nicht emittiert, sondern bildet sich in der Atmosphäre durch photochemische Umsetzungen von Stickoxiden einerseits und flüchtigen organischen Verbindungen (NMVOC¹ und CH_4), Kohlenmonoxid (CO) und Luftsauerstoff andererseits. Im Bericht des IPCC² von 2001 [IPCC, 2001] wird die zusätzliche Wärmeleistung zur Verstärkung des

1. Non-Methane Volatile Organic Compounds

Treibhauseffekts auf $0,4 \text{ W/m}^2$ eingeschätzt, was etwa einem Drittel der CO_2 -Wirkung entspricht. Der Fehlerbalken ist wegen *unzureichender Kenntnis der globalen Konzentration troposphärischen Ozons* etwa halb so groß wie der Wert.

Die Bedeutung des Aerosols für das Klima ist im Detail noch sehr umstritten, was nicht zuletzt an fehlenden Messungen seiner dreidimensionalen Verteilung und seiner Streueigenschaften liegt. Sonnenlicht und von der warmen Erde abgegebene Wärmestrahlung werden an Aerosol-Partikeln genau wie in Gasen gestreut und absorbiert. Ob das nun zur Erwärmung oder zur Kühlung beiträgt, hängt von der Zusammensetzung und der Aerosol-Größenverteilung ab und ist eine der brennendsten aktuellen Fragen in der Klimaforschung. Aerosol wirkt als Kondensationskeim (CCN^1) und trägt so zur Bildung von Wolkenröpfchen und Wolken durch heterogene Nukleation bei. Diesem sogenannten indirekten Aerosol-Effekt wird eindeutig eine kühlende Wirkung zugeschrieben (siehe Abbildung 1-10). Wie auch immer der Netto-Effekt aussieht, bleibt zu bedenken, dass Aerosol eine verschwindend kurze Aufenthaltsdauer im Vergleich zu vielen Treibhausgasen, insbesondere CO_2 , in der Atmosphäre hat, wodurch seine „Klimawirksamkeit“ fragwürdig oder zumindest auf Dauer unzuverlässig erscheint. Die Auswirkungen sind in jedem Fall regional sehr unterschiedlich.

1.5 Luftchemie in der planetaren Grenzschicht

Die planetare Grenzschicht ist eine bedeutende Natur-Ressource. So ermöglicht sie es, dass wir atmen können und ist gleichzeitig Verdünnungsraum für alle Arten von Emissionen. Wird sie überstrapaziert, so beeinträchtigt das unter anderem die Gesundheit von Pflanzen, Tieren und Menschen, unseren Lebensstandard und die Produktivität der Wirtschaft.

An der Obergrenze der planetaren Grenzschicht bildet sich eine Barriere, die eine weitere Ausbreitung der Beimengungen in die freie Troposphäre und die Einmischung von Luft von oben erschwert. Damit ist sie, zeitlich begrenzt, so etwas wie ein Reaktionsgefäß. Hier laufen offensichtlich Abbaureaktionen mit einer Rate ab, die der Emissionsrate entspricht - andernfalls müssten sich die emittierten Stoffe längst angereichert haben. Das grundlegende Wissen hierüber stammt aus den letzten beiden Jahrzehnten [Graedel und Crutzen, 1996]. Wegen der unglaublichen Vielfalt an Beimengungen sind die tatsächlichen Reaktionen nur

2. Intergovernmental Panel on Climate Change

1. Cloud Condensation Nuclei

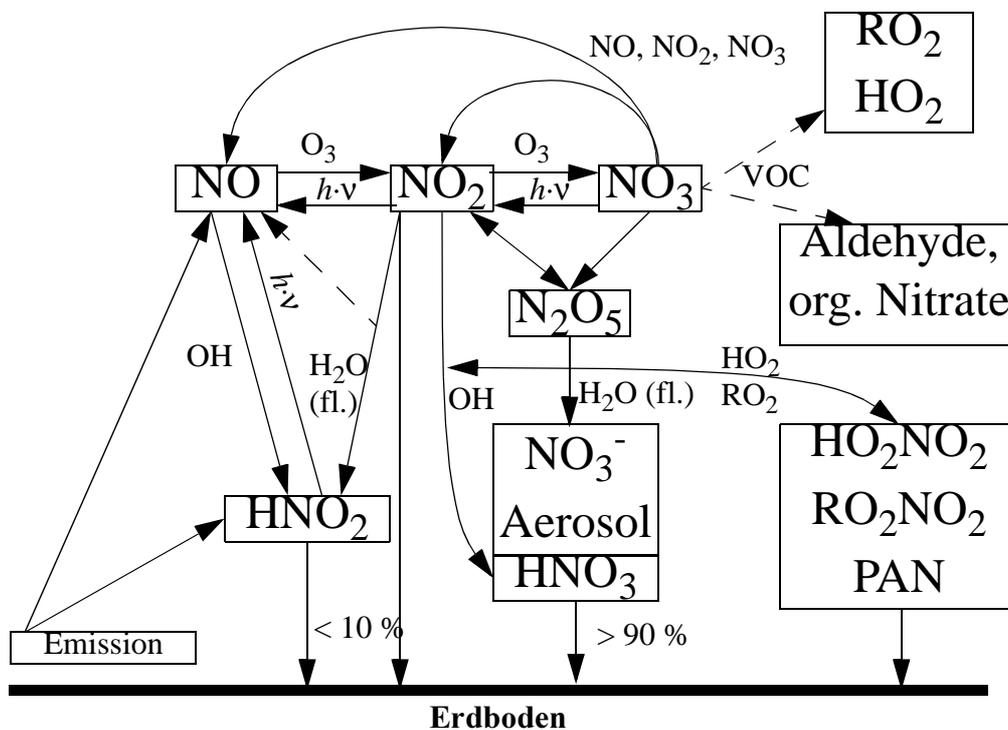


Abb. 1-12 Schema der Stickstoffchemie der Troposphäre (adaptiert von [Ackermann, 2000])

schwer vorhersagbar. Doch selbst wenn heute die wichtigsten chemischen Prozesse durchschaut sind, scheint es wegen der turbulenten Ausbreitung nahezu unmöglich, die Konzentrationen für einen bestimmten Punkt vorherzusagen. Das Studium der Chemie der planetaren Grenzschicht ist ein Wechselspiel zwischen Modellierung, d. h. numerischen Lösungen komplizierter Gleichungssysteme, und Messungen, bei denen die Größen möglichst nicht nur am Boden bestimmt werden sollten. Laser-Fernerkundung ist eine der wenigen Messmethoden, die genau das bietet. Für Berlin wurden in den Jahren 1998 und '99 Modellrechnungen zur Oxidantien-Prognose (Ozonvorhersage) am Meteorologischen Institut der Freien Universität durchgeführt [Flemming et al., 2000, Reimer et al., 2000]. Eingabedaten und Ergebnisse dieser Simulationen werden in Kapitel 4 direkt mit Laser-Fernerkundungsmessungen verglichen. Deshalb wird nach der Darstellung der Grundlagen der Ozonchemie kurz auf dieses Modell eingegangen (§ 1.5.1).

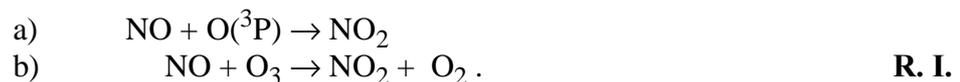
Wird ein Molekül in der Atmosphäre durch Sonnenlicht dissoziiert, spricht man von einer photochemischen Reaktion. Bei einer solchen Reaktion entstandene Radikale¹ sind der Ausgangspunkt für die meisten Stoffumwandlungen in der Gasphase - so auch für die

1. Atome oder Moleküle mit ungepaarten Elektronen entstehen oft photochemisch durch Dissoziation.

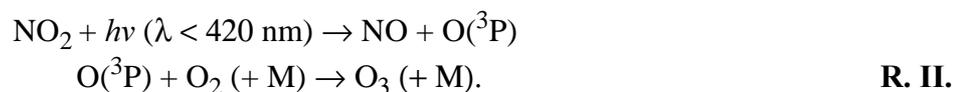
Ozonchemie in der planetaren Grenzschicht [Jenkin und Clemitshaw, 2000, Atkinson, 2000, Finlayson-Pitts und Pitts, 1997]. Homogene Reaktionen laufen zwischen Molekülen ab, die sich im gleichen Aggregatzustand (flüssig oder gasförmig) befinden. Bei heterogenen Stoffumwandlungen hingegen reagieren Moleküle mit unterschiedlichen Aggregatzuständen, oder es findet ein Phasenübergang statt (z. B. Gas-zu-Partikel-Konversion von Stick- und Schwefeloxiden) [Meng et al., 1997, Jacob, 2000, Ravishankara, 1997, Andreae und Crutzen, 1997, Finlayson-Pitts und Pitts, 1997].

In dicht besiedelten Gebieten mit starken Emissionen und Sonnenschein sind Stickoxide die Schlüsselkomponente zur Erklärung der katalytischen Ozonbildung. Sie entstehen bei Verbrennungsprozessen, insbesondere in Motoren, und bestehen hauptsächlich aus NO und einem geringen Anteil NO₂ (≤ 10%). In weniger belasteten Regionen, wie über den Ozeanen, der Arktis oder der Antarktis, dominieren Kohlenstoffoxide und Methan die Ozonchemie [Frey, 1997, Barrie et al., 1988].

Stickstoffmonoxid reagiert mit molekularem Sauerstoff oder Ozon zu Stickstoffdioxid, wobei der Reaktionsweg von der NO-Konzentration abhängig ist:



Bei typischen O₃-Konzentrationen um 30 ppb in der planetaren Grenzschicht dauert diese Reaktion ca. eine Minute. Bei Tageslicht wird das entstandene NO₂ wieder zu NO und O₃ photolysiert:

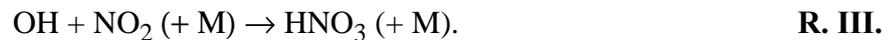


M steht für einen Stoßpartner, für gewöhnlich N₂ oder O₂, der nicht an der Reaktion teilnimmt, sondern das Molekül durch Energieaufnahme in den notwendigen Zustand für die Reaktion versetzt. Die Reaktionen I und II würden zu einem Kreislauf ohne Netto-Produktion von Ozon führen. Das Konzentrationsverhältnis zwischen Stickoxiden und Ozon im photostationären Gleichgewicht wird durch die Leighton-Beziehung [Leighton, 1961] beschrieben:

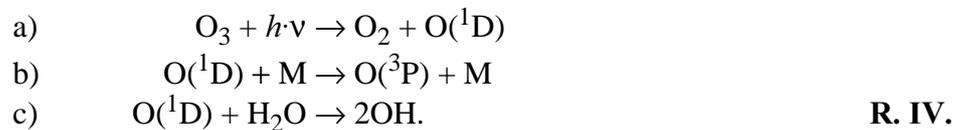
$$[\text{O}_3] = \frac{J_{\text{NO}_2} \cdot [\text{NO}_2]}{k_{1b} \cdot [\text{NO}]} \quad \text{Gl. 1-25}$$

J ist die Photolyse-Rate von NO_2 (Aktinischer Fluss) und ist von der UV-Strahlungsintensität abhängig. k_{1b} ist die Reaktionskonstante von Reaktion I b. Das Gleichgewicht besteht, solange es keine konkurrierenden Reaktionen anderer Substanzen mit NO gibt. Nachts wird aufgrund der unmöglichen Photolyse von NO_2 bei Abwesenheit direkter NO-Quellen alles NO zu NO_2 oxidiert, vorausgesetzt, dass genügend Ozon vorhanden ist. Die größte Senke des NO_2 ist die Deposition am Boden nach der Umwandlung in Salpetersäure - eine Bildungsart des sauren Regens.

Am Tage übernimmt das Hydroxylradikal die Oxidation:



Hydroxylradikale sind extrem reaktiv und oxidieren fast alle Luftverunreinigungen. Sie entstehen hauptsächlich durch die Photolyse von Ozon und nachfolgende Reaktion mit Wasserdampf:



Dieser grundlegende Aspekt der Photochemie wurde 1971 von Hiram Levy an der Harvard University entdeckt. Das Verzweigungsverhältnis zwischen den Reaktionswegen b) und c) beträgt etwa 0,1. Ein anderer Erzeugungsweg führt über die Photolyse salpetriger Säure (HNO_2):



Die Eigenschaft der Hydroxylradikale, mit fast allem zu reagieren, hat ihnen den Ruf eingebracht, das „Waschmittel der Atmosphäre“ zu sein. Insbesondere reinigen sie die Luft von Kohlenwasserstoffen:



Das R-Radikal ist ein organisches Fragment, das nur aus Kohlenstoff und Wasserstoff besteht. Reaktion VI wird gefolgt von



und



So kann die Ozon-Abbaureaktion I b umgangen werden, ohne dass Ozon zerstört wird. Die hohen Ozon-Konzentrationen sind also die Kehrseite des Waschmittel-Effekts des Hydroxylradikals.

In Abbildung 1-12 ist die troposphärische Stickstoffchemie schematisch dargestellt. Das Schema verdeutlicht neben der aktuellen Vorstellung von den Reaktionsmechanismen, wie schwer es ist, ein so komplexes System übersichtlich darzustellen. Dabei behandelt es nur einen Teilaspekt der tatsächlich ablaufenden chemischen Prozesse.

Die Frage, welche Vorläufersubstanzen verringert werden sollten, um die Ozon-Konzentration zu senken, ist ebenso wichtig wie schwer zu beantworten. Die Ursache für diese Schwierigkeit wird in Abbildung 1-13 illustriert. Ausgehend von verschiedenen Stickoxid- und Kohlenwasserstoff-Konzentrationen sind die resultierenden Ozon-Konzentrationen modelliert worden. Man sieht, dass der Erfolg einer Emissions-Begrenzungsstrategie von den relativen Konzentrationen abhängig ist. Die Reduzierung der VOC- oder NO_x -Werte kann auch zu erhöhten Ozonwerten führen, wenn das Verhältnis nicht stimmt.

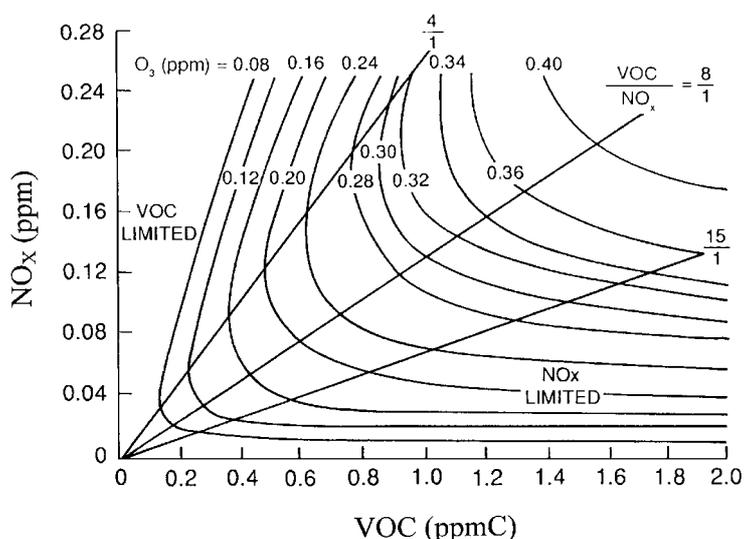


Abb. 1-13 Isoplethen-Diagramm der Ozon-Spitzenkonzentration, resultierend aus verschiedenen Anfangskonzentrationen von Stickoxiden und Kohlenwasserstoffen. Die Isoplethen verbinden Punkte gleicher Spitzenkonzentration [Jenkin und Clemitshaw, 2000].

1.5.1 Das photochemische Ausbreitungsmodell CALGRID

Für die Interpretation der gemessenen Daten werden Simulationen bzw. Modelle verwendet, die ein dreidimensionales Bild der Messgröße liefern. Ein Modell enthält natürlich wesentlich mehr Parameter und Ergebnisse als gemessen werden können. Da aber jedes Modell auf vielen Annahmen fußt, sind die wenigen zur Verfügung stehenden Messgrößen

der einzige Anhaltspunkt, um Eingabe-Parameter und Ergebnisse zu prüfen und gegebenenfalls zu verändern. Die Modelldaten wurden mir vom Institut für Meteorologie der Freien Universität zu Verfügung gestellt. Da die Nutzung und Interpretation der Daten Grundkenntnisse über Eigenheiten des Modells voraussetzt, werde ich hier darauf eingehen. Außerdem ist die Betrachtung der Modellergebnisse sehr hilfreich beim Studium der Dynamik und Chemie der planetaren Grenzschicht.

Das Modell CALGRID ist ein Eulersches Gittermodell, das auf einer numerischen Lösung der dreidimensionalen atmosphärischen Diffusionsgleichung beruht. Die Advektions-Diffusionsgleichung beschreibt die Massenbilanz aller beteiligten Luftbeimengungen:

$$\begin{aligned} \frac{\partial c_i}{\partial t} = & \frac{\partial}{\partial x} u c_i + \frac{\partial}{\partial y} v c_i + \frac{\partial}{\partial z} w c_i && \text{Advektion} && \text{Gl. 1-26} \\ & + \frac{\partial}{\partial x} \left(K_H \frac{\partial c_i}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(K_H \frac{\partial c_i}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(K_z \frac{\partial c_i}{\partial z} \right) && \text{Turbulente Diffusion} \\ & + R_i + S_i + L_i \end{aligned}$$

mit: c_i = Konzentration der Luftbeimengung i als Fkt. des Raumes (x, y, z) und der Zeit t

u, v, w = horizontale und vertikale Komponenten des Windvektors

K_H = horizontaler turbulenter Diffusionskoeffizient

K_z = vertikaler turbulenter Diffusionskoeffizient

S_i = Emissionsrate der Luftbeimengung i

R_i = Änderungsrate der Luftbeimengung i infolge chemischer Reaktionen

L_i = Verlustrate der Luftbeimengung i infolge von Depositionsprozessen.

Das durch die obige Gleichung beschriebene System partieller Differentialgleichungen ist durch den Reaktionsterm R_i gekoppelt. Die Anzahl der gekoppelten Gleichungen wird durch die Anzahl i der zu transportierenden reaktiven Spezies bestimmt.

Die Berechnungen werden für Gitterpunkte eines dreidimensionalen Netzes ausgeführt. Zuerst wird ein Modell mit grober Rasterung zur Vorhersage der Randparameter gerechnet. REM3 (**R**egional **E**ulerian **M**odel with **3** chemistry schemes) [Stern, 1994] ist ein großräumiges (30-km-Raster), dreidimensionales, photochemisches Ausbreitungsmodell zur Simulation der Bildung, des Transports und der Entfernung von Oxidantien in der planetaren Grenzschicht. Das Modell enthält drei verschiedene photochemische Reaktionsmechanismen, von denen einer der ebenfalls im CALGRID-Modell integrierte SAPRC-90-Mecha-

nismus ist. REM3 arbeitet mit dem Konzept der dynamischen Schichten, die in Abhängigkeit von den lokalen meteorologischen Verhältnissen expandieren oder kontrahieren. Der Ausbreitungsraum wird dazu in drei Schichten aufgeteilt.

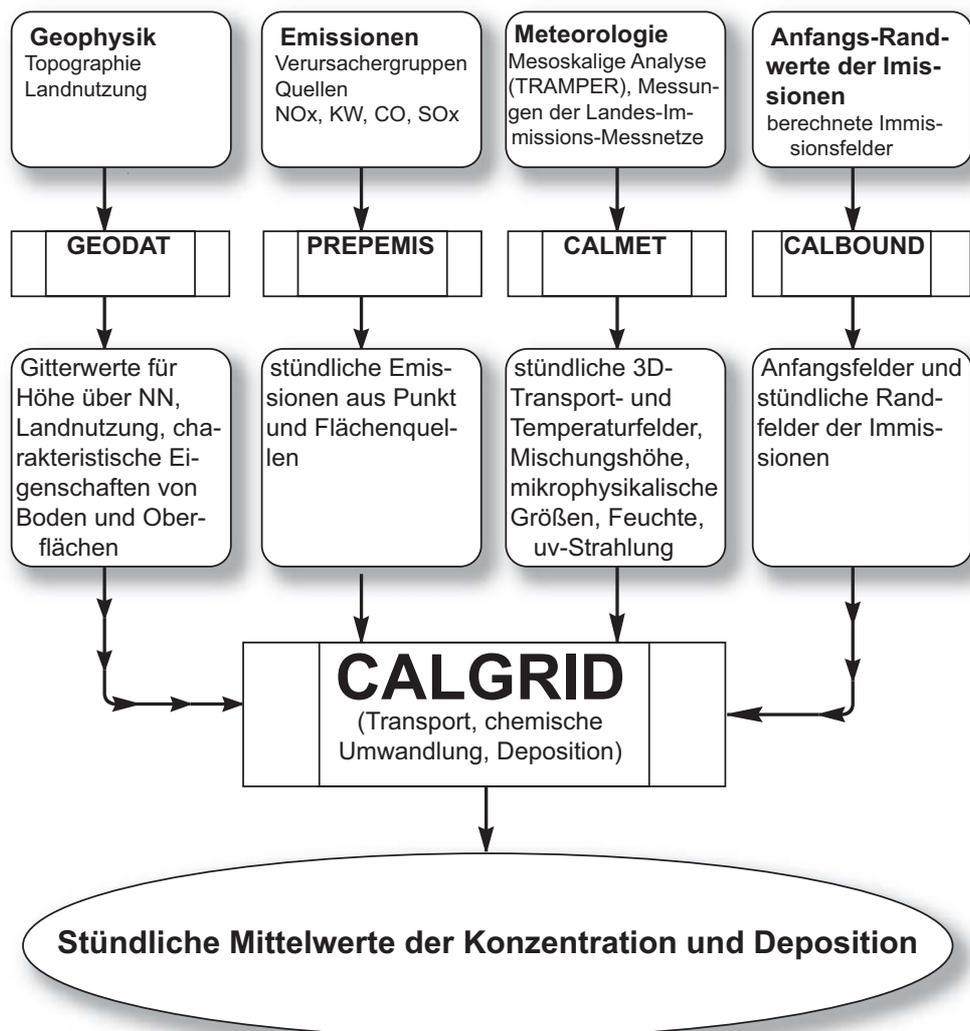


Abb. 1-14 Das CALGRID Modellsystem [Stern et al., 1997].

CALMET ist der für das Transportmodell CALGRID entwickelte meteorologische Treiber, der auf der Basis von Messungen alle für CALGRID benötigten Daten erzeugt. CALMET verwendet als Eingangsdaten alle verfügbaren meteorologischen Standard-Bodenmessungen, die verfügbaren Vertikalsondierungen sowie Landnutzungsdaten und topographische Daten. Aus diesen Daten berechnet das Modell mit Hilfe von Interpolations-Methoden und Strömungs-Adaptionsalgorithmen unter Verwendung der Grenzschicht-Theorie alle benötigten Felder.

TRAMPER (Tropospheric Realtime Applied Meteorological Procedures for Environmental Research) [Reimer und Scherer, 1992] ist ein großräumiges, diagnostisches meteorologisches Analysesystem, das den Antrieb für CALMET liefert. Mit TRAMPER werden ausgehend von der großräumigen Wetterlage im Untersuchungsgebiet Vertikalprofile für alle meteorologischen Parameter erstellt. Diese Vertikalprofile dienen als Stützwerte für das CALMET-Modell, das unter weiterer Einbeziehung lokaler Messwerte die meteorologischen Felder für CALGRID in der definierten Auflösung berechnet. TRAMPER liefert auch alle zum Betreiben des großräumigen photochemischen Modells REM3 benötigten meteorologischen Daten.

CALGRID ist schließlich das dreidimensionale, photochemische Transportmodell mit Modulen für den horizontalen und vertikalen Transport, die horizontale und vertikale Diffusion, die trockene Deposition sowie für die photochemischen Reaktionen (Gleichung 1-26). Als photochemischer Mechanismus wird der SAPRC-90-Mechanismus verwendet, eine kompakte Version des am Statewide Air Pollution Research Center (SAPRC) der Universität Kalifornien entwickelten SAPRC-Mechanismus [Carter, 1990].

Die gesamte graphische Auswertung wird mit einem auf GRADS (**Grid Analysis and Display System**) beruhenden Analysesystem vorgenommen. GRADS wurde am Center for Ocean-Land-Atmosphere Interactions der Universität von Maryland entwickelt [Doty, 1995]. Zum direkten Vergleich mit Laser-Fernerkundungsdaten habe ich ein neues Lese- und Auswertungsprogramm in Labview entwickelt.

Die Abbildung 1-14 gibt einen schematischen Überblick über den Aufbau des Modellsystems. Für die Modellierung des Gebiets Berlin/Brandenburg wurde ein Gitter mit einem horizontalen 2-km-Netz und 14 Höhenstufen mit Mittelpunkten bei 10, 35, 75, 150, 250, 350, 450, 600, 850, 1200, 1700, 2300, 2900 und 3500 m verwendet. Das Modell arbeitet mit Gauß-Krüger-Koordinaten, bei denen ein Schritt einem Kilometer entspricht. (Modellgebiet, Abbildung 1-15).

1.5.1.1 Bestimmung meteorologischer Parameter mit CALMET

Der meteorologische Treiber CALMET [Scire et al., 1995] ist ein universell einsetzbares Programmsystem zur Erzeugung von meteorologischen Eingabedaten für das chemische Transportmodell CALGRID. Ausgehend von bodennahen meteorologischen Beobachtungen und evtl. verfügbaren aerologischen Daten sowie der Landnutzung und Topographie

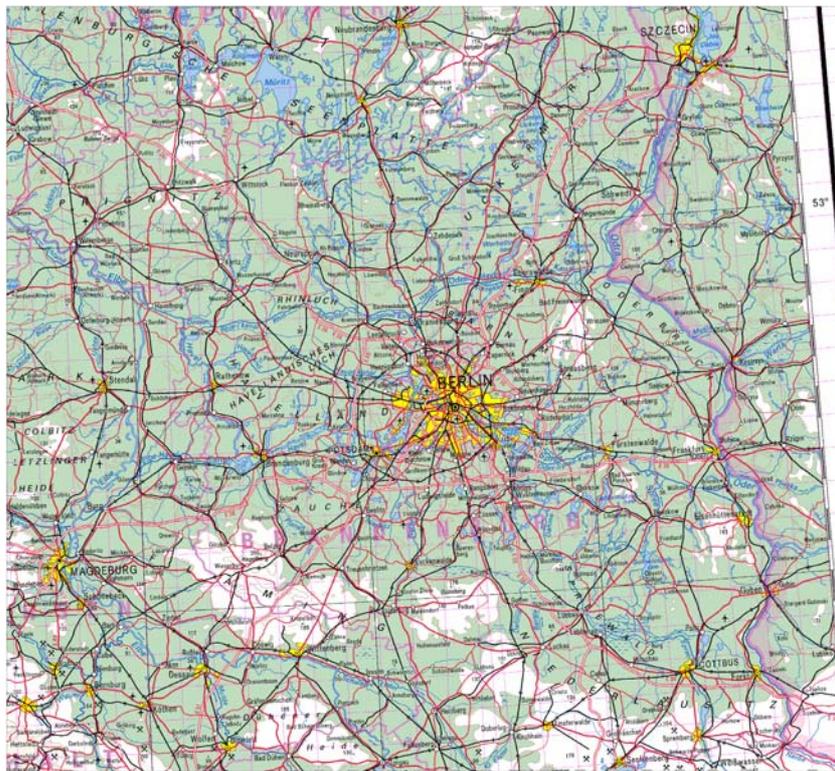


Abb. 1-15 Das CALGRID Modellgebiet erstreckt sich zwischen
 Rechtswert: 4467 - 4707 bzw. W 11° 31' 29.04" - W 15° 7' 43.33" oder 11.524735 - 15.128704,
 Hochwert: 5707 - 5947 bzw. N 51° 29' 52.46" - N 53° 36' 53.89" oder 51.497906 - 53.614970.

werden alle erforderlichen zwei- und dreidimensionalen Felder abgeleitet und als CALGRID-Eingabedateien abgelegt. Ergänzend - oder ersatzweise für die aerologischen Messungen - können beliebige diagnostische oder quasidiagnostische dreidimensionale Wind- und Temperaturfelder verarbeitet werden. Für die vorliegende Anwendung auf den Ballungsraum Berlin/Brandenburg wurden die auch dem Antrieb des REM3 zugrundeliegenden mesoskaligen Analysen des meteorologischen Datensystems TRAMPER als Grundfelder übernommen. Damit wird die Anbindung des lokalen an das überregionale Transportmodell gewährleistet.

Die vorbereiteten Daten werden dann im meteorologischen Modell CALMET weiterverarbeitet. CALMET umfasst Module für die Berechnung von Grenzschichtparametern sowie von mittleren Wind- und Temperaturfeldern. In Tabelle 1-5 sind die verwendeten Eingabedaten und die von CALGRID erzeugten Ausgabefelder zusammengefasst.

Das Grenzschichtmodul verwendet unterschiedliche Parametrisierungen über Land und Wasser. Für Landoberflächen wird ein Energiebilanzverfahren verwendet. Jedem Typ von Landoberfläche muss dabei das Verhältnis von sensiblem zu latentem Wärmefluss

<u>EINGABEDATEN</u>		
Landnutzung		
Topographie		
Wind- und Temperaturprofile (an Gitterpunkten der objektiven Analyse)		
Bewölkungsgrad (an Gitterpunkten der objektiven Analyse)		
Wind- und Temperaturbeob. (aus Immissionsmessnetzen der Länder)		
<u>AUSGABEDATEN</u>		
3-D	2-D	1-D
u-, v-, w-Komponente des Windes	PGT-Stabilitätsklasse	Hüttentemperatur
Temperatur	Schubspannungsgeschwindigkeit u^*	Luftdichte
Feuchtigkeit	Mischungsschichthöhe	kurzwellige Nettostrahlung
	Monin-Obuchov-Länge	Relative Feuchtigkeit
	konvektive Skalengeschwindigkeit w^*	Niederschlagstyp
	Niederschlagsrate	

Tab. 1-5 Überblick über Ein- und Ausgabedaten des CALMET-Modells

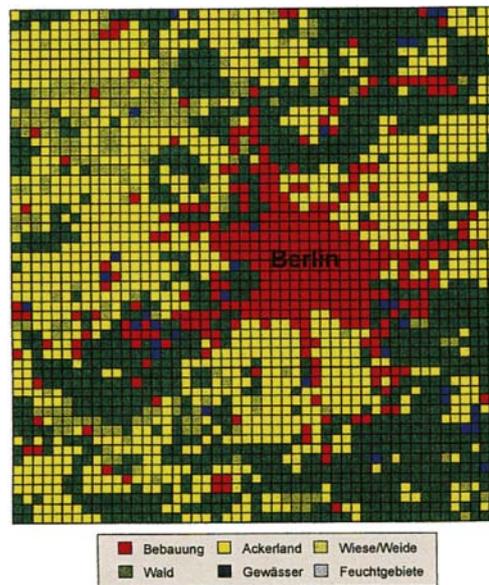
("Bowen-ratio") zugeordnet werden. Vorgabewerte dieser Größe für US-standardisierte Landnutzung liegen im Grenzschichtmodell vor. Zur Bestimmung der kurzwelligen Nettostrahlung werden Standard-Parametrisierungen verwendet, in die Sonnenstand, Temperatur, Bewölkung, der Bodenwärmefluss, der anthropogene Wärmefluss, der sensible Wärmefluss am Tage und die kurzwellige Nettostrahlung eingehen. Der sensible Wärmefluss Q_h berechnet sich aus

$$Q_h = \frac{B}{1-B} [Q^* (1 - c_g) + Q_f] \quad \text{Gl. 1-27}$$

mit B = Bowen-ratio, Q^* = kurzwellige Nettostrahlung, Q_f = anthropogener Wärmefluss und $Q' = (1-A) Q_{sw} + c_1 T^6 - \sigma T^4 - c_2 N^{b2}$, mit A = Albedo, Q_{sw} = kurzwellige Strahlung = $(a \sin \phi + a)(1 + b_1 N^{b2})$, T = Temperatur, N = Bewölkung in Zehntel, ϕ = Sonnenhöhe, σ = Stefan-Boltzmann-Konstante. Ist der sensible Wärmestrom bekannt, können iterativ die Schubspannungsgeschwindigkeit u^* und die Monin-Obuchov-Länge L berechnet werden:

$$u^* = \frac{ku}{\ln\left(\frac{z}{z_0} - \Psi_m\left(\frac{z}{L}\right) + \Psi_m\left(\frac{z_0}{L}\right)\right)} \quad \text{und} \quad L = -\frac{\rho C_p T u^{*3}}{kg Q_h} \quad \text{Gl. 1-28}$$

mit: z = Rauigkeitslänge, Ψ_m = Korrekturfunktion [Dyer und Hicks, 1970], k = Von-Karman-Konstante, u = Windgeschwindigkeit, T = Temperatur, g = Erdbeschleunigung. Unter stabilen Bedingungen wird ein Verfahren nach Weil und Brower [Weil und Brower, 1983] angewandt:



Landnutzungsklasse	Anteil an der Gesamtfläche
Städtisch bebaute Flächen	20,2 %
Landwirtschaftlich genutzte Flächen	30,9 %
Weiden/Wiesen	7,6 %
Waldgebiete	35,2 %
Wasserflächen	6,0 %
Feuchtgebiete/Sumpf	<0,1 %

Abb. 1-16 Landnutzungsklassen in der Modell-Region Berlin-Brandenburg

$$u^* = \frac{1}{2} C_{DN} u (1 + C^{1/2}) \quad \text{Gl. 1-29}$$

mit: C_{DN} = Reibungskoeffizient unter neutraler Schichtung $[k/\ln(z/z_0)]$,
 $C = 1 - [(4u_0^2) / (C_{DN} u^2)]$, und $u_0^2 = f(T, \theta^*)$, θ^* = Temperaturskalengröße, $\theta^* = \min(\theta^*_1, \theta^*_2)$,
wobei $\theta^*_1 = 0,09(1 - 0,5N^2)$, $\theta^*_2 = (TC_{DN} u^2) / (4\gamma z g)$, $\gamma = 4,7$. Der sensible Wärmefluss ist
über die Funktion $Q_h = -\rho c_p u^* \theta^*$ mit u und θ^* verknüpft. Über Wasser wird vereinfachend
 $u = u C_{uN}^{1/2}$ gesetzt ($C_{uN}^{1/2}$: neutraler Reibungskoeffizient über Wasser $(0,75 + 0,067 u)10^{-3}$).
Wegen der Bedeutung des latenten Wärmeflusses wird die Monin-Obuchov-Länge L über Wasser wie folgt berechnet [Hanna et al., 1985]:

$$L = \frac{\theta_v C_{uN}^{3/2} u^2}{E_2(\theta_v - \theta_{vs})} \quad \text{Gl. 1-30}$$

mit: θ_v , θ_{vs} = virtuelle potentielle Temperatur von Luft und Wasser, u = Windgeschwindigkeit, $E_2 = 5.096 \times 10^{-3}$. Die Mischungsschichthöhe h_t folgt dann tagsüber bei positivem Wärmefluss aus folgender prognostischer Gleichung:

$$h_{t+dt} = \sqrt{h_t^2 + \frac{2Q_h(1+E)dt}{\Psi_1 \rho c_p} - \frac{2d\theta_t h_t}{\Psi_1} + \frac{d\theta_{t+dt}}{\Psi_1}} \quad \text{Gl. 1-31}$$

$$d\theta_{t+dt} = \sqrt{\frac{2\Psi_1 E Q_h dt}{\rho c_p}}$$

mit: Ψ_1 = Gradient der potentiellen Temperatur oberhalb von h_t , $d\theta_t$ = Temperatursprung am Oberrand der Mischungsschichthöhe zur Zeit t , $E = 0,15$. Der Gradient der potentiellen Temperatur wird jeweils aus der für die vorhergehende Stunde geltenden Temperatur in den Schichten über der Mischungsschichthöhe berechnet. Die Mächtigkeit der Höenschicht zur Bestimmung des Gradienten und der minimale potentielle Temperaturgradient können per Option vorgegeben werden. Die Höhe der Mischungsschicht wird tagsüber als das Maximum aus konvektiver und neutraler Mischungsschichthöhe berechnet:

$$h_{\text{neutral}} = \frac{Bu^*}{\sqrt{fN_B}} \quad \text{Gl. 1-32}$$

mit: f = Coriolis-Parameter, N_B = Brunt-Väisälä-Frequenz. Die Höhe der stabilen Mischungsschicht wird als das Maximum aus

$$h_1 = B_2 u^{*\frac{3}{2}} \quad \text{Gl. 1-33}$$

bestimmt mit $B_2 = 2400$ und

$$h_2 = \frac{2}{5} u^{*\frac{3}{2}}. \quad \text{Gl. 1-34}$$

Als weitere Option für die Berechnung der Mischungsschichthöhe kann eine räumliche Advektion der konvektiven Mischungsschichthöhe im Anströmsektor über spezielle Gewichtsfunktionen erfolgen. Ist die Mischungsschichthöhe bekannt, kann direkt die konvektive Geschwindigkeit w^* berechnet werden:

$$w^* = \sqrt[3]{\frac{gQ_h h_1}{T\rho c_p}}. \quad \text{Gl. 1-35}$$

Wir dürfen gespannt sein, wie die auf so komplizierte Weise errechnete Mischungsschichthöhe mit den Laser-Fernerkundungsmessungen übereinstimmt.

1.5.2 Wirkung von Luftverunreinigungen auf Menschen und Pflanzen

Viele anthropogene Luftbeimengungen destabilisieren nicht nur das Klimasystem. Sie schädigen darüber hinaus die Gesundheit und führen zu Produktionseinbußen, insbesondere in der Landwirtschaft. Da sich die Mischung unserer Atemluft mit den Emissionen nicht verhindern lässt, versucht man eine Balance zwischen selektiver Reduktion bestimmter Stoffe und der Wirtschaftlichkeit zu finden. In den Städten stellen insbesondere Staub und photochemische Reaktionsprodukte wie z. B. Ozon ein Problem dar. Feinstaub und andere Aerosole gelangen bis in die Lungenbläschen und transportieren so Bakterien, Viren und Gifte in die Lunge, die Schnittstelle zwischen Atemluft und Blut. Das Ozon soll im Folgenden als Beispiel dienen, um typische Wirkungen darzustellen.

Meine Oma empfahl mir, nach einem Gewitter im Wald tief durchzuatmen und das Ozon zu inhalieren - das sei gut für die Gesundheit. Tatsächlich steigt die Ozon-Konzentration nach einem Gewitter im Wald stark an. In Blitzen wird NO_2 gebildet, das mit den natürlichen flüchtigen Kohlenwasserstoffen im Wald reagiert. Nach heutigem Erkenntnisstand ist jedoch sicher, dass Ozon äußerst aggressiv auf Zellen sowohl bei Menschen und Tieren als auch bei Pflanzen wirkt, und es wird entschieden davon abgeraten, Luft mit erhöhter Ozon-Konzentration einzuatmen.

Und noch etwas hat sich seit Großmutter's Zeiten geändert. Die Konzentration des bodennahen Ozons unterliegt heutzutage vorwiegend anthropogenen Einflüssen. Etwa die Hälfte entsteht derzeit durch Reaktionen von Stickoxiden und flüchtigen Kohlenwasserstoffen, die ständig neu bei der Verbrennung fossiler Energieträger gebildet werden. Wie im vorigen Abschnitt dargestellt ist das Verständnis für die komplexen Prozesse bei der chemischen Bildung von Ozon, anderen Gasen und Aerosol noch unvollkommen. Gleichzeitig besteht Handlungsbedarf für politische Weichenstellungen. In Tabelle 1-6 und Tabelle 1-7 sind die Grenz- und Richtwerte der deutschen und europäischen Verordnung für Ozon, seine Vorläufersubstanzen, Schwefeloxide und Staub aufgeführt. Da in der Politik nur kleine Schritte gegangen werden können, ist es besonders schwer, eine Entscheidung zu treffen, die zur Reduktion von Ozon führt, denn diese kann nur durch Beeinflussung der Konzentration von Vorläufersubstanzen erreicht werden.

Die Empfindlichkeit gegenüber Ozon beim Menschen ist sehr unterschiedlich ausgeprägt. Eine unterste Konzentration, die bei niemandem zu Reizungen führt, ist nicht bekannt. Es treten Reizungen der Nasenschleimhaut und des Rachens mit Begleiterscheinungen wie

Komponente	Immissionswerte nach TA-Luft ^a		Grenz-, Leit- und ^b Schwellenwerte der Europäischen Union		MIK-Werte nach VDI 2310		Konz.-Werte 23. BImSchV		
	Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	IW1 Jahresmittel	IW2 98 %-Wert	Wert	Erläuterung	½ h	24 h	Jahresmittel	98 %-Wert
Schwebstaub		150	300	150	Jahresmittelwert	500 ^c	250 ^d		
				300	95 %-Wert aus Tageswerten		150 ^e		
Schwefeldioxid (SO ₂)		140	400	120/80 ^f	Median ^h des ganzen Jahres, Median ^h des Winterhalbjahres	1000	300		
				180/130 ^g					
				350/250 ⁱ	98 %-Wert aus Tageswerten				
Stickstoffdioxid (NO ₂)		80	200	200	98 %-Wert aus ½h-Werten	200	100		160
Stickstoffmonoxid (NO)						1000	500		
Kohlenmonoxid (CO)		10000	30000			50000	10000		
Benzol									15/10 ^k
Ruß									14/ 8 ^k
Ozon (O ₃)				180	1h-Wert zur Information	120			
				360	1h-Wert zur Warnung der Bevölkerung				
				110	8h-Wert für den Gesundheitsschutz				
				200	1h-Wert				
				65	24h-Wert zum Schutz der Vegetation				

Tab. 1-6 Grenz- und Richtwerte für Luftverunreinigungen in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ [<http://www.met.fu-berlin.de/senum/>]

- a. bezogen auf die Beurteilungsfläche. Die Immissionswerte (IW) beziehen sich bei Staub auf Tageswerte, sonst auf 1/2h-Werte.
- b. EU-Grenzwerte gelten bis zu den in der letzten Spalte der Tabelle 1-7 angegebenen Terminen.
- c. Bezugszeitraum 1 Stunde
- d. bei einmaliger Exposition
- e. an aufeinander folgenden Tagen
- f. 150 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
- g. 200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
- h. berechnet aus Tageswerten
- i. 350 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
- j. Richtwerte für Planverfahren
- k. gültig ab 1.7.95 bzw. 1.7.98

Komponente	Mittel über	Grenzwert (GW)	zulässige Anzahl von Überschreitungen	Grenzwert einzuhalten bis
Schwefeldioxid	1 h	350 µg/m ³	24 mal pro Jahr	1.1.2005
	24 h	125 µg/m ³	3 mal pro Jahr	1.1.2005
Stickstoffdioxid	1 h	200 µg/m ³	18 mal pro Jahr	1.1.2010
	1 Jahr	40 µg/m ³		1.1.2010
Schwebstaub (PM10)				
- Stufe 1	24 h	50 µg/m ³	35 mal pro Jahr	1.1.2005
	1 Jahr	40 µg/m ³		1.1.2005
- Stufe 2	24 h	50 µg/m ³	7 mal pro Jahr	1.1.2010
	1 Jahr	20 µg/m ³		1.1.2010
Blei	1 Jahr	0,5 µg/m ³		1.1.2005

Tab. 1-7 Grenzwerte für Luftverunreinigungen nach der Richtlinie 1999/30/ EG (EU-Tochtrichtlinie), in Kraft seit 19.7.1999 [<http://www.met.fu-berlin.de/senum/>].

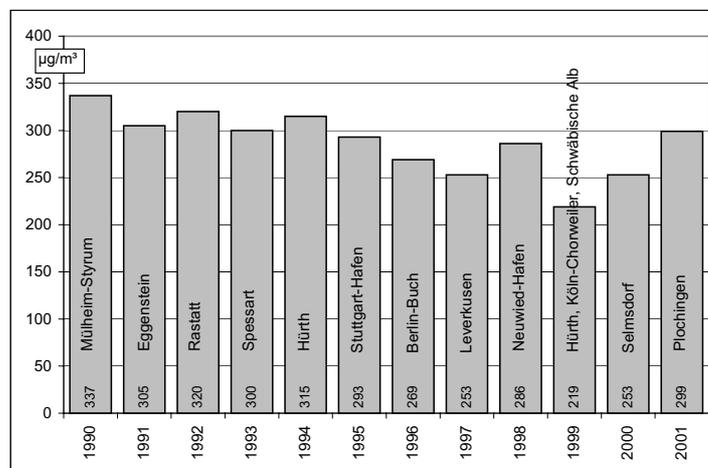
Husten und Engegefühl in der Brust auf. Studien über Veränderungen der Lungenfunktion werden seit etwa 25 Jahren durchgeführt. Eine Metaanalyse [Hazucha, 1987] verdeutlicht die Bedeutung der körperlichen Belastung für die Einschränkung der Lungenfunktion durch Ozon. Unter leichter körperlicher Belastung kommt es ab ca. 400 µg/m³, bei starker Belastung bereits ab 200 µg/m³ zu signifikanten Einschränkungen. Ohne Belastung wurden selbst Konzentrationen von 1000 µg/m³ ohne gefährliche Folgen vertragen. Weiterhin ist eine verstärkte Reagibilität nach längerer Ozonbelastung beobachtet worden. Das heißt z. B., dass Asthmatiker nach Ozonbelastung stärker auf Allergene reagieren, also eine geringere Menge eines Allergens ausreicht, um die gleiche Störung der Lungenfunktion auszulösen. Bei den in Deutschland auftretenden Konzentrationen regenerieren sich diese Störungen und führen nicht zu Dauerschäden. Bei mehrfacher Exposition gegenüber Ozon kommt es zu einer vorübergehenden Gewöhnung [Folinsbee et al., 1994]. Besonders schwierig bei der Untersuchung großer Bevölkerungsgruppen ist die Trennung der Ursachen für erfolgte Veränderungen, da besonders Staub und andere photochemische Reaktionsprodukte in der Atemluft und auch das Rauchen ähnliche Wirkungen wie Ozon zeigen.

Unter den bekannten Luftschadstoffen besitzt Ozon auch die höchste Giftwirkung auf Pflanzen [Dierkesmann und Sandermann, 2000]. Erscheinungen wie Nadel- und Blattverlust bei Bäumen oder Ernteeinbußen zwischen 10 und 30 % zählen zu den Folgen. Als

Ursache wird vor allem die langfristige Exposition gegenüber niedrigen Ozon-Konzentrationen gesehen.

Die durchschnittlichen Ozonwerte sind in den letzten hundert Jahren um das Zweifache gestiegen. Sie liegen auch in Europa und in den USA deutlich oberhalb der international gültigen Grenzwerte von $60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ als Mittelwert über eine Vegetationsperiode von 7 Monaten (WHO). Es werden sowohl akute als auch chronische Effekte beschrieben. So konnte nachgewiesen werden, dass Infektionsepisoden auf Ozonepisoden folgen. Untersuchungen im Freiland gibt es bisher nur wenige, und es ist oft fraglich, ob die Laborergebnisse übertragbar sind, da das Wohlbefinden einer Pflanze vielfältige Ursachen hat. In der Landwirtschaft entwickelt sich gerade die Nachfrage nach Laser-Fernerkundungsgeräten, um durch flächendeckende Messungen von Spurengasen die Pflanzensorten entsprechend den lokalen Bedingungen auswählen zu können.

a)



b)

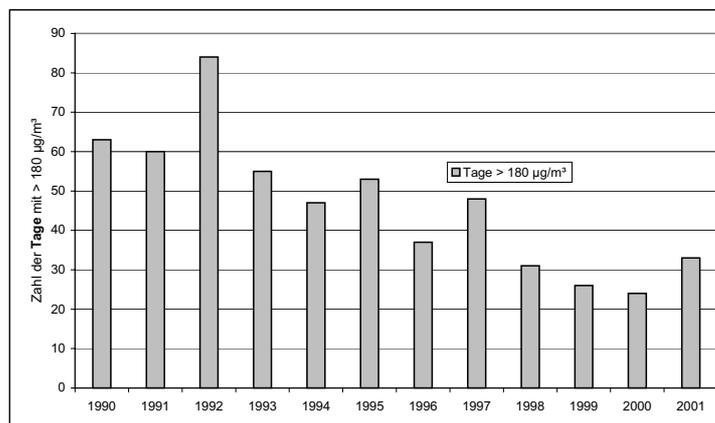


Abb. 1-17 Entwicklung der Ozon-Konzentration in Deutschland [Umwelt-Bundesamt, 2001]

- a) Jährliche maximale Ozon-Konzentrationen in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ mit Angabe der registrierenden Messstelle,
 b) Zahl der Tage mit Überschreitungen von $180 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

2 Laser-Fernerkundung

Durch Laser-Fernerkundung können Parameter der Atmosphäre mit Hilfe spektroskopischer Methoden aus Rückstreusignalen ermittelt werden. Im ersten Abschnitt dieses Kapitels werden die zugrunde liegenden Streuprozesse behandelt. Besonders ausführlich wird dabei auf die Raman-Streuung an Stickstoff- und Sauerstoffmolekülen eingegangen. Der zweite Teil widmet sich dem Inversionsproblem, d. h. der Bestimmung der gesuchten Größen aus den Rückstreusignalen. In der planetaren Grenzschicht sind das Aerosol und die Spurengase besonders konzentriert und vielfältig und aufgrund der hier typischen Turbulenz außergewöhnlich strukturiert. Das ausgesandte Licht verändert sich durch die Überlagerung aller auftretenden Wechselwirkungen, da die Atmosphäre durch die Messmethode in ihrem natürlichen Zustand angetroffen wird. Oft ist das ein Vorteil gegenüber Verfahren, die darauf angewiesen sind, an Ort und Stelle zu arbeiten und unter Umständen die Luft zuerst aufbereiten zu müssen. Es bleibt aber eine große Herausforderung, die gewünschte Messgröße ohne bedeutende systematische Fehler durch Querempfindlichkeiten aus dem Rückstreusignal zu bestimmen. Darauf liegt das besondere Augenmerk dieser Abhandlung.

2.1 Streuung von Licht in der Atmosphäre

Die Naturforscher fanden bis zur Mitte des 19. Jahrhunderts keine befriedigenden physikalischen Erklärungen für die Leuchterscheinungen in der Atmosphäre. Fragen wie: „Warum ist der Himmel blau und die Wolke weiß, der Sonnenuntergang rot und manchmal von einem grünen Blitz begleitet?“ konnten nicht beantwortet werden. Sir Isaac Newton versuchte z. B., das Blau des Himmels durch Interferenzen an kondensierendem Dampf zu erklären. Mit der Frage nach der Herkunft der blauen Farbe eng verbunden waren die Versu-

che, die Ursache für die bereits entdeckte Polarisation des Himmelslichts zu finden. Die Antwort ist in dem Phänomen der Streuung des Lichts zu finden. Die Begriffe für die verschiedenen Wechselwirkungen bei der Streuung von Licht an Molekülen werden bis heute in der Literatur nicht einheitlich verwendet. Hier wird die von Andrew T. Young vorgeschlagene Nomenklatur verwendet, der in seiner Veröffentlichung „Rayleigh scattering“ [Young, 1982] den historischen Spuren der Forschung nachgegangen ist und daraus eine Terminologie ableitete, die hoffentlich Ehre zukommen lässt, wem Ehre gebührt. Nach der Behandlung der Rayleigh- und der Raman-Streuung an Molekülen wird die Mie-Streuung diskutiert. Auf ihr basiert eine analytische Lösung für atmosphärische Aerosol-Streuung. Auch wenn diese Lösung auf spezielle Geometrien der Streuer (z. B. homogene Kugeln, unendlich lange Zylinder oder Ellipsoide) beschränkt ist, so eröffnet sie doch die Möglichkeit, die intuitiv schwer zugänglichen Wechselwirkungsprozesse des Lichts bei der Transmission durch die Atmosphäre besser zu verstehen und durch vereinfachte Modelle nachzubilden.

Zunächst einige Worte zum Spektrum des Lichts und zu den Begriffen, die in diesem Zusammenhang Verwendung finden. Für die Laser-Fernerkundung wird Licht vom ultravioletten Bereich (zwischen 200 und 380 nm) über den sichtbaren Bereich (von ca. 380 bis 750 nm) bis hin zum mittleren Infrarot (bei 20 μm) verwendet.

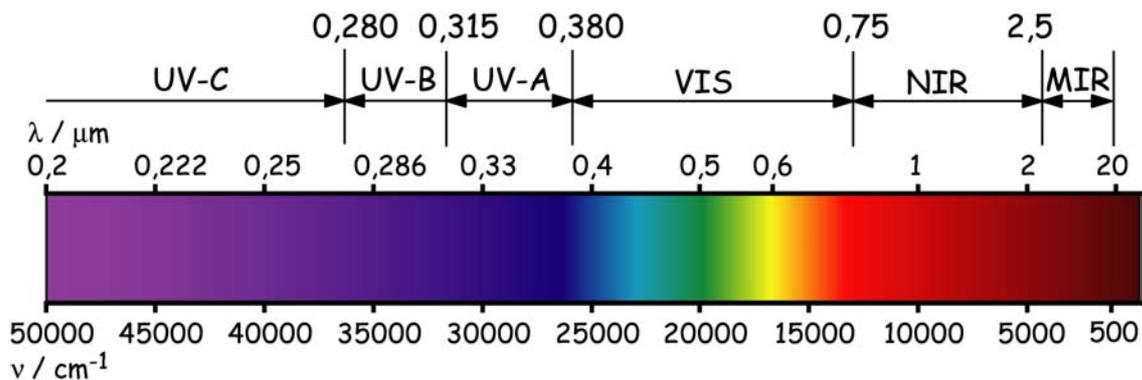


Abb. 2-1 Lichtspektrum mit Wellenzahl- und Wellenlängen-Achse.

Einem einzelnen Streuer wird ein Streuquerschnitt zugeordnet, der im Folgenden mit σ bezeichnet wird und die traditionelle Flächeneinheit cm^2 trägt. Man unterscheidet zwischen dem Absorptionsquerschnitt σ_{abs} und dem Streuquerschnitt σ_{s} . Diese sind proportional zur Wahrscheinlichkeit einer Wechselwirkung des Lichts mit den entsprechenden Partikeln in der Atmosphäre. Vor allem in der Mie-Theorie wird stattdessen häufig die dimensionslose

Größe der Streueffizienz $Q = \sigma/A$ (der Quotient aus Streuquerschnitt und geometrischer Fläche des Streuers) verwendet. Für eine Kugel mit dem Durchmesser D gilt demnach $Q = \sigma/(\pi \cdot D)$. Unter dem Extinktionskoeffizienten α versteht man das Produkt aus der Teilchendichte N [cm^{-3}] und dem Streuquerschnitt einer Menge gleicher Streuer, $\alpha = N_a \cdot \sigma_{\text{abs}} + N_s \cdot \sigma_s$. Die optische Dicke einer Schicht ist definiert als das Integral des Extinktionskoeffizienten über die Schichtdicke r :

$$\tau = \int_0^r \alpha(r') dr. \quad \text{Gl. 2-1}$$

Die Schwächung der Lichtintensität I beim Durchdringen eines Mediums wird durch das Lambert-Beer-Gesetz beschrieben:

$$I(r) = I_0 \cdot e^{-\tau} = I_0 \cdot T. \quad \text{Gl. 2-2}$$

I_0 ist die Anfangsintensität, I die Restintensität nach der Entfernung r und T die Transmission.

2.1.1 Streuung an Luftmolekülen

Grundsätzlich wird unterschieden zwischen elastischer und inelastischer Streuung, wobei sich elastisch gestreutes Licht dadurch auszeichnet, dass es die gleiche Frequenz wie die anregende Strahlung hat. Elastische Streuung an Molekülen wird im allgemeinen Rayleigh-Streuung genannt. Hier herrscht begriffliche Unklarheit, denn sie setzt sich aus zwei Anteilen, der Cabannes-Linie und den diese symmetrisch flankierenden Rotations-Raman-Linien, zusammen. Wirklich elastisch ist nur ein Teil der Cabannes-Linie, nämlich die Gross- bzw. Placzek-Linie, die ihrerseits von der symmetrisch zu ihr angeordneten Brillouin-Dublette flankiert wird, welche durch Kopplung mit der kinetischen Energie des Moleküls entsteht. Also beruht genau genommen auch die Rayleigh-Streuung nicht nur auf elastischer Wechselwirkung. Bei der Auswertung der Depolarisation von Streusignalen linear polarisierter Laserstrahlung gewinnt dies an Bedeutung, da die gemessene Depolarisation von der Breite des optischen Eingangsbandpassfilters abhängig ist.

Absorption entsteht durch resonante Anregung von elektronischen, Schwingungs- und Rotationsübergängen in Molekülen. Im ultravioletten Spektralbereich liegen die Anregungsenergien für elektronische Übergänge, wohingegen im infraroten vorwiegend Schwingungen und Rotationen angeregt werden. Die Stärke der Infrarot-Absorption wird von der Änderung des molekularen Dipolmoments bestimmt, während die Intensität der

Raman-Streuung durch die Änderung der molekularen Polarisierbarkeit bei Veränderungen der Kernkoordinaten definiert wird. Deshalb bringen homonukleare, zweiatomige Moleküle, wie N₂ und O₂, kein Infrarot-Spektrum, dafür aber ein Raman-Spektrum hervor [Demtröder, 2000]. Welch ein Glück für uns!

2.1.1.1 Der Rayleigh-Streuquerschnitt

Der Rayleigh-Streuquerschnitt für ein einzelnes Molekül in der gebräuchlichen Einheit cm² lässt sich als Funktion der Wellenlänge λ folgendermaßen darstellen [Buchholtz, 1995]:

$$\sigma_R(\lambda) = \frac{24\pi^3 [n_s^2(\lambda) - 1]^2}{\lambda^4 N_s^2 [n_s^2(\lambda) + 2]^2} \left[\frac{6 + 3\delta_R(\lambda)}{6 - 7\delta_R(\lambda)} \right]. \quad \text{Gl. 2-3}$$

Die Brechzahl n_s der Luft - bei einem Druck von 1013,25 hPa und einer Temperatur von 288,15 K (15 °C) - wird mit einer Parametergleichung berechnet:

$$(n_s - 1) \cdot 10^8 = a + \frac{b}{c - 1/\lambda^2} + \frac{d}{e - 1/\lambda^2}. \quad \text{Gl. 2-4}$$

Konstanten	$\lambda < 230 \text{ nm}$	$\lambda > 230 \text{ nm}$
a	8060.51	0
b	2 480 990	5 791 817
c	132,274	238,0185
d	17 455,7	167 909
e	39,329 57	57.362

Tab. 2-1 Konstanten für die Berechnung des Brechungsindex der Luft bei einem Druck von 1013,25 hPa und einer Temperatur von 288,15 K (15 °C) [Buchholtz, 1995]. Die berechneten Werte sind in Abbildung 2-2 zusammen mit der Depolarisation dargestellt.

Der Korrekturterm in geschweiften Klammern wird auch King-Faktor genannt. Die Depolarisation $\delta_R = I^\perp/I^\parallel$ ist als Intensitätsverhältnis des gestreuten Lichts mit senkrecht zueinander stehenden Polarisierungen unter einem Beobachtungswinkel von 90° zum einfallenden Licht. Die verwendeten Werte wurden von Bates [Bates, 1984] veröffentlicht. Sie sind in Abbildung 2-2 zusammen mit den berechneten Brechzahlen dargestellt. In den Veröffentlichungen über Rayleigh-Streuung wurden bis Mitte der 90er Jahre sowohl die Dispersion des Brechungsindex als auch der Depolarisation vernachlässigt. Im ultravioletten Spektralbereich hinterlässt das einen Fehler von bis zu 3 %. Die angegebene Formel unterscheidet sich etwas von der sonst üblichen Darstellung, da hier die Näherung aus Lehrbüchern nicht

angewandt wurde, dass n_s fast 1 ist, und damit $(n^2 - 1) = (n + 1) \cdot (n - 1) \sim 2(n - 1)$ gesetzt werden kann. Die genaue Berechnung des Brechungsindex erspart den kleinen aber unnötigen Fehler von 0,05 %. Anzumerken ist noch, dass die Formel in dieser Form tatsächlich den Streuquerschnitt für ein einzelnes Luftmolekül beschreibt und unabhängig vom Druck und der Temperatur des Gases ist, solange die Berechnung der Brechzahl n_s und der Teilchendichte N_s auf den gleichen Bedingungen fußen. Im rechten Diagramm in Abbildung 2-2 sind die resultierenden Streuquerschnitte für den Spektralbereich zwischen 200 nm und 10 μm dargestellt. Er nimmt allein im Sichtbaren um mehr als eine Größenordnung und im gesamten dargestellten Intervall gar um einen Faktor von 10^7 ab. Da die Streuung die Signalquelle für die Laser-Fernerkundung ist, hat das weit reichende Folgen für unsere Messergebnisse.

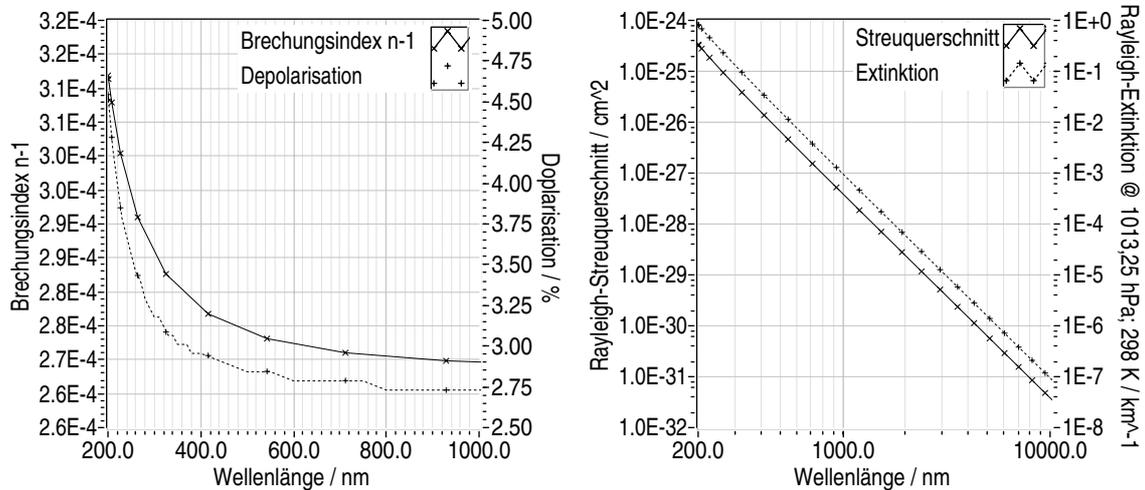


Abb. 2-2 Links ist die Dispersion des Brechungsindex und der Depolarisation der Luft dargestellt [Buchholtz, 1995]. Rechts ist der Rayleigh-Streuquerschnitt nach Gleichung 2-3 gegen die Wellenlänge aufgetragen. Der totale Volumenstreuoeffizient, auch Rayleigh-Extinktion genannt, unterscheidet sich um den Faktor der Moleküldichte vom Streuquerschnitt. Die Gerade in der doppelt-logarithmischen Auftragung verdeutlicht den potentiellen Zusammenhang der Größen.

In der Literatur wird für die Depolarisation häufig ein Wert von $\delta_R = 0,035$ angegeben. Dieser Wert wird aber im UV-Bereich weit über- und im sichtbaren und Infrarot-Bereich unterschritten. Deshalb wird die Dispersion der Depolarisation im Folgenden immer mit einberechnet. In der Laser-Fernerkundung werden fast ausschließlich polarisierte Strahlungsquellen verwendet. Deshalb ist das Depolarisationsverhältnis für polarisierte Strahlung δ_{pol} dem Problem besser angepasst. Es kann außerdem direkt aus Rückstreumessungen bestimmt werden. Die Anisotropie wird dann durch eine relative Anisotropie ϵ ersetzt. Der King-Faktor F_k kann dann in folgender Form geschrieben werden:

$$F_k = 1 + \frac{2\varepsilon}{9} = \left(\frac{6 + 3\delta_R}{6 - 7\delta_R} \right) = \left(\frac{6 + 12\delta_{pol}}{6 - 8\delta_{pol}} \right). \quad \text{Gl. 2-5}$$

Wellenlänge / nm	F_k	e	δ_n	δ_{pol}
266	1.0594	0.2675	0.0342	0.0174
532	1.0489	0.2201	0.0284	0.0144
1064	1.0463	0.2082	0.0269	0.0136

Tab. 2-2 Rayleigh-Depolarisation für Wellenlängen des Nd:Yag-Lasers.

Der Rayleigh-Volumenstreuoeffizient α_R ist das Produkt aus der Teilchendichte und dem Streuquerschnitt:

$$\alpha_R(\lambda, z) = N(z) \cdot \sigma_R(\lambda). \quad \text{Gl. 2-6}$$

Er unterscheidet sich nur um den Faktor der Moleküldichte vom Streuquerschnitt. Die der Standard-Teilchendichte entsprechende Extinktion muss den realen Druck- und Temperatur-Verhältnissen angepasst werden ($p_s = 1013,25$ hPa, $T_s = 288,15$ K (15 °C)):

$$\alpha_R(\lambda, N) = \alpha_{R,s}(\lambda) \frac{N}{N_s} = \alpha_{R,s}(\lambda) \frac{p}{p_s} \frac{T_s}{T}. \quad \text{Gl. 2-7}$$

Für die Intensität der Messsignale in der Laser-Fernerkundung ist der Volumenstreuoeffizient in Rückwärtsrichtung, also der Rückstreuoeffizient β , von besonderem Interesse:

$$\beta_R(\lambda) = \frac{3}{8\pi} \alpha_R(\lambda). \quad \text{Gl. 2-8}$$

Er unterscheidet sich um den konstanten Faktor $3/(8\pi)$ vom Volumenstreuoeffizienten. In Abbildung 2-3 ist er für die Grundfrequenz des Nd:Yag-Lasers und ihrer Vielfachen bis zur vierten Ordnung in Abhängigkeit von der Höhe über dem Boden aufgetragen. Die zur Berechnung erforderliche Dichte entspricht der US-Standard-Atmosphäre (Abbildung 1-4). Aus dieser Grafik lässt sich die Signalstärke abschätzen, mit der wir in Abwesenheit von Aerosol, abhängig vom Spektralbereich und der Höhe, bei Lidar-Messungen rechnen können.

Die Phasenfunktion der Rayleigh-Streuung für unpolarisiertes Licht, also die Winkelabhängigkeit der Intensität um ein streuendes Molekül, hat unter Einbeziehung der Depolarisation folgende Form:

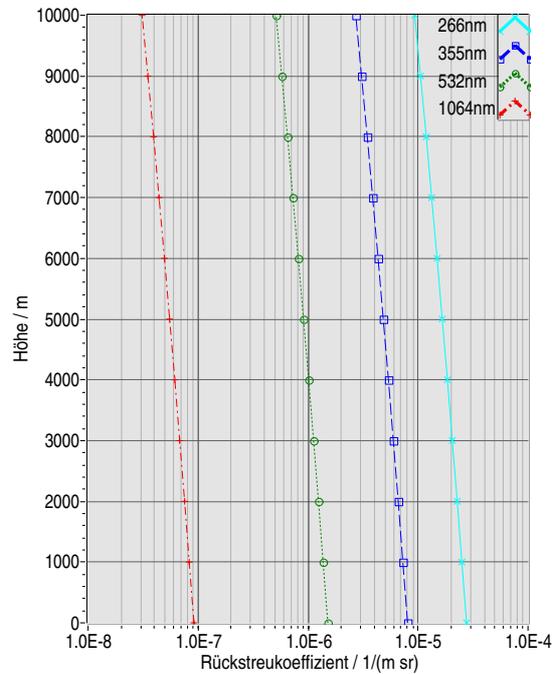


Abb. 2-3 Rückstreukoeffizienten für die Grundwellenlänge des Nd:Yag-Lasers (1064 nm) und ihrer Vielfachen bis zur vierten Ordnung (532 nm, 355 nm, 266 nm).

$$P(\theta) = \frac{3}{4(1 + 2\gamma)} [(1 + 3\gamma) + (1 - \gamma)(\cos\theta)^2] , \gamma = \frac{\delta_R}{2 - \delta_R} . \tag{Gl. 2-9}$$

Die größte Abweichung ohne Beachtung der Depolarisation entsteht für die Vorwärts- und Rückwärtsstreuung und beträgt etwa 1,5 %. Die Gesamtintensität ist die Summe aus einer symmetrischen Kreisfunktion und einem Term, welcher $\cos^2\phi$ enthält (siehe Abbildung 2-4). Charakteristisch für die Rayleigh-Streuung ist die gleich starke Intensität in der Vorwärts- und Rückwärtsrichtung und die Anisotropie in Bezug auf die Polarisation der Streustrahlung senkrecht zur Bestrahlungsrichtung. Dadurch entsteht ein Minimum der Streuintensität in 90°-Richtung.

Durch Anregung eines Moleküls durch ein in der Papierebene polarisiertes Feld entsteht die schleifenförmige Phasenfunktion in Abbildung 2-4. Das Maximum der abgestrahlten Intensität kann auf der Äquatorlinie einer Kugel (Ebene senkrecht zur Papierebene) beobachtet werden. Bei Anregung durch unpolarisiertes Licht entspricht die Phasenfunktion der Summe beider Komponenten. Lediglich in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung beobachten wir unpolarisiertes Streulicht. Blaues Himmelslicht ist daher am stärksten polarisiert, wenn man senkrecht zum Beleuchtungswinkel der Sonne beobachtet. Diese Winkelabhängigkeit der Polarisation des Himmelslichts ist für uns Menschen leider nicht ohne Hilfsmittel sichtbar.

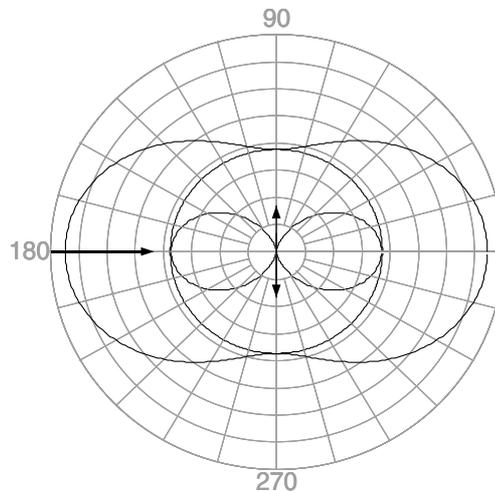


Abb. 2-4 Polardiagramm der Phasenfunktion der Rayleigh-Streuung. Das Molekül befindet sich im Zentrum und wird von links beleuchtet. Liegt die Polarisation des E-Feldes in der Papierebene, entsteht die für einen Dipol typische 8-förmige anisotrope Phasenfunktion. Auf einem Kreis in der Äquatorebene senkrecht zur Papierfläche ist die Intensität maximal und gleich für alle Winkel. Die Abstrahl-Charakteristik von unpolarisiertem Licht entspricht der Summe beider Funktionen.

Die räumliche Phasenfunktion der Rayleigh-Streuung linear polarisierter Laserstrahlung entspricht dem Rotationskörper, der entsteht, wenn die 8-förmige Funktion in Abbildung 2-4 um den Pfeil des elektrischen Feldes gedreht wird. In sauberer, d. h. aerosollarmer, Atmosphäre gibt es daher zwei Richtungen, aus denen ein Laserstrahl unsichtbar ist. Das erhöht die Gefahr für Passanten.

2.1.1.2 Absorption

Durch Absorption wird Energie beim Streuprozess in innere Energie des Streuers umgewandelt. Diese wird über kurz oder lang entweder strahlungslos oder unter Emission von Licht größerer Wellenlänge wieder abgegeben. Verschiedene Molekülsorten in einem Gasgemisch lassen sich anhand ihrer typischen Linien- und Bandenspektren voneinander unterscheiden. Die Anzahl der Moleküle N_x der gleichen Sorte x innerhalb eines Volumens kann dann aus der Schwächung des Lichts bei einer spezifischen Linie bestimmt werden, wenn das Spektrum der Absorptionsquerschnitte $\sigma_x(\lambda)$ bekannt ist:
$$N_x = \frac{\alpha_{\text{abs}}}{\sigma_x}$$

Die Berechnung von $\sigma_x(\lambda)$ ist für die Mehrzahl der interessanten Moleküle nicht exakt möglich. Deshalb werden die meisten Querschnitte experimentell ermittelt. Einige Datenbanken [Rothman et al., 1998, Meller et al., 1998] der Spektren von atmosphärisch relevanten Substanzen werden fortlaufend entsprechend den neuesten Veröffentlichungen aktualisiert. Inzwischen gibt es auch Online-Datenbanken, z. B. bei NIST¹ und am IUP²-Bremen. Die Fernerkundung atmosphärischer Spurengase, insbesondere die satelli-

tengestützte, wirkt seit einiger Zeit sehr stimulierend auf die Bestimmung immer weiterer Spektren. Die Infrarot-Absorptionsspektren atmosphärisch bedeutsamer Gase wurden mit Hilfe der 2000er Version der HITRAN¹-Datenbank [Rothman et al., 1998] berechnet. Sie entstand in einem langfristigen Projekt, das Ende der 60er Jahre durch die AFCRL² initiiert wurde. Ende 2000 ist die elfte Version erschienen. An dieser Stelle ein Dank an Miguel Rodriguez für sein gelungenes Darstellungsprogramm [Langlotz, 1998]. Es vereinfacht die Suche nach allen in der Datenbank enthaltenen absorbierenden Spezies in einem Spektralbereich. Bei der Anpassung der Linienformen zur Berechnung von Absorptionsquerschnitten und Gesamtabsorption können Lorentz- oder Voigt-Profilen verwendet werden.

Die eingangs erwähnte Überlagerung von Streuung und Absorption im Messsignal ist ein großes Problem dieser Methode der Konzentrationsbestimmung. Bei der Lichttransmission durch die Atmosphäre sind insbesondere die Streu- und Absorptionseigenschaften des Aerosols zunächst unbekannt, wohingegen die Streuung durch Moleküle nach Gleichung 2-3 berechnet werden kann. Wie in einem Absorptionsspektrometer wird auch in der Laser-Fernerkundung ein Vergleichsstrahl benutzt. Leider kann man ihn aber nicht durch ein leeres Gefäß leiten. Deshalb nimmt man eine etwas andere Wellenlänge als Referenz.

Fehler durch Querempfindlichkeiten gegenüber anderen molekularen Absorptionen können nur ausgeschlossen werden, wenn die Spektren aller ähnlich oder höher konzentrierten Spezies bekannt sind. Das erfordert einige Recherche. In Abbildung 2-6 (obere Abbildung) sind Spektren flüchtiger Kohlenwasserstoffe (VOC) gemeinsam mit dem von Ozon dargestellt. Die Konzentrationen der VOC liegen ca. 10 bis 100 mal tiefer als die des Ozons, die Querschnitte sind zum Teil stärker. Für Ozonmessungen in verschmutzter Luft sollte man die VOC-Linien also besser meiden. Trotz der Temperaturabhängigkeit der Absorptionsquerschnitte [Molina und Molina, 1986, Bass und Paur, 1984, Vandaele et al., 1994] ist der Messfehler bei der Konzentrationsbestimmung durch differentielle Laser-Absorptionsspektroskopie in der planetaren Grenzschicht vernachlässigbar klein [Frey, 1997].

1. National Institute of Standards and Technology

2. Institut für Umweltphysik

1. High-Resolution Transmission Molecular Absorption Database

2. Air Force Cambridge Research Laboratories

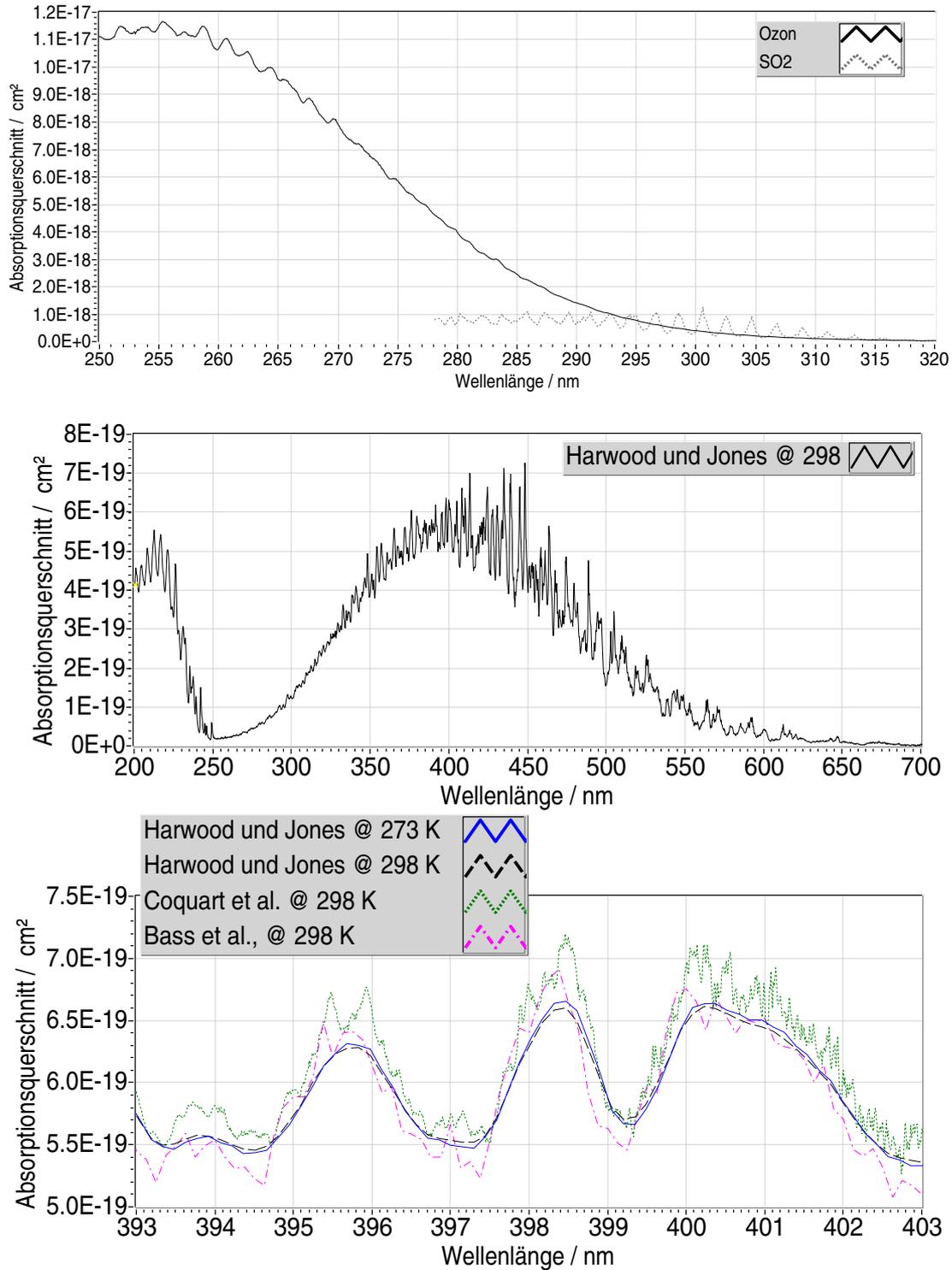


Abb. 2-5 Oben: UV-Spektren von Ozon [Bass und Paur, 1984] und SO₂ [Vandaele et al., 1994]. Mitte und unten: Stickstoffdioxid absorbiert sowohl im UV- als auch im sichtbaren Bereich [Harwood und Jones, 1994]. Die Querschnitte im Bereich zwischen 250 und 320 nm sind sehr klein, so dass keine Querempfindlichkeiten zu Ozon, SO₂ und VOC zu befürchten sind. Bei Messungen des NO₂ muss ein Kompromiss zwischen starker Absorption und zu hoher Sonnen-Intensität gefunden werden. Die veröffentlichten Querschnitte unterscheiden sich um bis zu 5 % [Meller et al., 1998, Bass et al., 1976, Coquart et al., 1995, Harwood und Jones, 1994] bei der von uns gewählten Absorptionslinie bei 398,5 nm (untere Abbildung).

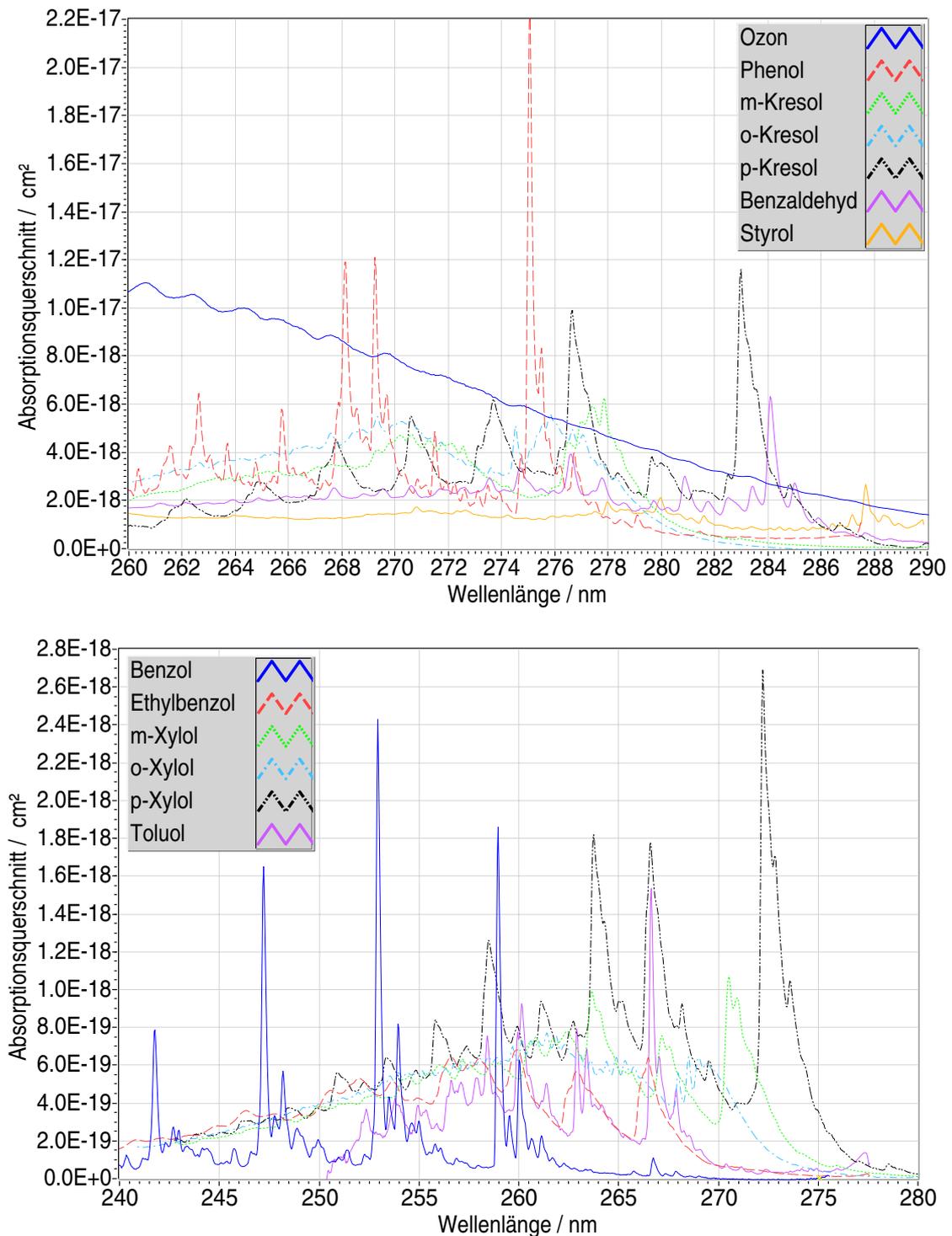


Abb. 2-6 Absorptionsspektren flüchtiger Kohlenwasserstoffe [Etzkorn et al., 1999, Trost et al., 1997]. Die obere Grafik zeigt VOC-Spektren, bei denen Querempfindlichkeiten mit Ozon [Bass und Paur, 1984] zu befürchten sind. In der unteren Grafik sind Spektren schwächer absorbierender VOC im Bereich der maximalen Ozonabsorption dargestellt. Das Konzentrationsverhältnis der hier vertretenen Gase wird in erster Linie von der Zusammensetzung des Kraftstoffs bestimmt. Der effektive Absorptionsquerschnitt berechnet sich daher aus der mit den Konzentrationen gewichteten Summe der Einzelquerschnitte. Deshalb bleibt die Anwendung der Laser-Fernerkundung von VOC auf Fälle beschränkt, in denen einzelne Gase in besonders hohen Konzentrationen ausgestoßen werden. Diese Problemstellung ist typisch für Industrieüberwachung und weniger für atmosphärenchemische oder Immissionsuntersuchungen.

Absorption durch Hydroxyl-Radikale im Bereich zwischen 285 und 300 nm kann trotz der normalerweise sehr geringen Konzentrationen zu Fehlern bei der Ozon-Konzentrationsmessung führen. Sauerstoff-Atome, die im UV-Laserstrahl durch Dissoziation von Ozon entstehen, reagieren so schnell mit Wasserdampf unter Bildung von Hydroxyl-Radikalen, dass diese noch einen Teil desselben Pulses absorbieren können [Calpini et al., 1998]. Die Linien sind allerdings sehr schmal. Der Fehler kann ein negatives oder positives Vorzeichen haben, je nachdem, welche Laserlinie mit einer Absorptionslinie zusammenfällt.

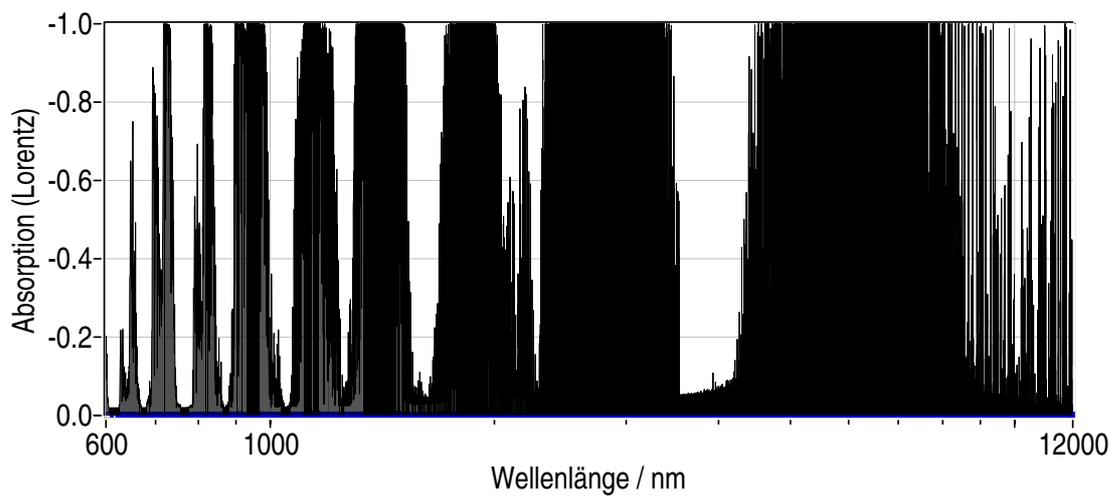


Abb. 2-7 Wasserdampf-Absorption über eine Strecke von 1 km bei 60 % Luftfeuchtigkeit unter Standard-Bedingungen. Die Parameter für die Lorentz-Linien sind der HITRAN-Datenbank entnommen. (Achtung! Logarithmische x-Achse.) Große Bereiche sind vollkommen undurchsichtig. 8 kleine Fenster öffnen sich unterhalb von 2,4 μm und ein größeres um 4 μm .

Es ist sehr verlockend, den infraroten Spektralbereich, in dem es Absorptionslinien vieler Spezies gibt, für Konzentrationsmessungen zu nutzen. Fernerkundungs-Messungen, die direkt in der Atmosphäre unter den gegebenen Bedingungen durchgeführt werden müssen, unterliegen aber leider erheblichen Einschränkungen. Verfahren, deren Signalstärke von der Rückstreuung abhängig ist, sind im IR-Bereich auf Aerosol als Streuer angewiesen, da, wie wir im letzten Abschnitt gesehen haben, die Rayleigh-Streuung im Infraroten sehr schwach wird. Außerdem ist der tatsächlich nutzbare Spektralbereich auf Stellen mit geringer Wasserdampfabsorption beschränkt, wenn nicht nur Wasser gemessen werden soll. Wie in Abbildung 2-7 deutlich zu sehen ist, gibt es einige solche „Fenster“ bis 2,4 μm und ein weiteres zwischen 3,2 und 4,5 μm . Die nächsten transparenten Bereiche sind erst wieder oberhalb von 10 μm zu finden. Eine weitere Einschränkung entsteht durch die Linienverbreiterung unter atmosphärischen Bedingungen. Wenn sich die vorhandenen

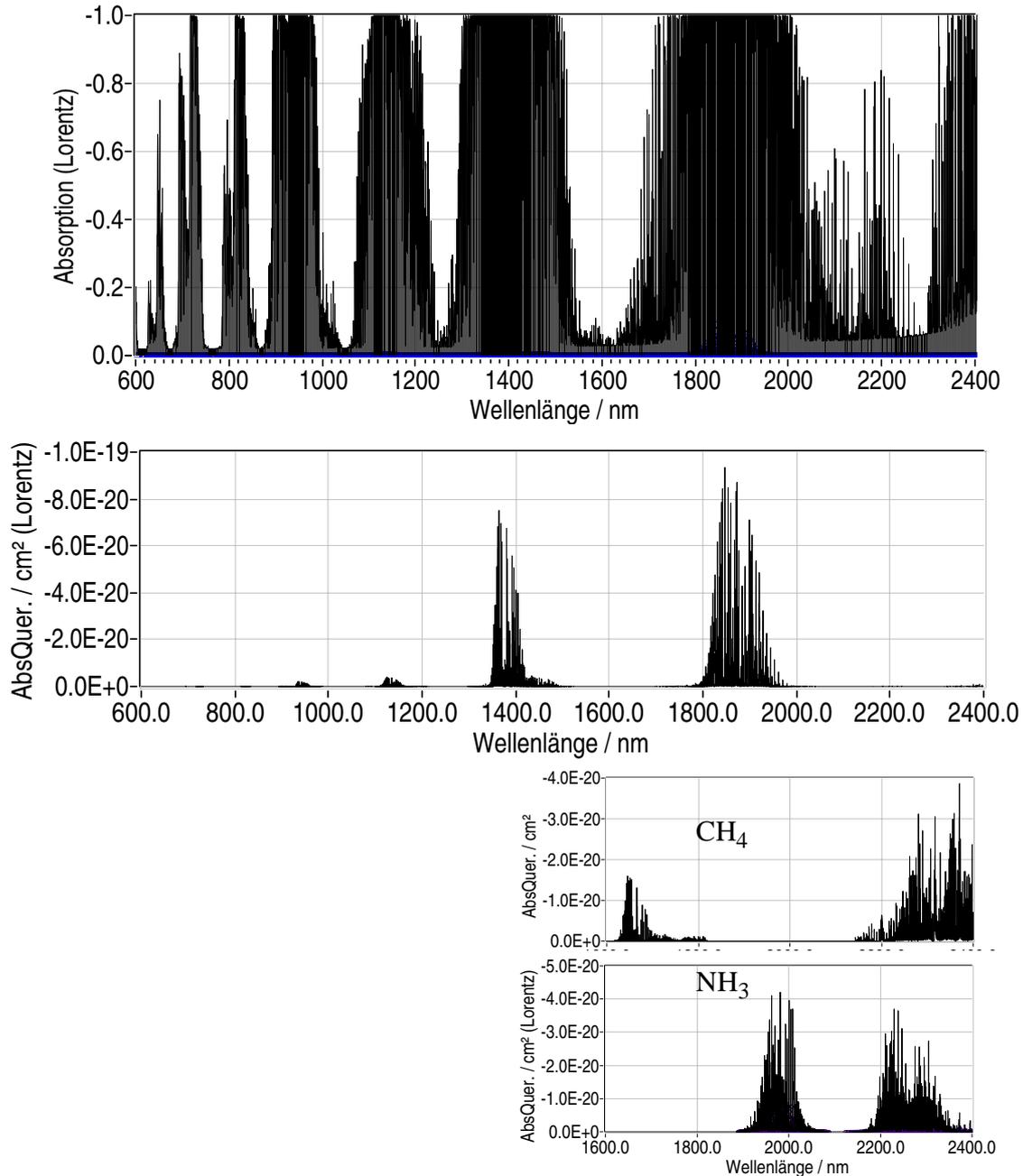


Abb. 2-8 Schema der Liniensuche im IR-Bereich am Beispiel von CH₄ und NH₃. Oben ist die pure Wasserdampf-Absorption über eine Strecke von 1 km bei 60 % Luftfeuchtigkeit unter Standard-Bedingungen dargestellt. Darunter sind die Absorptionsspektren von H₂O, CH₄ und NH₃ abgebildet. Die linke Bande des CH₄ liegt genau unter dem Fenster bei 1,6 μm , könnte also für Messungen verwendet werden. Die rechten Banden überlagern sich, und die linke Bande von NH₃ ist wegen der starken Wasserabsorption unbrauchbar. Natürlich kann und muss noch genauer gesucht werden - aber das Schema bleibt das gleiche.

Linien dadurch überlagern, wird uns gerade die große Auswahl im IR-Bereich zum Verhängnis.

Der Treibhauseffekt wird, außer durch Wasserdampf, vor allem durch Gase beeinflusst, die genau in den Fenstern (Abbildung 2-7) absorbieren. Nur dort kann die Absorption noch

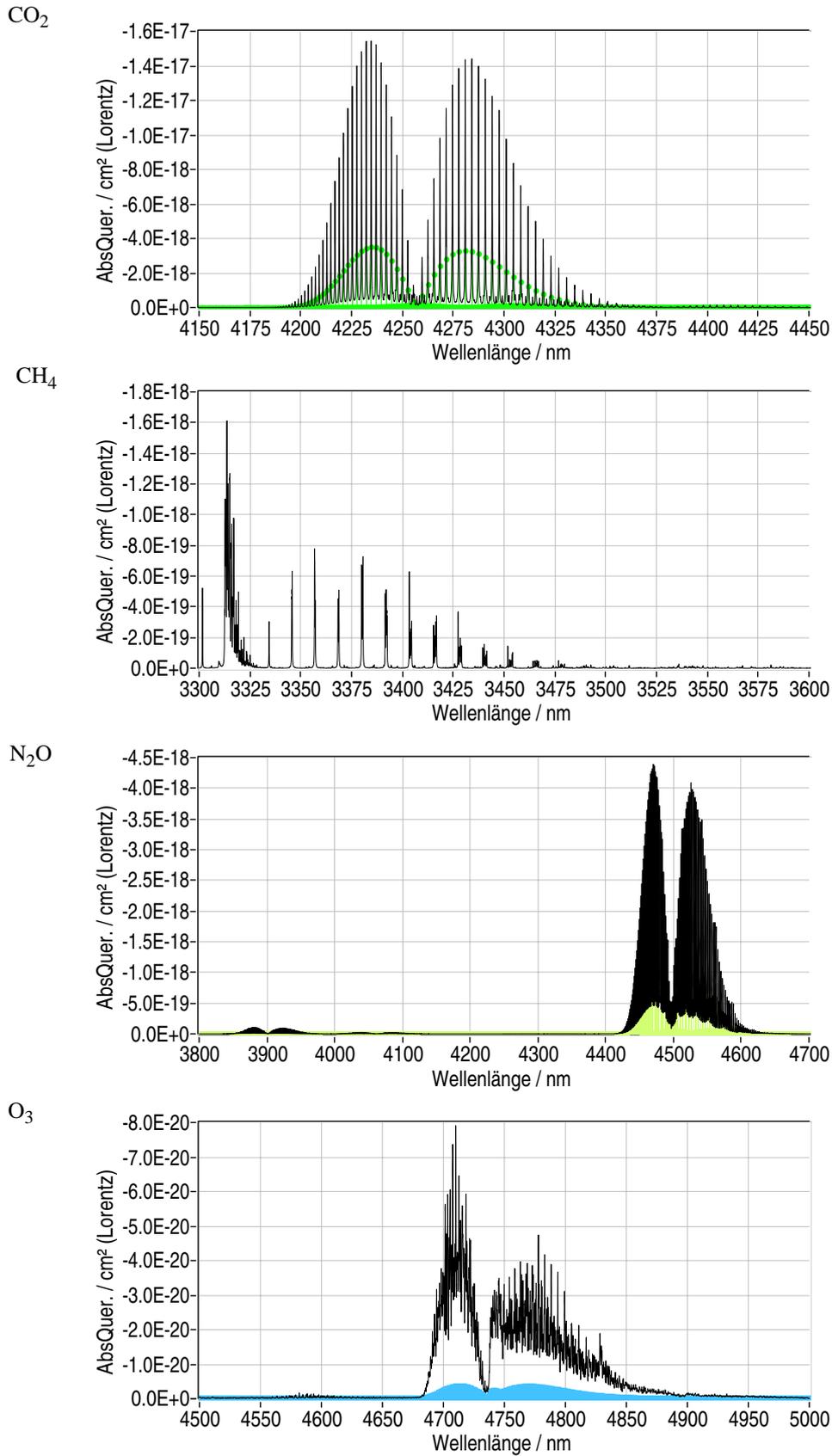
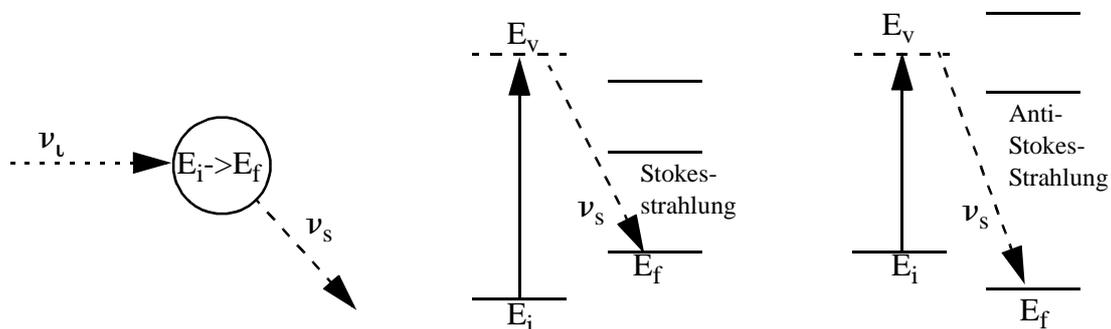


Abb. 2-9 Spektren der kräftigsten Absorber im 4- μ m-Fenster der Wasserabsorption

gesteigert werden. Ein häufiges Argument, um die Auswirkungen der erhöhten CO_2 -Konzentration zu verharmlosen, ist, dass die Atmosphäre an der CO_2 -Bande im Fenster um $4 \mu\text{m}$ (Abbildung 2-9) ebenfalls intransparent ist und sich damit die Absorption nicht mehr erhöhen lässt. Dabei wird aber außer Acht gelassen, dass sich der Bereich völliger Sättigung verbreitert, wenn die Flanken durch steigende Konzentrationen nach außen verschoben werden. Die Spektren der Strahlungsintensitäten am Oberrand der Atmosphäre und der Schwarzkörperstrahlung der Erde mit einer Temperatur von 288 K schneiden sich bei $4,2 \mu\text{m}$. Ab hier dominiert die Erdatstrahlung, die bei $10 \mu\text{m}$ am stärksten ist. Abbildung 2-9 zeigt die Spektren der stärksten, auch anthropogen erzeugten, Absorber im $4\text{-}\mu\text{m}$ -Fenster der Wasserabsorption. Für VOC-Messungen sollten Lücken in diesen starken Banden gewählt werden. Spektren interessanter VOC findet man insbesondere im Bereich um $3 \mu\text{m}$ [Etz Korn et al., 1999].

2.1.1.3 Raman-Streuung

Raman-Linien sind paarweise symmetrisch um die Anregungsfrequenz angeordnet. Sie haben keine absolute Position im Spektrum, sondern eine typische Frequenzverschiebung entsprechend der Schwingungs- bzw. Rotationsübergangsenergie. Sie entstehen nur, wenn sich die Polarisierbarkeit eines Moleküls für den Übergang ändert. Das ist bei zweiatomigen Molekülen immer möglich. Da die Atmosphäre fast ausschließlich aus den homonuklearen, zweiatomigen Molekülen des Stickstoff und Sauerstoff besteht, wird die Raman-Streuung verwendet, um Signale einer eindeutigen Streuquelle zuzuordnen [Inaba, 1976, Penney et al., 1974, Measures, 1984]. Vibrations-Raman-Linien sind ihrerseits wiederum von Vibrations-Rotations-Raman-Linien umgeben. Raman-Streuung wird in die Gruppe der inelastischen Streuvorgänge eingeordnet, da hier eine instantane Frequenzverschiebung auftritt.



Tab. 2-3 Raman-Streuung als Drei-Photonen-Prozess.

In der Laser-Fernerkundung werden Signale des entsprechend der Moleküleigenschaften des Stickstoffs oder Sauerstoffs frequenzverschobenen Lichts aufgenommen, um eindeutig auszuschließen, dass Aerosol einen Anteil an der Rückstreuintensität hat. Diese können dann mit den elastisch gestreuten, nicht frequenzverschobenen Signalen verglichen werden, in denen sich Molekül- und Aerosol-Rückstreuintensität überlagern. Die Wasserdampfkonzentration kann bei hoher Luftfeuchtigkeit auch direkt aus Raman-Rückstreusignalen bestimmt werden. Für die meisten Spurengase ist die Intensität der Signale wegen der kleinen Streuquerschnitte und gleichzeitig geringen Konzentration jedoch zu schwach. Im Gegensatz zur vibrationellen Raman-Streuung unter atmosphärischen Bedingungen, wo nur der Raman-Effekt erster Ordnung beobachtbar ist, werden immer eine Vielzahl von Rotations-Raman-Linien angeregt. Die Intensitäten der angeregten Linien folgen der temperaturabhängigen Boltzmann-Verteilung der Besetzungszahl der Rotations-Niveaus. Das eröffnet eine direkte Möglichkeit, die Temperatur der planetaren Grenzschicht durch Laser-Fernerkundung zu messen.

Vor allem bei Vorbetrachtungen aber auch für die Auswertung von Messungen sind die Frequenzverschiebungen gegenüber den anregenden Laserlinien und die entsprechenden Streuquerschnitte, insbesondere für Sauerstoff, Stickstoff und Wasserdampf, von großem Interesse. Die Linienverschiebungen von zweiatomigen Molekülen lassen sich semiklassisch berechnen, wohingegen die Frage nach den Streuquerschnitten einen quantenmechanischen Ansatz erfordert [Long, 1977]. Für das Wassermolekül werden ausgehend von Messwerten extrapolierte Daten verwendet [Penney und Lapp, 1976].

Wie anfangs kurz erwähnt, ist die Polarisierbarkeit eines Moleküls der Schlüssel zum Verständnis der Raman-Streuung. Die Elemente des Polarisierbarkeitstensors sind natürlich von der Wahl der Koordinatenachsen abhängig und experimentell nicht direkt zugänglich. Es gibt aber zwei Größen, die invariant sind gegenüber Drehungen eines Systems mit dem Ursprung im Molekülzentrum. Das sind zum einen die isotrope bzw. mittlere Polarisierbarkeit, also die Spur der Matrix:

$$\hat{i} = \frac{1}{3} \{ \alpha_{xx} + \alpha_{yy} + \alpha_{zz} \}, \quad \text{Gl. 2-10}$$

und zum anderen die Anisotropie:

$$\hat{a} = \frac{1}{2} [\{ \alpha_{xx} - \alpha_{yy} \}^2 + \{ \alpha_{yy} - \alpha_{zz} \}^2 + \{ \alpha_{zz} - \alpha_{xx} \}^2 + 6 \{ \alpha_{xy}^2 + \alpha_{yz}^2 + \alpha_{zx}^2 \}]. \quad \text{Gl. 2-11}$$

Sie sind im Gegensatz zu den Tensorelementen echte Observable. Das Depolarisationsverhältnis frei beweglicher Moleküle kann direkt durch sie ausgedrückt werden:

$$\varepsilon = \left[\frac{\hat{a}}{\hat{i}} \right]^2. \quad \text{Gl. 2-12}$$

Damit lassen sie sich im Labor bestimmen und später für Berechnungen verwenden.

Als einfaches Modell dient ein zweiatomiges Molekül in Form einer Hantel, dessen Kerne entlang der Verbindungsachse schwingen. Ihr Abstand ändert sich zunächst entsprechend einer harmonischen Schwingung. Vereinfachend wird eine Masse μ betrachtet, die im Massenschwerpunkt vereinigt ist und um diesen schwingt. Die entsprechende Lösung der Schrödinger-Gleichung ist bekannt und ergibt die diskreten Energieniveaus in Abhängigkeit von der Eigenfrequenz ν_{vib} des harmonischen Oszillators mit den Schwingungsquantenzahlen ν (0, 1, 2, ...):

$$E_{\text{vib}}(\nu) = h\nu_{\text{vib}}(\nu + 1/2). \quad \text{Gl. 2-13}$$

In der Spektroskopie werden statt Energie oder Frequenz sogenannte Terme mit der Einheit Wellenzahl (cm^{-1}) verwendet.

$$G_{\text{vib}}(\nu) = \frac{E_{\text{vib}}(\nu)}{hc} = \frac{\nu_{\text{vib}}}{c}(\nu + 1/2) = \tilde{\nu}_{\text{vib}}(\nu + 1/2) \quad \text{Gl. 2-14}$$

Als Modell für das rotierende Molekül dient nun eine Hantel mit masseloser Verbindungsachse, die sich um ihren Massenschwerpunkt dreht. Die Lösung der Schrödinger-Gleichung dieses Problems ergibt die möglichen diskreten Energieniveaus in Abhängigkeit von der Quantenzahl J (0, 1, 2, ...) [Herzberg, 1989]:

$$E_{\text{rot}}(J) = \frac{h^2 J(J+1)}{8\pi^2 \mu R^2}. \quad \text{Gl. 2-15}$$

Die Termenergie erhält man wieder durch Division durch $h \cdot c$.

$$G_{\text{rot}}(J) = \frac{E_{\text{rot}}(J)}{hc} = B \cdot J(J+1), \quad B = \frac{h}{8\pi^2 c \mu R^2}. \quad \text{Gl. 2-16}$$

B wird als Rotationskonstante bezeichnet.

Die Auswahlregeln für tatsächlich mögliche Übergänge folgen aus den Dipol-Übergangswahrscheinlichkeiten. Da diese viel stärker als Quadrupol- und magnetische Übergänge sind, können letztere hier vernachlässigt werden. Für homonukleare, zweiatomige Mole-

küle, wie O_2 und N_2 , die kein permanentes Dipolmoment aufweisen, entscheidet allein die Polarisierbarkeit α über die Streuintensität. Da die Polarisierbarkeit von der Orientierung des Moleküls zum anregenden Feld abhängt, beeinflussen Vibration und Rotation den Streuprozess. Die induzierten Übergangswahrscheinlichkeiten für den harmonischen Oszillator sind nur für

$$\begin{aligned}\Delta v &= 0, \pm 1 \\ \Delta J &= 0, \pm 2\end{aligned}\quad \text{Gl. 2-17}$$

nicht Null [Long, 1977]. Das reine Rotations-Raman-Spektrum entsteht durch die Übergänge $\Delta v = 0, \Delta J = \pm 2$; und das Vibrations-Rotations-Raman-Spektrum erster Ordnung entsprechend durch Übergänge mit $\Delta v = \pm 1, \Delta J = \pm 2$. Die Linien und Banden mit höheren Frequenzen als die Anregung werden als Anti-Stokes- und diejenigen mit niedrigeren Frequenzen als Stokes-Linien bezeichnet. Die Stokes-Rotationslinien heißen O-Zweig, die Anti-Stokes-Linien S-Zweig und die Vibrationslinien Q-Zweig des Spektrums. Der Übergang $\Delta v = 0, \Delta J = 0$ repräsentiert die Cabannes-Linie der Rayleigh-Streuung.

Für die Vibrations- und Rotations-Linien-Verschiebungen (in Wellenzahlen) gilt dementsprechend:

$$\begin{aligned}\Delta \tilde{\nu}_v &= G_{\text{vib}}(v+1) - G_{\text{vib}}(v) = \tilde{\nu}_{\text{vib}} \\ \Delta \tilde{\nu}_J &= G_{\text{rot}}(J+2) - G_{\text{rot}}(J) = 4B(J+3/2).\end{aligned}\quad \text{Gl. 2-18}$$

Die Auswahlregeln sind eine notwendige, aber keine hinreichende Bedingung für das Auftreten von Raman-Linien. Für Rotations-Linien muss außerdem die Anisotropie ungleich Null sein, und für Vibrationslinien darf die Ableitung einiger Elemente der Polarisierbarkeit nicht verschwinden. Da die mittlere Polarisierbarkeit eines Moleküls nie verschwindet, gibt es zumindest immer eine Cabannes-Linie.

Die Realität erfordert leichte Korrekturen an dem Modell. Die Anharmonizität x_e des Potentials trägt der Tatsache Rechnung, dass die Energiedifferenzen mit steigender Quantenzahl v abnehmen, und Obertöne ($2\nu_{\text{vib}}, 3\nu_{\text{vib}}, \dots$) entstehen. Außerdem verändert sich die Rotationskonstante B für den rotierenden Vibrator geringfügig, da sich der Kernabstand mit den Schwingungen ändert. Mit zunehmender Vibrationsquantenzahl wird B kleiner, da sich der Kernabstand entsprechend dem anharmonischen Potenzial vergrößert. Dazu trägt auch die erhöhte Zentrifugalkraft bei großen Rotationsquantenzahlen bei. Insgesamt ergibt sich folgende Formel für die Energieniveaus des rotierenden Vibrators:

$$\begin{aligned} \frac{E(v, J)}{h \cdot c} &= G_{\text{tot}}(v, J) = & \text{Gl. 2-19} \\ G_{\text{vib}_a}(v) + G_{\text{rot}_v}(J) &= \tilde{\nu}_{\text{vib}}(v + 1/2) - \tilde{\nu}_{\text{vib}}x_e(v + 1/2)^2 + \dots \\ &+ B_v J(J + 1) - D_v J^2(J + 1)^2 + \dots \end{aligned}$$

Die Indizes a und v stehen für Anharmonizität und Kopplung und die zweite Rotationskonstante $D = (4B^3)/\tilde{\nu}_{\text{vib}}^2$ gleicht die Einflüsse der Zentrifugalkraft aus. Mit dieser Formel können Linienverschiebungen berechnet werden, die in guter Übereinstimmung mit experimentellen Ergebnissen stehen [Long, 1977].

Die Streuquerschnitte können nur mit einem quantenmechanischen Modell berechnet werden. Das klassische induzierte Dipolmoment $\mathbf{p}_0 = \alpha \mathbf{E}_0$ wird zunächst durch eine Übergangsmoments-Amplitude $[\mathbf{p}_0]_{fi} = \langle \Psi_f | \alpha | \Psi_i \rangle \mathbf{E}_0$ mit den Wellenfunktionen Ψ_i und Ψ_f des Anfangs- und Endzustandes ersetzt. Der Polarisierbarkeitstensor der Übergänge $[\alpha]_{fi} = \langle \Psi_f | \alpha | \Psi_i \rangle$ setzt sich aus den Elementen $[\alpha_{xy}]_{fi} = \langle \Psi_f | \alpha_{xy} | \Psi_i \rangle$ zusammen. Das elektrische Feld kann außerhalb des Integrals stehen, solange es die gleiche Intensität im gesamten Molekül hat. Für Moleküle trifft das zu, da die Wellenlänge viel größer als das Teilchen ist. Wenn die Größe vergleichbar wird, muß mit der Mie-Theorie weitergerechnet werden. Die Wellenfunktionen können in Vibrations- ϕ und Rotationsanteil Θ separiert werden:

$$[\alpha_{xy}]_{fi} = \langle \phi_f \Theta_f | \alpha_{xy} | \phi_i \Theta_i \rangle. \quad \text{Gl. 2-20}$$

Dabei muß die Anregungsfrequenz viel größer als die Vibrations- und Rotationsübergangsfrequenz, aber viel kleiner als die elektronischen Übergänge sein. Außerdem darf der elektronische Grundzustand nicht entartet sein. Daraus erhält man die separierte Funktion bezüglich fester Molekülachsen $x'y'z'$:

$$[\alpha_{xy}]_{fi} = \sum_{x'y'} \langle \phi_{v_f} | \alpha_{x'y'} | \phi_{v_i} \rangle \langle \Theta_{R_f} | \cos(xx') \cos(yy') | \Theta_{R_i} \rangle, \quad \text{Gl. 2-21}$$

wobei das erste Integral nur noch eine Funktion der Schwingungskordinaten und das zweite Integral eine Funktion der Rotations-Koordinaten ist. v^j and R^j sind die Quantenzahlen im Zustand j. Völlig analog zur klassischen Betrachtung hängt die Polarisierbarkeit der Übergänge ohne Änderung des Vibrationszustandes vom Gleichgewichts-Polarisierbarkeitstensor ab. Bei Vibrations-Rotations-Übergängen ist die Ableitung des Polarisierbarkeitstensors bestimmend. Als Endergebnis erhalten wir die Formel für die Intensität von

gestreutem Licht mit der Polarisation p_s , nachdem Licht mit der Polarisation p_i ein Ensemble N_i von Molekülen entsprechend $v', J' \leftarrow v'', J''$ angeregt hat:

$$p_i I_{p_s} = k_{\tilde{\nu}} (\tilde{\nu}_0 + \tilde{\nu}_{(v', J'); (v'', J'')})^4 N_i f(\alpha_{ij}, \theta) I. \quad \text{Gl. 2-22}$$

Hierbei ist $k_{\tilde{\nu}} = \pi^2 / \epsilon_0^2$, $\tilde{\nu}_0$ die Wellenzahl, I die Intensität des anregenden Lichts und $\tilde{\nu}_{(v', J'); (v'', J'')}$ die Wellenzahldifferenz entsprechend des Übergangs $v', J' \leftarrow v'', J''$ (positiv für Anti-Stokes, negativ für Stokes). Die Funktion $f(\alpha_{ij}, \theta)$ enthält die molekularen Polarisierbarkeiten der Übergänge und deren Abhängigkeit vom Streuwinkel θ . Die zu verwendenden Elemente sind in Tabelle 2-4 als quadratische Mittelwerte in Abhängigkeit vom Polarisationszustand aufgeführt. Die gesuchten Rückstreuquerschnitte erhält man, indem

Anfangs-Polarisation	End-Polarisation	$f(\alpha_{ij}, \theta)$
\perp zur Streuebene	\parallel zur Streuebene	$[\alpha_{ij}]_{(v', J'); (v'', J'')}^2$
\perp zur Streuebene	\perp zur Streuebene	$[\alpha_{ii}]_{(v', J'); (v'', J'')}^2$
\parallel zur Streuebene	\parallel zur Streuebene	$[\alpha_{ij}]_{(v', J'); (v'', J'')}^2 (\sin \theta)^2 + [\alpha_{ii}]_{(v', J'); (v'', J'')}^2 (\cos \theta)^2$
\parallel zur Streuebene	\perp zur Streuebene	$[\alpha_{ij}]_{(v', J'); (v'', J'')}^2$

Tab. 2-4 Winkelabhängigkeit der Streuintensität von den quadratischen Mittelwerten der Elemente des Übergangs-Polarisierbarkeitstensors.

$\theta = \pi$ gesetzt wird und beide Polarisationsrichtungen addiert (entweder $\perp I_{\parallel} + \perp I_{\perp}$ oder $\parallel I_{\parallel} + \parallel I_{\perp}$) und durch NI dividiert werden:

$$\left. \frac{d\sigma}{d\Omega} \right|_{\theta = \pi} = k_{\tilde{\nu}} (\tilde{\nu}_0 + \tilde{\nu}_{(v', J'); (v'', J'')})^4 \frac{N_i}{N} \left\{ [\alpha_{ii}]_{(v', J'); (v'', J'')}^2 + [\alpha_{ij}]_{(v', J'); (v'', J'')}^2 \right\}. \quad \text{Gl. 2-23}$$

Die quadratischen Mittel der Polarisierbarkeitstensorelemente sind in Tabelle 2-5 in der anwendbaren Form [Inaba, 1976] als Funktion der mittleren Polarisierbarkeit und Anisotropie für die verschiedenen Arten von Übergängen aufgelistet. $(a)_0^2$ und $(\gamma)_0^2$ sind der isotrope und der anisotrope Anteil des Tensors, und $(\hat{i})^2$ und $(\hat{a})^2$ sind die entsprechenden Werte nach seiner Ableitung. Die Faktoren $(v+1)b_v^2$ und vb_v^2 folgen aus den Eigenschaften der harmonischen Oszillator-Funktion und dienen der Konvertierung der abgeleiteten Polarisierbarkeiten, wobei b_v ($b_v^2 = h / (8\pi^2 c \tilde{\nu}_v)$) die Nullpunkt-Amplitude ist. Sie ist das quantenmechanische Analogon zur klassischen Vibrationsamplitude Q_0 .

Quantenzahlen und Streutypen	$[\alpha_{ii}]_{(v', J'); (v'', J'')}^2$	$[\alpha_{ij}]_{(v', J'); (v'', J'')}^2$
$\Delta v = 0, \Delta J = 0$ Cabannes-Linie	$(\hat{i})^2 + \frac{4}{45} b_{J, J}(\hat{a})^2$	$\frac{1}{15} b_{J, J}(\hat{a})^2$
$\Delta v = 0, \Delta J = 2$ reine Rotations-Raman-Streuung	$\frac{4}{45} b_{J+2, J}(\hat{a})^2$	$\frac{1}{15} b_{J+2, J}(\hat{a})^2$
$\Delta v = 1, \Delta J = 0$ Stokes Vibrations-Rotations-Raman-Streuung, Q-Zweig	$\left\{ (\hat{i}')^2 + \frac{4}{45} b_{J, J}(\gamma')^2 \right\} (v+1) b_v^2$	$\left\{ \frac{1}{15} b_{J, J}(\hat{a}')^2 \right\} (v+1) b_v^2$
$\Delta v = -1, \Delta J = 0$ Anti-Stokes Vibrations-Rotations-Raman-Streuung, Q-Zweig	$\left\{ (\hat{i}')^2 + \frac{4}{45} b_{J, J}(\hat{a}')^2 \right\} v b_v^2$	$\left\{ \frac{1}{15} b_{J, J}(\hat{a}')^2 \right\} v b_v^2$
$\Delta v = 1, \Delta J = \pm 2$ Stokes Vibrations-Rotations-Raman-Streuung, O+S-Zweig	$\left\{ \frac{4}{45} b_{J\pm 2, J}(\hat{a}')^2 \right\} (v+1) b_v^2$	$\left\{ \frac{1}{15} b_{J\pm 2, J}(\gamma')^2 \right\} (v+1) b_v^2$
$\Delta v = -1, \Delta J = \pm 2$ Anti-Stokes Vibrations-Rotations-Raman-Streuung, O+S-Zweig	$\left\{ \frac{4}{45} b_{J\pm 2, J}(\hat{a}')^2 \right\} v b_v^2$	$\left\{ \frac{1}{15} b_{J\pm 2, J}(\hat{a}')^2 \right\} v b_v^2$

Tab. 2-5 Quadratische Mittelwerte der Elemente des Polarisierbarkeitstensors als Funktion seiner Invarianten für Cabannes-, Rotations- und Vibrations-Rotations-Raman-Linien zum Einsetzen in Gleichung 2-23.

Die Placzek-Teller-Koeffizienten $b_{J, J}$ und $b_{J\pm 2, J}$ sind wegen der Summation über entartete Zustände notwendig [Penney et al., 1974:]

$$b_{J, J} = \frac{J(J+1)}{(2J-1)(2J+3)}, b_{J+2, J} = \frac{3(J+1)(J+2)}{2(2J+1)(2J+3)}, b_{J-2, J} = \frac{3J(J-1)}{2(2J+1)(2J-1)}. \text{ Gl. 2-24}$$

Nun fehlt noch eine Funktion für die Besetzungszahl N_i des Anfangszustands der Rotations- und Vibrations-Niveaus mit den Quantenzahlen v'', J'' in einem Molekülensemble, um einzelne Linienstärken des Rückstreusignals berechnen zu können. Die Besetzungszahl folgt einer Boltzmann-Verteilung. Für die Vibrations-Verteilung gilt entsprechend der Energie aus Gleichung 2-14:

$$\frac{N_{v''}}{N} = \frac{\exp[-(v'' + 1/2)hc\tilde{\nu}_{\text{vib}}/k_B T]}{\sum_v \{ \exp[-(v + 1/2)hc\tilde{\nu}_{\text{vib}}/k_B T] \}}, \text{ Gl. 2-25}$$

wobei N die Gesamtzahl der Moleküle ist. Für die relative Verteilung der Rotationslinien aller Moleküle im selben Vibrationszustand v'' gilt entsprechend Gleichung 2-16:

$$\frac{N_{J''}}{N_{v''}} = \frac{g_{J''}(2J'' + 1) \exp[-hcF(J'')/k_B T]}{\sum g_J(2J + 1) \exp[-hcF(J)/k_B T]} \quad \text{Gl. 2-26}$$

Der Faktor $(2J + 1)$ muss wegen der Entartung des magnetischen Moments bei Abwesenheit eines magnetischen Feldes eingeführt werden. Der Kernspinwichtungsfaktor g_J trägt den Spin-Entartungen Rechnung und nimmt verschiedene Werte für gerade und ungerade Rotationsquantenzahlen an. In Tabelle 2-6 sind die Werte für Stickstoff und Sauerstoff aufgelistet. Weil der Faktor für gerade Rotationsquantenzahlen J bei Sauerstoff Null ist, verschwindet jede zweite Linie. Bei Stickstoff haben die Linien ein Verhältnis von 6 : 3.

Molekül	g_J für ungerade J	g_J für gerade J
O ₂	1	0
N ₂	3	6

Tab. 2-6 Kernspinwichtungsfaktoren für Sauerstoff und Stickstoff [Long, 1977].

Als relative Besetzungszahl N_i/N des Anfangszustands v'' , J'' ergibt sich:

$$\frac{N_i}{N} = \frac{N_{v''} N_{J''}}{N} \quad \text{Gl. 2-27}$$

Diese kann nun direkt in Gleichung 2-23 zur Berechnung der Rückstreuquerschnitte eingesetzt werden.

Nun müssen noch die mittlere Polarisierbarkeit und die Anisotropie und ihre Ableitungen bestimmt werden, um für beliebige Spektralbereiche Rückstreuquerschnitte berechnen zu können. Wie eingangs erwähnt, lassen sie sich durch Depolarisationsmessungen bestimmen [Inaba, 1976, Measures, 1984, Penney und Lapp, 1976, Penney et al., 1974]. Weil anfangs die meisten Messungen mit der 337,1-nm-Linie des Stickstoff-Lasers gemacht wurden, sind Werte für viele Substanzen bezüglich dieser Wellenlänge tabelliert. Abweichungen zwischen den Messungen verschiedener Autoren sind vor allem durch die Bandbreite der optischen Filter und die Polarisationscharakteristik der Detektionsoptik zu erwarten. Aus den Werten können entsprechend der Proportionalität $\sigma \propto \beta \propto \frac{1}{\lambda^4}$ Streu- und Rückstreuquerschnitte für andere Wellenlängen extrapoliert werden, solange man sich außerhalb der Resonanzbereiche für ein Molekül befindet. In Tabelle 2-7 sind die entsprechenden Messwerte für die Invarianten des Polarisierbarkeitstensors für N₂ und O₂ aufgeführt [Inaba, 1976], die bisher dazu dienten, Streuquerschnitte bei 337,1 nm zu berechnen, um sie dann

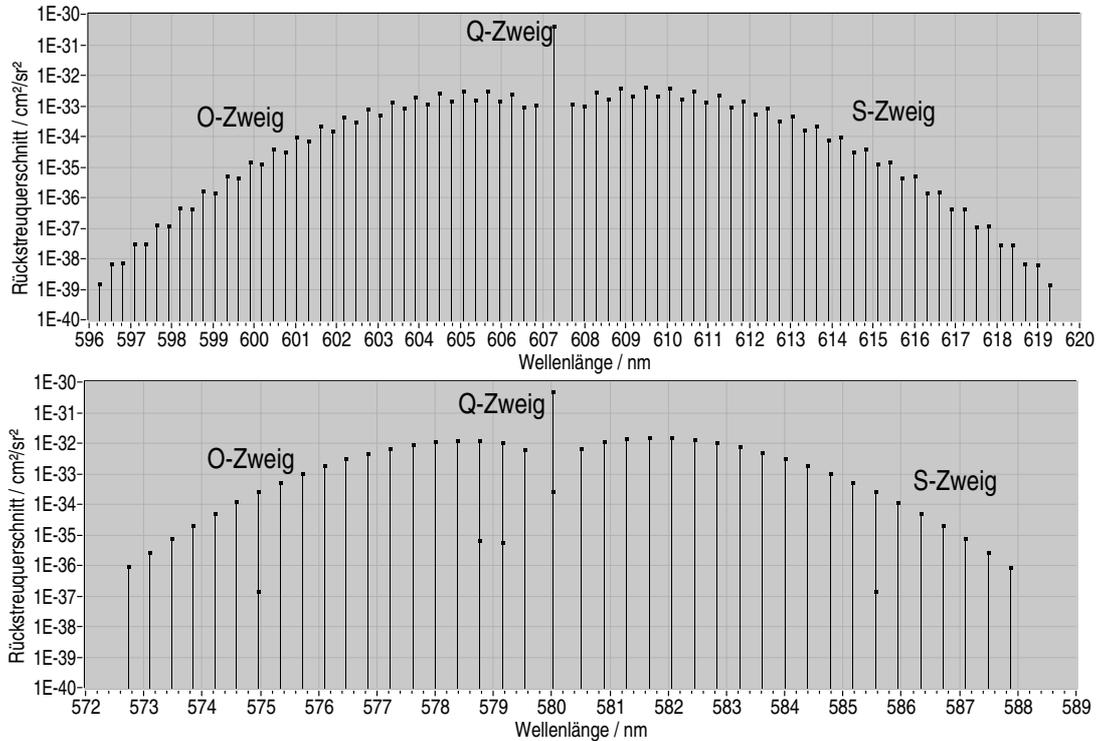


Abb. 2-10 Stokes-Vibrations-Rotations-Linien von Stickstoff und Sauerstoff bei 0 °C und 532 nm.

zu interpolieren. Werden die Terme aus Tabelle 2-5 in Gleichung 2-23 eingesetzt, erhält man die benötigten Gleichungen:

- Vibrations-Raman-Rückstreukoeffizient für die Stokes-Linie erster Ordnung, also den Übergang $\Delta v = +1, \Delta J = 0$ (Q-Zweig):

$$\beta_{\text{Ram}}^{\text{Q}} = \frac{(2 \cdot \pi)^4 \cdot b_j^2 \cdot (v_0 - \tilde{\nu}_j)^4}{1 - e^{-\frac{h \cdot c \cdot \tilde{\nu}_j}{k \cdot T}}} \cdot g_j \cdot \left(\hat{i}_j^2 + \frac{1}{180} \cdot \hat{a}_j^2 \right), \quad \text{Gl. 2-28}$$

- gesamter Rückstreukoeffizient für die entsprechenden Vibrations-Rotations-Linien, also die Übergänge $\Delta v = +1, \Delta J = \pm 2$ (O- und S-Zweig):

$$\beta_{\text{Ram}}^{\text{O+S}} = \frac{(2 \cdot \pi)^4 \cdot b_j^2 \cdot (v_0 - \tilde{\nu}_j)^4}{1 - e^{-\frac{h \cdot c \cdot \tilde{\nu}_j}{k \cdot T}}} \cdot g_j \cdot \frac{7}{60} \cdot \hat{a}_j^2, \quad \text{Gl. 2-29}$$

- totaler Vibrations-Rotations-Raman-Rückstreuequerschnitt (Summe der reinen vibrationsellen und aller Rotations-Vibrations-Übergänge):

$$\beta_{\text{Ram}}^{\text{Q+O+S}} = \frac{(2 \cdot \pi)^4 \cdot b_j^2 \cdot (v_0 - \tilde{\nu}_j)^4}{1 - e^{-\frac{h \cdot c \cdot \tilde{\nu}_j}{k \cdot T}}} \cdot g_j \cdot \left(\hat{i}_j^2 + \frac{7}{45} \cdot \hat{a}_j^2 \right). \quad \text{Gl. 2-30}$$

Molekül	$\tilde{\nu}_j$	$g_j \cdot \hat{i}_j^2$	$g_j \cdot \hat{a}_j^2$	σ_{Ram}^Q	$\sigma_{\text{Ram}}^{O+S}$	$\sigma_{\text{Ram}}^{Q+O+S}$
cm ⁻¹	cm ⁻¹	cm ⁴ /g	cm ⁴ /g	cm ² /sr	cm ² /sr	cm ² /sr
N ₂	2329,66	0,45·10 ⁻³²	0,64·10 ⁻³²	2,9·10 ⁻³⁰	0,55·10 ⁻³⁰	3,5·10 ⁻³⁰
O ₂	1556,26	0,27·10 ⁻³²	1,08·10 ⁻³²	3,3·10 ⁻³⁰	1,3·10 ⁻³⁰	4,6·10 ⁻³⁰

Tab. 2-7 Frequenzverschiebung, mittlere Polarisierbarkeit und Anisotropie und die Werte für den Raman-Rückstreukoeffizienten von Stickstoff und Sauerstoff bei einer Anregungswellenlänge von 371,1 nm [Inaba, 1976].

Molekül	N ₂			O ₂			H ₂ O		
Laser / nm	532,05	354,70	266,02	532,05	354,70	266,02	532,05	354,70	266,02
Laser/cm ⁻¹	18795	28192	37590	18795	28192	37590	18795	28192	37590
$\Delta\tilde{\nu}$ / cm ⁻¹	2329,66			1556,26			3654±10 (Breite der Bande)		
λ_{Ram} / nm	607,33	386,65	283,60	580,08	375,42	277,51	660,45 ±0,43	407,52 ±0,16	294,67 ±0,08
$\sigma_{\text{Ram}}^Q \cdot 10^{-30}$ / cm ² /sr	0,275	1,68	5,79	0,376	2,15	7,18	0,944	6,51	23,8
$\sigma_{\text{Ram}}^{O+S} \cdot 10^{-31}$ / cm ² /sr	0,522	3,18	11	1,48	8,45	28,3	1,79	12,4	45,2
$\sigma_{\text{Ram}}^{Q+O+S} \cdot 10^{-30}$ / cm ² /sr	0,332	2,02	6,99	0,525	2,99	10,0	1,14	7,86	28,7
$\sigma_{\text{Cabannes}}^Q \cdot 10^{-27}$ / cm ² /sr	0,370	2,25	7,79	0,374	2,13	7,14	1,27	8,76	32
$\sigma_{\text{Rot}}^{O+S} \cdot 10^{-29}$ / cm ² /sr	1,08	6,59	22,8	2,24	12,7	42,7	3,71	25,6	93,6
$\sigma_{\text{Rayleigh}} \cdot 10^{-27}$ / cm ² /sr	0,381	2,32	8,00	0,396	2,26	7,55	1,31	9,00	32,9

Tab. 2-8 Durch Extrapolation der Werte bei 337,1 nm berechnete Raman-Rückstreuquerschnitte der Stokes-Linien von Stickstoff, Sauerstoff und Wasserdampf für die SHG, THG und FHG des Nd:Yag-Lasers..

Die Ergebnisse der Extrapolation für die Nd:Yag-Laser-Wellenlängen enthält Tabelle 2-8.

Für die Messungen in dieser Arbeit sind die Raman-Streuquerschnitte im ultravioletten Spektralbereich zwischen 266 und 300 nm besonders interessant. Deshalb wurden sie und die zu erwartenden Depolarisationen (nach Gleichung 2-12) für Sauerstoff und Stickstoff neu bestimmt. Der isotrope Teil des Polarisierbarkeitstensors wurde mit der Clausius-Mosotti- (bzw. Lorentz-Lorenz-) Gleichung aus der Brechzahl n und der Anzahldichte N der Luft berechnet [Haken und Wolf, 1994]:

$$\hat{i} = \frac{3\epsilon_0(n^2 - 1)}{N(n^2 + 2)}, \quad \text{Gl. 2-31}$$

wobei ϵ_0 die Influenzkonstante ist. Die Anisotropie wurde mit folgenden phänomenologischen Gleichungen bestimmt [Chance und Spurr, 1997]:

$$\hat{a}_{N_2} = \left[-601466 \times 10^{-5} + \frac{238557 \times 10^{-8}}{186099 \times 10^{-9} - \frac{1}{\lambda^2}} \right] \cdot 10^{-25} [\text{cm}^3], \quad \text{Gl. 2-32}$$

$$\hat{a}_{O_2} = \left[7149 \times 10^{-5} + \frac{459364 \times 10^{-10}}{482716 \times 10^{-10} - \frac{1}{\lambda^2}} \right] \cdot 10^{-24} [\text{cm}^3]. \quad \text{Gl. 2-33}$$

Für die ebenfalls benötigten Werte des abgeleiteten Tensors gibt es leider keine wellenlängenabhängigen Werte in der Literatur. Deshalb müssen hier die tabellierten Werte für 337,1 nm (Tabelle 2-9) verwendet werden. Die somit neu berechneten Rückstreuquerschnitte und Depolarisationen der Raman-Linien nullter und erster Ordnung stehen für die Nd:Yag-Wellenlängen in Tabelle 2-10. Abbildung 2-11 zeigt die zu erwartenden Spektren unter Einbeziehung von jeweils 40 Rotations-Niveaus bei 15 °C für Anregungswellenlängen von 532 und 266 nm.

Molekül	Ableitung der mittleren Polarisierbarkeit $\langle \hat{i} \rangle^2$ in cm^4/g	Ableitung der Anisotropie $(\hat{a}')^2$ in cm^4/g
O ₂	1.626E-9	6.504E-9
N ₂	2.710E-9	3.854E-9

Tab. 2-9 Invarianten des abgeleiteten Polarisierbarkeitstensors für für 337,1 nm [Inaba, 1976].

Das Wasserdampf-Raman-Spektrum erster Ordnung hat bei Zimmertemperatur eine Breite von 20 cm^{-1} mit drei Maxima [Penney und Lapp, 1976]. Das Zentrum der Bande ist gegenüber der Anregungslinie um 3654 cm^{-1} Wellenzahlen verschoben. Die gemessenen Streuquerschnitte sind um den Faktor $2,8 \pm 10 \%$ stärker als die entsprechenden N₂-Raman-Streuquerschnitte und zeigten im untersuchten Bereich um 500 nm eine λ^{-4} -Abhängigkeit von der Anregungswellenlänge. Die zu erwartenden Rückstreuoeffizienten für die Vielfachen der Grundfrequenz des Nd:Yag-Lasers in Tabelle 2-8 wurden durch entsprechende Extrapolation berechnet.

Für die reine Rayleigh-Rückstreuung erhält man unter der Annahme, dass die Atmosphäre 21 % O₂ und 79 % N₂ enthält und eine Temperatur von 15 °C hat, aus obigen Formeln

		N ₂			O ₂		
	Laser / nm	532,05	354,70	266,02	532,05	354,70	266,02
	Laser/cm ⁻¹	18795	28192	37590	18795	28192	37590
	$\Delta\tilde{\nu}$ / cm ⁻¹	2329,66			1556,26		
	λ_{Ram} / nm (vibr. Stokes)	607,33	386,65	283,60	580,08	375,42	277,51
Stokes	$\sigma_{\text{Ram}}^{\text{Q}}$ / cm ² /sr	3,94·10 ⁻³¹	2,40·10 ⁻³⁰	8,25·10 ⁻³⁰	4,67·10 ⁻³¹	2,66·10 ⁻³⁰	8,90·10 ⁻³⁰
	Depolarisation ϵ	0,023			0,064		
	$\sigma_{\text{Ram}}^{\text{O+S}}$ / cm ² /sr	6,12·10 ⁻³²	3,73·10 ⁻³¹	1,29·10 ⁻³⁰	1,85·10 ⁻³¹	1,06·10 ⁻³⁰	3,53·10 ⁻³⁰
	Depolarisation ϵ	0,750			0,750		
	$\sigma_{\text{Ram}}^{\text{Q+O+S}}$ / cm ² /sr	4,55·10 ⁻³¹	2,77·10 ⁻³⁰	9,54·10 ⁻³⁰	6,52·10 ⁻³¹	3,72·10 ⁻³⁰	1,24·10 ⁻²⁹
		0,084			0,197		
Rayleigh	$\sigma_{\text{Cabannes}}^{\text{Q}}$ / cm ² /sr	5,88·10 ⁻²⁸	3,14·10 ⁻²⁷	1,07·10 ⁻²⁶	4,95·10 ⁻²⁸	2,65·10 ⁻²⁷	9,11·10 ⁻²⁷
	Depolarisation ϵ	0,003			0,008	0,010	0,012
	$\sigma_{\text{Rot}}^{\text{O+S}}$ / cm ² /sr	1,12·10 ⁻²⁹	6,43·10 ⁻³⁶	2,22·10 ⁻²⁸	2,69·10 ⁻²⁹	1,66·10 ⁻²⁸	7,16·10 ⁻²⁸
	Depolarisation ϵ	0,750	0,750		0,750		
	σ_{R} / cm ² /sr	5,99·10 ⁻²⁸	3,20·10 ⁻²⁷	1,10·10 ⁻²⁶	5,22·10 ⁻²⁸	2,82·10 ⁻²⁷	9,82·10 ⁻²⁷
	Depolarisation ϵ	0,011	0,011	0,012	0,031	0,035	0,044
Anti-Stokes	$\sigma_{\text{Ram}}^{\text{Q}}$ / cm ² /sr	9,47·10 ⁻³⁶	4,13·10 ⁻³⁵	1,20·10 ⁻³⁴	3,83·10 ⁻³⁴	1,75·10 ⁻³³	5,23·10 ⁻³³
	Depolarisation ϵ	0,023			0,064		
	$\sigma_{\text{Ram}}^{\text{O+S}}$ / cm ² /sr	1,47·10 ⁻³⁶	6,43·10 ⁻³⁶	1,88·10 ⁻³⁵	1,52·10 ⁻³⁴	6,92·10 ⁻³⁴	2,07·10 ⁻³³
	Depolarisation ϵ	0,750			0,750		
	$\sigma_{\text{Ram}}^{\text{Q+O+S}}$ / cm ² /sr	1,09·10 ⁻³⁵	4,77·10 ⁻³⁵	1,39·10 ⁻³⁴	5,34·10 ⁻³⁴	2,44·10 ⁻³³	7,30·10 ⁻³³
	Depolarisation ϵ	0,084			0,197		

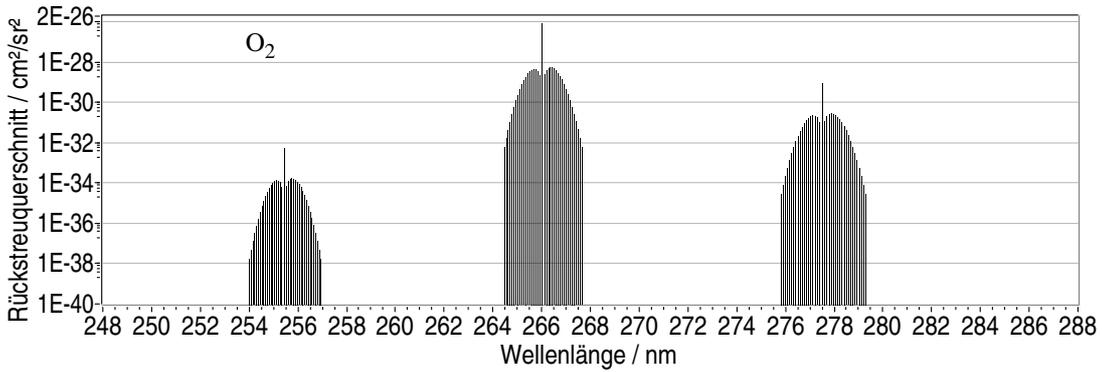
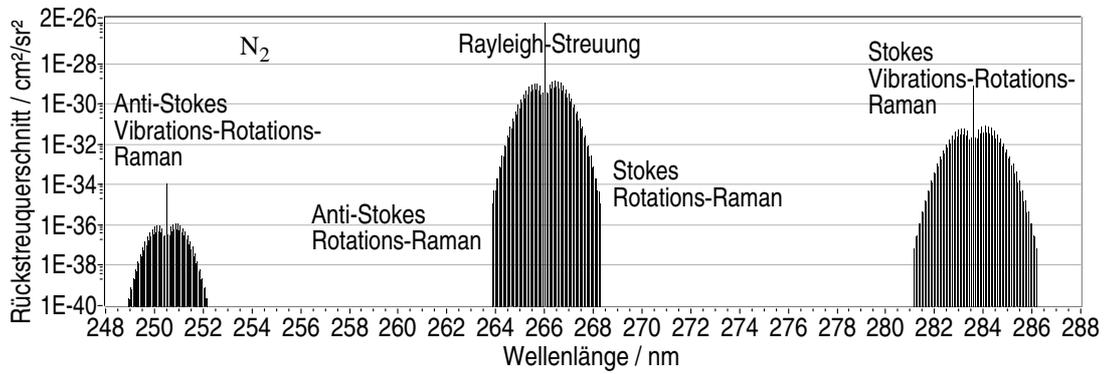
Tab. 2-10 Neu bestimmte molekulare Rückstreuquerschnitte und Depolarisation für Stickstoff und Sauerstoff für die Wellenlängen der SHG, THG und FHG des Nd:Yag-Lasers.

einen Rückstreuquerschnitt von $5,83 \cdot 10^{-28} \text{ cm}^2 \text{ sr}^{-1}$ gegenüber dem um 4 % kleineren Wert von $6,08 \cdot 10^{-28} \text{ cm}^2 \text{ sr}^{-1}$ nach Gleichung 2-6 [Buchholtz, 1995].

2.1.2 Aerosol-Streuung

Ohne das Verständnis für die Streuung von Licht an Aerosol und Tropfen lassen sich die meisten prachtvollen Farbenspiele in der Atmosphäre, weiß leuchtende Nebel, Wolken in allen Farbtönen oder auch milchig-blauer Himmel nicht verstehen. Verantwortlich sind Partikel, deren Größe etwa der Wellenlänge des sichtbaren Lichts entspricht. Die Streueigenschaften des Aerosols lassen sich mit der Mie-Theorie und die der größeren Tropfen mittels geometrischer Optik analysieren. Der folgende Abschnitt beinhaltet eine auf die anwen-

Anregungswellenlänge: 266 nm



Anregungswellenlänge: 532 nm

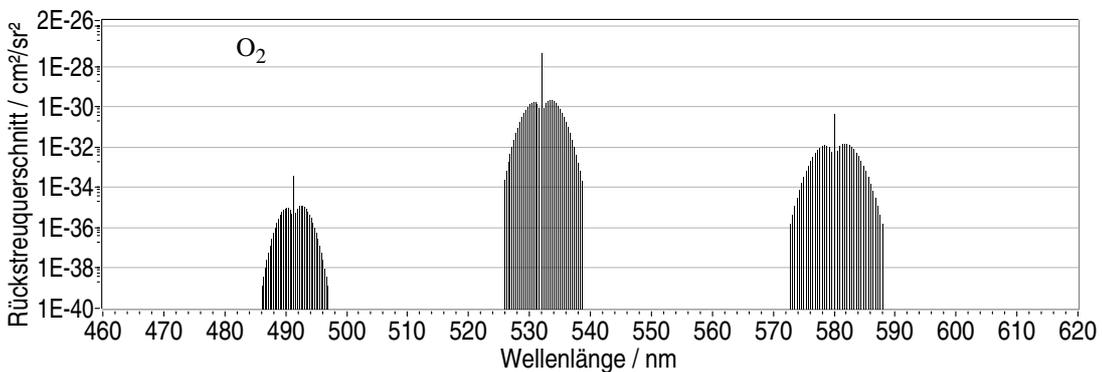
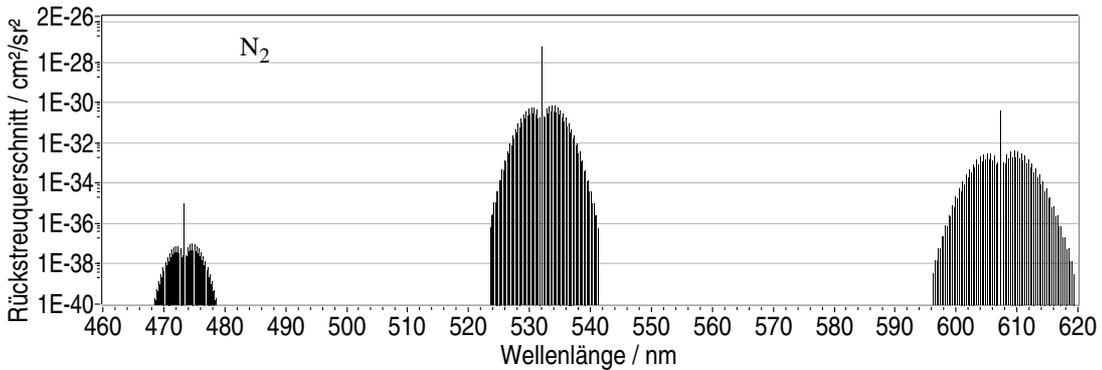


Abb. 2-11 Raman-Spektren nullter und erster Ordnung mit jeweils 40 Rotations-Raman-Linien für Stickstoff und Sauerstoff bei 15 °C für Anregungen durch die FHG (266 nm) und SHG (532 nm) des Nd:Yag-Lasers.

dungsbezogenen Aspekte beschränkte Erläuterung der Mie-Theorie. Sie ist ein wichtiges Werkzeug bei der Analyse von atmosphärischen Strahlungstransportvorgängen und Streuprozessen, weil sie die Lücke zwischen der Dipolstreuung und der geometrischen Optik schließen kann. Das ist so bedeutend, weil gerade in diesem Zwischenbereich besonders viele atmosphärische Partikel, das Aerosol, existieren.

Das Verständnis der Streuung des Laserlichts an Aerosol ist neben der molekularen Streuung und Absorption der Schlüssel zur Interpretation der Laser-Fernerkundungsmessungen. Es kann zwischen Verfahren unterschieden werden:

- deren Ziel die Erforschung des Aerosols ist,
- bei denen Aerosol gewissermaßen als Sensor für die untersuchte Größe genutzt wird,
- bei denen die Überlagerung mit der Aerosol-Streuung zu systematischen Messfehlern führt, die eine Korrektur erfordern.

In der zweiten Hälfte der 70er Jahre wurde das Wissen über die optischen Parameter des Aerosols und deren Variabilität zusammengefasst [Shettle und Fenn, 1976, Shettle und Fenn, 1979], welches weitestgehend bis heute die Grundlage der Berechnungen bildet [d'Almeida et al., 1991, Völger, 1993, Völger et al., 1996].

2.1.2.1 Mie-Theorie

Um 1908 wurde von Gustav Mie und gleichzeitig von Peter Debye eine Theorie der Streuung an dielektrischen Kugeln hergeleitet, die auf der Lösung einer Randwertaufgabe der Wellengleichung für das magnetische und elektrische Feld mit Hilfe der Maxwell-Gleichungen beruht. Es wird eine elektromagnetische Welle vor, während und nach dem Durchgang durch eine Kugel betrachtet. Die Randbedingungen ergeben sich aus der notwendigen Stetigkeit der Tangentialkomponenten des elektrischen und magnetischen Feldes \vec{E} bzw. \vec{H} an den Grenzflächen:

$$\begin{aligned} \vec{n} \times (\vec{E}_2 - \vec{E}_1) &= \vec{0} \\ \vec{n} \times (\vec{H}_2 - \vec{H}_1) &= \vec{0} \end{aligned} \quad \text{Gl. 2-34}$$

und der Stetigkeit der Normalkomponenten der Felder beim Durchgang durch die Grenzflächen zwischen den zunächst als homogen angenommenen Medien:

$$\begin{aligned} \vec{n} \cdot (\epsilon_2 \vec{E}_2 - \epsilon_1 \vec{E}_1) &= \vec{0} \\ \vec{n} \cdot (\mu_2 \vec{H}_2 - \mu_1 \vec{H}_1) &= \vec{0} \end{aligned} \quad \text{Gl. 2-35}$$

Die Brechzahl des Streuers n_1 und die seiner Umgebung n_2 ist die Wurzel des Produkts aus der entsprechenden Permeabilität μ und der Dielektrizitätskonstante ε :

$$n_i = \sqrt{\mu_i \varepsilon_i} . \quad \text{Gl. 2-36}$$

Eine Multipolentwicklung führt zur Lösung des Randwertproblems. Für die Laser-Fernerkundung interessiert nur die Lösung für das externe Feld der Streustrahlung. Jeder Term der Entwicklung der Hertz-Debye-Potenziale entspricht einer sogenannten Partialwelle. Diese besteht aus einem magnetischen Anteil mit der Amplitude a_j und einem elektrischen Anteil mit der Amplitude b_j . In welchem Maß die Partialwellen zur transversal magnetischen bzw. elektrischen Streuwelle beitragen, hängt von den Streukoeffizienten a_j und b_j ab:

$$\begin{aligned} a_j &= \frac{m \psi_j(mx) \psi_j'(x) - \psi_j(x) \psi_j'(mx)}{m \psi_j(mx) \xi_j'(x) - \xi_j(x) \psi_j'(mx)} , \\ b_j &= \frac{\psi_j(mx) \psi_j'(x) - m \psi_j(x) \psi_j'(mx)}{\psi_j(mx) \xi_j'(x) - m \xi_j(x) \psi_j'(mx)} \end{aligned} \quad \text{Gl. 2-37}$$

Seitdem es schnelle Computer gibt, steht ihrer praktischen Berechnung nichts mehr im Wege. Sie enthalten die Riccati-Bessel-Funktionen:

$$\begin{aligned} \psi_n(x) &= kr j_n(kr) , \\ \xi_n(x) &= kr h_n^{(1)}(kr) \end{aligned} \quad \text{Gl. 2-38}$$

die aus den sphärischen Bessel-Funktionen erster, zweiter und dritter Ordnung j_n , y_n und h_n zusammengesetzt werden. Letztere sind Linearkombinationen der ersteren und werden auch sphärische Hankel-Funktionen genannt.

$$\begin{aligned} j_n(kr) &= \sqrt{\frac{\pi}{2kr}} J_{n+1/2}(kr) \\ y_n(kr) &= \sqrt{\frac{\pi}{2kr}} Y_{n+1/2}(kr) \\ h_n^{(1)}(kr) &= j_n(kr) + iy_n(kr) \\ h_n^{(2)}(kr) &= j_n(kr) - iy_n(kr) \end{aligned} \quad \text{Gl. 2-39}$$

Die Streukoeffizienten sind als Funktion des Größenparameters x :

$$x = \frac{k \cdot D}{2} = \frac{\pi \cdot n_2 \cdot D}{\lambda} \quad \text{Gl. 2-40}$$

und der relativen Brechzahl m vollständig bestimmt.

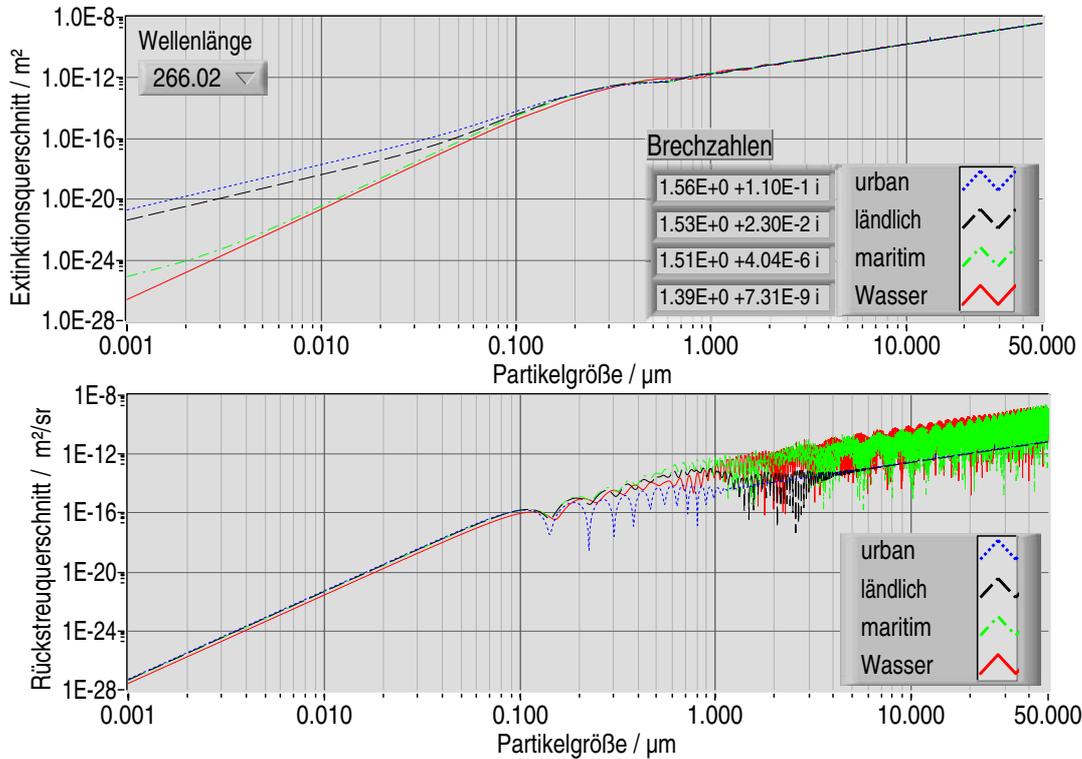


Abb. 2-12 Abhängigkeit des Extinktions- bzw. Rückstreuquerschnitts vom Partikeldurchmesser und der Brechzahl (siehe Abbildung 2-14) bei einer Wellenlänge von 266 nm.

$$m = \frac{k}{k_0} = \frac{n_1}{n_2} \quad \text{Gl. 2-41}$$

Sie ist als Verhältnis aus der Brechzahl des Streuers n_1 und der des umgebenden Mediums n_2 definiert. Die Brechzahl von Luft (n_2) wird für die Aerosol-Streusimulation als 1 angenommen. Mit den numerisch bestimmten Streukoeffizienten für das äußere Feld (a_n , b_n) werden sowohl Streu-, Extinktions und Absorptionsquerschnitte:

$$\sigma_{\text{sca}} = \pi d^2 Q_{\text{sca}} = \frac{\lambda^2}{2\pi} \sum_{j=1}^{\infty} (2j+1)(|a_j|^2 + |b_j|^2), \quad \text{Gl. 2-42}$$

$$\sigma_{\text{ext}} = \pi d^2 Q_{\text{ext}} = \frac{\lambda^2}{2\pi} \sum_{j=1}^{\infty} (2j+1)\text{Re}(a_j + b_j), \quad \text{Gl. 2-43}$$

$$\sigma_{\text{abs}} = \pi d^2 Q_{\text{abs}} = \sigma_{\text{ext}} - \sigma_{\text{sca}}, \quad \text{Gl. 2-44}$$

als auch der Rückstreuquerschnitt:

$$\sigma_{\text{back}} = \pi d^2 Q_{\text{back}} = \frac{\lambda^2}{4\pi} \left| \sum_j (2j+1)(-1)^j (a_j - b_j) \right|^2 \quad \text{Gl. 2-45}$$

berechnet [Bohren und Huffman, 1998]. Der Rückstreuquerschnitt unterscheidet sich nach dieser Formel um den Faktor 4π vom tatsächlichen differentiellen Rückstreuquerschnitt.

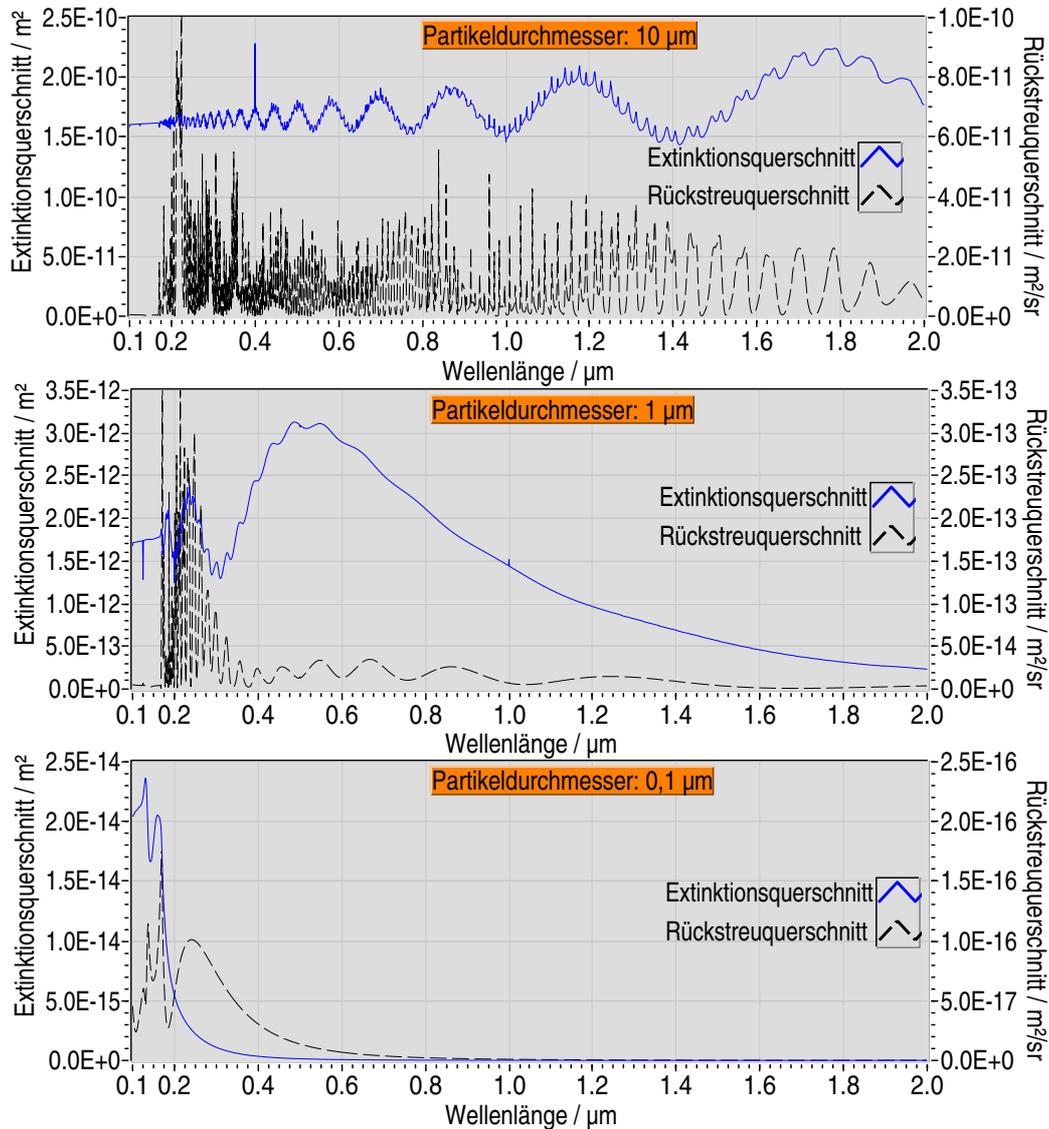
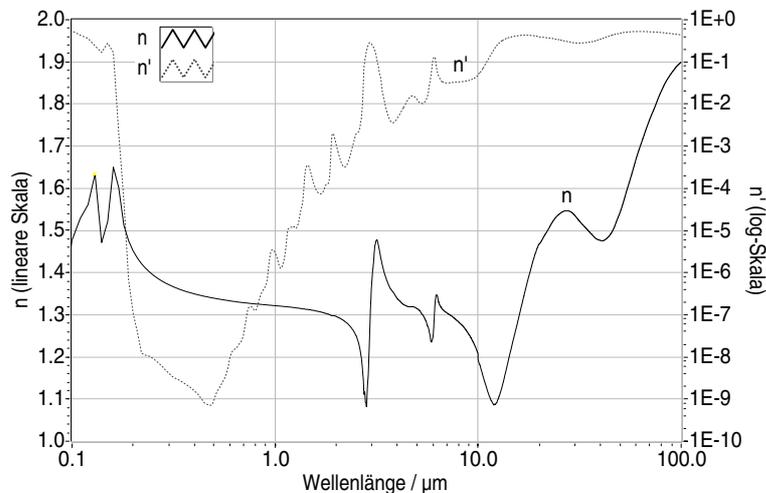


Abb. 2-13 Extinktions- und Rückstreuquerschnitt sphärischer Partikel als Funktion der Wellenlänge.

σ_{back} muss also noch durch 4π geteilt werden, um den Intensitätsanteil zu berechnen, der in ein Raumwinkelelement von 1 sr gestreut wird. Dieser kleine, aber in der Praxis bedeutende, Unterschied hat historische Gründe [Bohren und Huffman, 1998]. Nach der Korrektur hat es auch nicht mehr den Anschein, als ob der Rückstreuquerschnitt für Partikel die klein im Vergleich zur Wellenlänge sind, größer als der Gesamtstreuquerschnitt wäre.

Für die Simulationen zur Streuung durch Aerosol wurde eine Datenbasis der Extinktions- und Rückstreuquerschnitte für die Nd:Yag-Grundwellenlänge, die zweite, dritte und vierte Harmonische und jeweils die Stickstoff-, Sauerstoff- und Wasserdampf-Raman-verschobenen Linien berechnet. Als Eingangsparameter werden vier typische Brechzahlenspektren für die Aerosol-Mischungstypen „urban“, „ländlich“, „maritim“ und „Wasser“ [Segelstein,

Real- (n) und Imaginärteil (n') der Brechzahl von Wasser [Wieliczka et al., 1989, Segelstein, 1981].



Brechzahl von Wasser, urbanem, ländlichem und maritimem Aerosol [Shettle und Fenn, 1979].

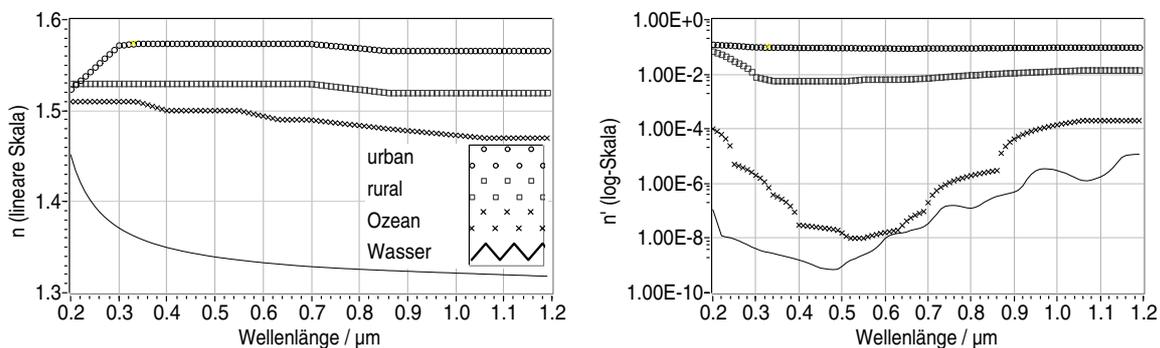


Abb. 2-14 Brechzahl von Wasser, urbanem, ländlichem und maritimem Aerosol [Wiscombe, 2001, Rothman et al., 1998].

1981, Wieliczka et al., 1989, Shettle und Fenn, 1976, Wiscombe, 2001]) verwendet. Außer bei Wasser handelt es sich um trockene Aerosole, die so nicht in der Atmosphäre vorkommen. Natürlicherweise mischen sich auch diese Aerosole mit Wasser, wobei sich die Brechzahl der des Wassers angleicht. Ich verwende sie allerdings unverändert, um die möglichen Extreme der Streuparameter beurteilen zu können. Die Datenbasis der Querschnitte wurde für Durchmesser von 1 nm bis 50 μm mit 1 nm Schrittweite berechnet. In Abbildung 2-12 sind als Beispiel die Spektren für die FHG bei 266 nm dargestellt. Bis zu einer Partikelgröße von 100 nm folgt der Anstieg der Querschnitte einem Potenzgesetz.

Die räumliche Abstrahlcharakteristik eines Partikels wird durch die Phasenfunktion $P(\Theta)$ beschrieben. Sie kann ebenfalls aus den Streuparametern berechnet werden:

$$P(\Theta) = \frac{\lambda^2}{2\pi\sigma_{\text{sca}}(x, m)} (|S_1|^2 + |S_2|^2). \quad \text{Gl. 2-46}$$

Die Streuamplituden S_1 und S_2 werden folgendermaßen bestimmt:

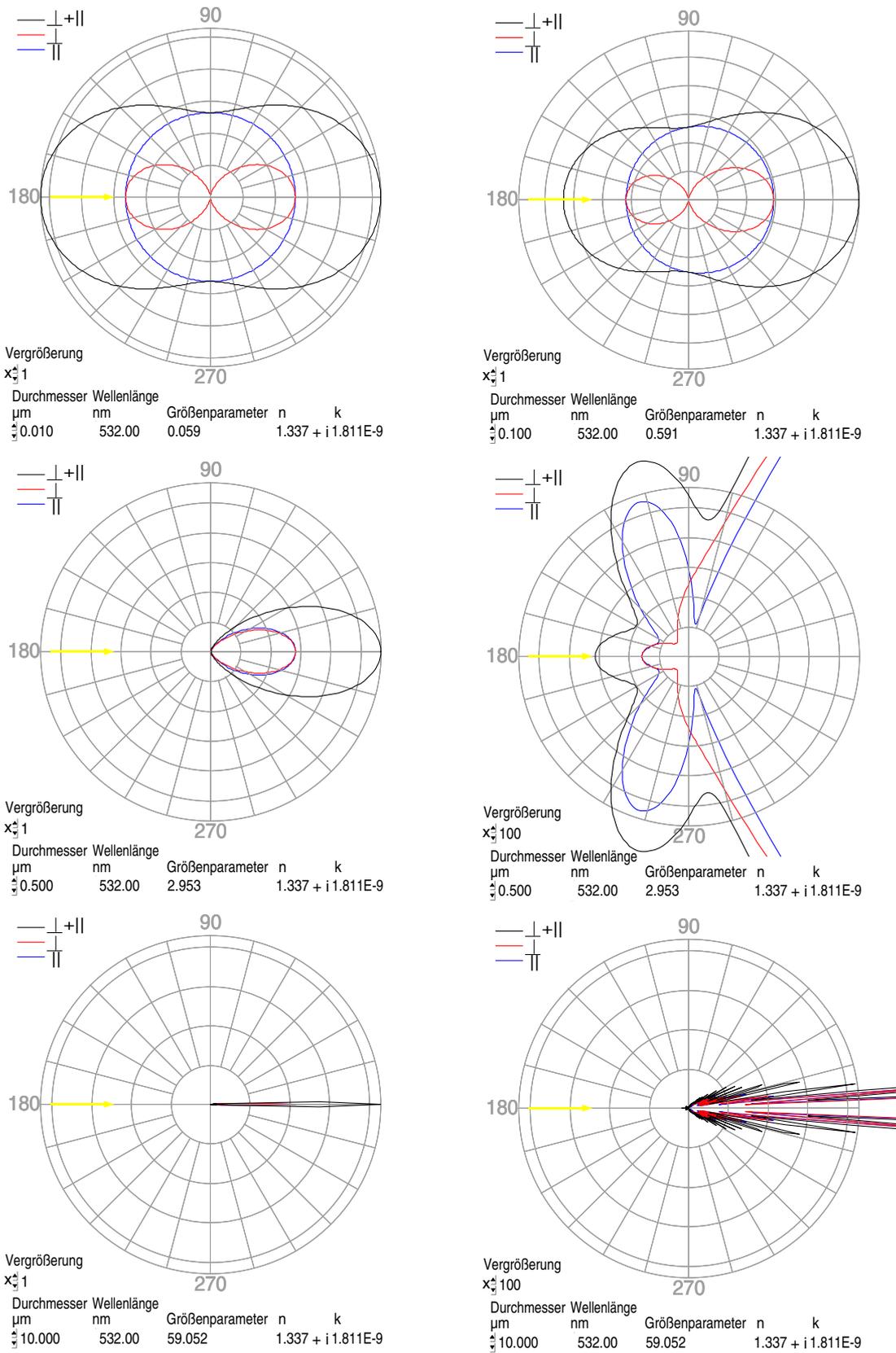


Abb. 2-15 Phasenfunktionen für die Streuung von Licht mit einer Wellenlänge von 532 nm an einzelnen Kugeln aus Wasser mit unterschiedlichen Durchmessern (typische Durchmesser für atmosphärisches Aerosol). Die Polarisation ist relativ zur Papierebene angegeben.

$$S_1 = \sum_{i=1}^{\infty} \frac{2i+1}{i(i+1)} a_i \pi_i + b_i \tau_i, \quad S_2 = \sum_{i=1}^{\infty} \frac{2i+1}{i(i+1)} (a_i \tau_i + b_i \pi_i),$$

$$\pi_i(\cos \Theta) = \frac{P_i^1(\cos \Theta)}{\sin \Theta}, \quad \tau_i(\cos \Theta) = \frac{d}{d \cos \Theta} P_i^1(\cos \Theta), \quad \text{Gl. 2-47}$$

wobei $P_i^1(\cos \Theta)$ die zugeordneten Legendre-Funktionen sind. Entsprechende Phasenfunktionen für Wassertropfen verschiedener Größe bei Beleuchtung mit grünem, unpolarisiertem Licht sind in Abbildung 2-15 in Polardiagrammen dargestellt. Für kleine Tropfen ergibt sich das aus der Rayleigh-Theorie bekannte Bild. Die Streuintensitäten nach vorn und hinten sind gleich. Je größer die Tropfen werden, desto asymmetrischer wird die Phasenfunktion. Es entsteht außerdem eine sehr strukturierte Richtungscharakteristik. Um trotz der linearen Intensitätsskala die Rückstreuintensität im Bild sichtbar zu machen, wird ab einer Tropfengröße von 500 nm eine Vergrößerung um den Faktor 100 in Abbildung 2-15 verwendet.

Aus der Theorie geht weiterhin hervor, dass linear polarisiertes Licht an sphärischen Partikeln unter Beibehaltung der Polarisationsrichtung gestreut wird. Durch die Messung der Depolarisation linear polarisierter Laserstrahlung in der Atmosphäre ist daher eine Beurteilung der Anwendbarkeit der Mie-Theorie möglich. Außerdem kann durch die Depolarisation der rückgestreuten Laserstrahlung Aerosol mit einem großen Anteil nichtsphärischer, d. h. trockener oder gefrorener Partikel, erkannt werden.

Eine ausführliche und gut verständliche Herleitung der Theorie sowie Rechnerprogramme für Streuparameter und verschiedene Anwendungsfälle enthält z. B. das Buch „Absorption and Scattering of Light by Small Particles“ von Bohren und Huffman [Bohren und Huffman, 1998].

2.1.2.2 Modell der Aerosol-Streuung

Messdaten der Laser-Fernerkundung können ohne Beachtung der Aerosol-Streuung nicht interpretiert werden. Das gilt insbesondere für die planetare Grenzschicht, in der die Vielfalt an Beimengungen im Vergleich zu anderen Höhenbereichen der Atmosphäre am größten ist. Im Rahmen dieser Arbeit habe ich ein Programm erstellt, um Streu-, Extinktions-, Absorptions- und Rückstreukoeffizienten für beliebige Mischungstypen und Größenverteilungen des Aerosols berechnen zu können.

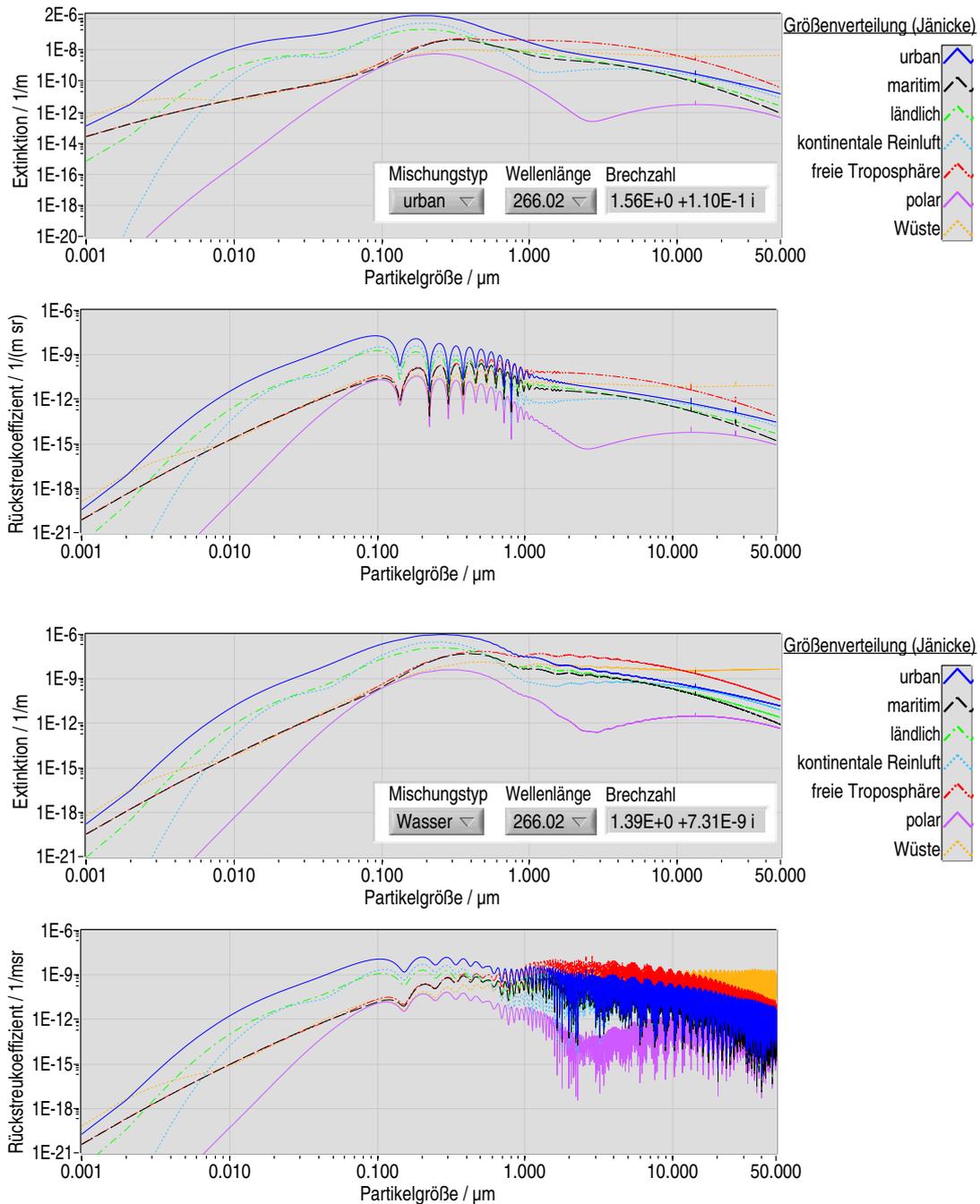


Abb. 2-16 Extinktions- und Rückstreukoeffizienten für die Mischungstypen „urban“ und „Wasser“ für 7 verschiedene Größenverteilungen bei 266 nm.

Die Grundlage der Berechnungen bildet die Mie-Theorie. Wie die Mess- und Auswertungsroutinen ist auch die Streusimulation in der Programmiersprache Labview geschrieben und modular aufgebaut und kann somit direkt integriert werden. Der zeitaufwändige Schritt ist die Berechnung der entsprechenden Querschnitte (σ) mittels Mie-Theorie. Daher muss im Vorfeld der Auswertung eine Datenbasis für die zu erwartenden Mischungstypen, d. h. Brechzahlenspektren, entsprechend des vorigen Abschnitts berechnet werden. Das erfordert

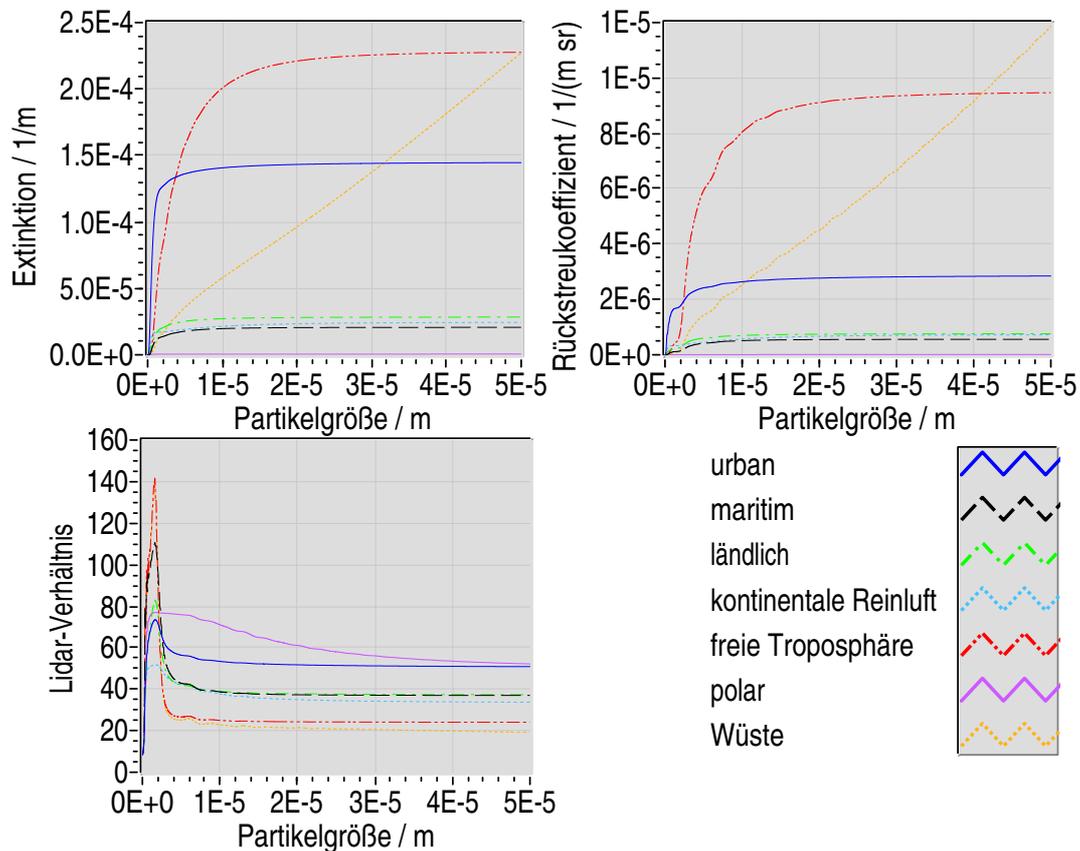


Abb. 2-17 Konvergenz der Extinktion, des Rückstreukoeffizienten und des Lidar-Verhältnisses bei der Integration über verschiedenen Größenverteilungen.

einen Zeitaufwand von ca. einem halben Tag pro Mischungstyp (Rechner: 2 GHz, Intel Pentium 4) und die für Nd:Yag-Laser relevanten Farben. Der Querschnitt (σ) der Extinktion, Absorption, Streuung bzw. Rückstreuung für eine bestimmte Partikelgröße (D) multipliziert mit der Anzahl der Partikel in der entsprechenden Größenklasse einer vorgegebenen Verteilung ergibt dann die Koeffizienten. Summiert über alle Größen, erhält man schließlich die Extinktions-, Absorptions-, Streu- und Rückstreukoeffizienten für eine Wellenlänge. Als Beispiel sei die Formel für den Extinktionskoeffizienten dargestellt.

$$\alpha(\lambda) = \frac{1}{\ln 10} \cdot \sum_i \left\{ \frac{n(D_i)}{D_i} \cdot \sigma_{\text{ext}}(D_i) \cdot \Delta D_i \right\} \quad \text{Gl. 2-48}$$

Die Formel gilt nach Austausch des Querschnitts analog auch für die anderen Koeffizienten.

Für das Modell ist entscheidend, dass die Reihe konvergiert. Je weniger Größenklassen dafür benötigt werden, desto schneller lassen sich die Querschnitte berechnen. Für kleine Wellenlängen und große Partikel, d. h. große Größenparameter, dauert die Berechnung

Mischungstyp: Wasser														
	Rückstreuverhältnis							Lidar-Verhältnis						
	urb	mar	län	k R	f Tr	pol	Wü	urb	mar	län	k R	f Tr	pol	Wü
266,02	1,26	1,04	1,06	1,06	1,54	1,00	1,68	52,5	28,4	35,8	54,5	14,7	57,7	11,9
277,51	1,29	1,04	1,06	1,06	1,61	1,00	1,72	54,0	30,3	36,7	55,5	15,9	60,9	13,4
283,60	1,30	1,04	1,07	1,07	1,65	1,00	1,75	54,6	31,1	37,1	55,8	16,3	62,3	14,3
294,67	1,34	1,05	1,07	1,07	1,72	1,00	1,77	55,7	32,6	37,7	56,3	17,3	65,0	16,4
354,70	1,56	1,09	1,13	1,12	2,36	1,00	2,37	57,3	36,7	38,6	52,7	20,4	69,1	20,2
375,42	1,66	1,11	1,16	1,15	2,67	1,00	2,76	56,9	37,2	38,5	50,1	21,1	67,8	20,0
386,65	1,72	1,12	1,17	1,16	2,87	1,00	3,00	56,6	37,3	38,4	48,8	21,3	67,0	20,0
407,52	1,84	1,14	1,21	1,19	3,28	1,00	3,52	55,9	37,4	38,1	46,1	21,8	65,1	19,8
532,05	2,88	1,37	1,50	1,48	7,25	1,01	8,83	50,8	37,0	37,3	33,7	24,0	52,1	19,1
580,08	3,44	1,50	1,67	1,65	9,61	1,01	12,17	49,0	36,8	37,3	30,5	24,9	47,6	19,1
607,33	3,81	1,58	1,77	1,76	11,20	1,01	14,41	48,0	36,7	37,4	29,0	25,3	45,3	19,2
660,45	4,62	1,78	2,01	2,02	14,83	1,01	19,82	46,3	36,7	37,7	26,7	26,3	41,2	19,3
1064,10	16,18	4,73	5,55	6,21	73,68	1,07	127,38	39,9	40,0	42,7	21,6	33,8	24,6	19,9
Mischungstyp: urban														
	Rückstreuverhältnis							Lidar-Verhältnis						
	urb	mar	län	k R	f Tr	pol	Wü	urb	mar	län	k R	f Tr	pol	Wü
266,02	1,09	1,00	1,01	1,02	1,02	1,00	1,02	206	336	244	248	472	279	512
277,51	1,11	1,00	1,01	1,02	1,02	1,00	1,02	193	311	229	231	451	260	502
283,60	1,12	1,00	1,01	1,03	1,02	1,00	1,02	187	299	221	222	440	250	497
294,67	1,15	1,01	1,02	1,03	1,03	1,00	1,03	177	277	208	208	419	233	487
354,70	1,33	1,01	1,04	1,07	1,07	1,00	1,06	155	263	179	169	381	207	474
375,42	1,42	1,02	1,05	1,09	1,09	1,00	1,07	150	262	172	158	372	200	471
386,65	1,47	1,02	1,06	1,11	1,11	1,00	1,08	147	261	169	153	368	196	470
407,52	1,58	1,02	1,07	1,13	1,14	1,00	1,11	143	259	163	144	359	189	467
532,05	2,56	1,07	1,22	1,38	1,48	1,00	1,33	122	241	137	104	316	150	453
580,08	3,14	1,11	1,30	1,53	1,72	1,01	1,48	115	230	130	94	299	137	447
607,33	3,51	1,13	1,36	1,63	1,89	1,01	1,58	112	223	127	89	291	131	443
660,45	4,35	1,18	1,49	1,84	2,31	1,01	1,83	107	213	123	82	279	120	438
1064,10	15,57	2,21	3,25	4,26	10,34	1,06	6,73	96	170	129	74	272	84	441

Tab. 2-11 Berechnete Rückstreu- und Lidar-Verhältnisse für die Mischungstypen „Wasser“ und „urban“ und jeweils 7 Größenverteilungen (urban, maritim, ländlich, kontinentale Reinluft, freie Troposphäre, polar, Wüste) und alle emittierten und Raman-Wellenlängen des Nd:Yag-Lasers.

Mischungstyp: ländlich														
	Rückstreuverhältnis							Lidar-Verhältnis						
	urb	mar	län	k R	f Tr	pol	Wü	urb	mar	län	k R	f Tr	pol	Wü
266,02	1,32	1,02	1,04	1,06	1,08	1,00	1,03	56	46	62	78	101	56	302
277,51	1,42	1,03	1,06	1,07	1,12	1,00	1,04	49	39	53	71	77	50	254
283,60	1,49	1,04	1,07	1,08	1,16	1,00	1,05	45	35	49	68	66	47	228
294,67	1,64	1,06	1,09	1,10	1,26	1,00	1,07	40	30	41	62	48	42	178
354,70	2,31	1,14	1,21	1,19	1,92	1,00	1,24	36	27	33	59	30	44	115
375,42	2,55	1,16	1,26	1,22	2,22	1,00	1,32	37	28	33	60	29	46	111
386,65	2,69	1,18	1,29	1,24	2,40	1,01	1,37	37	28	33	59	29	47	109
407,52	2,97	1,22	1,35	1,27	2,81	1,01	1,47	37	29	32	59	28	49	105
532,05	5,25	1,56	1,91	1,61	7,21	1,01	2,65	38	31	29	51	25	57	91
580,08	6,43	1,76	2,23	1,79	10,03	1,01	3,41	38	31	28	48	24	58	89
607,33	7,23	1,91	2,45	1,92	12,15	1,02	4,00	38	31	28	45	24	58	86
660,45	8,93	2,24	2,95	2,20	16,99	1,02	5,34	37	31	27	42	23	58	84
1064,10	27,29	6,33	8,46	5,58	80,55	1,06	24,14	40	36	34	35	32	53	109
Mischungstyp: maritim														
	Rückstreuverhältnis							Lidar-Verhältnis						
	urb	mar	län	k R	f Tr	pol	Wü	urb	mar	län	k R	f Tr	pol	Wü
266,02	1,61	1,07	1,10	1,11	1,59	1,00	1,82	27,9	15,5	24,7	40,4	13,5	27,4	9,8
277,51	1,70	1,08	1,12	1,12	1,71	1,00	1,97	28,4	16,0	24,8	41,4	13,5	28,6	10,0
283,60	1,75	1,09	1,13	1,13	1,78	1,00	2,07	28,7	16,2	24,8	41,8	13,5	29,2	10,0
294,67	1,85	1,10	1,14	1,14	1,92	1,00	2,23	29,1	16,7	24,8	42,5	13,5	30,3	10,2
354,70	2,45	1,19	1,27	1,24	3,04	1,00	3,60	31,3	19,3	24,7	43,4	13,6	35,7	10,7
375,42	2,68	1,23	1,33	1,28	3,56	1,01	4,28	32,2	20,3	24,8	42,9	13,8	37,5	10,8
386,65	2,81	1,25	1,36	1,31	3,88	1,01	4,72	32,6	20,8	24,8	42,4	13,9	38,3	10,7
407,52	3,09	1,29	1,43	1,36	4,56	1,01	5,56	33,1	21,5	24,6	41,4	14,0	39,5	10,9
532,05	5,62	1,76	2,11	1,84	11,74	1,01	13,06	32,6	22,6	22,4	33,2	14,2	41,1	12,4
580,08	6,85	2,01	2,48	2,12	16,04	1,02	18,08	32,4	23,0	22,2	30,1	14,5	40,2	12,5
607,33	7,59	2,17	2,70	2,30	18,82	1,02	21,31	32,4	23,2	22,2	28,4	14,7	39,4	12,7
660,45	9,34	2,56	3,24	2,72	25,57	1,03	29,26	31,9	23,2	22,1	25,7	15,1	37,5	12,9
1064,10	32,14	8,47	10,7	9,00	133,6	1,11	164,82	28,8	24,1	24,4	17,4	19,3	24,7	15,5

Tab. 2-12 Berechnete Rückstre- und Lidar-Verhältnisse für die Mischungstypen ländlich und maritim und jeweils 7 Größenverteilungen (urban, maritim, ländlich, kontinentale Reinluft, freie Troposphäre, polar, Wüste) und alle emittierten und Raman-Wellenlängen des Nd:Yag-Lasers.

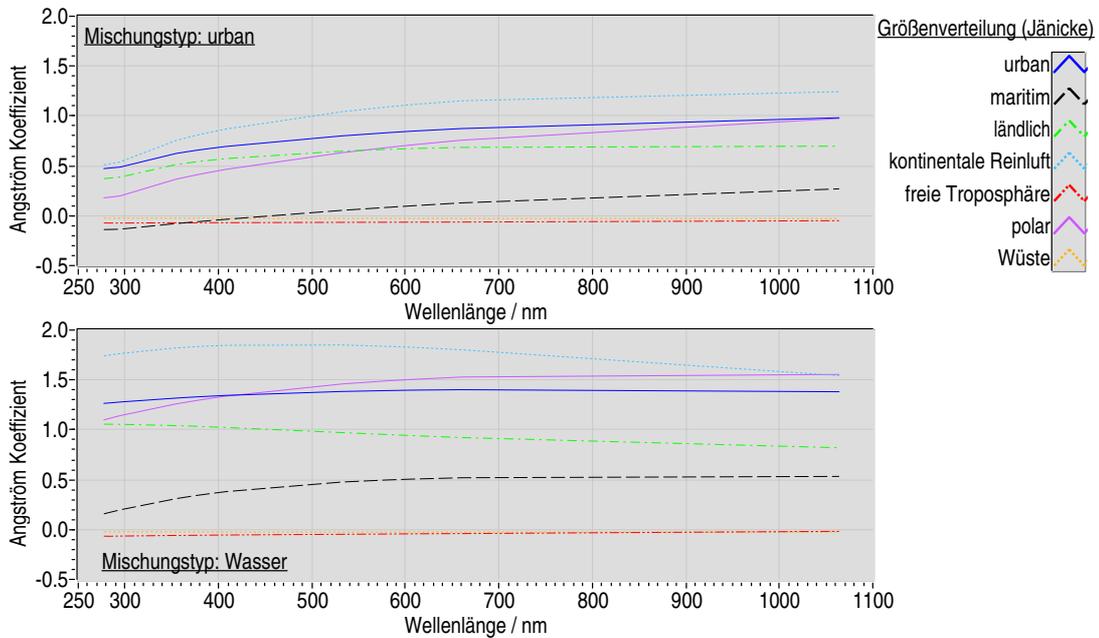


Abb. 2-18 Ångström-Koeffizient bezüglich 266 nm für verschiedene Aerosol-Größenverteilungen [Jänicke, 1993] und die Mischungstypen „urban“ und „Wasser“.

besonders lange. Aus Abbildung 2-17 ist zu ersehen, dass ab 40 μm die Summen für alle Größenverteilungen mit Ausnahme der des Wüsten-Aerosols konvergieren. Das bei Auswertungen wichtige Lidar-Verhältnis, der Quotient aus Extinktions- und Rückstreuoeffizient, konvergiert mit Ausnahme des polaren Aerosols bereits ab einem Partikeldurchmesser von 20 μm .

Wenn Schätzwerte für die Streuparameter des Aerosols gefragt sind, gibt es zwei Möglichkeiten, diese zu gewinnen. Sie können aus den wahrscheinlichsten chemischen und mikro-physikalischen Parametern berechnet werden [Völger, 1993, Völger et al., 1996, d'Almeida et al., 1991, Shettle und Fenn, 1979], so wie es vorwiegend auch für diese Arbeit praktiziert wurde. Oder es werden Messwerte einer Station mit einer langen, repräsentativen Messreihe in der entsprechenden Region und Höhe verwendet. Für die freie Troposphäre Europas liefern die Stationen auf den Alpengipfeln, z. B. dem Jungfrauoch [Nyeki et al., 1998, Weingartner et al., 1999], gute Vergleichswerte. Bei der Auswertung von Signalen elastisch rückgestreuter Laserpulse werden das Lidar-Verhältnis $\left(g(\lambda, r) = \frac{\alpha(\lambda, r)}{\beta(\lambda, r)}\right)$ und das Rückstreuverhältnis $\left(B(\lambda, r) = \frac{\beta_R(\lambda, r) + \beta_A(\lambda, r)}{\beta_R(\lambda, r)}\right)$ benötigt. Die simulierten Werte für sieben Größenverteilungen nach Jänicke [Jänicke, 1993], vier Mischungstypen nach Shettle und die für diese Arbeit relevanten Wellenlängen sind in den Tabellen 2-11 und 2-12 aufgelistet und können als Referenz für die mögliche Schwankungsbreite der Werte benutzt werden.

Wellenl.	Typ	urban	maritim	ländlich	kont. Rein.	freie Trop.	polar	Wüste
266,02 277,51	urban	0,47	-0,14	0,37	0,51	-0,07	0,18	-0,02
	ländlich	0,71	-0,19	0,60	0,87	-0,09	0,34	-0,03
	maritim	0,77	-0,12	0,67	1,01	-0,08	0,49	-0,02
	Wasser	1,27	0,16	1,06	1,74	-0,07	1,10	-0,02
266,02 283,60	urban	0,48	-0,14	0,38	0,52	-0,07	0,19	-0,03
	ländlich	0,73	-0,19	0,61	0,90	-0,09	0,35	-0,03
	maritim	0,78	-0,11	0,68	1,03	-0,08	0,50	-0,03
	Wasser	1,27	0,17	1,06	1,75	-0,07	1,11	-0,02
266,02 294,67	urban	0,49	-0,14	0,39	0,54	-0,07	0,20	-0,03
	ländlich	0,75	-0,18	0,63	0,93	-0,09	0,38	-0,03
	maritim	0,80	-0,10	0,69	1,06	-0,08	0,53	-0,02
	Wasser	1,28	0,20	1,05	1,76	-0,07	1,14	-0,02
354,70 375,42	urban	0,81	0,02	0,67	1,06	-0,07	0,62	-0,03
	ländlich	0,98	0,09	0,82	1,39	-0,07	0,84	-0,03
	maritim	1,12	0,15	0,93	1,60	-0,07	1,00	-0,03
	Wasser	1,39	0,49	1,00	1,90	-0,05	1,46	-0,03
354,70 386,65	urban	0,82	0,03	0,68	1,08	-0,07	0,64	-0,03
	ländlich	0,99	0,10	0,83	1,41	-0,07	0,86	-0,03
	maritim	1,14	0,17	0,94	1,62	-0,07	1,03	-0,03
	Wasser	1,39	0,50	1,00	1,90	-0,05	1,47	-0,03
354,70 407,52	urban	0,84	0,05	0,69	1,11	-0,07	0,67	-0,03
	ländlich	1,01	0,12	0,84	1,44	-0,07	0,89	-0,03
	maritim	1,15	0,19	0,94	1,64	-0,07	1,06	-0,03
	Wasser	1,40	0,52	0,98	1,90	-0,05	1,50	-0,03
532,05 580,08	urban	1,08	0,32	0,81	1,48	-0,06	1,10	-0,03
	ländlich	1,26	0,46	0,87	1,78	-0,06	1,38	-0,03
	maritim	1,39	0,55	0,93	1,94	-0,05	1,55	-0,03
	Wasser	1,47	0,66	0,80	1,73	-0,02	1,74	-0,03
532,05 607,33	urban	1,09	0,34	0,81	1,49	-0,06	1,12	-0,03
	ländlich	1,27	0,48	0,87	1,79	-0,06	1,40	-0,03
	maritim	1,43	0,58	0,94	1,98	-0,05	1,61	-0,03
	Wasser	1,46	0,66	0,78	1,70	-0,02	1,75	-0,03
532,05 660,45	urban	1,11	0,37	0,80	1,50	-0,05	1,16	-0,03
	ländlich	1,29	0,51	0,86	1,80	-0,05	1,45	-0,03
	maritim	1,43	0,60	0,91	1,96	-0,05	1,64	-0,03
	Wasser	1,46	0,66	0,76	1,65	-0,02	1,75	-0,03

Tab. 2-13 Ängström-Koeffizienten für die Sauerstoff-, Stickstoff- und Wasserdampf-Raman-Linien bezüglich der FHG, THG und SHG des Nd:Yag-Lasers für 7 Größenverteilungen [Jänicke, 1993] und 4 Mischungstypen [Shettle und Fenn, 1979].

Leider gibt es für die Schwächung des Lichts durch Aerosol-Streuung keine so eindeutige Funktion wie das Rayleigh-Gesetz ($\alpha_R(\lambda) \propto \lambda^{-4}$) im Fall der Moleküle. Es hat sich jedoch ebenfalls ein Potenzgesetz [Ångström, 1929] mit dem nach seinem Erfinder benannten Ångström-Exponenten \tilde{a} bewährt ($\alpha_A(\lambda) \propto \lambda^{-\tilde{a}}$):

$$\frac{\alpha(\lambda_1)}{\alpha(\lambda_2)} = \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)^{-\tilde{a}}, \text{ bzw. } \alpha(\lambda_1) = \left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1}\right)^{\tilde{a}} \cdot \alpha(\lambda_2) \quad \text{Gl. 2-49}$$

Je nach der in meinem Aerosol-Modell verwendeten Größenverteilung und Brechzahl ist mit Koeffizienten zwischen 2 und -0,5 zu rechnen, deren Wellenlängenabhängigkeit sehr moderat gegenüber der Abhängigkeit von der Größenverteilung ausfällt (siehe Abbildung 2-18). Tabelle 2-13 gibt einen Überblick über die mit dem Modell berechneten Werte, die als Referenz bei der Datenauswertung und Fehlerabschätzung, insbesondere bei Raman-Lidar-Messungen, dienen.

2.1.3 Lichttransmission durch die turbulente planetare Grenzschicht

Die Turbulenz in der planetaren Grenzschicht erzeugt deren typische Eigenschaften, die sie von der freien Troposphäre und allen anderen Höhenschichten unterscheidet. Das hat auch direkte Auswirkungen auf die Transmission des Lichts. Durch die turbulente Dynamik entsteht eine inhomogene Mischung. Es bilden sich Turbulenzzellen bzw. -strukturen mit einer Ausdehnung in der Größenordnung von 10^{-3} bis 10^3 m [Arya, 1988], die sich durch ihre Temperatur und ihre Inhaltsstoffe unterscheiden. Als optische Turbulenz wird die Brechzahlfluktuation aufgrund von Temperaturfluktuationen bezeichnet. Durch sie entstehen Fluktuationen der Strahlungsintensität, auch *Szintillation* genannt, und Phasenverschiebungen, die die Kohärenz des Laserlichts verringern. Durchquert ein Strahl die gleiche Stelle eines turbulenten Mediums mit statistisch abhängigen Inhomogenitäten zweimal, tritt eine Verstärkung des Signals auf. Diese Rückstreuverstärkung (EBS¹) wurde von Belenkii und Mironov [Banakh und Mironov, 1986] vorhergesagt. Es konnte auch gezeigt werden, dass das so verstärkte Signal entweder stärker oder schwächer fluktuiert, und dass die Kohärenzlänge größer oder geringer wird in Abhängigkeit von der Art der im Modell verwendeten Rückstreufäche [Andrews und Phillips, 1998].

Die klassische Theorie zur Beschreibung optischer Turbulenz ist die Kolmogorov-Theorie. Es ist allgemein anerkannt, dass die optische Fluktuation ihre Ursache nur in den Tempera-

1. Enhanced Backscatter

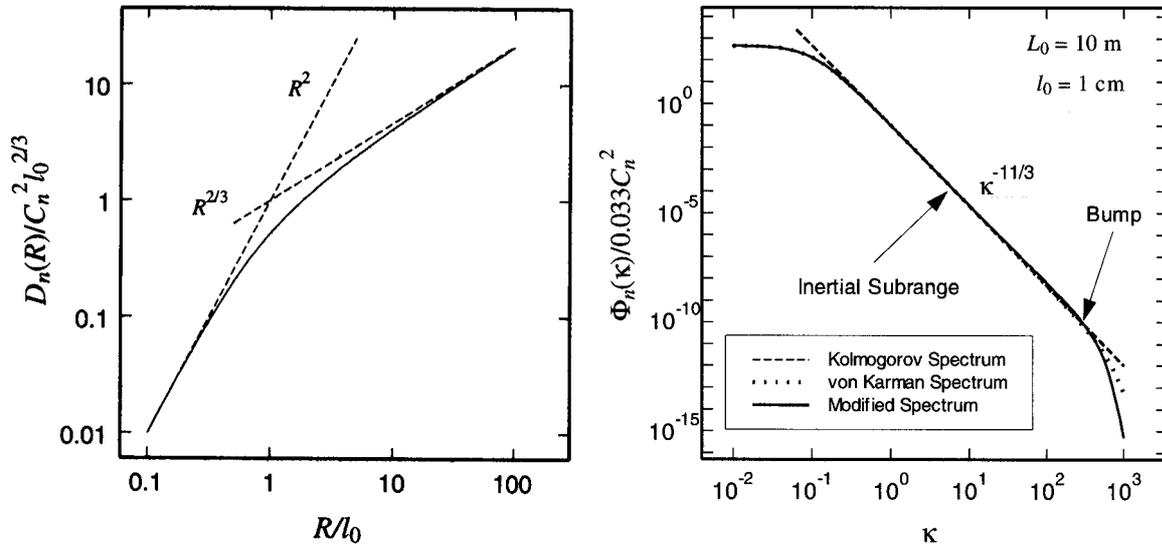


Abb. 2-19 Strukturfunktion $D_n(R)$ entsprechend der Kolmogorov-Theorie und verschiedene Leistungsdichtespektren zur Beschreibung der optischen Turbulenz [Andrews et al., 2001].

turschwankungen hat, und Feuchtigkeits- und Druckschwankungen vernachlässigt werden können. Weiterhin geht man davon aus, dass die Temperaturfluktuationen die gleichen räumlichen Leistungsspektren haben wie die Geschwindigkeitsfluktuationen. Ohne an dieser Stelle weiter auf die Herleitungen einzugehen, möchte ich die daraus resultierende Strukturfunktion $D_n(R)$ des Brechungsindex angeben [Banakh und Mironov, 1986]:

$$D_n(R) = \begin{cases} C_n^2 \cdot R^{2/3}, & l_0 \ll R \ll L_0 \\ C_n^2 \cdot l_0^{-4/3} \cdot R^2, & R \ll l_0 \end{cases} \quad \text{Gl. 2-50}$$

C_n bezeichnet den Strukturparameter bezüglich der Brechzahl, L_0 und l_0 die innere bzw. äußere Skalenlänge für Turbulenzelemente. R ist der Abstand zwischen zwei Punkten im Raum. Strukturfunktionen sind ein Maß für die Korrelation. Solange der Punktabstand nicht größer und nicht kleiner als die Turbulenzelemente wird, gilt das berühmte Zwei-Drittel-Gesetz auch für die optische Turbulenz. Das daraus resultierende Leistungsdichtespektrum wird Kolmogorov-Spektrum $\Phi_n(\kappa)$ genannt [Andrews und Phillips, 1998]:

$$\Phi_n(\kappa) = 0,033 \cdot C_n^2 \cdot \kappa^{-11/3}, \quad \frac{1}{L_0} \ll \kappa \ll \frac{1}{l_0}. \quad \text{Gl. 2-51}$$

Dabei ist κ die skalare Wellenzahl. Besonders weil am Ende der Kolmogorov-Theorie diese übersichtliche Formel für die Strukturkonstante des Brechungsindex steht, hat sie weite Verbreitung in Modellen und Simulationen gefunden. Anwendungen in der Astronomie, der

optischen Telekommunikation und besonders beim Militär [Stribling, 1994] haben jedoch gezeigt, dass sie die Struktur der Turbulenz nicht immer genau genug wiedergibt. Das gibt Anlass zu immer neuen Vorschlägen, wie dem Tatarski- oder dem Kármán-Spektrum. Die Laser-Fernerkundung hat mit Sicherheit einen großen Anteil an der aktuellen Forschung, die Ergebnisse sind aber schwer zugänglich, da es vor allem um militärische und geheimdienstliche Anwendungen geht.

Da dieser Aspekt der Laser-Fernerkundungsmessungen in der planetaren Grenzschicht nicht das Hauptthema dieser Arbeit ist, möchte ich die Betrachtungen an dieser Stelle nicht vertiefen, obwohl ich hier das interessanteste Feld für zukünftige Forschung sehe, zumal im Rahmen der Arbeit die Geräte entwickelt wurden, mit denen Signale mit der entsprechenden Präzision und Geschwindigkeit aufgezeichnet werden können. Der Ausgangspunkt für mich war die Suche nach Erklärungen für unklare Messsignal-Fluktuationen.

2.2 Laser-Fernerkundungsmethoden

Laser-Fernerkundungsverfahren werden oft mit dem Akronym Lidar („Light Detection and Ranging“) betitelt. Damit wird zum Ausdruck gebracht, dass mittels Laufzeitmessung vom Schuss bis zum Empfang der verwendeten kurzen Lichtpulse neben dem Messwert auch gleich die Entfernung zwischen Messpunkt und Gerät bestimmt wird. Auf diese Weise ist es möglich, einen weiten Entfernungsbereich mit einem Laserschuss orts aufgelöst zu spektroskopieren. Die Herausforderung besteht dann darin, die erwünschten Messwerte aus dem Rückstreusignal herauszufiltern. Das ist das Thema dieses Abschnitts.

Die technische Machbarkeit vorausgesetzt, könnte jede optische Spektroskopiemethode auch zur Fernerkundung benutzt werden. Um systematische Fehler durch die Überlagerung verschiedener Wechselwirkungen des Laserpulses mit der Atmosphäre zu vermeiden, muss jedoch gut abgewogen werden, welche Methoden sinnvoll sind oder auch kombiniert werden müssen. In den folgenden Abschnitten liegt der Schwerpunkt auf Verfahren, die im Rahmen dieser Arbeit auch experimentell angewendet wurden. Ausnahmen sind das hochauflösende- und das Doppler-Lidar, die wegen ihrer besonderen Bedeutung für die Erforschung der planetaren Grenzschicht Erwähnung finden.

2.2.1 Numerischer Umgang mit Rückstreusignalen

Gemessene Rückstreusignale sind immer mit einem Rauschanteil überlagert. Das Signal nimmt quadratisch und exponentiell mit der Entfernung ab und ist statistischer Natur. Deshalb nimmt mit größer werdender Entfernung das Signalzurauschverhältnis stark ab. Außerdem überlagern phasenstarr zum Messsignal auftretende elektromagnetische Störungen, wie sie typischerweise bei Schaltvorgängen hoher Ströme in Laser-Netzteilen entstehen, die Messung. Um bei numerischen Operationen mit den diskreten Signalen ein hinreichend stabiles Ergebnis zu erhalten, müssen diese räumlich oder zeitlich gemittelt, das Rauschen durch Frequenzfilter unterdrückt oder dem Problem angepasste Algorithmen angewendet werden. Über das Mittel der Wahl entscheidet in erster Linie, wie gut vorhandene Strukturen nach seiner Anwendung erhalten bleiben, und ob die Auswirkungen auch physikalisch nachvollziehbar sind. Wenn z. B. die Signale von 100 Laserschüssen gemittelt werden, von denen 10 durch eine Wolke geblockt wurden, so ergibt die Auswertung eines mittleren Rückstreuquerschnitts keinen Sinn mehr. Die leichte Erhöhung des gemittelten Signals bei der Wolke würde fälschlicherweise als Aerosol-Schicht interpretiert werden. Oft sind Messfehler auf ein solches Mittelungsproblem zurückzuführen. Deshalb ist eine Aufnahme von Signalen mit der bestmöglichen zeitlichen Auflösung erstrebenswert, damit vor einer Mittlung über die aktuelle Variabilität der Atmosphäre und das weitere Vorgehen entschieden werden kann. Die Anwendung von digitalen Frequenzfiltern [Wenzel, 2000] ist sehr effektiv, aber dann gefährlich, wenn die Rauschquellen nicht konstant oder gar nicht bekannt sind. In modernen Programmiersprachen wie Labview [Jamal und Pichlik, 1999, NI, 1998] und Matlab [Misiti et al., 2000] stehen umfangreiche Bibliotheken für die problemlose Implementierung zur Verfügung. Da die physikalische Interpretation meist schwer fällt, können die Filter nur mit den infrage kommenden Parametern getestet und dabei die Variation der Ergebnisse als Indikator für ihre Tauglichkeit gewertet werden. Dieses Vorgehen ist meist zeitaufwendig und unzuverlässig und deshalb unbefriedigend. In besonderen Fällen, wenn es eine Überlagerung des Messsignals mit Signalen fester Frequenzen gibt, bringt es jedoch gute Resultate.

Zur Glättung des Schrotrauschens verwende ich einen Algorithmus, der nur Spitzen von einem Punkt bzw. wenigen Punkten Breite und einer Höhe relativ zur Standardabweichung im Bereich ohne Signal erkennt, und diesen Messpunkten dann den Mittelwert der sie umgebenden Punkte zuweist. Dadurch können natürlich auch sehr schmale Strukturen

gelöscht werden, was aber erfahrungsgemäß selten passiert und von geringer Bedeutung ist, da der Signal-zu-Rausch-Abstand in solchen Fällen ohnehin nicht ausgereicht hätte, sie zu erkennen (siehe Beispiel Abbildung 2-20). Die Vorteile der Methode überwiegen eindeutig. Der Signal-zu-Rausch-Abstand wird deutlich größer, Signalstrukturen verändern ihre Breite nicht, die Intensität schmaler Strukturen wird nur unwesentlich, im Rahmen der Rauschgrenze, verringert, und es ist ausgeschlossen, dass neue Frequenzen im Signal entstehen (Gefahr bei Frequenzfiltern). In Abbildung 2-20 ist ein Vertikalprofil des Aerosol-Rückstreuoeffizienten bei 532 nm mit zwei sehr dünnen Aerosol-Schichten bei 7,5 km und einer Wolke am Ende des dargestellten Höhenbereichs zu sehen.

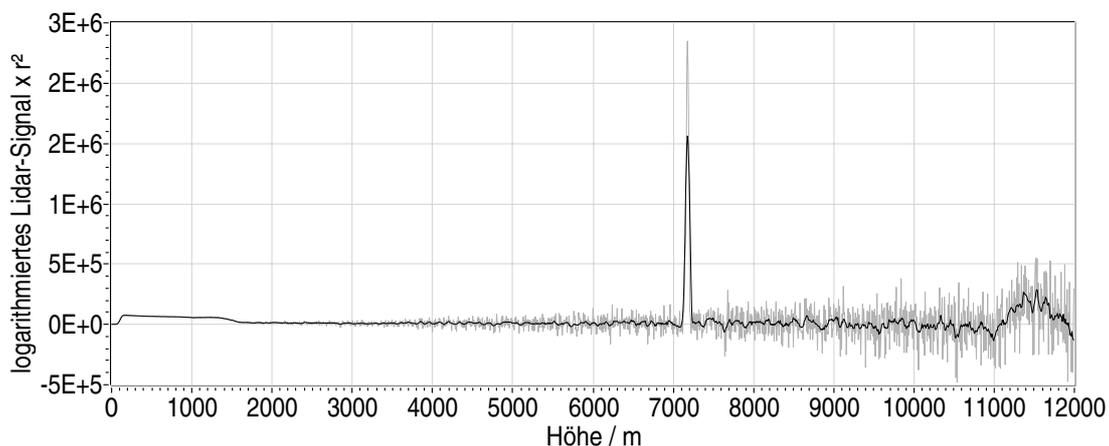


Abb. 2-20 Rückstreusignal bei 532 nm am 25. 8. 1999 um 17:40 Uhr. Das Original ist grau. Die Glättung des schwarzen Signals wurde erreicht, indem alle Messpunkte, die sich um mehr als ein Zehntel der Standardabweichung des Mittelwerts der sie umgebenden 4 Punkte unterscheiden, auf den Mittelwert gesetzt wurden.

Besser ist es natürlich, dem Problem angepasste numerische Algorithmen zu verwenden, die eine prophylaktische Glättung des Signals unnötig machen. Am häufigsten notwendig und gleichzeitig am schwierigsten ist die Bildung der Ableitung von diskreten Messsignalen mit einem Rauschanteil. Sie kann durch die Berechnung der Steigung a einer an mehrere Punkte des Signals angepassten Geraden $y(x) = a \cdot x + b$ gelöst werden:

$$\begin{aligned}
 a &= \frac{N \cdot \sum_{i=1}^N y_i \cdot x_i - \sum_{i=1}^N x_i \cdot \sum_{i=1}^N y_i}{N \cdot \sum_{i=1}^N x_i^2 - \left(\sum_{i=1}^N x_i \right)^2}, \\
 b &= \frac{\sum_{i=1}^N y_i \cdot \sum_{i=1}^N x_i^2 - \sum_{i=1}^N x_i \cdot \sum_{i=1}^N x_i \cdot y_i}{N \cdot \sum_{i=1}^N x_i^2 - \left(\sum_{i=1}^N x_i \right)^2}.
 \end{aligned}
 \tag{Gl. 2-52}$$

Mit dieser Methode erhält man auch den statistischen Fehler durch die Bestimmung der zugehörigen Standardabweichung σ_a der Steigung:

$$\begin{aligned}
 \sigma_a &= \sigma_y \cdot \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N x_i^2}{N \cdot \sum_{i=1}^N x_i^2 - \left(\sum_{i=1}^N x_i \right)^2}}, \\
 \sigma_b &= \sigma_y \cdot \sqrt{\frac{N}{N \cdot \sum_{i=1}^N x_i^2 - \left(\sum_{i=1}^N x_i \right)^2}}.
 \end{aligned}
 \tag{Gl. 2-53}$$

Korrekterweise muss vorausgesetzt werden, dass die Standardabweichungen der Einzelmessungen σ_y für alle Messwerte $y_i(x_i)$ identisch sind. Die Länge der verwendeten Geraden kann auch während der Ableitung dem Signal-zu-Rausch-Verhältnis angepasst werden, um nicht unnötig Auflösung zu verschenken.

Die modernen Verfahren der zeitaufgelösten Frequenzanalyse (JTFA¹) haben der Thematik zum Umbruch verholfen [Wenzel, 1998]. Unter ihnen hat sich insbesondere die Wavelet-Transformation bewährt [Graps, 1995]. Diese sehr variable Gruppe von kurzen Funktionen wird herangezogen, um genauso wie in der Fourier-Transformation Korrelationskoeffizienten zwischen ihnen und dem Messsignal zu berechnen. Sie sind aber im Gegensatz zu sinusartigen Funktionen endlich. Für die Berechnung der Korrelation mit dem Messsignal (Wavelet-Transformation) werden sie entlang der x-Achse geschoben und gleichzeitig gestaucht und gestreckt. Mit der diskreten Wavelet-Transformation (DWT²), für die 1989 Mallat [Mallat, 1989a, Mallat, 1989b] einen schnellen Algorithmus vorgeschlagen hat, lassen sich Signale in ihre sogenannte Approximation (Tiefpass) und Details (Hochpass) zerlegen, wobei sich das einmal ausgesuchte Wavelet selbst durch Stauchen und

1. Joint Time-Frequency Analysis
2. Discrete Wavelet Transformation

Strecken anpasst. Die Transformation ist bei Beachtung bestimmter Bedingungen [Misiti et al., 2000] vollständig reversibel und verwandt zu der in der Turbulenz-Theorie üblichen Aufspaltung eines Signals in Mittelwert und Fluktuationfeld [Argoul et al., 1989]. Die Wavelet-Transformation kann sowohl als adaptiver Rauschfilter als auch zur Analyse von Signalen verwendet werden. Für die Filterung werden die Details und die Approximation berechnet. Hohe Werte der Detail-Koeffizienten signalisieren eine gute Korrelation des entsprechenden Wavelet-Parameters mit einer Rauschstruktur. Alle Koeffizienten, die einen gesetzten Wert übersteigen, werden nun gelöscht und danach wird zurücktransformiert. Das Rauschen ist dann verschwunden, während die Signalstrukturen noch da sind. Die Prozedur kann auch mehrmals hintereinander ausgeführt werden, indem die Approximation immer wieder zerlegt wird und die Details gefiltert werden.

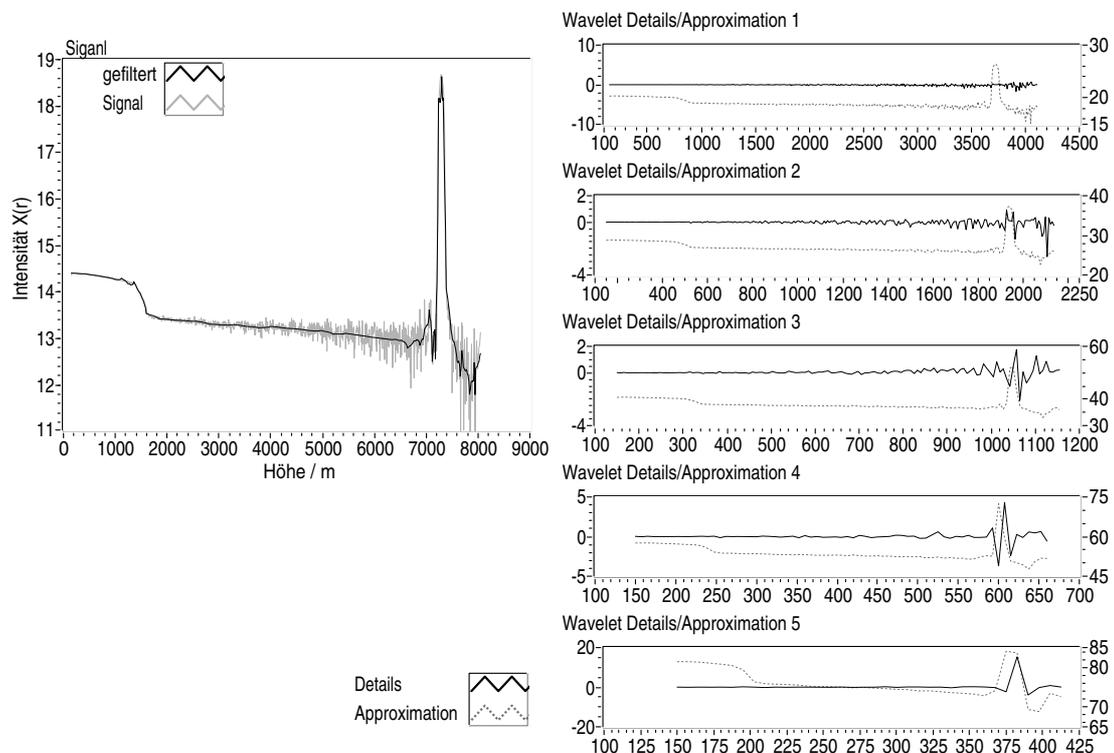


Abb. 2-21 Fünfstufiger Wavelet-Filter am Beispiel eines Rückstreusignals @ 532 nm.

2.2.2 Elastische Rückstreusignale

Das Licht eines Laserpulses wird auf dem Weg durch die Atmosphäre vor allem an Molekülen, Aerosol und größeren Partikeln gestreut. Ein Teil wird auch absorbiert. Wie in den vorangegangenen Abschnitten beschrieben, wird ein Bruchteil genau in die entgegengesetzte Richtung, also zum Laser, zurückgestreut. Dadurch entsteht das Messsignal, dessen Intensi-

tät deshalb vom Rückstreuoeffizienten β , der hauptsächlich von der Rayleigh- (β_R) und der Aerosol-Streuung (β_A) herrührt, bestimmt wird. Da zunächst ausschließlich Rückstreuung betrachtet wird, muss auch ausgeschlossen sein, dass Licht, welches einmal aus dem Messpfad herausgestreut wurde, durch Mehrfachstreuung doch noch bis zum Detektor gelangt. Diese Bedingung ist bei geeignetem Design der Empfangsoptik [Tatarov et al., 2000] außer bei Messungen im Nebel und in Wolken erfüllt [Bruscaglioni et al., 1998, Allen und Platt, 1977]. Das Licht kann sowohl auf dem Weg bis zum Messvolumen (von wo es rückgestreut wird) als auch auf dem Rückweg absorbiert oder in eine Richtung gestreut werden, wo es nicht nachgewiesen wird. Die Schwächung, die das Signal dadurch erfährt, wird durch das Lambert-Beer-Gesetz (Gleichung 2-2) beschrieben. Der darin enthaltene Extinktionskoeffizient α setzt sich hauptsächlich aus jeweils einem Streu- und einem Absorptionsanteil für Moleküle und Aerosol zusammen. Für das Aerosol können beide Summanden zum Aerosol-Extinktionskoeffizienten α_A zusammengefasst werden, da keine schmalen Absorptionsbanden zu erwarten sind. Die molekularen Anteile müssen einzeln als Rayleigh-Extinktionskoeffizient α_R und Absorptionskoeffizient α_{Abs} betrachtet werden. Jeder dieser drei Koeffizienten kann als Produkt aus der Anzahl der beteiligten Partikel N_A bzw. Moleküle N_M und dem jeweiligen Streu- (σ_S) bzw. Absorptionsquerschnitt (σ_A) geschrieben werden. Die vollständige Formel für die Intensität $I(r)$ eines Rückstreusignals als Funktion der Entfernung des Laserpulses enthält neben den Rückstreu- und Extinktionskoeffizienten noch einige Parameter des Lasers und der Empfangsoptik, die hier in der Konstante C zusammengefasst sind und in Kapitel 3 näher betrachtet werden [Measures, 1984].

$$I(r) = \frac{C}{r^2} \cdot [\beta_R(r) + \beta_A(r)] \cdot e^{-2 \int_0^r [\alpha_R(r') + \alpha_{Abs}(r') + \alpha_A(r')] dr'}$$

$$C = I_0 \cdot \frac{c \cdot t_L}{2} \cdot \eta_r(r) \cdot \eta_\lambda(\lambda) \cdot A_T. \quad \text{Gl. 2-54}$$

Die Sichtfeldfunktion $\eta_r(r)$ wird ab einer konstruktionsbedingten Entfernung unabhängig von r , und die spektrale Empfangseffizienz kann zunächst durch die Beschränkung der Formel auf nur eine Laserlinie konstant gehalten werden. Zusätzlich kann die Transmission der Empfangsoptik auch von der Polarisation oder dem Polarisationsgrad abhängen. Weitere Bestandteile der Konstanten sind die Laserpuls-Länge t_L , die Pulsintensität I_0 , die Lichtgeschwindigkeit c und der Empfangsteleskopdurchmesser A_T . Es muss davon ausgegangen werden, dass die Wechselwirkung einzelner Streuer unabhängig voneinander ist,

und sich die optischen Eigenschaften der Atmosphäre in der Zeit zwischen Aussendung und Empfang nicht ändern. Das reale Signal enthält ausserdem die Intensität des Hintergrundlichts und den durch Mehrfachstreuung zum Detektor gelangten Photonen.

Wie ist es nun möglich, die fünf Variablen in Gleichung 2-54 aus einem einzigen Messsignal zu extrahieren? Dafür müssen bekannte Beziehungen zwischen ihnen existieren, oder die Messung muss von vornherein so durchgeführt werden, dass einige Variablen verschwinden. Welche Möglichkeiten bestehen dafür, wenn ausschließlich elastische Rückstreusignale zur Verfügung stehen?

- *Rayleigh-Streuung*: Der Rayleigh-Extinktions- und Rückstreukoeffizient unterscheiden sich durch einen festen Faktor voneinander: $\beta_R(\lambda) = \frac{3}{8\pi} \alpha_R(\lambda)$.
- *Molekulare Absorption*: Für Aerosol-Messungen kann eine Laserlinie gewählt werden, bei der keine bedeutende molekulare Absorption auftritt, α_{Abs} also aus dem Exponenten von Gleichung 2-54 verschwindet. Wenn Spurengaskonzentrationen durch Absorption bestimmt werden sollen, ist die Messung mindestens eines Vergleichssignals bei einer anderen Wellenlänge notwendig. Dieses Verfahren ist unter den Akronymen DIAL¹ und DAS²-Lidar bekannt. Zusätzlich muss hier die Wellenlängenabhängigkeit der übrigen Streuparameter bekannt sein, was im Fall des Aerosols Modellannahmen oder zusätzliche Messungen erfordert.
- *Aerosol-Streuung*: Es gibt keine allgemeingültige Beziehung zwischen Extinktion und Rückstreuung, weshalb eine definiert werden muss, damit Gleichung 2-54 auflösbar wird. Da diese unbekannte Funktion so große Bedeutung für die Messmethode hat, wird sie als Lidar-Verhältnis $g(r)$ bezeichnet:

$$g(r) = \frac{\alpha_A(r)}{\beta_A(r)} = \frac{\alpha_A(r)}{\beta_R(r) \cdot (B(r) - 1)} \quad \text{Gl. 2-55}$$

- *Rayleigh- und Aerosol-Streuung*: Da auch hier keine allgemeingültige Beziehung für die Streuparameter bekannt ist, wird zunächst einmal das Rückstreuverhältnis $B(r)$ definiert:

$$B(r) = \frac{\beta_A(r) + \beta_R(r)}{\beta_R(r)} = \frac{8\pi \cdot \alpha_A(r)}{3 \cdot g(r) \cdot \alpha_R(r)} + 1 \quad \text{Gl. 2-56}$$

Die Ersetzung der unbekannt Variablen der Lidargleichung durch das Lidar- und das Rückstreuverhältnis reduziert die Unübersichtlichkeit. Das Lidarverhältnis ist wesentlich

1. Differential Absorption Lidar

2. Differentielle Absorption

schwächer vom Aerosoltyp und der Wellenlänge abhängig. Um das Rückstreuverhältnis aus einem elastischen Signal zu berechnen, muss zunächst ein Lidarverhältnis angenommen werden. Dafür werden Modelle der Aerosol-Streuung oder vorhandene Mess- und Erfahrungswerte benutzt.

Eine sehr elegante Methode beruht darauf, die unterschiedliche Mobilität von Molekülen und Partikeln zu nutzen [Fiocco und DeWolf, 1968]. Partikelbewegung verbreitert die Laserlinie durch den Doppler-Effekt nur unbedeutend, im Gegensatz zu den viel leichteren Molekülen. Mit einem entsprechend schmalbandigen Laser und einem Filter können zwei Signale - das der schmalen Aerosol-Linie und das durch die Molekülbewegung verbreiterte - aufgezeichnet werden [Piironen, 1994]. Mit einem „hochauflösenden Lidar“ (HSRL¹) können das Lidar-Verhältnis und das Rückstreuverhältnis direkt gemessen werden.

In den folgenden Berechnungen wird die linearisierte Lidar-Gleichung ($X(r)$) benutzt. Sie wird durch Multiplikation des Signals mit dem Quadrat der Entfernung (r^2) und anschließendem Logarithmieren gebildet. Intensitätsunterschiede, wie sie z. B. in Aerosol-Schichten auftreten, können direkt verglichen werden.

$$X(r) = \ln \left[\frac{I(r) \cdot r^2}{C} \right] = \ln[\beta_R(r) + \beta_A(r)] - 2 \int_0^r [\alpha_R(r') + \alpha_{Abs}(r') + \alpha_A(r')] dr' \quad \text{Gl. 2-57}$$

2.2.2.1 Aerosol

Anfang der 80er Jahre ging die Diskussion über Inversions-Algorithmen der Lidar-Gleichung zur Berechnung der Aerosol-Streuparameter mit einem Paper von James D. Klett [Klett, 1981] in eine neue Runde. Er zeigte, dass die Lösung, die eigentlich bereits von ähnlichen Problemen beim Radar bekannt war, stabiler ist, wenn die nötigen Randbedingungen statt am Signal-Anfang am -Ende festgelegt werden. Zunächst beschränkte er sich jedoch auf die Betrachtung einer einzigen Sorte von Streuern, was bei extrem starker Aerosol-Belastung auch möglich schien. Danach wurde die Lösung auf gleichzeitige Aerosol- und Rayleigh-Streuung erweitert [Klett, 1981, Fernald, 1984, Klett, 1983, Klett, 1985, Klett, 1986]. Obwohl sich die Lösung seitdem natürlich nicht grundlegend geändert hat, gab es zahlreiche Verfeinerungen, insbesondere was die numerische Behandlung betrifft.

1. High Spectral Resolution Lidar

Sollen mit der Messung ausschließlich Aerosol-Streuparameter bestimmt werden, lässt sich eine Laserlinie finden, bei der die Absorption durch Moleküle in der Atmosphäre vernachlässigbar gering ist. Dann kann Gleichung 2-57 folgendermaßen geschrieben werden:

$$X(r) = \ln B(r) + \ln \beta_R(r) - 2 \int_0^r [g(r') \cdot \beta_R(r') \cdot (B(r') - 1) + \alpha_R(r')] dr'. \quad \text{Gl. 2-58}$$

Die Unbekannten sind das Lidar-Verhältnis $g(r)$ und das Rückstreuverhältnis $B(r)$. Nun wird ein Vergleichssignal aus den bekannten Rayleigh-Streuparametern α_R und β_R und einem postulierten Lidar-Verhältnis berechnet [Mielke et al., 1992]:

$$F(r) = X(r) - \ln \beta_R(r) - 2 \int_0^r (g(r') \cdot \beta_R(r') - \alpha_R(r')) dr'. \quad \text{Gl. 2-59}$$

Bei der numerischen Lösung des Problems dient die Konstante C_x als Parameter zur Anpassung des Messsignals an die berechnete Kurve. Wird nun $X(r)$ gemäß Gleichung 2-57 eingesetzt, ergibt sich ein transformierter Ausdruck, der ebenfalls das Lidar-Signal beschreibt:

$$F(r) = \ln B(r) - 2 \int_0^r B(r') \cdot g(r') \cdot \beta_R(r') dr'. \quad \text{Gl. 2-60}$$

Jetzt soll $B(r)$ bestimmt werden. Wenn die Gleichung nach r abgeleitet wird,

$$\frac{d}{dr} F(r) = \frac{1}{B(r)} \cdot \frac{d}{dr} B(r) - 2 \cdot B(r) \cdot g(r) \cdot \beta_R(r), \quad \text{Gl. 2-61}$$

tritt zutage, dass ihre Struktur der einer Bernoulli- bzw. homogenen Ricatti-Gleichung [Bronstein und Semendjajew, 1998] entspricht. Die Lösung dieser Art von Differentialgleichungen ist seit über 300 Jahren bekannt:

$$B(r) = \frac{e^{F(r)}}{-2 \int [e^{F(r)} \cdot g(r) \cdot \beta_R(r)] dr + C_F}. \quad \text{Gl. 2-62}$$

Nun muss noch die Integrationskonstante C_F durch die Wahl geeigneter Randbedingungen bestimmt werden. Bei Grenzschichtmessungen ist es wesentlich einfacher, Modellannahmen über das Rückstreuverhältnis in der freien Troposphäre zu machen als für die verschmutzte planetare Grenzschicht. Nun wird also für ein geeignetes Intervall um r_0 ein Rückstreuverhältnis $B(r_0)$ festgelegt. Das kann für die freie Troposphäre entweder durch ein Aerosol-Modell [d'Almeida et al., 1991, Shettle und Fenn, 1976, Shettle und Fenn, 1979], durch Erfahrungswerte aus Langzeitmessungen von Reinluftstationen [Nyeki et al., 1998, Weingartner et al., 1999] oder durch die Berechnung aus dem Signal selbst erfolgen. Dazu muss ein Bereich zwischen r_1 und r_2 gefunden werden, in dem das Rückstreuverhältnis kon-

stant bleibt, was meist oberhalb der planetaren Grenzschicht, in der freien Troposphäre, möglich ist. Wird nun der Anstieg von $X(r)$ in Gleichung 2-58 berechnet,

$$\frac{d}{dr}X(r) = \frac{1}{\beta_R(r)} \frac{d}{dr}\beta_R(r) - 2(\alpha_A(r) + \alpha_R(r)), \quad \text{Gl. 2-63}$$

kann daraus $\alpha(r)$ innerhalb des Intervalls $[r_1, r_2]$ bestimmt werden:

$$\alpha_A(r) = -\frac{1}{2} \left(\frac{d}{dr}X(r) - \frac{1}{\beta_R(r)} \frac{d}{dr}\beta_R(r) \right) - \alpha_R(r). \quad \text{Gl. 2-64}$$

Diese sogenannte Slope-Methode zu Berechnung der Aerosol-Extinktion ist innerhalb der planetaren Grenzschicht nicht anwendbar, da hier wegen der unübersichtlichen Aerosol-Mischung weder räumlich noch zeitlich ein konstantes Rückstreuverhältnis zu erwarten ist. Auch in der freien Troposphäre muss vor der Verwendung der Methode unbedingt geprüft werden, ob im ausgewählten Intervall eine Aerosol-Schicht ist. Das lässt sich am Signal direkt erkennen. Das Rückstreuverhältnis wird dann nach Gleichung 2-56 berechnet:

$$B([r_1, r_2]) = \frac{\alpha_A([r_1, r_2])}{\beta_R([r_1, r_2]) \cdot g([r_1, r_2])} + 1. \quad \text{Gl. 2-65}$$

Damit die Bedingung $B(r_0) = B(0) \cdot e^{F(r_0)}$ erfüllt wird, muss in Gleichung 2-61 zwischen r_0 und r integriert werden:

$$B(r) = \frac{e^{F(r)}}{\frac{e^{F(r_0)}}{B(r_0)} - 2 \int_{r_0}^r [e^{F(r)} \cdot g(r) \cdot \beta_R(r)] dr}. \quad \text{Gl. 2-66}$$

Die Lösung enthält die Rayleigh-Extinktion und den Rückstreukoeffizienten, für deren Bestimmung die Dichte der Atmosphäre als Funktion der Höhe nötig ist. Wenn diese Größen nicht als Messwerte, z. B. aus Radiosondenaufstiegen, zur Verfügung stehen, wird eine Standard-Atmosphäre (siehe Abbildung 1-4) mit eventueller Anpassung an Bodenwerte und Tropopausenhöhe angewendet. Für das Lidar-Verhältnis muss zunächst eine Annahme gemacht werden, wobei ein konstantes Profil oder verschiedene Aerosol-Modelle innerhalb voneinander unterscheidbarer Schichten vorgegeben werden können. Nachdem eine erste Lösung berechnet wurde, wird daraus ein neues Profil des Lidar-Verhältnisses abgeleitet, um iterativ so lange neue Lösungen zu berechnen, bis die Werte innerhalb gesetzter Schranken konstant bleiben.

Die benötigte Funktion $e^{F(r)}$ wird direkt aus dem mit der Konstante C (siehe Gleichung 2-54) angepassten Signal $I(r)$, den Rayleigh-Streuparametern und dem Lidar-Verhältnis berechnet:

$$e^{F(r)} = \frac{I(r) \cdot r^2}{C \cdot \beta_R(r)} \cdot e^{-2 \int_0^r [g(r') \cdot \beta_R(r') - \alpha_R(r')] dr'} \quad \text{Gl. 2-67}$$

Das Problem, zwei Unbekannte aus einem Messsignal zu berechnen, wird also gelöst, indem das Lidar-Verhältnis zunächst als Erfahrungswert vorgegeben wird und dann bis zur Stabilität iterativ neue Lösungen berechnet werden.

2.2.2.2 Depolarisation

Wenn das ausgestrahlte Laserlicht polarisiert ist, kann dessen Depolarisation bei der Transmission durch die Atmosphäre Aufschluss über die Gestalt der Streuer in der Atmosphäre geben [Pal und Carswell, 1973].

Die Depolarisation durch Luftmoleküle (δ_R) entsteht hauptsächlich durch die Rotations-Raman- und zu einem geringeren Teil auch durch elastische Streuung (siehe Tabelle 2-10). Das bedeutet, dass sie von der Bandbreite des verwendeten optischen Eingangsfilters abhängt. Je nachdem, wie viele Rotationslinien innerhalb des Bandpasses liegen, kann die Depolarisation Werte von unter 1 % für schmale Filter (schmäler als 0,2 nm) und bis zu 4,4 % für breite Filter (ca. 2 nm) annehmen. Berechnete Werte für die verwendeten Wellenlängen können Tabelle 2-10 entnommen werden. Für ein und dieselbe Empfangsoptik und Wellenlänge ist die molekulare Depolarisation durch atmosphärische Streuung unabhängig von äußeren Parametern. Bei Vergleichen der Daten verschiedener Lidar-Geräte sollte dieser Umstand jedoch unbedingt beachtet werden.

Als hauptsächliche Ursachen für die Depolarisation elastischer Rückstreusignale gelten Streuprozesse an nichtsphärischen Aerosol-Partikeln (δ_A) und Mehrfachstreuung (δ_M) [Bruscaglioni et al., 1998]. Die Anzahl detektierter Mehrfachstreuereignisse kann durch ein schmales Sichtfeld des Empfangsteleskops auf eine unbedeutende Anzahl minimiert werden [Tatarov et al., 2000]. Ausnahmen, wo das nicht gelingen wird, sind dichter Nebel oder Wolkenmessungen [Allen und Platt, 1977]. Hier wird sogar die Messung der Depolarisation als Funktion des Durchmessers der Eintrittsblende der Empfangsoptik (die dem Sichtfeld entspricht) zur Bestimmung der Partikeldichte verwendet [Sassen, 1991]. Die Mie-Theorie sagt für die Streuung an sphärischen Aerosol-Partikeln keine Depolarisation voraus [Bey-

erle, 2000, Gobbi, 1998]. Wenn die Depolarisation die entsprechend der Moleküstreuung und der Geräteparameter erwarteten Werte übersteigt, ist damit zu rechnen, dass nichtsphärische Aerosol-Partikel die Ursache sind. Das eröffnet eine einfache Möglichkeit, einerseits die Gültigkeit des Aerosol-Streumodells auf Basis der Mie-Theorie zu verifizieren, und andererseits eine weitere Eigenschaft zur Charakterisierung des Aerosols zu messen. Feste depolarisierende Partikel entstehen durch Einfrieren feuchter Partikel oder durch Dispersion von Staub, Sand und anderen hydrophoben Stoffen.

Parameter	Benennung	Formel	Rechenaufwand	$f(B, \delta, \delta_R)$
δ	Lineare- oder Volumen- Depolarisation	$\frac{\beta_A^\perp + \beta_R^\perp}{\beta_A^\parallel + \beta_R^\parallel} = \frac{\beta^\perp}{\beta^\parallel} \sim \frac{P^\perp}{P^\parallel}$	direkte Verwendung der Rohdaten möglich	
B^\perp	Rückstreuverhältnis senkrecht	$\frac{\beta_A^\perp + \beta_R^\perp}{\beta_R^\perp} = \frac{\beta^\perp}{\beta_R^\perp}$	molekularer Rückstreukoeffizient muss berechnet werden, instabil für $B < 1,1$	$\frac{\delta(1 + \delta_R)}{\delta_R(1 + \delta)} B$
B^\parallel	Rückstreuverhältnis parallel	$\frac{\beta_A^\parallel + \beta_R^\parallel}{\beta_R^\parallel} = \frac{\beta^\parallel}{\beta_R^\parallel}$		$\frac{\delta(1 + \delta_R)}{\delta_R(1 + \delta)} B$
D		$\frac{B^\perp}{B^\parallel}$	molekularer Rückstreukoeffizient muss berechnet werden, instabil für $B < 1,1$	$\frac{\delta}{\delta_R}$
δ_A	Aerosol- Depolarisation	$\frac{\beta_A^\perp}{\beta_A^\parallel}$	molekularer Rückstreukoeffizient muss berechnet werden, instabil für $B < 1,1$	$\frac{B\delta(1 + \delta_R) - \delta_R(1 + \delta)}{R(1 + \delta_R) - (1 + \delta)}$
δ_T	Depolarisationsverhältnis	$\frac{\beta_A^\perp + \beta_R^\perp}{\beta_A^\perp + \beta_R^\perp + \beta_A^\parallel + \beta_R^\parallel} = \frac{\beta^\perp}{\beta^\parallel}$	direkte Verwendung der Rohdaten möglich	$\frac{\delta}{1 + \delta}$
δ_{TA}	Aerosol- Depolarisation	$\frac{\beta_A^\perp}{\beta_A^\perp + \beta_A^\parallel} = \frac{\beta_A^\perp}{\beta_A}$	molekularer Rückstreukoeffizient muss berechnet werden, instabil für $B < 1,1$	$\frac{B\delta(1 + \delta_R) - \delta_R(1 + \delta)}{(1 + \delta)(1 + \delta_R)(B - 1)}$

Tab. 2-14 Verwendete Parameter bei Lidar-Depolarisationsmessungen [Cairo et al., 1999].

In der Literatur werden eine Vielzahl unterschiedlicher Verhältnisse als Depolarisation bezeichnet (Tabelle 2-11). Zur Charakterisierung des Aerosols eignet sich am besten das aus den Aerosol-Rückstreukoeffizienten berechnete Verhältnis.

2.2.2.3 Spurengase

Die Konzentration von Spurengasen kann mithilfe typischer Absorptionsbanden (siehe § 2.1.1.2) aus elastisch rückgestreuter Laserstrahlung bestimmt werden. Dazu wird die Lidar-Gleichung 2-54 nach dem Absorptionskoeffizienten $\alpha_{Abs} = N_{Gas} \cdot \sigma_{Abs}(\lambda)$ umgestellt

und dann die Anzahl der Moleküle N_{Gas} im Messvolumen berechnet. Das Problem besteht darin, dass sowohl die geräteabhängige Konstante C als auch die Aerosol-Streuparameter unbekannt sind. Mit einem Vergleichssignal bei einer anderen Wellenlänge (λ_{off}) kann die Konstante eliminiert werden. Wie gut das gelingt, ist eine Frage des Gerätedesigns (siehe Kapitel 3). Aus dem Verhältnis der Signale mit starker ($I(r, \lambda_{\text{on}})$) und schwacher ($I(r, \lambda_{\text{off}})$) Absorption kann dann die Konzentration N_{Gas} bestimmt werden:

$$N_{\text{Gas}} = \frac{1}{2 \cdot (\sigma_{\text{Abs}}(\lambda_{\text{on}}) - \sigma_{\text{Abs}}(\lambda_{\text{off}}))} \cdot \left\{ \frac{d}{dr} \ln \frac{I(\lambda_{\text{on}}, r)}{I(\lambda_{\text{off}}, r)} + \frac{d}{dr} \ln \frac{\beta_{\text{R}}(\lambda_{\text{on}}, r) + \beta_{\text{A}}(\lambda_{\text{on}}, r)}{\beta_{\text{R}}(\lambda_{\text{off}}, r) + \beta_{\text{A}}(\lambda_{\text{off}}, r)} \right\} \cdot \frac{\alpha_{\text{R}}(\lambda_{\text{on}}, r) + \alpha_{\text{A}}(\lambda_{\text{on}}, r) - \alpha_{\text{R}}(\lambda_{\text{off}}, r) - \alpha_{\text{A}}(\lambda_{\text{off}}, r)}{\sigma_{\text{Abs}}(\lambda_{\text{on}}) - \sigma_{\text{Abs}}(\lambda_{\text{off}})} \quad \text{Gl. 2-68}$$

Die erste Zeile der Gleichung birgt als einzige nur numerische Probleme. Die Ableitung des Logarithmus des Signalverhältnisses kann z. B. durch eine Geradenanpassung nach Gleichung 2-52 und der statistische Fehler nach Gleichung 2-53 bestimmt werden. Der Rückstreuterm R in Zeile zwei wird zunächst durch Substitution der Querschnitte β durch die Rückstreuverhältnisse B (Gleichung 2-62) vereinfacht:

$$R(r, \lambda_{\text{on}}, \lambda_{\text{off}}) = \frac{d}{dr} \ln \frac{B(\lambda_{\text{on}}, r)}{B(\lambda_{\text{off}}, r)} + \frac{d}{dr} \ln \frac{\beta_{\text{R}}(\lambda_{\text{on}}, r)}{\beta_{\text{R}}(\lambda_{\text{off}}, r)} = \frac{d}{dr} \ln \frac{B(\lambda_{\text{on}}, r)}{B(\lambda_{\text{off}}, r)} - \frac{d}{dr} \ln \frac{B(\lambda_{\text{off}}, r)}{B(\lambda_{\text{off}}, r)} \quad \text{Gl. 2-69}$$

Der Rayleigh-Term entfällt bei der Ableitung, da das Verhältnis eine Konstante ist. Nachdem auch der Logarithmus abgeleitet ist, wird deutlich, dass der Rückstreuterm nur dann gänzlich verschwindet, wenn das Rückstreuverhältnis keinen Gradienten aufweist. In der planetaren Grenzschicht tritt diese Situation nur selten ein. Insbesondere sind Schichten mit besonderen Spurengaskonzentrationen, wie z. B. Rauchfahnen oder Speicherschichten, auch durch ein Aerosol geprägt, das sich von der Umgebung der Schicht in seinen Streueigenschaften unterscheidet. Das Rückstreuverhältnis wurde mit verschiedenen Aerosol-Modellen in der Vergangenheit bereits ausführlich untersucht [Völger, 1993, Völger et al., 1996, Browell et al., 1985, Bukreev et al., 1996, Kovalev und McElroy, 1994]. Die Entscheidung für ein adäquates Modell und die Schichtung des Aerosols sollte integraler Bestandteil der Auswerteroutine sein, da sich aufgrund sekundärer Messungen, meteorologischer Transportrechnungen oder anderer Informationen über den Messort meist begrün-

dete Annahmen über die Art des Aerosols machen lassen. Bleibt noch die dritte Zeile in Gleichung 2-68, die alle Extinktionskoeffizienten mit Ausnahme der Absorption enthält. Der Rayleigh-Anteil kann mit Gleichung 2-3 berechnet werden. Zusätzlich ist die Dichte der Luft als Funktion der Entfernung erforderlich. Wenn keine zusätzlichen Messungen zur Verfügung stehen, kann die Korrektur nur durch simulierte oder Erfahrungswerte angebracht werden.

Unter günstigen atmosphärischen Bedingungen kann Gleichung 2-68 jedoch so vereinfacht werden, dass alle erforderlichen Parameter für die Konzentrationsberechnung zur Verfügung stehen:

$$N_{\text{Gas}} = \frac{1}{2(\sigma_{\text{Abs}}(\lambda_{\text{on}}) - \sigma_{\text{Abs}}(\lambda_{\text{off}}))} \cdot \frac{d}{dr} \ln \frac{I(\lambda_{\text{on}}, r)}{I(\lambda_{\text{off}}, r)} - \frac{\alpha_{\text{R}}(\lambda_{\text{on}}, r) - \alpha_{\text{R}}(\lambda_{\text{off}}, r)}{\sigma_{\text{Abs}}(\lambda_{\text{on}}) - \sigma_{\text{Abs}}(\lambda_{\text{off}})}. \quad \text{Gl. 2-70}$$

Die Anwendung des Verfahrens ist in der Richtlinie VDI 4210 [KRdL, 1999] des Vereins Deutscher Ingenieure geregelt und gewinnt wegen des Interesses an räumlichen Konzentrationsverteilungen zunehmend an Bedeutung.

Eine Alternative ist, beide Signale einzeln auszuwerten [Immler, 1999] und sie als Gleichungssystem zur Berechnung des Rückstreuverhältnisses und der Konzentration zu betrachten. Die Inversion der Aerosol-Streuparameter verläuft wie in § 2.2.3.1 beschrieben, mit dem Unterschied, dass die Extinktion durch molekulare Absorption (α_{Abs}) als dritte Unbekannte dem Integral in Gleichung 2-58 hinzugefügt werden muss:

$$\begin{aligned} X(\lambda_{\text{off}}, r) &= \ln B(\lambda_{\text{off}}, r) + \ln \beta_{\text{R}}(\lambda_{\text{off}}, r) \\ &- 2 \int_{\Delta}^r [g(r') \cdot \beta_{\text{R}}(\lambda_{\text{off}}, r') \cdot (B(\lambda_{\text{off}}, r') - 1) + \alpha_{\text{R}}(\lambda_{\text{off}}, r') + N_{\text{Gas}}(r) \sigma_{\text{Abs}}(\lambda_{\text{on}})] dr' \\ X(\lambda_{\text{on}}, r) &= \ln B(\lambda_{\text{on}}, r) + \ln \beta_{\text{R}}(\lambda_{\text{on}}, r) \quad . \quad \text{Gl. 2-71} \\ &- 2 \int_{\Delta}^r [g(r') \cdot \beta_{\text{R}}(\lambda_{\text{on}}, r') \cdot (B(\lambda_{\text{on}}, r') - 1) + \alpha_{\text{R}}(\lambda_{\text{on}}, r') + N_{\text{Gas}}(r) \sigma_{\text{Abs}}(\lambda_{\text{on}})] dr' \end{aligned}$$

Die Funktion $F(r)$ enthält das Messsignal ($X(r)$), die bekannten Parameter der Rayleigh-Streuung und das Lidar-Verhältnis ($g(r)$). Wenn das Spurengas bei einer der beiden Wellenlängen gar nicht absorbieren würde, wäre alles einfacher. Da das meist nicht der Fall ist, muss zunächst eine hypothetische Konzentration ($N_{\text{Gas}}(r)$) verwendet werden.

$$F(r) = X(r) - \ln \beta_{\text{R}}(r) - 2 \int_0^r [g(r') \cdot \beta_{\text{R}}(r') - \alpha_{\text{R}}(r') - N_{\text{Gas}} \sigma_{\text{Abs}}(\lambda)] dr' \quad \text{Gl. 2-72}$$

Nun kann die Funktion $F(r, \lambda_{\text{off}})$ für die schwächer absorbierte Laserlinie berechnet werden:

$$F(\lambda_{\text{off}}, r) = \ln B(\lambda_{\text{off}}, r) - 2 \int_0^r B(\lambda_{\text{off}}, r') \cdot g(\lambda_{\text{off}}, r') \cdot \beta_R(\lambda_{\text{off}}, r') dr'. \quad \text{Gl. 2-73}$$

Abgeleitet nach r gibt sich die Funktion als Bernoulli-Gleichung mit der Lösung für das Rückstreuverhältnis ($B(\lambda_{\text{off}}, r)$) entsprechend Gleichung 2-66 zu erkennen. Was bisher fehlt, ist ein Zusammenhang zwischen den Gleichungen für die beiden Signale. Der lässt sich mit dem Ångström-Gesetz [Ångström, 1929], welches eine exponentielle Wellenlängen-Abhängigkeit der Aerosol-Extinktion postuliert (siehe Gleichung 2-45), herstellen. Die Aerosol-Extinktion wird nun durch das Rückstreuverhältnis (Definitions-Gleichung 2-62) ersetzt. Wenn das Lidar-Verhältnis für beide Laserlinien als gleich angenommen und vereinfachend von einer reinen λ^{-4} -Abhängigkeit für die Rayleigh-Extinktion ausgegangen wird, so ergibt sich aus dem Ångström-Gesetz folgende Abhängigkeit der Rückstreuverhältnisse:

$$B(\lambda_{\text{on}}) = (B(\lambda_{\text{off}}) - 1) \cdot \left(\frac{\lambda_{\text{off}}}{\lambda_{\text{on}}} \right)^{\hat{a}-4} + 1. \quad \text{Gl. 2-74}$$

Mit dem Rückstreuverhältnis für λ_{on} und $X(\lambda_{\text{on}}, r)$ (Gleichung 2-71) wird nun die Konzentration neu berechnet. Dazu muss Gleichung 2-71 nach r abgeleitet und nach der Konzentration $N_{\text{Gas}}^{\text{neu}}(r)$ umgestellt werden:

$$N_{\text{Gas}}^{\text{neu}}(r) = \frac{1}{\sigma_{\text{Abs}}(\lambda_{\text{on}})} \cdot \left\{ \frac{d}{dr} X(\lambda_{\text{on}}, r) - \frac{\frac{d}{dr} B(\lambda_{\text{on}}, r)}{B(\lambda_{\text{on}}, r)} - \frac{\frac{d}{dr} \beta_R(\lambda_{\text{on}}, r)}{\beta_R(\lambda_{\text{on}}, r)} \right. \quad \text{Gl. 2-75}$$

$$\left. + 2 \cdot [g(r) \cdot \beta_R(\lambda_{\text{on}}, r) \cdot (B(\lambda_{\text{on}}, r) - 1) + \alpha_R(\lambda_{\text{on}}, r)] \right\}$$

Jetzt stellt sich durch Vergleich zwischen der postulierten und der neu berechneten Konzentration heraus, wie gut der erste Tipp war. Wenn die Differenz eine vorgegebene Abweichung übersteigt, wird alles noch einmal gerechnet. Das muss für jeden Messpunkt so lange wiederholt werden, bis alle Differenzen die vorgegebene Maximalabweichung unterschreiten.

Das Ergebnis sind das Rückstreuverhältnis und die Spurengaskonzentration als Funktion der Entfernung r . Gegenüber dem einfachen DIAL-Verfahren hat dieses den Vorteil, dass sowohl das Problem des schwer berechenbaren Rückstreuterm als auch der eventuelle Fehler durch eine falsche Annahme für die Aerosolextinktion vermieden werden. Der statistische Fehler ergibt sich aus der Standardabweichung des Anstiegs, wenn die Ableitung

durch Geradenanpassung bestimmt wird. Systematische Fehler entstehen durch falsch vorgegebene Lidar-Verhältnisse ($g(r)$), Ångström-Koeffizienten und Randbedingungen ($B(\lambda_{\text{off}}, r_0)$) [Immler, 1999]. Das größte Problem der Methode ist die Bestimmung der Konstante C zur Kalibration des Signals. Das muss in der freien Troposphäre erfolgen, da meist nur dort begründete Annahmen über den Aerosol-Typ gemacht werden können oder ein Intervall mit konstanten Verhältnissen gefunden werden kann. Wie in Kapitel 3 noch näher erläutert wird, ist der Entfernungsbereich der Messung eingeschränkt. Das gilt insbesondere für Absorptionsmessungen. Deshalb kann bei Messungen mit Wellenlängen im Absorptionsbereich von Spurengasen nicht kurz nach dem Gerät mit der Messung begonnen und gleichzeitig in der freien Troposphäre gemessen werden. Dieses besondere Anliegen limitiert die Anwendung der Methode bei Messungen in der planetaren Grenzschicht auf Fälle, in denen ein Bereich mit vorhersagbaren Aerosol-Verhältnissen gefunden wird. In dem speziellen Fall, wenn gleichzeitig mit den Absorptionsmessungen auch Aerosol-Messungen bei anderen Wellenlängen durchgeführt werden können, ist die Methode jedoch sehr nützlich.

2.2.3 Raman-Rückstreusignale

Die Intensität der Rückstreusignale wird bei den bisher betrachteten Methoden immer durch die Rückstreuung und Extinktion der Moleküle und des Aerosols beeinflusst. Wie in § 2.1.1.3 gezeigt wurde, entsteht durch den Raman-Effekt ein Rückstreusignal, dessen Entstehung wegen der Frequenzverschiebung eindeutig einer Molekülsorte zugeordnet werden kann. Allerdings sind in der Atmosphäre nur Stickstoff- und Sauerstoffmoleküle und mit Einschränkungen Wasserdampf in ausreichend hoher und gleichbleibender Konzentration vorhanden, um ein brauchbares Signal zu liefern. Tabelle 2-15 enthält eine Übersicht über die zu erwartenden Rückstreukoeffizienten unter atmosphärischen Standard-Bedingungen und über die Verhältnisse der Stokes bzw. Anti-Stokes-Raman- zur -Rayleigh-Streuung. Auf der Stokes-Seite sind die Rückstreukoeffizienten um einen Faktor von ca. 10^{-3} und auf der Anti-Stokes-Seite um ca. 10^{-6} bis 10^{-8} kleiner als die der Rayleigh-Streuung. Die viel stärkere elastische Streuung muss durch einen Bandpassfilter unterdrückt werden. Deshalb kommt aus technischen Gründen nur die zu höheren Wellenlängen verschobene Stokes-Bande infrage. Für die direkte Messung der Konzentration durch die eigene Raman-Streuung eignet sich in der planetaren Grenzschicht nur Wasserdampf - und natürlich Stickstoff und Sauerstoff, deren Konzentration allerdings selten erfragt wird.

		N ₂			O ₂		
	λ_L / nm	532,05	354,7	266,02	532,05	354,7	266,02
	$\lambda_{\text{Ram}} / \text{nm}$	607,33	386,65	283,6	580,08	375,42	277,51
Stokes	Q Zweig	$7,83 \cdot 10^{-12}$	$4,77 \cdot 10^{-11}$	$1,64 \cdot 10^{-10}$	$2,49 \cdot 10^{-12}$	$1,42 \cdot 10^{-11}$	$4,75 \cdot 10^{-11}$
	O S Zweig	$1,22 \cdot 10^{-12}$	$7,42 \cdot 10^{-12}$	$2,56 \cdot 10^{-11}$	$9,87 \cdot 10^{-13}$	$5,65 \cdot 10^{-12}$	$1,88 \cdot 10^{-11}$
	O Q S Zweig	$9,05 \cdot 10^{-12}$	$5,51 \cdot 10^{-11}$	$1,90 \cdot 10^{-10}$	$3,48 \cdot 10^{-12}$	$1,98 \cdot 10^{-11}$	$6,61 \cdot 10^{-11}$
Rayleigh	Q Zweig	$1,17 \cdot 10^{-08}$	$6,24 \cdot 10^{-08}$	$2,13 \cdot 10^{-07}$	$2,64 \cdot 10^{-09}$	$1,41 \cdot 10^{-08}$	$4,86 \cdot 10^{-08}$
	O S Zweig	$2,23 \cdot 10^{-10}$	$1,28 \cdot 10^{-16}$	$4,41 \cdot 10^{-09}$	$1,43 \cdot 10^{-10}$	$8,85 \cdot 10^{-10}$	$3,82 \cdot 10^{-09}$
	O Q S Zweig	$1,19 \cdot 10^{-08}$	$6,36 \cdot 10^{-08}$	$2,19 \cdot 10^{-07}$	$2,78 \cdot 10^{-09}$	$1,50 \cdot 10^{-08}$	$5,24 \cdot 10^{-08}$
Anti-Stokes	Q Zweig	$1,88 \cdot 10^{-16}$	$8,21 \cdot 10^{-16}$	$2,39 \cdot 10^{-15}$	$2,04 \cdot 10^{-15}$	$9,33 \cdot 10^{-15}$	$2,79 \cdot 10^{-14}$
	O S Zweig	$2,92 \cdot 10^{-17}$	$1,28 \cdot 10^{-16}$	$3,74 \cdot 10^{-16}$	$8,11 \cdot 10^{-16}$	$3,69 \cdot 10^{-15}$	$1,10 \cdot 10^{-14}$
	O Q S Zweig	$2,17 \cdot 10^{-16}$	$9,48 \cdot 10^{-K}$ apitel 2-131 6	$2,76 \cdot 10^{-15}$	$2,85 \cdot 10^{-15}$	$1,30 \cdot 10^{-14}$	$3,89 \cdot 10^{-14}$
Stokes Q / Rayleigh Q		$6,70 \cdot 10^{-4}$	$7,64 \cdot 10^{-4}$	$7,71 \cdot 10^{-4}$	$9,43 \cdot 10^{-4}$	$1,00 \cdot 10^{-3}$	$9,77 \cdot 10^{-4}$
Stokes OQS / Rayleigh OQS		$7,60 \cdot 10^{-4}$	$8,66 \cdot 10^{-4}$	$8,67 \cdot 10^{-4}$	$1,25 \cdot 10^{-3}$	$1,32 \cdot 10^{-3}$	$1,26 \cdot 10^{-3}$
Anti-Stokes Q / Rayleigh Q		$1,61 \cdot 10^{-8}$	$1,32 \cdot 10^{-8}$	$1,12 \cdot 10^{-8}$	$7,74 \cdot 10^{-7}$	$6,60 \cdot 10^{-7}$	$5,74 \cdot 10^{-7}$
Anti-Stokes OQS / Rayl. OQS		$1,82 \cdot 10^{-8}$	$1,49 \cdot 10^{-8}$	$1,26 \cdot 10^{-8}$	$1,02 \cdot 10^{-6}$	$8,65 \cdot 10^{-7}$	$7,43 \cdot 10^{-7}$

Tab. 2-15 Rückstreuoeffizient $\beta_{\text{Ram}} / 1/(\text{cm sr})$ der Vibrations-Raman- und Cabannes-Streuung (Q-Zweig), der Rotations-Raman-Streuung (O und S Zweig) und deren Summe für die Rayleigh-Streuung und Vibrations-Rotations-Raman-Streuung erster Ordnung unter atmosphärischen Standard-Bedingungen (1013,25 hPa, 285,15 K, 20,946 % O₂ und 78,084 % N₂). Das Signalverhältnis bezüglich der Q-Zweige ist für schmale Filter (HWB < 0,2 nm) und das der gesamten Linie für breite Filter (HWB > 2 nm) zu erwarten.

Die allgemein gültige Formel für die Intensität eines Raman-Rückstreusignals ähnelt natürlich der Lidar-Gleichung 2-54, mit dem entscheidenden Unterschied, dass nun nur der Raman-Rückstreuoeffizient ($\beta_{\text{Ram}}(r)$) für die Signalstärke verantwortlich ist, und der Faktor 2 im Exponenten durch die für Hin- und Rückweg unterschiedlichen Extinktionskoeffizienten ($\alpha(\lambda_L, r)$, $\alpha(\lambda_{\text{Ram}}, r)$) ersetzt werden muss:

$$I_{\text{Ram}}(\lambda_L, \lambda_{\text{Ram}}, r) = \frac{C \cdot \beta_{\text{Ram}}(\lambda_L, r)}{r^2} \cdot e^{-\int_0^r [\alpha(\lambda_L, r') + \alpha(\lambda_{\text{Ram}}, r')] dr'}$$

$$\alpha(\lambda_L, r) = \alpha_R(\lambda_L, r) + \alpha_{\text{Abs}}(\lambda_L, r) + \alpha_A(\lambda_L, r),$$

$$\alpha(\lambda_{\text{Ram}}, r) = \alpha_R(\lambda_{\text{Ram}}, r) + \alpha_{\text{Abs}}(\lambda_{\text{Ram}}, r) + \alpha_A(\lambda_{\text{Ram}}, r). \quad \text{Gl. 2-76}$$

Die Messgeräte-abhängige Konstante C enthält dieselben Parameter wie bei ihrer Definition in der Lidar-Gleichung 2-54. Zu beachten ist diesbezüglich nur die eventuelle Abhängigkeit der Empfangseffizienz von der Polarisationsrichtung und der Farbe des Lichts, wenn Raman-Signale mit elastisch gestreuten verglichen werden. Der Rückstreukoeffizient ist das Produkt aus der Konzentration des entsprechenden Moleküls und seines Raman-Rückstreuquerschnitts, der entsprechend Gleichung 2-23 unter Einbeziehung aller im Bandpass-Bereich des optischen Eingangsfilters liegenden Linien ermittelt werden kann (Beispiel für Nd:Yag-Laser in Tabelle 2-15). Die linearisierte Form ($X_{\text{Ram}}(\lambda_{\text{Ram}}, \lambda_L, r)$) des Signals erhält man durch Multiplikation mit r^2 und anschließendes Logarithmieren:

$$X_{\text{Ram}}(\lambda_L, \lambda_{\text{Ram}}, r) = \ln \left[\frac{I_{\text{Ram}}(\lambda_L, \lambda_{\text{Ram}}, r) \cdot r^2}{C} \right] \quad \text{Gl. 2-77}$$

$$= \ln \beta_{\text{Ram}}(\lambda_L, r) - \int_0^r [\alpha(\lambda_L, r') + \alpha(\lambda_{\text{Ram}}, r')] dr'$$

Das Signal enthält 6 Unbekannte: die Aerosol-Extinktion, den Rayleigh-Volumenstreuoeffizient und die molekulare Absorption jeweils für die Raman- und die Laser-Wellenlänge.

- *Molekülstreuung*: Die Extinktion durch Molekülstreuung kann für beide Wellenlängen aus den Rayleigh-Streuquerschnitten (Gleichung 2-3) und der Dichte der Luft ($N_{\text{Luft}}(r)$) berechnet werden. Aktuelle Radiosondendaten oder an Bodenwerte und Tropopausenhöhe angepasste Standard-Atmosphären-Daten für die jeweilige Region liefern die Dichte-Profile.
- *Aerosol-Streuung*: Um die Aerosol-Extinktion für die Laser- oder die Raman-Wellenlänge aus dem Signal berechnen zu können, muss ein funktionaler Zusammenhang hergestellt oder ein Aerosol-Modell bemüht werden. Die Abhängigkeit kann entweder mit Modellannahmen über das Aerosol berechnet oder über das Ångström-Gesetz (Gleichung 2-49) bestimmt werden. Der Ångström-Faktor $\mathring{A}(\lambda_L, \lambda)$ wird im Folgenden oft verwendet.

$$\alpha_A(\lambda_L) + \alpha_A(\lambda) = \mathring{A}(\lambda_L, \lambda) \cdot \alpha_A(\lambda_L) \text{ , mit } \mathring{A}(\lambda_L, \lambda) = 1 + [\lambda_L/\lambda]^{\mathring{a}} \quad \text{Gl. 2-78}$$

- *Molekulare Absorption:* Durch die Auswahl einer geeigneten Laserlinie kann molekulare Absorption ausgeschlossen werden. Zur Konzentrationsbestimmung mittels Absorption sind zwei Raman-Signale bei unterschiedlichen Wellenlängen erforderlich.

2.2.3.1 Aerosol

Vibrations-Raman-Rückstreusignale ohne molekulare Absorption werden für die Messung der Aerosol-Extinktion ($\alpha_A(\lambda_L, r)$) verwendet. Dazu muss Gleichung 2-77 nach der Aerosol-Extinktion umgestellt werden:

$$\alpha_A(\lambda_L, r) = \frac{\frac{d}{dr} N_M(r)}{N_M(r)} - \frac{d}{dr} (X_{\text{Ram}}(\lambda_L, \lambda_{\text{Ram}}, r) - \alpha_R(\lambda_L, r) - \alpha_R(\lambda_{\text{Ram}}, r))}{\mathring{A}(\lambda_L, \lambda_{\text{Ram}})}$$

$$\frac{d}{dr} X_{\text{Ram}}(\lambda_L, \lambda_{\text{Ram}}, r) = \frac{\frac{d}{dr} I_{\text{Ram}}(\lambda_L, \lambda_{\text{Ram}}, r)}{I_{\text{Ram}}(\lambda_L, \lambda_{\text{Ram}}, r)} + \frac{2}{r} \quad \text{Gl. 2-79}$$

Die Raman-Rückstreuquerschnitte selbst werden für die Lösung nicht mehr benötigt. Sie erscheinen nur in der Ableitung nach der Entfernung r als konstanter Vorfaktor der Dichte ($N_M(r)$) des entsprechenden Moleküls. Um nach dem Aerosol-Extinktionskoeffizienten der Laser- oder Raman-Wellenlänge aufzulösen, muss der sie verknüpfende Ångström-Faktor angenommen werden. Durch Messung von zwei Raman-Signalen, die farblich nicht weit separiert sind, kann auch diese Unsicherheit der Methode ausgeschlossen und der Ångström-Koeffizient gemessen werden. Dafür bietet sich die gleichzeitige Messung des Stickstoff- und des Sauerstoff-Signals an.

Werden elastische und Raman-Signale erfasst, kann sowohl der Rückstreu- als auch der Extinktions-Koeffizient des Aerosols gemessen werden. Damit ist auch das Lidar-Verhältnis bestimmt, das mit dem Raman-Signal allein nicht messbar ist, da der Aerosol-Rückstrekoeffizient darauf keinen Einfluss hat.

Das größte Problem dieses Verfahrens ist die Messung der sehr schwachen Signale bei Tageslicht. Auf die technisch-physikalischen Aspekte gehe ich in Kapitel 3 näher ein.

2.2.3.2 Spurengase

Die Raman-Streuung kann auch zur Konzentrationsmessung von Spurengasen, insbesondere von Wasserdampf und Ozon, genutzt werden. Wasserdampf kommt unter normalen Bedingungen in der planetaren Grenzschicht als einziges Gas für eine direkte Messung durch die eigene Raman-Streuung infrage. Für Gase mit geringeren Konzentrationen können aber Raman-Signale von Stickstoff und Sauerstoff als Vergleichssignal analog der DIAL-Methode verwendet werden. Dafür müssen entweder die Laser- oder eine der Raman-Wellenlängen unterschiedlich stark von dem gesuchten Gas absorbiert werden. Außerdem sollte das Gas natürlich das einzige sein, das bei den Wellenlängen absorbiert. Diese Methode wird von mir als Raman-DIAL bezeichnet. Sie darf nicht mit Verfahren verwechselt werden, bei denen die Laser-Wellenlänge in Gaszellen vor dem Aussenden durch den stimulierten Raman-Effekt verschoben wird, denn sie bergen die gleichen Probleme wie die klassische DIAL-Methode.

Für *Wasserdampf-Raman-Messungen* wird für gewöhnlich eine Wellenlänge außerhalb des Absorptionsbereichs von atmosphärischen Gasen und als Vergleichs-Signal das der Stickstoff-Raman-Streuung verwendet [Veselovskii et al., 2001a, Veselovskii et al., 2001b]. Die Konzentration kann dann nach folgender Formel berechnet werden:

$$N_{\text{H}_2\text{O}}(r) = C(\lambda_{\text{N}_2}, \lambda_{\text{O}_2}) \cdot \frac{I(\lambda_{\text{L}}, \lambda_{\text{Ram}}^{\text{H}_2\text{O}}, r) \cdot N_{\text{N}_2}(r) \cdot \sigma_{\text{N}_2}^{\text{back}}(\lambda_{\text{L}})}{I_{\text{N}_2}(\lambda_{\text{L}}, \lambda_{\text{Ram}}^{\text{N}_2}, r) \cdot \sigma_{\text{H}_2\text{O}}^{\text{back}}(\lambda_{\text{L}})} \cdot e^{-\int_0^r (\alpha(\lambda_{\text{Ram}}^{\text{N}_2}, r) - \alpha(\lambda_{\text{Ram}}^{\text{H}_2\text{O}}, r)) dr}$$

Gl. 2-80

Die Konstante $C(\lambda_{\text{N}_2}, \lambda_{\text{O}_2})$ ist der wellenlängenabhängige Anteil der bereits erwähnten Gerätekonstante C und zur Kalibration des Instruments notwendig. Sie kann aus dem Verhältnis der Signale bestimmt werden, wenn mit einer niedrigen Wasserdampf-Konzentration zu rechnen ist. Das ist z. B. an sehr kalten Tagen der Fall. Die Raman-Rückstreuquerschnitte von Stickstoff und Wasserdampf und die Dichte der Luft als Funktion der Entfernung müssen ebenfalls bekannt sein. Durch die Messung des Stickstoff-Signals werden die unbekanntenen Rayleigh- und Aerosol-Extinktionen bei der Laser-Wellenlänge im Exponenten des Lambert-Beer-Gesetzes eliminiert. Die Rayleigh-Extinktion bei den beiden Raman-Wellenlängen kann mit der Dichte und den bekannten Streuquerschnitten berechnet werden, während die Aerosol-Extinktion als Unsicherheit erhalten bleibt, sofern nicht noch zusätzliche Messungen, z. B. durch Sauerstoff-Raman-Streuung oder mit anderen Lasern, durchgeführt werden. Insgesamt sind bei dieser Methode eine Menge zusätzlicher Angaben

erforderlich, deren Fehler sich natürlich nach den bekannten Gesetzen fortpflanzen. Die zusätzliche Messung des Sauerstoff-Raman-Signals ist sehr empfehlenswert.

Die *Raman-DIAL-Methode* wird im Rahmen dieser Arbeit zur Messung der Ozon-Konzentration eingesetzt. Dazu werden die Raman-Rückstreusignale des Sauerstoffs und des Stickstoffs aufgenommen, die mit der vierfachen Grundfrequenz des Nd:Yag-Lasers bei 266,02 nm in der Luft angeregt werden. In Abbildung 2-22 ist das entsprechende Raman-Spektrum der Atmosphäre zusammen mit dem Ozon- und dem Schwefeldioxid-Absorptionsspektrum aufgetragen. Es wurde mit einem 1-m-Gitterspektrometer und einer Kamera mit Bildverstärker über einen Zeitraum von 15 min aufgenommen. Da SO₂-Konzentrationen meist mehr als eine Größenordnung niedriger liegen als die des Ozons, und die differentielle Absorption deutlich kleiner ausfällt, ist nur in Ausnahmefällen mit Querempfindlichkeiten zu rechnen. Die Wasserdampf-Raman-Linie ist ebenfalls schwach erkennbar. Zwischen der Stickstoff- und der Wasserdampf-Linie befindet sich eine weitere, nicht zuordenbare, Linie, deren Ursprung wahrscheinlich ein Kamera-Fehler ist. Die Anhebung des Spektrums bis 290 nm deutet auf eine unzureichende Unterdrückung des Streulichts des elastischen Signals durch das Spektrometer hin.

Die beiden Raman-Rückstreusignale, $X_{\text{Ram}}^{\text{N}_2}(\lambda_L, \lambda_{\text{Ram}}^{\text{N}_2}, r)$, $X_{\text{Ram}}^{\text{O}_2}(\lambda_L, \lambda_{\text{Ram}}^{\text{O}_2}, r)$, (Gleichung 2-77), enthalten jeweils 6 Extinktionskomponenten im Lambert-Beer-Gesetz. Zunächst werden sie nach der Aerosol-Extinktion umgestellt. Die Aerosol-Extinktion bei der jeweiligen Raman-Wellenlänge wird dann mit Hilfe des Ångström-Faktors als Funktion der Laserwellenlänge umgeschrieben und eliminiert. Aus dem Absorptionsterm der Extinktion wird dann die Anzahlkonzentration des Ozons $N_{\text{O}_3}(r)$ als Funktion der Entfernung berechnet:

$$N_{\text{O}_3}(r) = \frac{\mathring{A}(\lambda_L, \lambda_{\text{Ram}}^{\text{O}_2}) \cdot K_{\text{N}_2} - \mathring{A}(\lambda_L, \lambda_{\text{Ram}}^{\text{N}_2}) \cdot K_{\text{O}_2}}{\mathring{A}(\lambda_L, \lambda_{\text{Ram}}^{\text{O}_2}) [\sigma_{\text{Abs}}^{\text{O}_3}(\lambda_L) + \sigma_{\text{Abs}}^{\text{O}_3}(\lambda_{\text{Ram}}^{\text{O}_2})] - \mathring{A}(\lambda_L, \lambda_{\text{Ram}}^{\text{N}_2}) [\sigma_{\text{Abs}}^{\text{O}_3}(\lambda_L) + \sigma_{\text{Abs}}^{\text{O}_3}(\lambda_{\text{Ram}}^{\text{N}_2})]}$$

$$K_{\text{N}_2} = \frac{\frac{d}{dr} N_{\text{N}_2}(r)}{N_{\text{N}_2}(r)} - \frac{d}{dr} X_{\text{Ram}}^{\text{N}_2}(\lambda_L, \lambda_{\text{Ram}}^{\text{N}_2}, r) - \alpha_{\text{R}}(\lambda_L, r) - \alpha_{\text{R}}(\lambda_{\text{Ram}}^{\text{N}_2}, r),$$

$$K_{O_2} = \frac{d}{dr} N_{O_2}(r) - \frac{d}{dr} X_{R_{am}}(\lambda_L, \lambda_{R_{am}}, r) - \alpha_R(\lambda_L, r) - \alpha_R(\lambda_{R_{am}}, r),$$

$$\frac{d}{dr} X_{R_{am}}(\lambda_L, \lambda_{R_{am}}, r) = \frac{d}{dr} I_{R_{am}}(\lambda_L, \lambda_{R_{am}}, r)}{I_{R_{am}}(\lambda_L, \lambda_{R_{am}}, r)} + \frac{2}{r}. \quad \text{Gl. 2-81}$$

Das Ergebnis sieht auf den ersten Blick etwas unübersichtlich aus, ist aber höchst erfreulich.

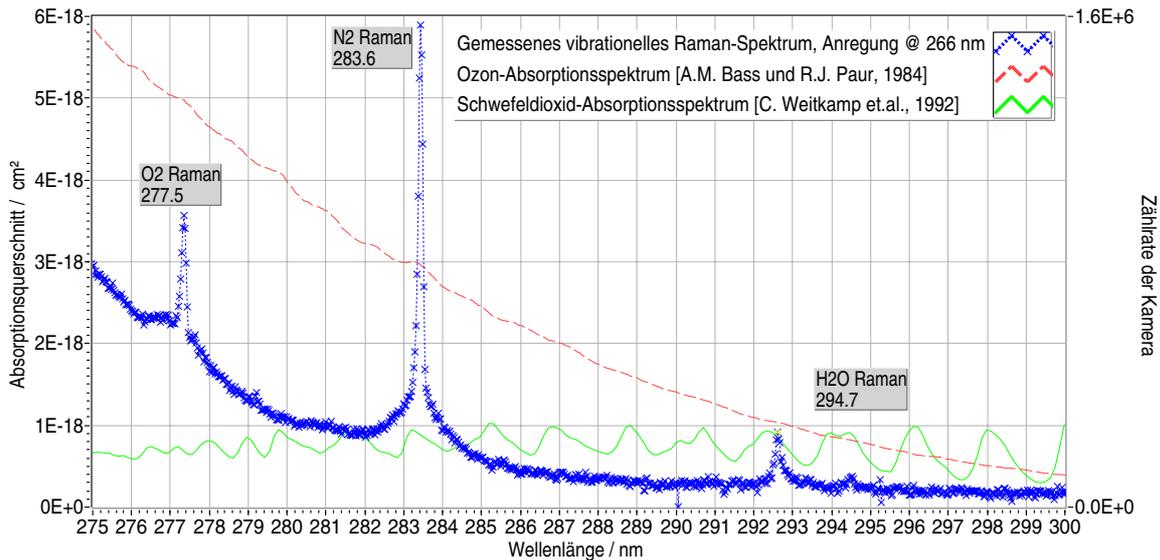


Abb. 2-22 UV-Vibrations-Raman-Spektrum der Atmosphäre, angeregt durch die FHG des Nd:Yag-Lasers, Ozon- und Schwefeldioxid-Absorptionsspektrum [Bass und Paur, 1984, Weitkamp et al., 1992].

Als Eingangsdaten werden nur die Dichte der Luft und der Ångström-Faktor zwischen Laser- und Raman-Wellenlänge benötigt. Da nur die Ableitung des Signals $X(r)$ in der Lösung vorkommt, entfallen die gerätespezifischen Konstanten (C). Das Verfahren ist somit kalibrationsfrei! Die Raman-Streuquerschnitte wurden durch die Differenzierung eliminiert, da sie nicht entfernungsabhängig sind. Die Absorptionsquerschnitte für Ozon sind gut erforscht [Bass und Paur, 1984, Molina und Molina, 1986] und liegen einschließlich Temperaturabhängigkeit tabelliert vor. Die Rayleigh-Extinktion kann nach bekanntem Muster aus der Dichte der Luft und den Streuquerschnitten berechnet werden.

Die Berechnung der Ozonkonzentration aus zwei Raman-Signalen kann noch vereinfacht werden, wenn:

1. das Verhältnis von Stickstoff- und Sauerstoffkonzentration im gesamten Entfernungsbereich konstant ist (damit entfällt es durch die Ableitung nach r) und

2. das Verhältnis der Ångström-Faktoren zur Umrechnung der Extinktion entsprechend der Laserwellenlänge in die der beiden Raman-Linien, eins ist.

Die erste Voraussetzung ist ohne Einschränkungen bis in eine Höhe von ca. 120 km erfüllt. Für die Ångström-Faktoren gilt das zwar nicht, der Fehler in der berechneten Ozonkonzentration durch eine falsche Annahme ist jedoch sehr gering, zumal die Raman-Wellenlängen sehr dicht beieinander liegen im Vergleich zum Abstand bis zur Laserlinie. Das Verhältnis der Gerätekonstanten entfällt ebenfalls, da es nicht entfernungsabhängig ist. Die Formel zur Berechnung der Ozonkonzentration sieht dann folgendermaßen aus:

$$N_{O_3}(r) = \frac{1}{\sigma_{\text{Abs}}^{O_3}(\lambda_{\text{Ram}}^{O_2}) - \sigma_{\text{Abs}}^{O_3}(\lambda_{\text{Ram}}^{N_2})} \left\{ \frac{d}{dr} \ln \left[\frac{I(\lambda_{\text{Ram}}^{N_2}, r)}{I(\lambda_{\text{Ram}}^{O_2}, r)} \right] + \alpha_R(\lambda_{\text{Ram}}^{N_2}, r) - \alpha_R(\lambda_{\text{Ram}}^{O_2}, r) \right\}.$$

Gl. 2-82

In dieser Form erinnert die Lösung an die des elastischen DIAL-Verfahrens, mit dem großen Unterschied, das hier der Rückstreuterm und die Aerosol-Extinktionskorrektur weggefallen sind. Als einzige Korrektur ist die Rayleigh-Extinktion zu berechnen, wofür exakterweise ein Entfernungsprofil der Luftdichte benötigt wird.

Sobald die Ozonkonzentration bekannt ist, wird die Aerosolextinktion nach Gleichung 2-79 berechnet. Dazu muss im Zähler lediglich die nun bekannte Ozon-Absorptionsextinktion ergänzt werden. Des Weiteren werden die Wasserdampfkonzentration aus dem entsprechenden Raman-Signal und der Rückstreuquerschnitt bei 266 nm aus dem elastisch gestreuten Signal unter Zuhilfenahme der Ozonkonzentration berechnet. Auf diese Weise können mit einem einzigen Laserstrahl vier sehr bedeutsame Größen der planetaren Grenzschicht gemessen werden.

Die Fehlerbetrachtung wird anhand einer Auswertung simulierter Signale durchgeführt, die durch eine Aerosolschicht beeinflusst sind. Die Spanne der vorzugegebenden Streuparameter wurde mit dem beschriebenen Modell zur Berechnung der optischen Eigenschaften des Aerosols bestimmt. Gleichzeitig werden auch elastische Rückstreusignale bei den Raman-verschobenen Wellenlängen simuliert, um den Vorteil der neuen Methode ermessen zu können. Die der Simulation zu Grunde liegenden Aerosolextinktions- und Rückstreukoefizienten und die daraus berechneten elastischen und Raman-Signale sind in Abbildung 2-23 dargestellt. Wie zu erwarten, werden die Raman-Signale innerhalb der

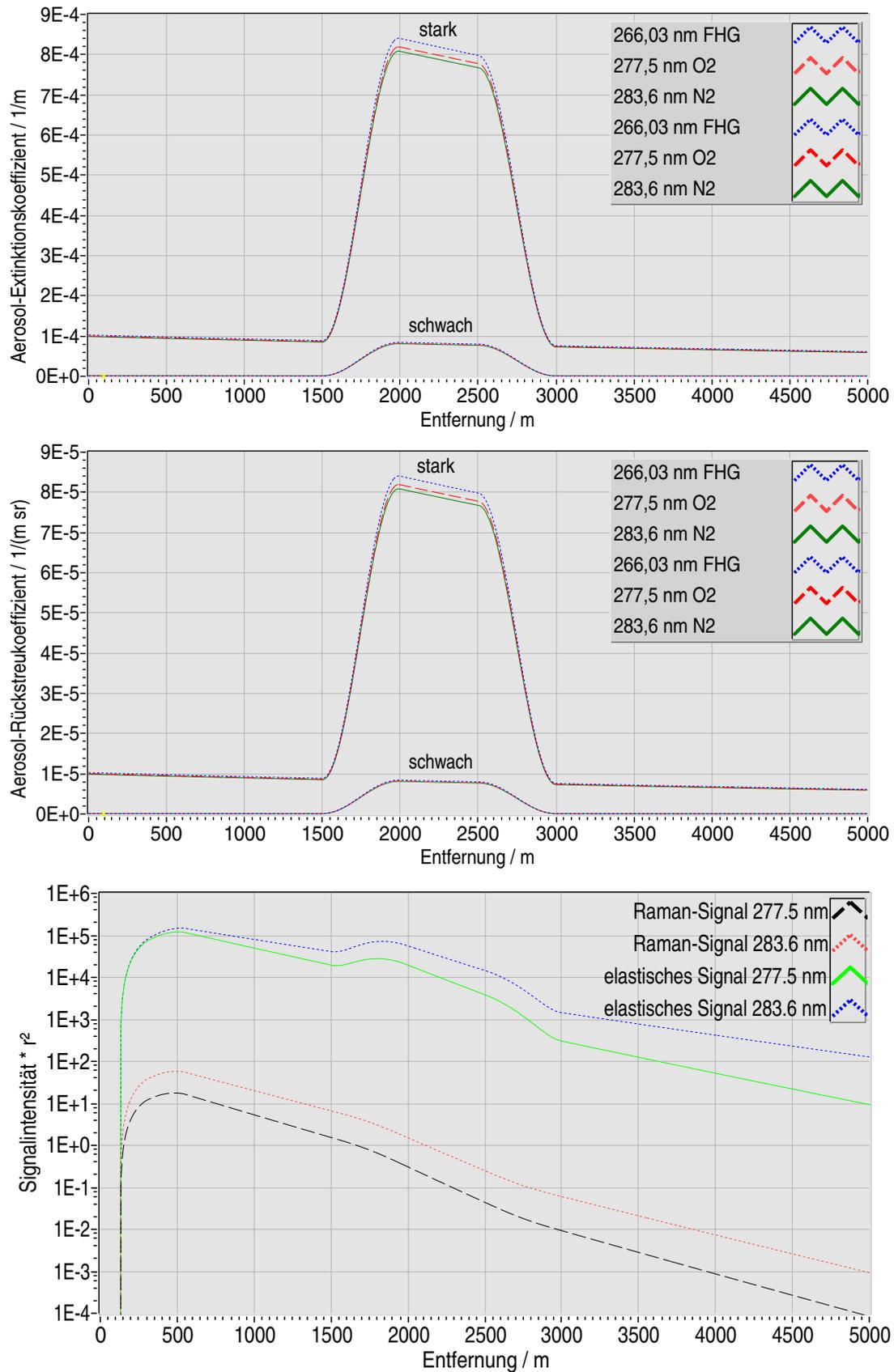


Abb. 2-23 Aerosolextinktions- und Rückstreuungskoeffizient für die Anregungswellenlänge des Lasers und die beiden Raman-Signale, jeweils für eine schwach und eine stark streuende Aerosolschicht. Unten sind die resultierenden elastischen und die Raman-Signale für die starke Schicht dargestellt.

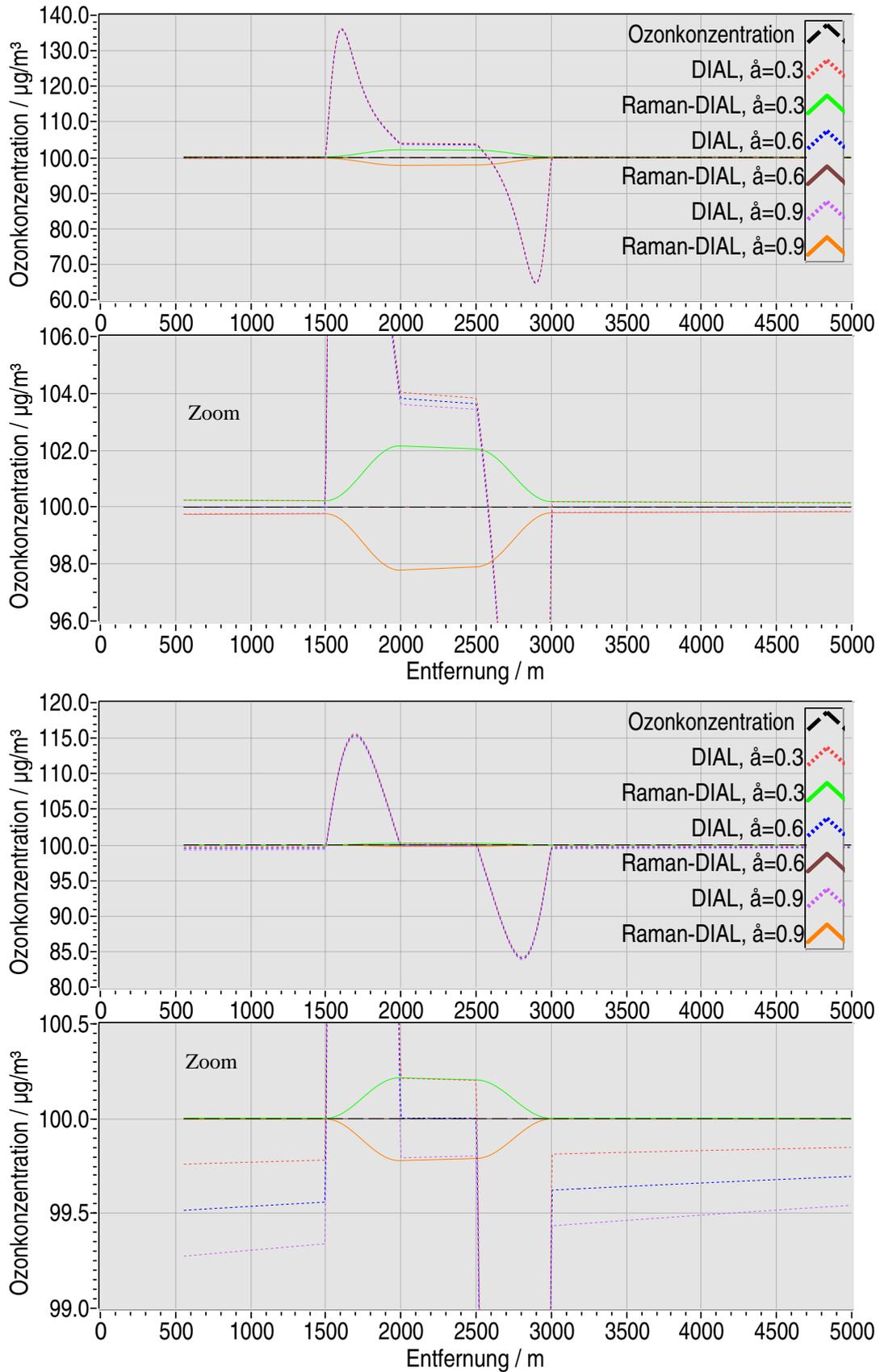


Abb. 2-24 Berechnung einer vorgegebenen Ozonkonzentration von $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ aus simulierten Raman- und elastischen Rückstreusignalen, die eine Aerosolschicht entsprechend Abbildung 2-23 enthalten. Die beiden oberen Abbildungen entsprechen dem Fall der schwach und die unteren dem der stark streuenden Aerosolschicht. Die Fehler der Raman-DIAL-Methode sind nur im „Zoom“ sichtbar.

Schicht stärker geschwächt als außerhalb. In den elastischen Signalen hingegen ist die Schicht durch erhöhte Rückstreuung zu erkennen.

Für den Fall der elastischen DIAL-Methode erzeugt schon das recht schwach streuende Aerosol einen Fehler von $\pm 15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gegenüber den vorgegebenen $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ an den Schichtgrenzen. An der stärkeren Schicht erreicht der Fehler sogar $\pm 35 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Dieser Fehler resultiert aus dem in § 2.2.2.3 beschriebenen Rückstreuungsterm der DIAL-Gleichung 2-68. Erwartungsgemäß ist die Raman-DIAL-Methode nicht davon betroffen. Der Konzentrationsunterschied innerhalb der Schicht ist hier nur auf die Aerosol-Extinktion zurückzuführen. Wie aus Abbildung 2-25 zu ersehen ist, übersteigt der Fehler selbst bei völlig falschen Annahmen nicht den Wert von $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Der statistische Messfehler ergibt sich aus der Standardabweichung der linearen Regression zur Berechnung der Ableitungen der Signale.

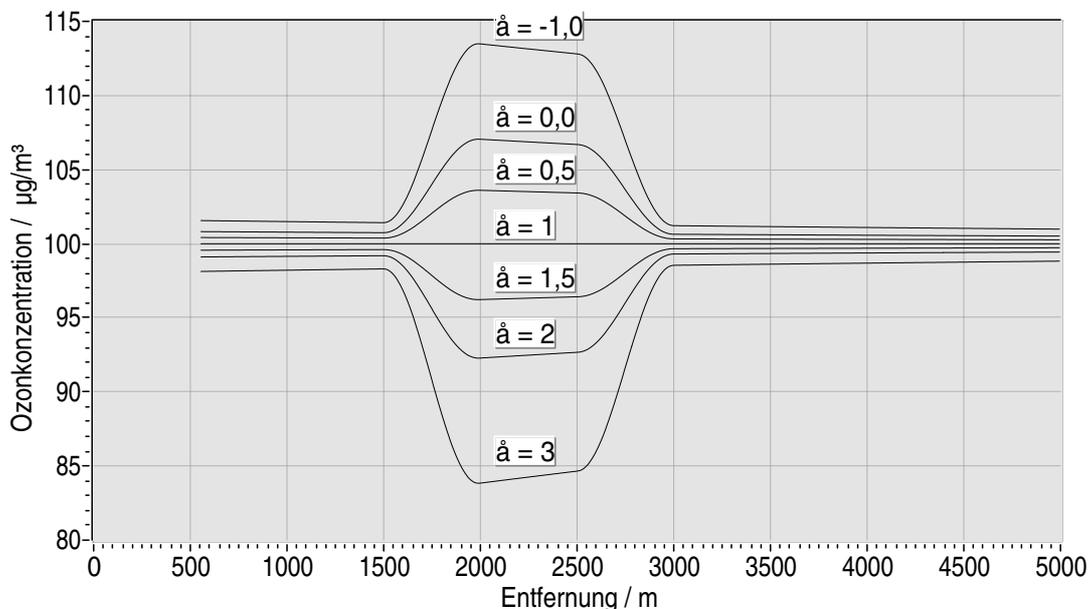


Abb. 2-25 Fehler bei der Konzentrationsberechnung aus Raman-DIAL-Signalen wegen falsch angesetzter Ångström-Koeffizienten. Selbst wenn die Streueigenschaften des Aerosols völlig falsch eingeschätzt werden, bleibt der Fehler unter $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

2.2.3.3 Temperatur

In diesem Abschnitt wird ein Laser-Fernerkundungsverfahren beschrieben, mit dem die Temperatur durch Vergleich der Intensität von Rotations-Raman-Linien des Sauerstoff- und des Stickstoff-Moleküls gemessen wird. Vier weitere bekannte Methoden zur Temperaturmessung mit Lidar, die hier kurz vorgestellt werden, eignen sich weniger gut in der planetaren Grenzschicht.

Die *Rayleigh-Integrations-Methode* und die aus ihr abgeleitete *Raman-Integrations-Methode* nutzen die Proportionalität der Lidar-Signale zur atmosphärischen Moleküldichte. Über das Gesetz des idealen Gases lässt sich bei Vorliegen eines hydrostatischen Gleichgewichts unter der Annahme von Anfangsbedingungen in einer Referenzhöhe die Temperatur ableiten. In der planetaren Grenzschicht hat jedoch die Aerosol-Streuung einen zu großen Einfluss auf das Signal, um das Verfahren hier nutzen zu können.

Die *Brillouin-Doppler-Methode*, die auch als Rayleigh-Doppler-Methode bezeichnet wird, nutzt die Temperaturabhängigkeit der Breite der Brillouin-Banden.

Auch die *DIAL-Methode* kann zur Messung von Temperaturprofilen verwendet werden. Vorgeschlagen wurde hierfür die temperaturabhängige Absorptionsbande der O₂-Linien nahe 770 nm. Die beiden letztgenannten Methoden sind experimentell sehr aufwendig und die DIAL-Methode wird darüber hinaus, wie bereits beschrieben, durch Aerosol-Streuung beeinflusst.

Für Temperaturmessungen in der Mesosphäre (70 bis 110 km Höhe) lässt sich die Doppler-Verbreiterung der Resonanz-Fluoreszenz von Alkali-Atomen, insbesondere der Elemente Natrium und Kalium, nutzen. Unterhalb von etwa 70 km verhindert jedoch ihre zu geringe Konzentration und das wegen der anderweitigen Abregungsmöglichkeiten der Moleküle in der dichteren Luft schwache Fluoreszenz-Signal die Anwendbarkeit.

Unter atmosphärischen Bedingungen sind höhere Vibrations-Niveaus als das erste kaum besetzt und haben für das Rückstreusignal deshalb keine Bedeutung. Ganz anders verhält es sich mit dem *Rotations-Raman-Effekt*. Die Besetzungszahl der Rotations-Niveaus in einem Molekülensemble ändert sich unter atmosphärischen Bedingungen bereits bei Temperaturunterschieden von einem Kelvin messbar. Auf die bisher beschriebenen Aerosol- und Konzentrationsmessungen hat das bei entsprechendem Gerätedesign keine Auswirkungen, da sich nur die Einhüllende des S- und des O-Zweigs der Linien ändert. In Abbildung 2-26 ist das anhand des Rotations-Stokes-Zweiges der Rayleigh-Linie des Stickstoff- und des Sauerstoff-Moleküls für zwei Temperaturen dargestellt. Je höher die Temperatur wird, desto stärker wird die Intensität der äußeren Linien. Dementsprechend werden die Linien nahe des Maximums der Boltzmann-Verteilungskurve geschwächt, so dass die Gesamtenergie konstant bleibt. Für Routinemessungen der Temperatur wird die mittlere Intensität über mehrere Linien eines Bereichs um das Maximum mit einem äußeren Bereich verglichen

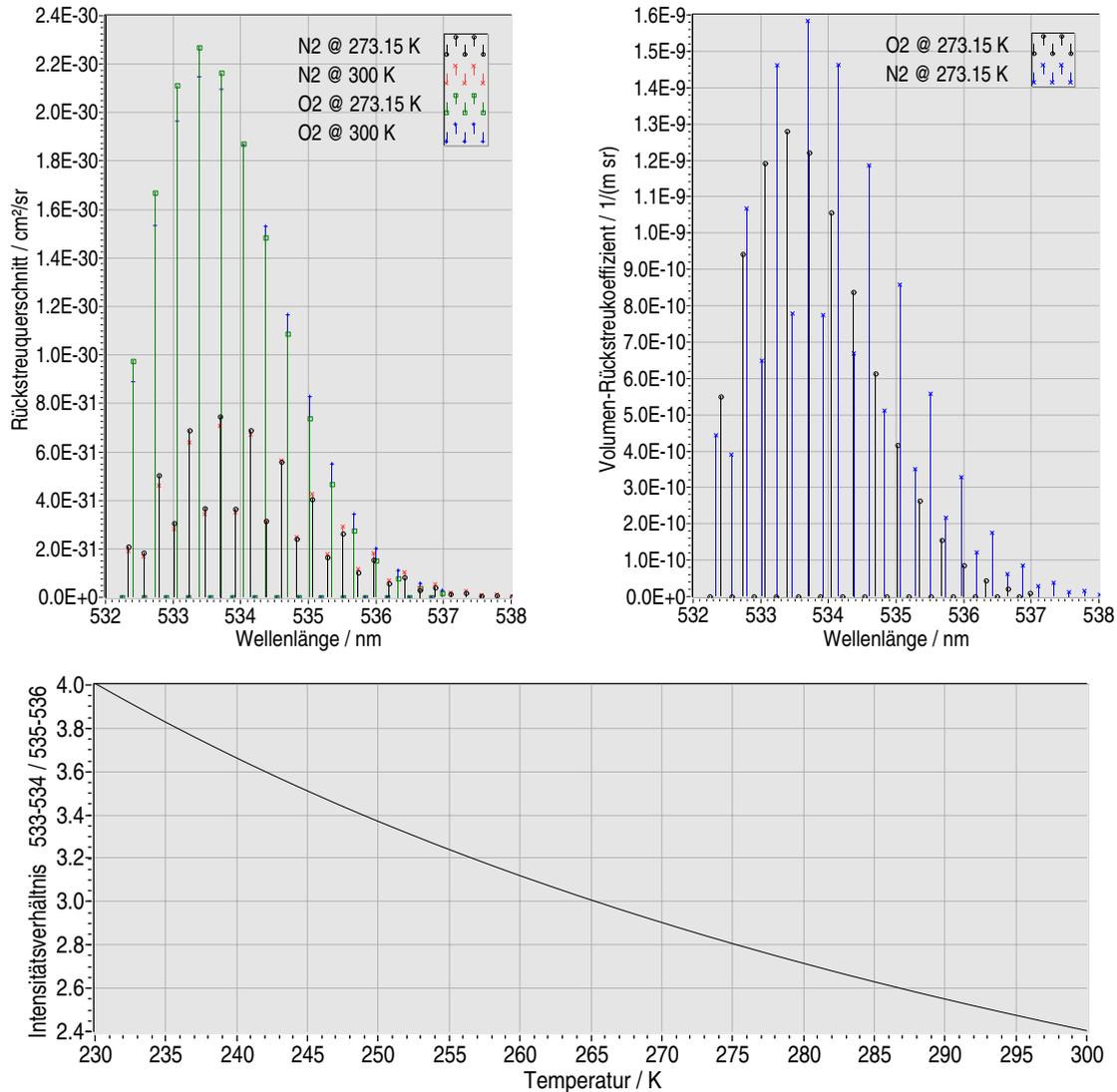


Abb. 2-26 oben links: Rotations-Raman-Rückstreuquerschnitte für N₂ und O₂ bei zwei Temperaturen. oben rechts: Volumenrückstreukoeffizient der Stokes-Rotations-Raman-Linien für Luft bei 0 °C unten: Verhältnis der starken Linien zwischen 533 und 534 nm zu den schwachen zwischen 535 und 536 nm für Temperaturen von 230 bis 300 K.

[Behrendt, 2000]. Das ist sowohl im Rayleigh-Rotations-Raman-Spektrum als auch im Rotations-Vibrations-Raman-Spektrum möglich. In Abbildung 2-26 (unten) ist das Verhältnis der starken Linien zwischen 533 und 534 nm zu den schwachen zwischen 535 und 536 nm für einen interessanten Temperaturbereich der Atmosphäre dargestellt. Leider lässt sich diese theoretische Eichkurve nicht direkt mit den Messwerten vergleichen. Je nach Gerät und wird ein Kalibrationsfaktor benötigt. Dieser ist z. B. von der Form des Bandpasses und der Intensität des durchgelassenen elastischen Streusignals abhängig. Bei der Temperaturbestimmung durch Messung der Intensität in zwei Bereichen des Rotations-Raman-Spektrums ist deshalb eine Kalibration des Instruments notwendig. Situationsabhängige, unvorhergesehene Signalveränderungen, wie sie z. B. durch Aerosol-Fluoreszenz

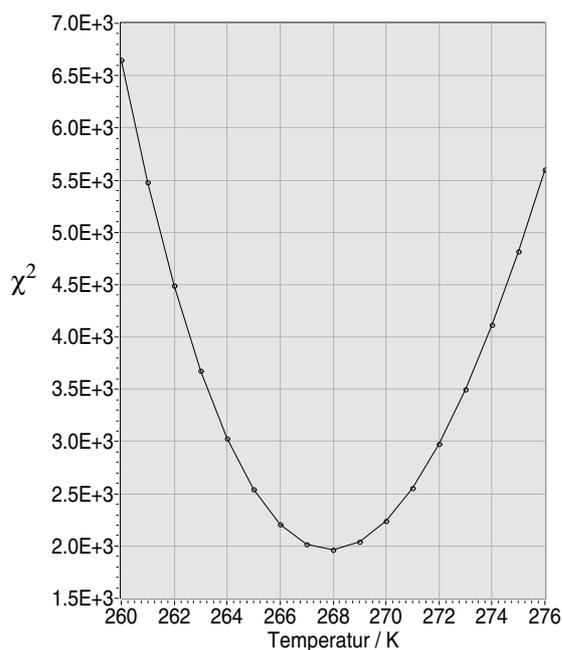
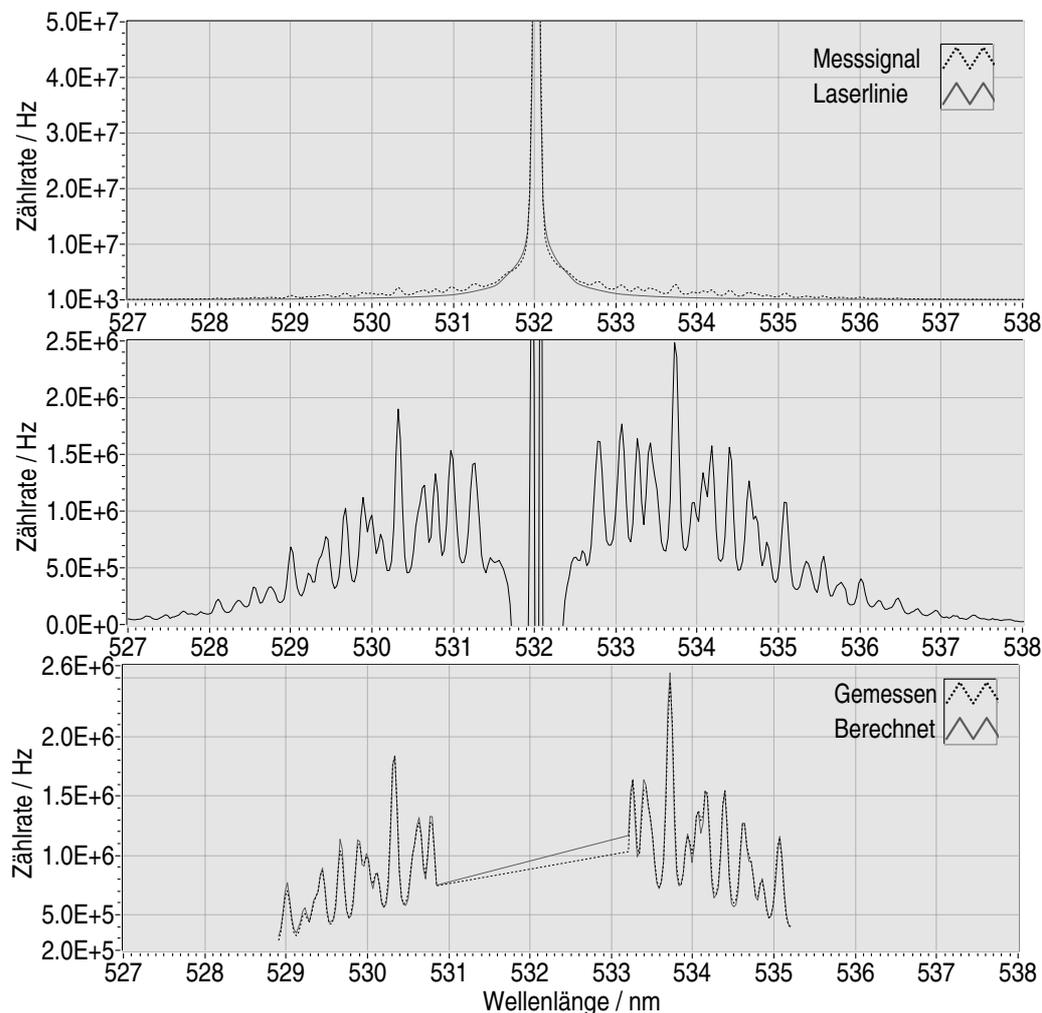
entstehen können, werden nicht bemerkt und können zu systematischen Fehlern führen. Der Vorteil ist jedoch, dass ein entfernungsabhängiges Temperaturprofil mit hoher zeitlicher und räumlicher Auflösung mit einer relativ einfachen Technik gemessen werden kann.

Für diese Arbeit wurde ein anderer Weg gewählt, die Temperatur mittels Intensitätsverteilung der Rotations-Raman-Linien zu messen. Moderne Digital-Kameras mit schnell schaltbarem Bildverstärker sind in der Lage, beliebig viele Spektren aus einem wählbaren (Zeit-) Entfernungsbereich zu akkumulieren. Mit einem Spektrometer entsprechender Auflösung können so ganze Rotations-Raman-Spektren aufgenommen werden. Die uns zur Verfügung stehende Technik gestattet es, das nötige Signal-zu-Rausch-Verhältnis in Mittlungszeiten von ca. 10 min in einem Höhenfenster von 300 m zu erreichen.

In Abbildung 2-27 sind ein auf diese Weise gemessenes Spektrum und die nötigen Schritte zur Ableitung der Temperatur dargestellt. Nach der Bereinigung des Spektrums wird die Temperatur in der Boltzmann-Verteilung eines theoretisch berechneten Spektrums solange variiert, bis eine optimale Anpassung an das gemessene Spektrum gefunden wird. Die Methode bedarf somit keiner Kalibration.

Kritisch ist die Auswahl der zur Anpassung des theoretischen Spektrums nötigen Linienform. Die wenigsten Rotations-Raman-Linien können einzeln aufgelöst werden. Das liegt weniger an der Detektion als vielmehr am verwendeten Laser und seiner Bandbreite. Andererseits ist die Möglichkeit, einen „einfachen“ Laser ohne zusätzliche Vorrichtungen zur Einschränkung der Linienbreite verwenden zu können, von großem Interesse. Nach erfolglosen Experimenten, mit verschiedenen analytischen Formen zu einem stabilen Ergebnis zu gelangen, hat sich die Verwendung einer gemessenen Linie sehr gut bewährt [Geurts, 2001].

Die Anwendbarkeit der Methode ist bis jetzt wegen der hohen Kosten für die erforderliche Kamera auf Messungen beschränkt, für die ein entsprechendes Budget oder bereits vorhandene Geräte, wie in unserem Fall, zur Verfügung stehen. Leider ist es technisch noch nicht möglich, mehrere Spektren aus verschiedenen Höhenfenstern gleichzeitig aufzuzeichnen. Trotzdem ist dieses Verfahren wegen seines sehr direkten Ansatzes der Temperaturmessung, der Kalibrationsfreiheit und der guten Identifizierbarkeit von Problemfällen bei der Spektrenanpassung sehr empfehlenswert.



Zur Berechnung der Temperatur aus einem Rotations-Raman-Spektrum sind drei Schritte erforderlich:

- 1.) Der Spektralbereich des gemessenen Spektrums muss entsprechend der Spektrometer-Eichung zugeordnet werden.
- 2.) Alle nicht konstanten zusätzlichen Beiträge zur gemessenen Intensität müssen vom Signal abgezogen werden. Insbesondere trägt die viel stärkere Intensität der elastischen Streuung dazu bei. Als Linienform hat sich eine mit dem Spektrometer gemessene Quecksilber-Linie bei 546,07 nm, die entsprechend der Laserlinie verbreitert wird, gegenüber allen theoretischen Ansätzen bewährt.
- 3.) In einem geeigneten Bereich wird nun durch Variation der Temperatur die beste Anpassung eines theoretischen Signals an das gemessene gesucht. Am Minimum des Anpassungsparameters χ^2 kann die Temperatur abgelesen werden. Die zum Teil sehr nah beieinander liegenden Raman-Linien von O_2 und N_2 werden mit derselben gemessenen Quecksilberlinie verbreitert.

Abb. 2-27 Beispiel für ein Rotations-Raman-Spektrum der Rayleigh-Linie bei 532 nm. Gemessen am 7. 3. 2001 um 0:50 Uhr (10-Minuten-Mittlung) im Höhenintervall zwischen 450 und 900 m über der Freien Universität Berlin. Die Temperatur beträgt 268 K.

2.2.4 Das Doppler-Lidar

Die Doppler-Verschiebung der Lichtfrequenz durch bewegliche Streuer kann zur Messung der radialen, d. h. der in Richtung des Laserstrahls fallenden, Komponente des Windvektors genutzt werden. Die Frequenz ν_D der Farbe des rückgestreuten Laserlichts wird um das Doppelte der radialen Windkomponente v_r geteilt durch die Laserwellenlänge λ , verschoben.

$$\Delta\nu = \frac{2v_r}{\lambda}, \quad \text{Gl. 2-83}$$

Ausgehend von der bereits für das Radar¹ entwickelten Heterodyn-Detektion wurden die ersten Messungen bereits 1962 [Rabinowitz et al., 1962] mit kontinuierlichen (CW-)Lasern durchgeführt. In diesem Fall wird das rückgestreute Licht in einem lokalen Laser-Oszillator mit einem Anteil desselben Lichts überlagert, das vor dem Senden dort gespeichert wurde. Wenn die räumliche und zeitliche Kohärenz des empfangenen Lichts erhalten bleibt, kann man die Intensität der Differenzfrequenz messen und daraus die Doppler-Verschiebung ableiten. Der große Vorteil der Methode besteht in der automatischen optimalen Anpassung des Bandpasses (Δf) auf die gesuchte Frequenz, was eine einzigartige Unterdrückung des Hintergrundlichts ohne „weiteren“ Aufwand erlaubt. Das Signal-zu-Rausch-Verhältnis (SNR) ist bei geeignetem Gerätedesign nur durch das Schrotrauschen begrenzt [Saleh und Teich, 1991].

$$\text{SNR} = \sqrt{\frac{\eta \cdot I}{h \cdot \nu \cdot \Delta f}} = \sqrt{\frac{\eta \cdot N_I}{\Delta f}} \quad \text{Gl. 2-84}$$

Die Variablen I , η , ν , Δf und h sind die Intensität des Rückstreusignals, die Quanteneffizienz des Detektors, die Laserfrequenz, die Bandbreite und die Planck-Konstante. Da die einschränkenden Kohärenzbedingungen für lange Wellenlängen einfacher erfüllbar sind, wurden vor allem Kohlendioxid-Laser bei den Wellenlängen 10,6 und 9,11 μm benutzt. Die starke Nachfrage nach einem flugzeuggestützten Messgerät motivierte die Entwicklung schmalbandiger Festkörperlaser (Ho:Yag-Laser) bei 2 μm [Huffaker und Reveley, 1998]. Wegen der bevorzugten Verwendung infraroten Lichts sind die Verfahren auf Partikel-Streuung als Signalquelle angewiesen. Der Einfluss optischer Turbulenz auf die Kohärenz ist zwar im ir geringer als im uv, wird jedoch als kritisch für die Genauigkeit des Verfahrens eingeschätzt [Banakh et al., 2000]. Außerdem wird die spektral breitere Rayleigh-Streuung gar nicht genutzt, sondern schlägt sich nur als zusätzliche Fluktuation im

1. Radiowave Detection and Ranging

Signal nieder. Deshalb werden in zunehmendem Maße auch alternative, nichtkohärente Detektoren entwickelt. Dafür wurden insbesondere Argon-Ionen- und schmalbandige diodengepumpte Nd:Yag-Laser verwendet [Liu et al., 1997]. Zur Frequenzunterdrückung dienen z. B. Fabry-Perot-, Faraday- oder Iod-Dampf-Filter. Die Nachweisgrenze für die radiale Windgeschwindigkeit liegt je nach verwendetem System im Sub-Meterbereich.

2.3 Berechnung sekundärer Größen

Aus den Messdaten der aufgeführten Laser-Fernerkundungsmethoden können direkt optische Größen des Aerosols (Rückstreuquerschnitt, Volumenstreuoeffizient, Depolarisation) sowie Spurengaskonzentrationen, Temperatur und radiale Partikel-Geschwindigkeit bestimmt werden. Bei der physikalischen, meteorologischen und chemischen Interpretation der aufgenommenen räumlich-zeitlichen Strukturen sind aber häufig auch andere in diesen Fachgebieten übliche Größen gefragt, die entweder direkt sichtbar sind, aber noch nicht als Zahlenwert vorliegen, oder auch implizit in den Messdaten oder direkt abgeleiteten Größen enthalten sind. Als wichtige Beispiele für Messungen in der planetaren Grenzschicht seien hier die Mischungsschichthöhe, die Sichtweite und die Aerosol-Größenverteilung genannt.

2.3.1 Die Mischungsschichthöhe

Sie kann aus Rückstreusignalen auf der Basis erhöhter Aerosol-Streuung, aus Temperaturmessungen und Spurengaskonzentrationen bestimmt werden. Die direkte Methode unter Verwendung der Messsignale ist natürlich zu bevorzugen, da so Fehler vermieden und die Zeiten zur Berechnung verkürzt werden. Trotz der direkten Berechnungsmöglichkeit würde ich die Mischungsschichthöhe als sekundäre Größe betrachten, da sie in den Gleichungen für die Rückstreuintensitäten und den Streuformeln nicht erscheint. Signale im sichtbaren Spektralbereich sind für die Bestimmung besonders geeignet, da hier die Intensität auch bei geringen Aerosol-Konzentrationen in der freien Troposphäre (Rückstreuverhältnis $B = 1,2 \dots 4$) wegen der molekularen Rückstreuung noch ausreichend stark ist, um damit rechnen zu können, aber trotzdem das Aerosol bereits die Streuung dominiert. Der Intensitätsgradient an der Mischungsschichthöhe kann mit verschiedenen Methoden aufgespürt werden. Zum Vergleich habe ich zwei verschiedene verwendet. Bei der Gradientenmethode wird das globale Minimum der Ableitung des Signals in der Form $X(r)$ (Gleichung 2-57) gesucht.

$$\text{Min} \left\{ \frac{d}{dr} X(r) \right\} = \text{Min} \left\{ \frac{1}{I(r)} \frac{d}{dr} I(r) + \frac{2}{r} \right\} \quad \text{Gl. 2-85}$$

Das ist natürlich recht einfach und entsprechend effektiv. Schwer wird es, wenn die vertikale Schichtung sehr strukturiert ist, was insbesondere über komplexem Gelände, wie z. B. über Bergtälern oder an Steilküsten, nicht so sehr in Berlin, der Fall ist. Um die dann entstehenden vielen Schichten zu finden, bietet sich eine Analyse des Signals mit den bereits beim Thema Rauschfilterung beschriebenen Wavelets an.

2.3.2 Die Sichtweite

Die horizontale Sichtweite ist eine bedeutende optische Größe in der Meteorologie. Sie wird zum Teil mit einfachen Mitteln, z. B. dem geübtem Auge, bestimmt. Bei der synoptischen Wetteranalyse selbst dient sie zur Charakterisierung von Luftmassen (z. B. kontinental oder maritim, polar oder tropisch), der Stabilität der planetaren Grenzschicht, der Niederschlagsstärke und der Ausdehnung von Nebelgebieten. Auch in Wetterberichten für die Seefahrt, den Flugverkehr, den Autoverkehr und bei Beschreibungen der Luftverschmutzung (SMOG) ist ihre Angabe fester Bestandteil. Deshalb möchte ich hier den Zusammenhang zwischen den Observablen der Laser-Fernerkundung und den meteorologischen Definitionen herstellen.

Gemäß der Traditionen der meteorologischen Beobachtungen wird zwischen Nacht- und Tag-Sichtweite unterschieden. In der Nacht wird die Sichtbarkeit von Lichtquellen mit bekannter Helligkeit von einem Beobachtungspunkt aus bewertet, wohingegen tagsüber die Sichtbarkeit bestimmter Objekte in verschiedenen Entfernungen geprüft wird. Die Nachtsichtweite ist entsprechend dem Lambert-Beer-Gesetz definiert:

$$I(r) = \frac{I_0}{r^2} \cdot e^{-\alpha \cdot r} \quad \text{Gl. 2-86}$$

Die Helligkeit einer Lichtquelle I_0 nach einer Entfernung r ($I(r)$) wird durch die atmosphärische Extinktion α und den Raumwinkel, den die Lichtquelle für den Beobachter ausfüllt, bestimmt. Wenn man den Umstand beiseite lässt, dass hier das Licht den Weg nur einmal durchquert und dass eine mittlere Extinktion angenommen wird, entspricht die Formel der Lidar-Gleichung 2-54. Am Tage hingegen wird die Sichtweite durch den Kontrast zwischen der Helligkeit eines Objekts H und seinem Hintergrund H_0 definiert:

$$\text{Kontrast} = \left| \frac{H - H_0}{H_0} \right| = \left| \frac{H_0 \cdot (1 - e^{-\alpha \cdot r}) - H_0}{H_0} \right| = -e^{-\alpha \cdot r} \quad \text{Gl. 2-87}$$

Wird die Objekthelligkeit H durch die Differenz des Hintergrundlichts und dessen Schwächung auf dem Weg zwischen Beobachter und Objekt ersetzt, erhält man eine exponentielle Abhängigkeit für die Abnahme des Kontrasts mit der Entfernung entsprechend dem Lambert-Beer-Gesetz. Als Richtwert für den nötigen Kontrast zur Unterscheidung von Objekten von ihrem Hintergrund wird bei schwacher Blendung und scharfem Blick 2 % angenommen. Eingesetzt in Gleichung 2-87 und umgestellt nach der Entfernung r erhält man die Koschmieder-Formel [Koschmieder, 1924] für die Sichtweite:

$$r_{\text{Sicht}} = -\frac{\ln(\text{Kontrast})}{\alpha} = \frac{3,9}{\alpha} \quad \text{Gl. 2-88}$$

Nach einer Verdopplung des nötigen Kontrasts auf 4 %, oder ein entsprechend schlechteres Auge, wäre die Sichtweite immerhin noch 3,2 e-Wert-Längen der Extinktion, also etwa 18 % kürzer.

Die Extinktion α_A aus Raman-Lidar-Messungen entspricht nur bedingt der hier verwendeten. Natürlich muss noch der molekulare Volumenstreuoeffizient addiert werden, was aber mit den meistens bekannten Druck- und Temperaturwerten möglich ist. Außerdem ist zu beachten, dass für die meteorologische Extinktion über den gesamten sichtbaren Farbbereich und die gesamte Entfernung zwischen Beobachter und Objekt integriert wird. Um die Lidar-Daten, die für ein kleines Volumen und einen sehr schmalen Farbbereich gelten, verwenden zu können, müssen sie entsprechend verarbeitet werden. An genaue spektrale Informationen gelangt man nur durch Messung mehrerer Raman-Rückstreusignale bzw. mehrerer HSRL-Kanäle. Extinktionswerte aus horizontalen Lidar-Messungen müssen integriert werden, um die räumliche Information zu erhalten. Stehen nur Messungen in andere Richtungen, z. B. Vertikalsondierungen, zur Verfügung, muss unter Zuhilfenahme topographischer Informationen die Transportströmung abgeschätzt und so ein geeignetes zeitliches und räumliches Intervall zur Mittlung bestimmt werden. In Berlin beispielsweise, mit seiner strömungsmechanisch recht einfachen, ebenen Topographie, reichen sehr kurze Höhenintervalle.

2.3.3 Aerosol-Größenverteilung und Brechzahl

Es gibt verschiedene Anwendungen von Laser-Fernerkundungsdaten, die es nötig machen, aus den originären optischen Messgrößen der Aerosol-Streuung die mikrophysikalischen Parameter, wie Größenverteilungen der Oberfläche, der Masse, des Volumens und der Anzahl, Gesamtteilchenanzahlen oder Brechzahlen zu berechnen. Dazu zählen z. B. Untersuchung heterogener chemischer Reaktionen, deren Verlauf vom Volumen oder der Oberfläche des Aerosols abhängt, der stofflichen Zusammensetzung, gesundheitlicher Gefahren oder des Lebenszyklus von Aerosol-Partikeln. Aufgrund der zusätzlichen Fehlerquellen, die die Inversion birgt, ist dringend davon abzuraten, wenn die ermittelten Parameter danach in Modellen wieder zur Berechnung von optischen Streuparametern dienen.

In § 2.1.2 wurde dargestellt, wie aus einer vorgegebenen Größenverteilung und einer mittleren Brechzahl des Aerosols die Spektren der beiden Streuparameter, also des Extinktionskoeffizienten α_A und des Rückstreuoeffizienten β_A , mit der Mie-Theorie berechnet werden können. Der Weg zurück, die sogenannte Inversion des Problems, ist nicht so einfach. Im Gegensatz zur Stratosphäre sind in der Troposphäre und erst recht in der planetaren Grenzschicht zu viele Parameter, einschließlich der analytischen Form der Verteilung, unbekannt. Wenn wir eine mehrmodale Lognormalverteilung annehmen, haben wir folgende Freiheitsgrade:

- die Anzahl der Moden,
- die Gesamtpartikelanzahl für jede Mode,
- den Breitenparameter für jede Mode,
- den Medianradius für jede Mode und
- den Real- und Imaginärteil der mittleren Brechzahl.

Bei einer von uns praktizierten empirischen Methode [Immler, 1999] wird eine Datenbank mit den Rückstreu- und Extinktionskoeffizienten bei den verwendeten Laser-Wellenlängen für die wahrscheinlichsten Aerosol-Typen angelegt. Der Aerosol-Typ wird dann durch eine Suche nach Werten in der Datenbank bestimmt, die mit den Messwerten bestmöglich übereinstimmen. Das Ergebnis kann natürlich kein völlig unerwartetes sein, da die Datenbank nur die Werte der vorher berechneten Modelle enthält.

Die mikrophysikalischen Parameter sind durch Fredholm-Integralgleichungen [Böckmann et al., 1998] mit den optischen Aerosol-Parametern verknüpft.

$$\beta_A(\lambda, r) = \int_{R_a}^{R_e} K_\beta(R, m, \lambda) \cdot n_N(R, r) dR = \int_{R_a}^{R_e} \pi r^2 \cdot Q_\pi(R, m, \lambda) \cdot n_N(R, r) dR$$

$$\alpha_A(\lambda, r) = \int_{R_a}^{R_e} K_\alpha(R, m, \lambda) \cdot n_N(R, r) dR = \int_{R_a}^{R_e} \pi r^2 \cdot Q_\alpha(R, m, \lambda) \cdot n_N(R, r) dR, \quad \text{Gl. 2-89}$$

Sie stellen den Zusammenhang zwischen den Streuparametern α_A und β_A und der Größenverteilung n_N über einen sogenannten Kernel K , der vom Partikelradius R , der Brechzahl m und der Wellenlänge λ abhängt, her. Das r steht für die Entfernung. Integriert wird über einen sinnvollen Radiusbereich, in dem auch Partikel zu erwarten sind. Die Lösung des Gleichungssystems schien bisher mindestens drei Rückstreukoeffizienten und zwei Extinktionen bei unterschiedlichen Wellenlängen zu erfordern [Müller, 2001, Müller et al., 2001, Müller et al., 2000]. In einer kürzlich erschienenen Veröffentlichung [Böckmann, 2001] wird eine hybridisierte Inversionsmethode vorgestellt, die nur Extinktionsmessungen bei einer und Rückstreuungsmessungen bei drei Wellenlängen erfordert und die ohne Apriori-Annahmen auskommt. Damit werden auch Berechnungen mit den mir bisher zur Verfügung stehenden Messdatensätzen möglich.

3 Die Messgeräte

Albert Einstein beschrieb bereits 1917 das Prinzip der stimulierten Emission von Strahlung und legte damit die theoretische Grundlage für die Erfindung des Lasers, wenngleich er nicht an eine praktische Umsetzung glaubte. Im Jahr 1958 veröffentlichten Arthur Schawlow und Charles Hard Townes ihre Patentschrift mit den Funktionsprinzipien eines Lasers. Das Patent wurde ihnen zwar zuerkannt, später aber von Gordon Gould erfolgreich angefochten. 1960 erzeugte der amerikanische Physiker Theodore H. Maiman mit einem Rubin-Kristall erstmals Laserlicht. Der Laser hat seitdem so viele Anwendungen wie kaum eine andere Erfindung hervorgebracht. Eine der ersten war die Fernerkundung der Atmosphäre. Auch heute, mehr als 40 Jahre später, hat die Entwicklung von Lasern nichts von ihrer Dynamik verloren. Im Gegenteil, Anwendungen in Produktionsprozessen, in Medizin, Telekommunikation, Fernerkundung, Datenspeicherung, Spektroskopie und Militärtechnik bringen immer neue Entwicklungen hervor und lassen einst unüberwindlich scheinende Schranken verschwinden. Für die Laser-Fernerkundung wurde es allerdings erst durch die Erfindung des Güteschalters durch McClung und Hellwarth im Jahr 1962 [McClung und Hellwarth, 1962] wirklich interessant. Dadurch wurden die Laserpulse kurz genug und die Intensitätsdichte hoch genug, um respektable Ortsauflösungen und Reichweiten zu erzielen.

Nach der allgemeinen Erläuterung der Bestandteile eines Laser-Fernerkundungssystems gehe ich im Folgenden auf die drei im Rahmen dieser Arbeit entwickelten und verwendeten Geräte ein. In unserer Messstation auf dem Hochhaus des Universitäts-Klinikums Charité im Berliner Stadtzentrum betreiben wir ein Aerosol-Messinstrument für die Stratosphäre und die Troposphäre und ein Gerät zur Konzentrationsmessung von Spurengasen in der planetaren Grenzschicht. In einem von der Deutschen Bundesstiftung Umwelt geförderten Pro-

jekt ist ein drittes mobiles Messgerät zur simultanen Fernerkundung des atmosphärischen Aerosols und der Ozon-Konzentration entstanden. Dieses Lidar lässt sich alternativ mit einem ebenfalls im Rahmen dieser Arbeit entwickelten durchstimmbaren UV-Laser ausstatten, um weitere Spurengase detektieren zu können. Am Ende des Kapitels werden noch einige ergänzende In-Situ-Messverfahren beschrieben, die bei Vergleichsmessungen mit unseren Laser-Fernerkundungsgeräten Verwendung fanden.

3.1 Bestandteile eines Lidar

Ein Laser-Fernerkundungssystem besteht aus einer Sende- und einer Empfangseinheit. Senderseitig ist der Laser das Herzstück. Hinzu kommen noch Strahldiagnostik und Aufweitungsoptik. Für bestimmte Messungen wird auch eine Vorrichtung benötigt, um die Sendestrahlrichtung ändern zu können. Der Empfänger besteht aus einem Teleskop, den Tageslichtfiltern, den Detektoren und den Signal-Digitalisierern bzw. Photonenzählern. Meist sind noch weitere Optiken zur Signalaufbereitung notwendig. Ein Computer wird für die Steuerung des Lasers und der Mechanik, zum Speichern der Daten und zur Überwachung von Systemparametern verwendet. Eine zusätzliche Schwierigkeit besteht darin, dass alle Teile gemeinsam nicht nur im Labor, sondern auch im freien Feld oder auf Expeditionen funktionieren müssen. Dieser Aspekt sollte bei der Auswahl der physikalischen Methoden unbedingt berücksichtigt werden.

3.1.1 Der Laser

Für die atmosphärische Fernerkundung werden gepulste Laser mit hoher Ausgangsleistung eingesetzt. Die Anforderungen an die spektralen Eigenschaften unterscheiden sich je nach Messverfahren und sind die größte Herausforderung bei der Entwicklung eines Lidar. Aus diesem Grund wurde die Nutzung neuer Laser-Materialien bereits mehrfach durch die Neuentwicklung von Laser-Fernerkundungsmethoden motiviert. Eine gute Übersicht über derzeit vorhandene Festkörperlaser-Materialien und eine Online-Datenbank ihrer Eigenschaften findet man daher auch auf den Internetseiten der NASA, Abteilung für Fernerkundung [Cross, 1998]. Ein Laser ist erst dann für Fernerkundungs-Messungen brauchbar, wenn er ohne großen Aufwand über längere Messperioden unter Feldbedingungen betrieben werden kann. Das heißt auch, dass während des Messzeitraums alle Parameter im erforderlichen Rahmen konstant gehalten werden müssen. Gerade bei Lasern mit variabler Wellenlänge muss diese kontrolliert und meist auch aktiv stabilisiert werden. Wei-

terhin sind eine geringe Strahldivergenz, niedrige Energieschwankungen von Puls zu Puls und eine hohe Richtungsstabilität (pointing stability) erforderlich. Der letzte Punkt wird häufig unterschätzt.

Schnelle Schaltvorgänge hoher Ströme, besonders am Güteschalter des Lasers, führen zu elektromagnetischer Abstrahlung. Leider liegen die erzeugten Frequenzen meist gerade im gleichen Spektralbereich, in dem die Eingangsverstärker der Detektions-Elektronik besonders empfindlich sind. Hat man ausreichend Platz, wie auf unserer Lidar-Station, lässt sich das Problem durch räumliche Separation und geschickte Verdrahtung lösen. Bei der Anschaffung eines neuen Laser für ein kompaktes Gerät ist unbedingt vorher auf geringe elektromagnetische Abstrahlung zu achten.

Wegen der einfacheren Handhabung außerhalb des Labors und auf Expeditionen setzen sich Festkörperlaser immer mehr durch. Für Messungen im ultravioletten Spektralbereich werden auch Eximer-Laser und im infraroten Bereich Kohlendioxid-Laser verwendet. Farbstoff-Laser haben wegen ihrer schlechten Strahlqualität und des hohen Betriebsaufwands ihre einstige Bedeutung auf diesem Gebiet verloren. Zur Frequenzkonversion in den gewünschten Bereich werden die Frequenzvervielfachung bzw. Summen- und Differenz-Mischung, optisch-parametrische Oszillatoren (OPO) und stimulierte Raman-Streuung (SRS) verwendet. Im Idealfall findet man ein Festkörperlaser-Material, dessen Abstimmbereich die erforderliche Wellenlänge oder zumindestens ein Vielfaches von ihr enthält.

Eine wichtige Eigenschaft ist die spektrale Breite der Laserlinie. Der heute am häufigsten eingesetzte Laserkristall ist Nd:Yag. Er hat eine natürliche Bandbreite von 100 GHz [Eichler und Eichler, 1998] bei einer Grundwellenlänge von 1064,1 nm. Das entspricht einer Linienbreite von 0,377 nm. Es werden auch frequenzstabilisierte Nd:Yag-Laser, wie z. B. der Infinity der Firma Coherent Inc., mit einer Bandbreite von 250 MHz, d. h. einer Linienbreite von nur einem Picometer, angeboten. Bei Lasermedien mit breitem Emissionsspektrum kann durch dispersive Elemente (Prismen, Gitter, Lyot-Filter), Fabry-Perot-Etalons oder durch gleichzeitiges Anregen mit schmalbandigem Laserlicht der gewünschten Wellenlänge (seeding) die Ausgangsbandbreite eingeschränkt werden.

Die wichtigste Frage ist natürlich, ob die ausgesandte Laserenergie auch ausreicht, um nach der Rückstreuung noch ein Signal nachweisen zu können. Die Abschätzung vereinfacht sich, wenn man die Energie des Pulses E_0 in eine Anzahl Photonen N umrechnet:

$$N = E_0 \cdot \frac{\lambda}{h \cdot c}, \quad \text{Gl. 3-1}$$

wobei λ die Wellenlänge, h die Planck-Konstante und c die Lichtgeschwindigkeit sind. Damit kann die Intensität I in Gleichung 2-54 durch N ersetzt werden und bei bekannter Quanteneffizienz des Detektors der zu erwartende Strom berechnet werden.

Wellenlänge / nm	1064	532	400	355	280	266
Energie / mJ	8	4	20	150	1	1
Photonen / 10^{15}	43	11	40	268	1,4	1,3

Tab. 3-1 Photonenzahl pro Puls einiger für diese Arbeit verwendeter Laser.

Im Rahmen dieser Arbeit habe ich einen Blitzlampen-gepumpten Titan-Saphir-Laser¹ den Erfordernissen der Ozonmessung während Messkampagnen angepasst, und einen Ce:LiCaF₂-Laser mit schneller Wellenlängen-Umschaltung entwickelt. Zur optischen Anregung dient ein Dioden-gepumpter Nd:Yag-Laser mit einer Pulsfolge-Frequenz von einem kHz. Die verwendeten Laser werde ich im Folgenden noch genauer vorstellen.

3.1.2 Sendeoptik

Eine Sendestrahlaufweitung dient in erster Linie der Reduzierung der Strahldivergenz und macht die Laserstrahlung im Nahbereich verträglicher für die Augen. Die Divergenz reduziert sich um den Aufweitungsfaktor. Das hat den Vorteil, dass die Abbildung des Laserstrahls aus großen Entfernungen kleiner ist und deshalb auch der Sichtwinkel des Beobachtungs-Teleskops klein gewählt werden kann. Für monochromatisches Licht bietet sich ein Aufweitungsteleskop aus Linsen mit Antireflex-Beschichtung an. Will man mehrere Laserstrahlen unterschiedlicher Farbe auf einmal aufweiten, ist ein achromatisches Teleskop nötig. Ein Spiegelteleskop in off-axis-Anordnung ist dann die einfachste Lösung.

Für die Qualitätssicherung der Messung ist eine automatische Richtungsjustierung des Sendestrahls sehr wichtig. Nur so kann bei jeder Messung eine objektive Einstellung des Laserstrahls zum Sichtfeld des Teleskops gefunden werden. Dies trifft insbesondere auf Messungen in der planetaren Grenzschicht zu, da man hier dazu neigt, den Beginn des nutzbaren Entfernungsbereichs in Richtung Messgerät zu verschieben, so dass es passieren

1. Ti:Al₂O₃: Titan-dotiertes Aluminiumoxid

2. Cerium-Ionen (Ce³⁺)-dotiertes Lithiumkalziumaluminiumfluorid (LiCaAlF₆)

kann, dass der Strahl in großer Entfernung das Teleskopsichtfeld teilweise wieder verlässt. Als Vergleichswert ist das Integral unter dem Signal in möglichst großer Entfernung geeignet.

Für viele Messungen ist es außerdem sinnvoll, die Richtung der Messung frei wählen und schnell verändern zu können. Als Scanner werden vor allem bewegliche Spiegel und Periskope, mit denen gleichzeitig Sende- und Empfangsstrahl umgelenkt werden, eingesetzt. Leider führt das, besonders mit zunehmendem Alter der Spiegel, zu großen Reflexionsverlusten und sinkender Reichweite. Zum schnellen Scannen werden auch Keilplatten oder rotierende Keilscheiben verwendet. Bei dem in dieser Arbeit neu entwickelten Lidar werden alle Sendestrahlungen über Prismen im Mittelpunkt der Drehachse der Teleskopaufhängung umgelenkt.

In diesem Zusammenhang möchte ich auf das Thema Augensicherheit eingehen. Die gesetzlichen Bestimmungen für Laser-Anwendungen sind in Bezug auf Laser-Fernerkundungsmessungen nicht eindeutig interpretierbar. Grenzwerte für die Bestrahlung von Haut und Augen können anhand der Angaben aus Abschnitt 13, DIN EN 60825-1 - „Sicherheit von Laser-Einrichtungen, Teil 1, Klassifizierung von Anlagen, Anforderungen und Benutzerrichtlinien“ oder der Unfallverhütungsverordnung Laserstrahlung VBG¹ 93 bestimmt werden. In Tabelle 3-2 sind die maximal zulässigen Bestrahlungsstärken (MZB) für Augen und Haut aufgeführt. Zur höchsten Schutzklasse (4) zählen Laser, die diese Werte übertreffen. Werden Laser mit einer Schutzklasse ab 3B für Messungen im Freien benutzt, muss ihr Strahl sichtbar sein und ihre Verwendung angemeldet werden.

Für gepulste Laser gilt der Punkt aus folgender Liste, der die größte Einschränkung darstellt:

- die Bestrahlung durch jeden Einzelimpuls einer Impulsfolge darf nicht den MZB-Wert für einen Einzelimpuls überschreiten,
- die mittlere Bestrahlungsstärke für eine Impulsfolge darf nicht den MZB-Wert für einen Einzelimpuls übersteigen,
- die Bestrahlung durch jeden Einzelimpuls in der Impulsfolge darf die MZB des Einzelimpulses multipliziert mit dem Korrekturfaktor C5 (Tabelle 3-2) nicht übersteigen.

1. Vorschriften der Berufsgenossenschaft

Emissionsdauer t s									
	$< 10^{-9}$	10^{-9} bis 10^{-7}	10^{-7} bis $1,8 \times 10^{-5}$	$1,8 \times 10^{-5}$ bis 5×10^{-5}	5×10^{-5} bis 1×10^{-3}	1×10^{-3} bis 10	10 bis 10^3	10^3 bis 10^4	10^4 bis 3×10^4
180 bis 302,5	30 J·m ⁻²								
302,5 bis 315	3×10^{10} W·m ⁻²	C_1 J·m ⁻² ($t < T_1$)			C_2 J·m ⁻² ($t > T_1$)		C_2 J·m ⁻²		
315 bis 400		C_1 J·m ⁻²				10^4 J·m ⁻²	10 W·m ⁻²		
400 bis 550	5×10^6 C ₆ W·m ⁻²	5×10^{-3} C ₆ J·m ⁻²		$18 \cdot 10^{0,75}$ C ₆ J·m ⁻²		10^2 C ₆ J·m ⁻²		10^{-2} C ₆ W·m ⁻²	
550 bis 700						10^2 C ₃ C ₆ J·m ⁻² ($t > T_2$)		10^{-2} C ₃ C ₆ W·m ⁻²	
700 bis 1050	5×10^6 C ₄ C ₆ W·m ⁻²	5×10^{-3} C ₄ C ₆ J·m ⁻²		$18 \cdot 10^{0,75}$ C ₄ C ₆ J·m ⁻²			3,2 C ₄ C ₆ W·m ⁻²		
1050 bis 1400	5×10^7 C ₆ C ₇ W·m ⁻²	5×10^{-2} C ₆ C ₇ J·m ⁻²			$90 \cdot 10^{0,75}$ C ₆ C ₇ J·m ⁻²		16 C ₆ C ₇ W·m ⁻²		
1400 bis 1500	10^{12} W·m ⁻²	10^3 J·m ⁻²			$5600 \cdot 10^{0,25}$ J·m ⁻²		10^3 W·m ⁻²		
1500 bis 1800	10^{13} W·m ⁻²	10^4 J·m ⁻²							
1800 bis 2600	10^{12} W·m ⁻²	10^3 J·m ⁻²			$5600 \cdot 10^{0,25}$ J·m ⁻²				
2600 bis 10^6	10^{11} W·m ⁻²	100 J·m ⁻²	$5600 \cdot 10^{0,25}$ J·m ⁻²						

1) Für Korrekturfaktoren und Einheiten siehe „Hinweise zu den Tabellen III und IV“.
 2) Es gibt nur wenig Erfahrung über die Wirkung bei Bestrahlungsdauern unter 10^{-9} s. Die MZB-Werte für diese Bestrahlungsdauern wurden abgeleitet von der Bestrahlung bei 10^{-9} s.

Emissionsdauer t s					
	$< 10^{-9}$	10^{-9} bis 10^{-7}	10^{-7} bis 10	10 bis 10^3	10^3 bis 3×10^4
180 bis 302,5	30 J·m ⁻²				
302,5 bis 315	3×10^{10} W·m ⁻²	C_1 J·m ⁻² ($t < T_1$)		C_2 J·m ⁻²	
315 bis 400		C_1 J·m ⁻²		10^4 J·m ⁻²	10 W·m ⁻²
400 bis 700	2×10^{11} W·m ⁻²	200 J·m ⁻²	$1,1 \times 10^4 \cdot 10^{0,25}$ J·m ⁻²	2000 W·m ⁻²	
700 bis 1400	2×10^{11} C ₄ W·m ⁻²	200 C ₄ J·m ⁻²	$1,1 \times 10^4 \cdot 10^{0,25}$ J·m ⁻²	2000 C ₄ W·m ⁻²	
1400 bis 10^6	10^{11} W·m ⁻²	100 J·m ⁻²	$5600 \cdot 10^{0,25}$ J·m ⁻²	1000 W·m ⁻² 3)	

1) Für Korrekturfaktoren und Einheiten siehe „Hinweise zu den Tabellen III und IV“.
 2) Es gibt nur wenig Erfahrung über die Wirkung bei Bestrahlungsdauern unter 10^{-9} s. Die MZB-Werte für diese Bestrahlungsdauern wurden abgeleitet von der Bestrahlung bei 10^{-9} s.
 3) Für bestrahlte Hautflächen größer als 0,1 m² wird der MZB-Wert auf $100 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ verringert. Zwischen 0,01 m² und 0,1 m² verändert sich der MZB-Wert umgekehrt proportional zur bestrahlten Hautfläche.

Parameter	Wellenlängenbereich / nm
$C_1 = 5,6 \times 10^3 \cdot t^{0,25}$	302,5 bis 400
$T_1 = 10^{0,8 (\lambda - 295)} \times 10^{-15}$ s	302,5 bis 315
$C_2 = 10^{0,2 (\lambda - 295)}$	302,5 bis 315
$T_2 = 10 \times 10^{0,02 (\lambda - 550)}$ s	550 bis 700
$C_3 = 10^{0,015 (\lambda - 550)}$	550 bis 700
$C_4 = 10^{0,002 (\lambda - 700)}$	700 bis 1050
$C_4 = 5,0$	1050 bis 1400
$C_5 = N^{-14} \cdot **)$	400 bis 10^6
$C_6 = 1,0$ für $\alpha \leq \alpha_{\min}$	400 bis 1400
$C_6 = \alpha / \alpha_{\min}$ für $\alpha_{\min} \leq \alpha \leq \alpha_{\max}$	400 bis 1400
$C_6 = \alpha_{\max} / \alpha_{\min}$ für $\alpha > \alpha_{\max}$	400 bis 1400
$C_7 = 1,0$	1050 bis 1150
$C_7 = 10^{0,018 (\lambda - 1150)}$	1150 bis 1200
$C_7 = 8$	1200 bis 1400

*) Siehe MZB-Werte für die Haut
 **) C₅ ist nur für Impulsdauern kürzer 0,25 s anwendbar

Tab. 3-2 Maximal zulässige Bestrahlung (MZB) für direkte Einwirkung von Laserstrahlung auf die Hornhaut des Auges und die Haut, Definition der Korrekturfaktoren aus der Unfallverhütungsverordnung Laserstrahlung VBG 93 [VBG_93, 1995] <http://www.bc-verlag.de/uvven/93/inhalt.htm>, http://www.uni-bayreuth.de/ZT4/strahlenschutz/laser/uvv/guv220_f.htm.

Bei der Ermittlung der Leistungs- und Energiedichte sind Mittelwerte über Kreisflächen mit folgenden Durchmessern zu bilden: 1 mm im Bereich 180 - 400 nm und 7 mm im Bereich 400 - 1400 nm.

Als Beispiel zum besseren Verständnis der Tabellen möchte ich den von mir verwendeten Nd:Yag-Laser Starline von Lamda Physik anführen. Er hat bei 266 nm eine Pulsenergie von 1 mJ über einer Dauer von 10 ns und einen Strahldurchmesser von ca. 1,5 mm. Das ergibt eine Energiedichte von 566 J/m^2 . Der Grenzwert von 30 J/m^2 aus Tabelle 3-2 wird nach einer Aufweitung um den Faktor 6,5 unterschritten. Zu beachten ist jedoch, dass die Energie in der Strahlmitte wegen der gaußförmigen Verteilung wesentlich stärker ist und nur über 1 mm-Scheiben gemittelt werden darf. Da der Strahl selbst nach einer 10-fachen Aufweitung nur 15 mm Durchmesser hat, ist es möglich, die Grenzwerte zu unterschreiten. Bei 532 nm hat der Laserstrahl eine Energiedichte von 2263 J/m^2 . Der Strahldurchmesser muss mindestens um einen Faktor 22 aufgeweitet werden, um den hier gültigen Grenzwert von 5 mJ/m^2 zu unterschreiten. Er hätte dann einen Durchmesser von 33 mm. Damit lässt er sich gerade noch mit einem 2-Zoll/45°-Spiegel umlenken. Bei der Grundwellenlänge von 1064 nm liegt der Grenzwert bei 50 mJ/m^2 . Der Laser hat unaufgeweitet eine Energiedichte von 4530 J/m^2 pro Puls. Man liegt somit bereits nach einer 10-fachen Aufweitung des Strahls unter dem Grenzwert.

Mit der von mir für alle Wellenlängen verwendeten 10-fach Aufweitung überschreitet nur der sichtbare Kanal den Grenzwert um einen Faktor 4. Damit kann das Gerät für Außenmessungen eingesetzt werden. Schlimmer wäre es, wenn die nicht sichtbare UV- oder IR-Strahlung die Grenzwerte überschreiten würde. Dieses positive Resultat der Abschätzung ist auf die niedrige Pulsenergie und den dünnen Strahl des Lasers zurückzuführen. Beides ist nur mit einem diodengepumpten Laser und einer hohen Pulswiederholrate erreichbar. Herkömmliche Laser haben einen 3- bis 6-fachen Strahldurchmesser und etwa 50 mal mehr Pulsenergie. Die nötige Aufweitung ist dann technisch nicht mehr möglich.

Natürlich nimmt die Energie entsprechend dem Lambert-Beer-Gesetz ab und der Strahldurchmesser entsprechend der Divergenz zu. Deshalb besteht die Gefährdung nur im Nahbereich. Von Fall zu Fall ist deshalb eine genaue Einschätzung der Lage und der möglichen Gefährdung erforderlich.

Als Sicherung nutzen wir ein umgebautes Schiffs-Radar. Durch die Montage auf eine rotierende schräge Platte kann damit der Bereich eines großen Kegels abgetastet werden, in dessen Mitte der Laserstrahl verläuft. Wenn ein Flugobjekt diesen Kegel quert, wird der Laserstrahl geblockt.

3.1.3 Empfangsoptik

Das in der Atmosphäre rückgestreute Laserlicht wird durch ein Teleskop auf einen Detektor abgebildet. Im einfachsten Fall befindet er sich im Brennpunkt des Teleskops. Meist muss das gestreute Laserlicht jedoch zuerst von unerwünschtem Hintergrundlicht getrennt oder in anderer Weise optisch verarbeitet werden (z. B. Polarisationsstrennung, Heterodyn-Empfänger, Filter). Kann die Optik nicht direkt am Teleskop befestigt werden, so ist eine Lichtleitfaser das Mittel der Wahl für die Ankopplung.

Die Empfangsoptik muss als Ganzes unempfindlich gegenüber zu erwartenden mechanischen und thermischen Einwirkungen sein. Außerdem muss die Effizienz der Detektion im gesamten erwünschten Entfernungsbereich konstant bleiben. Diese beiden Punkte sind der Schlüssel zu quantitativ auswertbaren Lidar-Messungen. Da sich die Abbildung im Nahbereich stark ändert, ist das Design einer Detektionsoptik für ein bodengestütztes Lidar zur Beobachtung der planetaren Grenzschicht eine besondere Herausforderung. Alle Komponenten müssen vorab optimiert und die möglichen Toleranzen genau bestimmt werden.

3.1.3.1 Das Teleskop

Im Bereich der Laser-Fernerkundung haben sich Spiegel-Teleskope [Sonnefeld, 1957] durchgesetzt. Sie bilden achromatisch ab und haben große Eintrittsöffnungen. Letzteres ist wichtig, da die Signalintensität proportional zum erfassten Raumwinkel $d\Omega = d^2_{\text{T}}/r^2$ (siehe Abbildung 3-1, Gleichung 2-54) ist. Dabei ist d_{T} der Teleskop-Durchmesser und r die Entfernung des Laserpulses vom Teleskop. Eine größere Eintrittsöffnung bzw. Teleskopfläche verstärkt die empfangene Lichtleistung. Leider bleibt diese einfache Möglichkeit, das Signal zu verstärken, auf Nachtmessungen beschränkt. Am Tag ist der Kontrast des Laser zum Hintergrundlicht der begrenzende Faktor für die Reichweite.

Die quadratische Entfernungsabhängigkeit bedeutet auch eine entsprechend starke Intensitätsabnahme des Signals, zu der noch die exponentielle Abnahme durch Streuprozesse entsprechend dem Lambert-Beer-Gesetz hinzukommt. So entsteht eine hohe Signaldynamik.

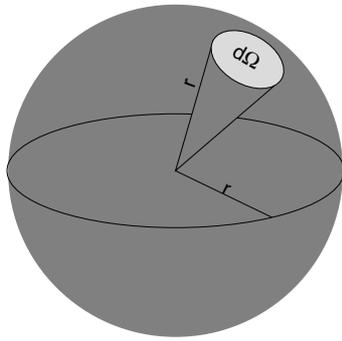


Abb. 3-1 Illustration des Raumwinkels $d\Omega$.

Der Raumwinkel $d\Omega$ wird als Verhältnis der aus einer Kugeloberfläche herausgeschnittenen Fläche zum Quadrat des Kugelradius gemessen. Als Einheit gilt derjenige räumliche Winkel, für den das Verhältnis von Kugeloberfläche $A_0 = 4\pi r^2$ zum Quadrat des Kugelradius den Wert 4π besitzt. Die Einheit ist Steradian [sr].

Diese Besonderheit bedarf bei der Konstruktion der Optik besonderer Berücksichtigung, wofür es verschiedene Möglichkeiten gibt.

Ein guter Photodetektor hat einen nutzbaren linearen Dynamikbereich von höchstens vier Größenordnungen. Es gibt leider noch keine Möglichkeit, die Verstärkung schnell genug nachzuregeln, um so während der Messung in einen anderen Bereich umzuschalten. In Abbildung 3-2 sind vier simulierte Lidarsignale dargestellt. Sie unterscheiden sich nur durch einen etwas unterschiedlichen „virtuellen“ geometrischen Aufbau des Lidar. So kann man erreichen, dass die Signale bei unterschiedlichen Entfernungen einsetzen. Dieser Effekt wird dynamische Kompression genannt. Man sieht, dass es auf diese Weise möglich ist, z. B. zwischen 100 m und 2 km, 1 km und 8 km, 10 km und 42 km oder 15 km und 55 km zu messen (Endpunkte der jeweiligen Messbereiche sind durch Pfeile gekennzeichnet), ohne die vier Größenordnungen in der Dynamik zu überschreiten. Dafür ist lediglich eine Änderung des Abstands zwischen Sendestrahl und Teleskop nötig. Wenn keine Möglichkeit besteht, den Laserstrahl und das Teleskop in ausreichender Entfernung zu positionieren, so kann für weiter entfernte Messbereiche ein mechanischer Schließmechanismus (shutter) verwendet werden. Hier bietet sich z. B. eine drehende Scheibe mit einem Loch an. Um den Öffnungsvorgang auf wenige Kilometer zu begrenzen, muss sie sich mit einigen hundert Hertz oder besser einem kHz drehen.

Will man vom Boden aus die planetare Grenzschicht vermessen, sollte das Signal möglichst weit unten beginnen. Aus den simulierten Signalen in Abbildung 3-2 geht hervor, dass man vor einer schwierigen Entscheidung steht. Beginnt die Messung bei 100 m, ist sie bereits bei 2 km wieder beendet. Bei diesem Beispiel war es außerdem erforderlich, für den 100-m-Bereich den Durchmesser der Eintrittsblende auf 5 mm zu erweitern, um mit dem Teleskop ($f = 1200$ mm, $F_{\#} = 3$) schon so nah messen zu können. Für Aerosol-Messungen

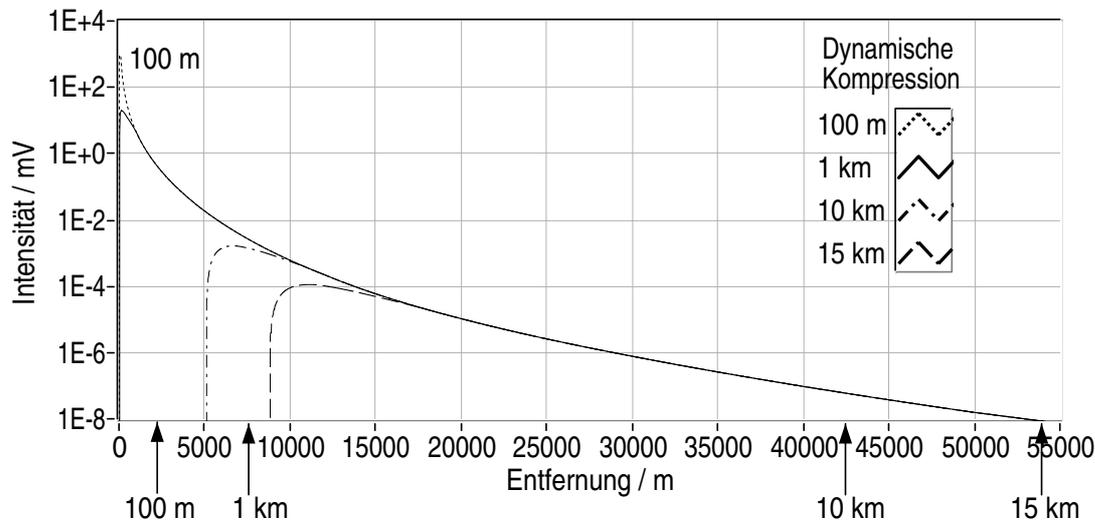


Abb. 3-2 Intensitätsverlauf simulierter Lidar-Signale (@355 nm) mit 4 verschiedenen dynamischen Kompressionen. Angenommen wurde ein Aufbau entsprechend dem DIAL-System auf der Charité-Station mit einem Teleskop: $d = 400$ mm, $f = 1200$ mm, Faser-Durchmesser 1 bzw. 1,5 mm und Sendestrahl 100 mm, Divergenz 0,25 mrad. Für die dynamische Kompression von 1 km wurde ein Teleskop-Strahl-Abstand von 270 mm, für 10 km 3000 mm und für 15 km 5000 mm gewählt. Der Signalbeginn bei 100 m wurde durch eine hypothetische „Faser-Öffnung“ von 5 mm erreicht. Die Pfeile kennzeichnen das jeweilige Ende des Messbereichs, wenn ein Detektor verwendet würde, der ein Signal mit einer Dynamik von 10^4 erfassen kann.

ist ein Signalende innerhalb der planetaren Grenzschicht völlig inakzeptabel. Zur Auswertung muss das Signal bis in die freie Troposphäre reichen. Das Beispiel soll zeigen, dass es bei Grenzschichtmessungen im Gegensatz zu Messungen in der Stratosphäre auf ein sehr sorgfältiges Design ankommt. Das liegt daran, dass nur parallele Strahlen ein Bild in der Brennebene erzeugen würden (Abbildung 3-4). Sonst läge es dahinter. Dieser Bedingung nähert man sich an, wenn sich der Puls vom Teleskop entfernt. Deshalb ändert sich die Größe des Lichtflecks in der Brennebene im Nahbereich besonders stark.

Die zu erwartenden Signale können entsprechend den Streueigenschaften der Atmosphäre und den Parametern der Sende- und Empfangsoptik mit Hilfe eines entsprechenden Programms simuliert werden. In Abbildung 3-3 sind die geometrischen Zusammenhänge grafisch dargestellt. Die gesuchte Funktion der dynamischen Kompression $\eta(r)$ ergibt sich aus dem Verhältnis der Detektorfläche $A_D = \frac{\pi}{4}d_D^2$ zu der vom rückgestreuten Licht ausgeleuchteten Fläche $A_F = \frac{\pi}{4}d_F^2$ in der Brennebene des Teleskops und aus der Verschiebung derselben bei nicht rotationssymmetrischer Anordnung von Sendestrahl und Teleskop. Die Auswertung der meisten Messungen ist erst möglich, wenn diese Funktion den Wert 1 erreicht hat bzw. konstant bleibt.

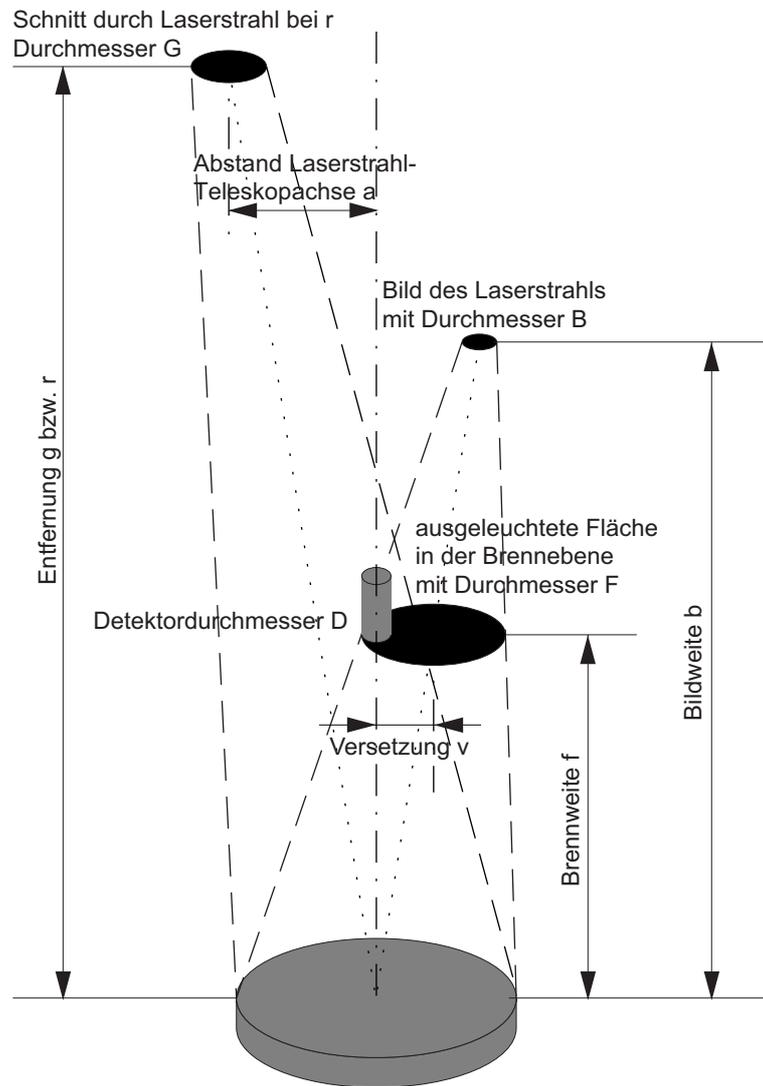


Abb. 3-3 Schema zur Abbildung des Laserpulses auf den Detektor durch ein Teleskop.

Wird der Laserstrahl direkt auf der optischen Achse des Teleskops gesendet, so sind nur die Abbildung des auf unendlich eingestellten Teleskops im Nahbereich und die Abschattung durch den Sekundär- und Sendespiegel von Bedeutung. Verläuft der Strahl dagegen neben der Teleskopachse, so führt dies noch zu einer Verschiebung des Bildes wie in Abbildung 3-3 dargestellt. Der Durchmesser des Laserstrahls G im Fernfeld (entspricht Gegenstandsgröße) bei der Entfernung r (entspricht Gegenstandsweite g) ist gleich der Summe aus dem Durchmesser beim Verlassen der Sendeoptik L_0 und dem Produkt aus der Laserdivergenz δ_L (in mrad) und der Entfernung r :

$$G = L_0 + r \cdot \delta_L . \quad \text{Gl. 3-2}$$

Bei einem Anfangsdurchmesser von 20 mm und einer Divergenz von 0,1 mrad hat der Schnitt durch den Puls in 1 km Entfernung demzufolge einen Durchmesser von 120 mm und erreicht bei 10 km entsprechend 1,02 m. Den kleinsten Durchmesser hat die Abbildung aus dem Nahbereich nicht in der Brennebene des Teleskops, sondern in der Bildebene, deren Bildweite b mit der Gleichung $f^{-1} = g^{-1} + b^{-1}$ für die in Abbildung 3-3 dargestellte Anordnung berechnet werden kann. Bei einer Optik, die für eine scharfe Abbildung aus allen Entfernungsbereichen auf die gleiche Bildebene konstruiert wurde, wie etwa bei einem Photoapparat, wird die Brennweite entsprechend der Gegenstandsweite durch ein Objektiv nachgeregelt. Bei einem schnellen Laserpuls ist dies nicht möglich.

Die durch das Rückstreulicht ausgeleuchtete Fläche in der Brennebene hat einen Durchmesser $F = (B \cdot f + T \cdot (b - f)) / b$. Dabei sind B und T die Durchmesser des Bildes und des Teleskops, f und b sind die Brenn- und die Bildweite. Da wir keine direkten Informationen über die Bild-Parameter haben, ersetzen wir sie mit Hilfe der Abbildungsgleichung $f^{-1} = g^{-1} + b^{-1}$ und des Abbildungsmaßstabs $B/G = f/g - f = (b - f)/f$. Die Variablen g und G stehen für Gegenstandsweite und -Durchmesser. Diese sind bekannt. Sie entsprechen der Entfernung und dem Durchmesser des Laserpulses. Damit erhalten wir folgende Gleichung:

$$F = \frac{G + T \cdot f}{g} = \frac{L_0 + r \cdot \delta_L + T \cdot f}{g} \quad \text{Gl. 3-3}$$

Wird neben der Teleskopachse gesendet, kommt noch eine Versetzung der ausgeleuchteten Fläche in der Brennebene c hinzu.

$$v = \frac{f \cdot a}{r} \quad \text{Gl. 3-4}$$

Die Grundvoraussetzung für eine vollständige Erfassung des Rückstreusignals durch den Detektor außerhalb der geometrischen Kompression ist natürlich, dass der Öffnungswinkel des Teleskops ($\delta_T = D/f$) größer als die Laserdivergenz ist. In die Laserdivergenz ist auch die Richtungsstabilität bei Mehrmoden-Lasern einzubeziehen.

Der Gesamtentwurf einer Detektor-Optik umfasst zwei Schritte. Zuerst müssen die atmosphärischen Streuprozesse und die entfernungsabhängige Abbildung des Streulichts auf einen Detektor simuliert werden. Für diese Aufgabe wurde eigens ein Programm entwickelt. Danach müssen die Abbildungseigenschaften genau berechnet werden, um das Design zu optimieren und die Toleranzen zu spezifizieren. Ray tracing wird bei der Entwicklung von Optiken benutzt, um die Eigenschaften des Lichtfeldes an jedem Punkt des Designs

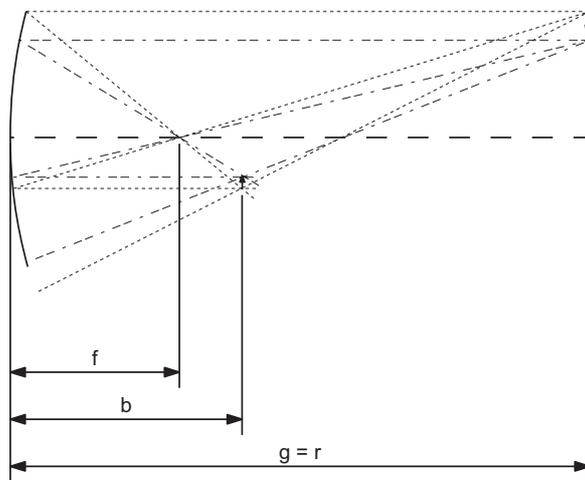


Abb. 3-4 Der sphärische bzw. parabolische Konkavspiegel.

Für die Konstruktion der Abbildung eines Gegenstandes durch einen Spiegel reichen drei Strahlen, die die Ober- und die Unterkante des Gegenstandes berühren.

- Strahlen parallel zur optischen Achse schneiden diese nach der Reflexion im Brennpunkt bei der Brennweite f .
- Strahlen durch den Brennpunkt, verlaufen nach der Reflexion parallel zur optischen Achse.
- Strahlen durch die Schnittpunkte der beiden genannten Strahlen werden in sich selbst zurückreflektiert.

Das Bild befindet sich zwischen den Schnittpunkten in der Bildweite b .

überprüfen zu können. Dafür werden Lichtstrahlen simuliert, die an jeder Grenzfläche zwischen zwei Medien entsprechend der Oberflächenform und dem Brechungsindex-Unterschied ihre Richtung ändern. Diese Methode wird auch sequential ray tracing genannt. Non-sequential ray tracing gestattet auch das Aufspalten von Strahlen und somit Streulicht-Analysen und dergleichen mehr. Für Berechnungen dieser Art wurde das Programm Zemax [Focus Software, 2001] verwendet.

Zur Optimierung der Oberflächenformen von Spiegeln und Linsen reicht es, die kugelförmige Standard-Oberfläche zu verwenden. Wenn die optische Achse mit der z -Achse zusammenfällt, wird die Oberflächenform durch folgende Formel beschrieben:

$$z = \frac{cr^2}{1 + \sqrt{1 - (1+k)c^2r^2}}, \quad \text{Gl. 3-5}$$

wobei c die Oberflächenkrümmung (Reziproke des Krümmungsradius), r der radiale Achsenabstand und k die Konizität sind. Letztere ist:

- $k < -1$ für Hyperbeln,
- $k = -1$ für Parabeln,
- $-1 < k < 0$ für Ellipsen,
- $k = 0$ für Kugeln,
- $k > 0$ für oplate Ellipsoide.

Um den Krümmungsradius in Bezug auf eine Ellipse mit dem Umfang z und kleiner und großer Halbachse (a , b) zu erhalten, können folgende Formeln verwendet werden:

$$c^{-1} = R = \pm b^2/a, \quad k = -\varepsilon^2 = -(a^2 - b^2)/a^2. \quad \text{Gl. 3-6}$$

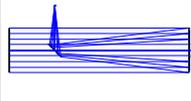
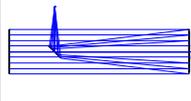
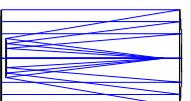
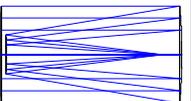
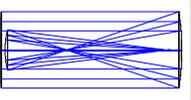
Typ	Hauptspiegel	Sekundärspiegel	Eigenschaften	Skizze (Zemax)
Sphärisches	sphärisch		- starke sphärische Aberration (Spot 0.2 mm) - einfach und billig	
Newton	paraboloid, konkav $k = -1$	evtl. planer Umlenkspiegel	- keine sphärische Aberration (Spot $2,8 \cdot 10^{-14}$ mm) - starkes Koma - leichter Astigmatismus - leichte Bildfeldkrümmung - mechanisch instabil	
Cassegrain	paraboloid, konkav $k = -1$	hyperbolisch, konvex $k = -1$	- keine sphärische Aberration (Spot $2 \cdot 10^{-10}$ mm) - starkes Koma - leichter Astigmatismus - starke Bildfeldkrümmung - schwer herstellbar	
Dall-Kirkham	prolater Ellipsoid, konkav $-1 < k < 0$	sphärisch, konvex	- geringe sphärische Aberration (Spot $2 \cdot 10^{-4}$ mm) - starkes Koma - leichter Astigmatismus - starke Bildfeldkrümmung	
Gregorianisches	paraboloid, konkav $k = -1$ kurze Brennweite mit $F\# < 3$ nicht herstellbar	ellipsoid, konvex $-1 < k < 0$	- keine sphärische Aberration (Spot $2 \cdot 10^{-11}$ mm) - leichtes Koma - leichter Astigmatismus - leichte Bildfeldkrümmung - lang, schwer herstellbar	

Abb. 3-5 Teleskop-Typen

3.1.4 Tageslichtfilter

Zwischen dem Detektor und dem Teleskop befindet sich eine Optik, die das Signal je nach Spektralbereich auf verschiedene Detektoren aufteilt und das breitbandige Hintergrundlicht gegenüber den schmalen Laserlinien unterdrückt. Das ist besonders bei schwachen Streusignalen, wie sie z. B. durch Raman-Streuung entstehen, eine große Herausforderung. Es ist notwendig, die Signalwellenlänge mindestens um einen Faktor 10^4 , besser 10^6 , gegenüber dem Hintergrund hervorzuheben, um eine befriedigende Reichweite bei der Messung zu erreichen. Das ist durch Monochromatoren und Interferenzfilter erreichbar. Durch Kombination beider Verfahren [Behrendt, 2000] oder durch die Verwendung von Etalons kann die Unterdrückung noch verbessert werden. Ein wichtiger Punkt ist eine gute Justierbarkeit und Stabilität gegenüber Temperatur- und Feuchtigkeitsschwankungen, da das Ziel auch hier nicht die Demonstration im Labor, sondern der Einsatz bei Messungen ist.

3.1.4.1 Monochromator

Monochromatoren bestehen mindestens aus einem Ein- und einem Austrittsspalt und einem dispersiven Element. Manche Typen enthalten weitere Optik zur Verbesserung der Abbildungseigenschaften. Sie haben den Vorteil, dass ein optisches Element ausreicht, um mehrere Spektralbereiche voneinander zu trennen. Gerade bei Verwendung abstimmbarer Laser-Quellen kann der Tageslichtfilter so sehr leicht auf den Laser eingestellt werden. Für Messungen im ultravioletten Spektralbereich verwenden wir ein holographisches Konkav-Gitter mit kurzer Brennweite und geringer Dispersion (z. B. 4 nm/mm Spaltöffnung), so dass sowohl On- als auch Off-Wellenlänge auf den Detektor gelangen. So lässt sich der gleiche Detektor und Digitalisierer für zwei Signale verwenden. Eventuelle Nichtlinearitäten heben sich so bei der Auswertung auf. Bei Messungen eines anderen Spurengases kann dann sowohl der Laser als auch der Monochromator auf die Absorptionswellenlänge abgestimmt werden. Bei der Konstruktion eines Monochromators ist besonders auf eine Abschirmung des Detektors gegenüber internem Streulicht zu achten. Da moderne, für einen Wellenlängenbereich optimierte holographische Gitter (Blaze-Gitter) eine ausgeprägte Abhängigkeit des Reflexionsgrades von der Polarisationsrichtung des einfallenden Lichts zeigen, muss dies bei der Ausrichtung gegenüber der Polarisationssebene der Laserstrahlung berücksichtigt werden, um Verluste gering zu halten. Das Reflexionsvermögen erreicht je nach Hersteller, Spektralbereich und Polarisation Werte zwischen 10 und 80 %.

Bei fester Wellenlänge λ erzeugt ein Gitter mehrere Beugungsordnungen. Bei Einfall von Licht unter dem Winkel α auf das Gitter ist der Beugungswinkel β durch

$$\sin \alpha + \sin \beta = \frac{m \cdot \lambda}{d} \quad \text{Gl. 3-7}$$

gegeben. d ist der Gitterabstand und m die Beugungsordnung. Rotes Licht wird am Gitter stärker gebeugt als blaues. Die Schärfe der Beugungsmaxima nimmt mit der Zahl N der beleuchteten Gitterstriche zu, so dass sich für das optimale Auflösungsvermögen:

$$\frac{\lambda}{\Delta \lambda} = N \cdot m \quad \text{Gl. 3-8}$$

ergibt.

3.1.4.2 Interferenzfilter

Für feste Wellenlängen bieten sich die seit einiger Zeit erhältlichen schmalbandigen Interferenzfilter mit hoher Transmission an. Die Linienbreite des Bandpasses sollte der des Lasers

zuzüglich der Toleranzen und Schwankungen durch Temperatur und Feuchtigkeit und der Linienverbreiterung durch die Streuprozesse entsprechen.

Die Zentralwellenlänge λ_0 eines Bandpass-Interferenzfilters ändert sich in Abhängigkeit vom Winkel φ des einfallenden Lichts zur Flächennormalen:

$$\lambda(\varphi) = \lambda_0 \cdot \frac{\sqrt{n_e^2 - (\sin \varphi)^2}}{n_e} \quad \text{Gl. 3-9}$$

Sie ist also eine Funktion des effektiven Brechungsindex n_e und wird unempfindlicher auf Winkeländerungen mit größeren Brechungsindizes. In jedem Fall ist die Zentralwellenlänge kleiner für nicht senkrechten Einfall eines parallelen Lichtbündels. Außerdem verringert sich die maximale Transmission, der Bandpass wird breiter und die Transmissionskurven für verschiedene Polarisierungen werden unterschiedlicher. Die wichtigste Anforderung neben der Bandbreite ist die Unterdrückung von Licht auch außerhalb des Bandpasses. Für Vibrations-Raman-Messungen ist mindestens eine Unterdrückung um einen Faktor 10^4 erforderlich. Außerdem muss bei der Auswahl eines schmalen Bandpass-Filters die Empfindlichkeit der Beschichtung auf Temperatur- und Feuchteschwankungen beachtet werden.

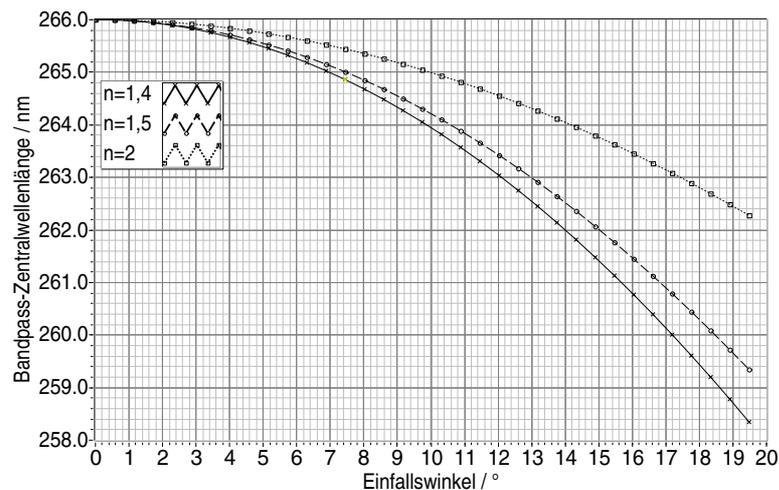


Abb. 3-6 Beispiel für die Verschiebung der Zentralwellenlänge eines UV-Bandpassfilters durch Änderung des Einfallswinkels.

3.1.5 Detektoren und digitale Erfassung der Messdaten

Als Detektor mit großem, linearem Dynamikbereich für sehr geringe Lichtintensitäten kommen im ultravioletten und sichtbaren Spektralbereich Sekundärelektronenvervielfacher¹ und im nahen infraroten Bereich Halbleiter-Lawinen-Dioden in Betracht. Das Ausgangssi-

gnal kann auf zwei verschiedene Arten gemessen werden. Ein Photonen-zähler erfasst alle Einzelereignisse, die einen Strompuls oberhalb einer Diskriminatorschwelle am Ausgang des Detektors erzeugen. Die Zählrate innerhalb festgelegter Zeitintervalle t ergibt dann das digitale zeitliche Signal. Ein Transientenrekorder glättet zunächst das Eingangssignal mit einem Tiefpass (Anti-Aliasing) auf mindestens die Hälfte der Abtastrate und wandelt es danach mit einem Analog-Digital-Wandler (ADC) mit einer festen Abtastrate in ein digitales Signal um. Die Zeitintervalle für die Zählrate und die Abtastfrequenz werden optimal so gewählt, dass sie gleich der Laserpuls-Dauer oder wenig länger sind. So erhält man die maximale Anzahl unabhängiger Intensitätsmessungen des Rückstreusignals. Für eine typische Pulslänge von 10 bis 30 ns, also einen 3 bis 9 m langen Puls, entspricht das einer erforderlichen Abtastfrequenz zwischen 30 und 100 MHz.

Das erreichbare Signal-zu-Rausch-Verhältnis wird durch einen der folgenden Punkte begrenzt:

- das thermische Rauschen, auch Nyquist-Rauschen (Johnson-Noise) - die Rausch-Leistung in Watt entspricht $P = kT \Delta f$, ist also von der Temperatur und der Bandbreite des Messgerätes abhängig,
- das Schrotrauschen (shot noise), auch statistisches Rauschen genannt - in Halbleitern ist es das Generations-Rekombinations-Rauschen,
- Schwankungen des Strahlungs-Hintergrunds,
- elektro-magnetische Einkopplungen in Übertragungskabel und das Leitungsnetz.

In allen praktischen Fällen, in denen die Pulsbreite im Vergleich zum Kehrwert der Folge-rate kurz und die Pulsamplitude höher als das thermische Rauschen sind, sind Teilchenzählmethoden die effektivsten Messtechniken. Im Photonen-zähl-Betrieb werden die Sekundärelektronenvervielfacher mit einer festen Hochspannung betrieben, die so gewählt wird, dass ein möglichst gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis gewährleistet ist. Bis zu einer bestimmten Zählrate sind Einzelpulse unterscheidbar. Die Intensität der Pulse unterscheidet sich durch die spektrale Empfindlichkeit des Kathodenmaterials und Mehrfachzählereignisse. Die Diskriminatorschwelle wird so festgelegt, dass die Pulse des Dunkelrauschens unterdrückt werden und gleichzeitig keine Einfachpulse verloren gehen. Die richtige Einstellung findet man, indem die Schwelle variiert wird. Bei sehr niedrigen Schwellwerten

erhält man die größte Zählrate. Erhöht man sie, nimmt die Zählrate zunächst ab, bis sie ein längeres Plateau erreicht. Dort liegt der optimale Arbeitspunkt. Wird der Schwellwert weiter mit feiner Abstufung erhöht, findet man eventuell einige Intensitätsstufen, die die verschiedenen Mehrfachzählereignisse kennzeichnen.

Die Wahrscheinlichkeit $p(n,t)$, im Zeitpunktintervall t eine Anzahl Photonen n bei einer mittleren Zählrate \bar{n} zu detektieren, lässt sich mit der Poisson-Verteilung vorhersagen [Saleh und Teich, 1991]:

$$p(n, t) = \frac{\bar{n}^n}{n!} \cdot e^{-\bar{n}} \quad \text{Gl. 3-10}$$

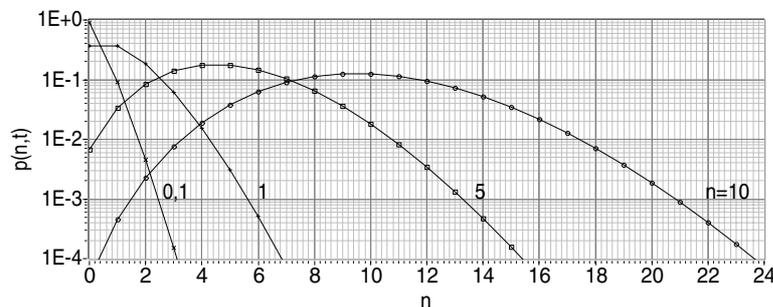


Abb. 3-7 Poisson-Verteilung der Photonenzahl n für verschiedene Zählraten.

Bemerkenswert ist nun, dass die Varianz σ^2 dieser Verteilung gleich ihrem Mittelwert ist. Daraus folgt, dass die Standardabweichung σ sich mit der Wurzel der Zählereignisse verringert, und das Signal-zu-Rausch-Verhältnis unbegrenzt, aber immer langsamer, mit der Zählrate zunimmt ($\text{SNR} = \bar{n}$).

Technisch bedingt gibt es eine Totzeit τ nach jedem Zählereignis. Während dieser Periode werden die eintreffenden Photonen nicht verstärkt. Demzufolge ist die Zählrate scheinbar geringer. Die Abweichung von der Poisson-Statistik lässt sich mit der Näherungsformel [Johnson et al., 1966]

$$p(n, t) = \frac{\bar{n}_0^n}{n!} \cdot e^{-n_0} \cdot \left(1 + n(\bar{n}_0 - n + 1) \cdot \frac{t}{\tau} \right) \quad \text{Gl. 3-11}$$

berechnen. Differenziert man $F(n): \frac{d}{dn} F(n) = \frac{d}{dn} \left[\frac{(n+1)p(n+1, t)}{p(n, t)} \right]$, so ist das Ergebnis proportional zu $-2\bar{n} \tau/t$. Die Totzeit kann also als Anstieg einer Geraden durch lineare Regression bestimmt werden [Matthias, 2000].

Parameter	00, -03, -06	-01, -04	-02	Einheit
spektrale Empfindlichkeit @ 420 nm für die Typen H5773P/H5783P	$4,3 \cdot 10^4$ $6,2 \cdot 10^4$	$3 \cdot 10^4$ $6 \cdot 10^4$	$2,9 \cdot 10^4$	A/W
effektive Detektorfläche		8		mm
max. Ausgangsstrom über 30 s		100		μA
Dunkel-Strom (Typ./Max.)	0,2 / 2	0,4 / 4	2 / 10	nA
Dunkel-Zählrate	80/400	500/1000		1/s (cpc)
Puls-Anstiegszeit		0,78		ns
Steuerspannung		0,25 ... 0,9		V

Tab. 3-3 Spezifikationen der Photodetektorröhren der Firma Hamamatsu.

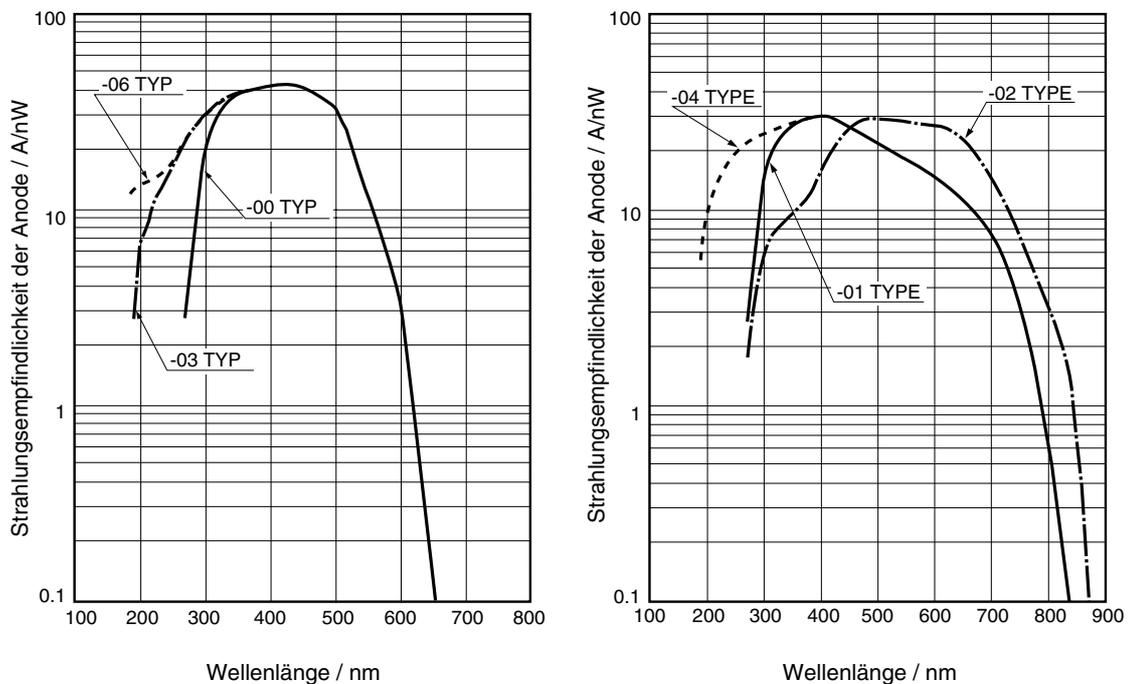


Abb. 3-8 Spektrale Empfindlichkeit der kompakten Sekundärelektronenvervielfacher-Module (Typ H5773/ H5783/ H6779/ H6780) der Firma Hamamatsu bei einer Steuerspannung von 0,8V (1V - max. Verstärkung).

In der Praxis des Photonenzählens ist die Poisson-Verteilung nur anwendbar, wenn das zeitliche Auflösungsvermögen Δt des Detektors, inklusive der Zähllektronik, viel kleiner ist als der Kehrwert der Wiederholrate eintreffender Photonen. Bei großen Zählraten geht die Poisson-Verteilung in die Gaußsche Normalverteilung über.

Besonders bei Messungen am Übergang der planetaren Grenzschicht zur freien Troposphäre und an Wolken muss häufig ein Signal mit extremen Intensitätsgradienten erfasst werden. Die Zählraten ändern sich dann so schnell, dass der Photonenzählbetrieb ausge-

geschlossen ist. In diesem Fall muss das analoge Stromsignal direkt mit einem Analog-Digital-Wandler gemessen werden. Vor der Wandlung wird das Signal durch einen Anti-Alias-Tiefpassfilter mit einer Grenzfrequenz kleiner als die halbe Abtastrate des Wandlers geglättet.

Die Messdatenerfassung muss sowohl über einen Dynamikbereich von etwa vier Größenordnungen linear arbeiten als auch an die Ausgangsströme und Impedanz der Photodetektoren optimal angepasst sein und die schnelle Übertragung großer Datenmengen für die digitale Abspeicherung stabil gewährleisten. Die riesigen Mengen an Rohdaten müssen dann verwaltet und ausgewertet werden. Qualitative Ergebnisse, wie z. B. die Messung der Wolkenhöhe, sind bereits mit einem einfachen Oszilloskop erzielbar. Ein Problem entsteht dann, wenn mit den Messdaten gerechnet werden soll. Fast alle Inversionsmethoden erfordern die Ableitung des Signals bzw. des logarithmierten Quotienten zweier Signale. An dieser Stelle wird das System sehr empfindlich gegen jede zusätzliche Rauschquelle und Nichtlinearität, die innerhalb des riesigen Signal-Intensitäts-Bereichs von typischerweise $10 \mu\text{V}$ bis 100mV auftritt.

Neben der Laser-Entwicklung ist daher die Nutzbarmachung der modernsten Signalwandler- und Photonenzähl-Technologie das Hauptbetätigungsfeld vieler Fernerkundungs-Gruppen. Trotz der Ausreizung des derzeit Möglichen ist hier die Grenze für Verbesserungen noch nicht erreicht.

Für die Übertragung der Daten zum Computer gibt es verschiedene Strategien. Generell werden sowohl computerinterne als auch -externe Wandlermodule verwendet. Meine Tests kommerzieller Computer-Karten haben ergeben, dass Wandler ab einer Digitalisiergenauigkeit von 12 Bit hier nicht ausgenutzt werden können. Mit den anfallenden Daten kann direkt im Wandlermodul oder im Computer gerechnet werden. Berechnungen in einem Signalprozessor nahe dem Wandler müssen asynchron zur Wandlung erfolgen, da die Spannungsschwankungen durch den Rechenprozess die Wandlung beeinflussen. Als günstig hat sich hier eine möglichst variable Strategie erwiesen, um sich an die Messaufgabe und die atmosphärischen Bedingungen anpassen zu können.

3.1.6 Infrastruktur

Die lokale Infrastruktur am Messort hat sich häufig als Handikap für die Fernerkundungs-Messtechnik erwiesen. Ein besonderes Problem sind die Stabilität der Netzspannung

und die Klimatisierung. Bisher wurden die Geräte oft in einem zum Labor umfunktionierten Container oder Auto installiert. Je nach Budget kann man auf diese Weise relativ autark arbeiten. Die Unterhaltskosten sind jedoch enorm und der logistische Aufwand hoch. Eine Minimierung der Gerätegröße ist meiner Meinung nach entscheidend für erfolgreiche Laser-Fernerkundung.

3.2 Die Lidar-Station Charité

Nach der Wiedervereinigung Berlins und Deutschlands wurde der Plan gefasst, auf dem Hochhaus des Universitäts-Klinikums Charité eine Messstation für die Atmosphärenforschung mit Laser-Fernerkundungsverfahren aufzubauen. Der Gedanke, von diesem exponierten Ort aus Fernerkundung zu betreiben, war nicht neu. Das Ministerium für Staatssicherheit der DDR hatte auf dem Dach bereits ein Gebäude aus Holz und Glasfasergewebe errichtet, um aus dem Inneren unbemerkt den nahen Reichstag und andere Gebäude im Westteil der Stadt zu belauschen.

Im Herbst 1995 war dann die neue Messstation nach umfangreichen Umbauarbeiten entsprechend den gesamtdeutschen Normen hergerichtet.

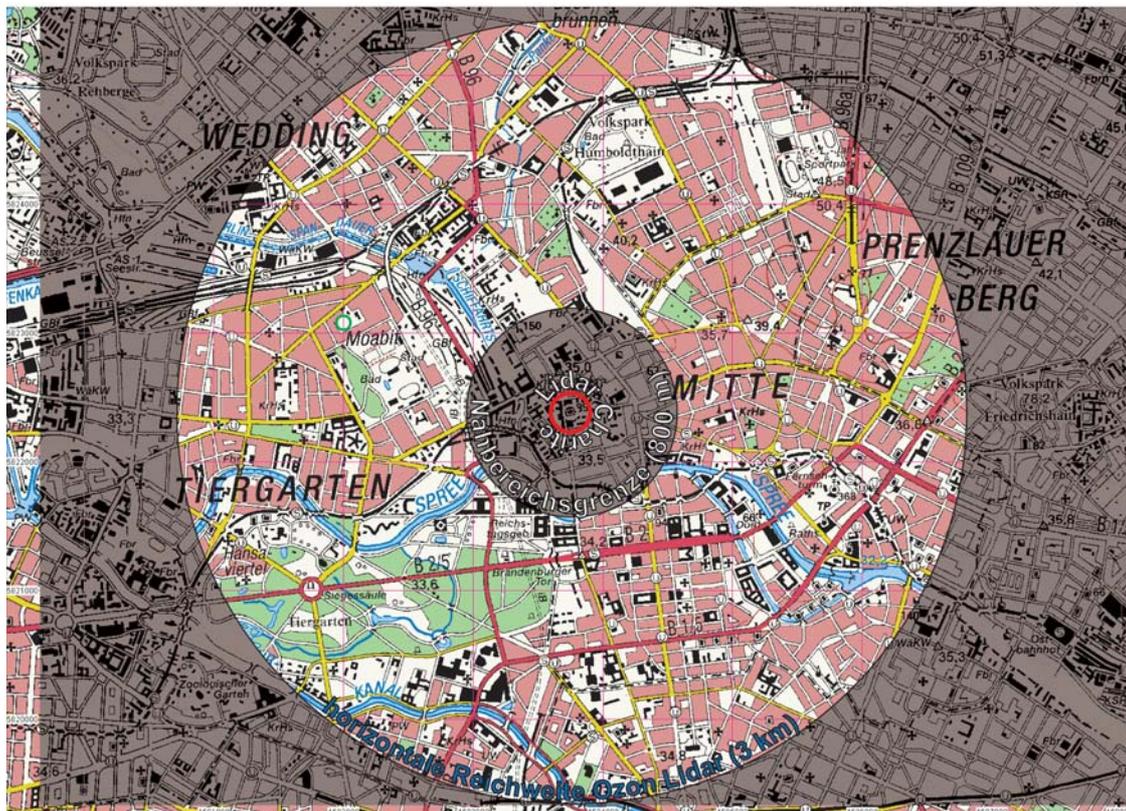


Abb. 3-9 Die Lidar-Messstation befindet sich im Zentrum Berlins auf dem Dach des Hochhauses des Universitäts-Klinikums Charité.

Die ersten Messungen wurden Anfang 1996 an stratosphärischem Aerosol durchgeführt. Zu dieser Zeit war das Interesse an den selten auftretenden Stratosphärenwolken (PSC¹) groß, da an den Wolken-Partikeln Chlor aus chlorierten Kohlenwasserstoffen freigesetzt wird, was zum Abbau von Ozon in der Ozonschicht führt. Allerdings erwartete man die Wolken nicht über Berlin, sondern weiter nördlich. Um so höher ist der Erfolg der ersten Messungen im Winter '96 einzustufen, bei denen zwei PSC-Ereignisse registriert wurden. Aus den Messungen konnten Eigenschaften wie Aerosol-Größenverteilung und -Brechungsindex bestimmt werden [Wedekind, 1997].

Gleichzeitig wurde ein Absorptions-Lidar zur Messung von Spurengasen in der planetaren Grenzschicht installiert. Es wurde während des groß angelegten BERLIOZ²-Experiments 1998 zum ersten Mal für umfangreichere Messungen verwendet. Erste Konzentrationsmessungen von Ozon und Toluol wurden bereits 1997 durchgeführt [Zimmer, 1997]. Leider erst am Ende der BERLIOZ-Kampagne, im August 1998, nahmen wir noch ein Aerosol-Lidar zur Untersuchung der Troposphäre in Betrieb [Immler, 1999]. Seitdem wird an der Verbesserung der vorhandenen Messmethoden, an Vergleichen mit anderen Messmethoden und mobilem Lidar [Herb, 2000] und natürlich an der Analyse der Berliner Luft gearbeitet.

Position:	geographische Koordinaten:	Länge:	O 13°22'47'' = 13.379826°
		Breite:	N 52°31'36'' = 52.526544°
	Gauß-Krüger-Koordinaten:	Rechtswert:	4.593.750 m
		Hochwert:	5.822.384 m
Höhe:	über Meeresspiegel:	135 m	
	über Grund:	100 m	
Lage:	Charité-Hochhaus Ecke Philippsstrasse/Luisenstraße		

Tab. 3-4 Lage der Laser-Fernerkundungs-Station der Freien Universität Berlin (Charité-Station).

3.2.1 Das Aerosol-Lidar der Charité-Station

Das Aerosol-Lidar im Zentrum Berlins wurde zur Erforschung der Stratosphäre im Höhenbereich zwischen 15 und 40 km konzipiert. Durch eine Erweiterung mit einem zweiten Empfangsteleskop sind nun auch Messungen im Bereich zwischen 200 m und 12 km möglich. Für das Tropo³-Aerosol-Lidar wird derselbe Nd:Yag-Laser mit Frequenzverdopplung

1. Polar Stratospheric Cloud

2. Berlin Ozon

und Verdreifachung, dieselbe Filter-Optik mit Detektoren und dieselben Signal-Digitalisierer und Photonen-zähler wie für das Strato¹-Lidar verwendet. Nur das Teleskop unterscheidet sie. Die doppelte Nutzung der Geräte machte die Tropo-Aerosol-Untersuchungen erst möglich, da dem Projekt keine eigenen Geldmittel zur Verfügung stehen.

Im Gegensatz zu dem mit einem Durchmesser von 600 mm recht großen Spiegel für die Stratosphäre kommt ein Spiegel mit nur 150 mm Durchmesser zum Einsatz. Das ist wichtig, da sich die Achse des Sendestrahls möglichst nahe der optischen Achse des Teleskops befinden muss, um ab einer Höhe von einigen hundert Metern auswertbare Signale zu messen (siehe Abbildung 3-2). Der Abstand zwischen den Achsen konnte je nach Sendekanal auf 100 bis 120 mm reduziert werden. Das gebündelte Licht wird bei beiden Teleskopen in eine 1-mm-Glasfaser eingekoppelt und in den Nachbarraum geleitet.

Dort befindet sich ein optisches Brett (breadboard) mit lichtdichter Abdeckung (Detektorbox). Da hinein gelangt das Licht beider Fasern. Für Stratosphären-Messungen befindet sich noch eine drehende Lochscheibe (chopper) im Strahlengang. Damit können Signale unterhalb einer frei wählbaren Höhe ausgeblendet werden. Weil Laserpulse in der Zeit bis zur vollständigen Öffnung bei der Drehzahl der Scheibe von 400 Hz bereits ein bis zwei Kilometer zurücklegen, ist das Verfahren für Nahbereichsmessungen nicht geeignet.

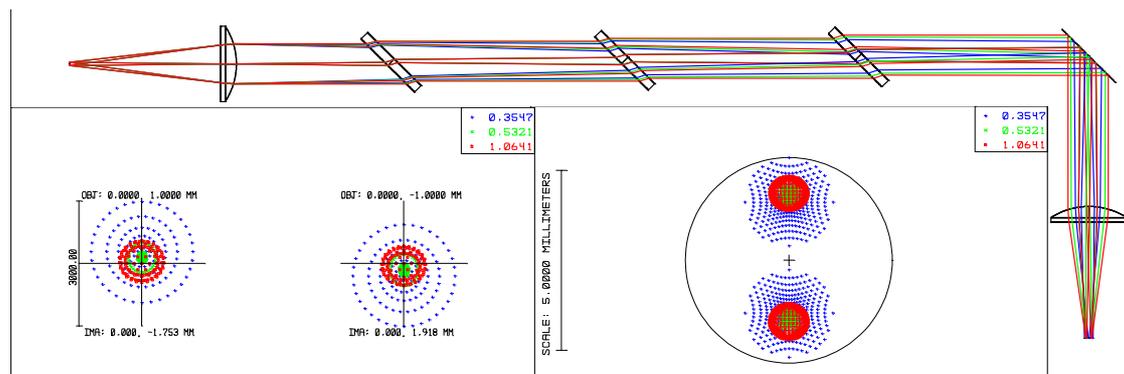


Abb. 3-10 Aufbau der Aerosol-Lidar-Detektorbox mit den Strahlen der drei Laser-Wellenlängen und der zwei Lichtleitfasern. Das Spot-Diagramm und der Fingerabdruck zeigen, wie der Lichtfleck im Brennpunkt der Sammellinse, also auf dem Detektor aussieht. Die Stahlteile reflektieren jeweils nur eine Farbe und transmittieren Licht längerer Wellenlänge (Hochpass). Zwischen der jeweiligen Umlenkung und der Sammellinse befindet sich noch ein schmalbandiger Interferenzfilter zur Unterdrückung des Tageslichts und der anderen Laserstrahlen.

3. Tropo steht für Troposphäre.

1. Strato steht für Stratosphäre.

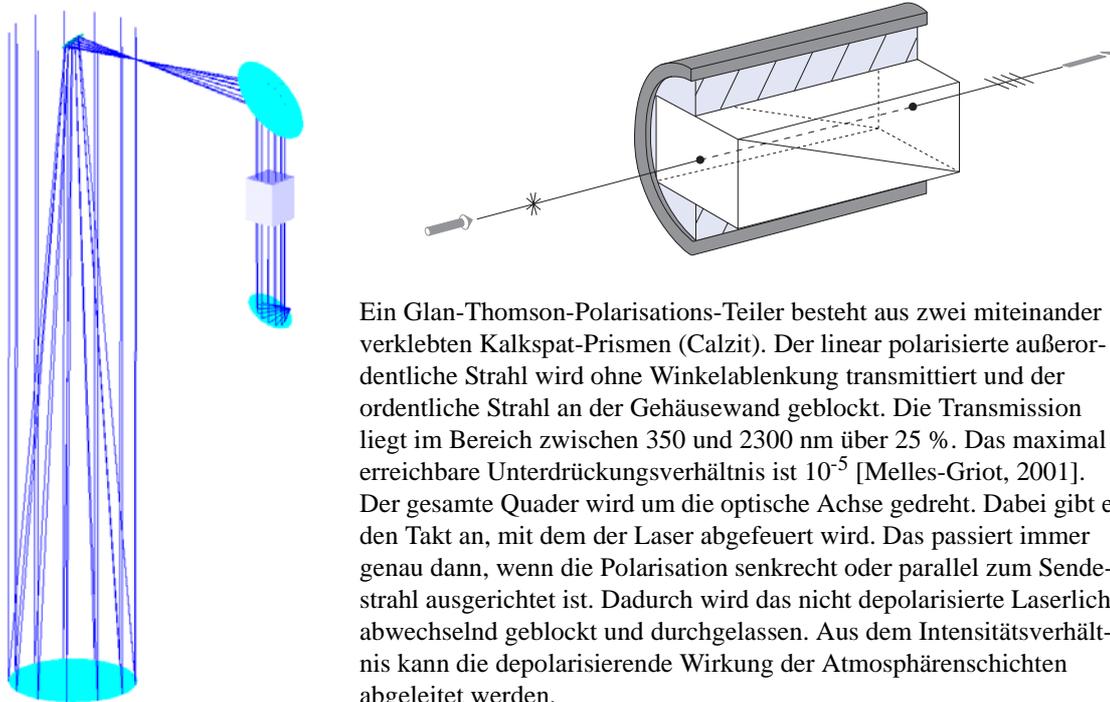
In der Detektionsbox wird das Licht zunächst mit einer Linse auf einen Strahldurchmesser von ca. 25 mm parallelisiert. Ein Spiegel wäre an dieser Stelle besser, da der Farbfehler der Linse eine Kollimation aller Wellenlängen zwischen 355 und 1064 nm nicht erlaubt. Eine weitere Schwierigkeit besteht darin, dass mit einer Optik das Licht aus beiden 1-mm-Fasern abgebildet werden muss. Die gesamte Optik wurde mit der Ray-Tracing-Methode simuliert. Das Ergebnis ist in Abbildung 3-10 zu sehen. Der Lichtfleck auf dem Detektor hat demnach mindestens einen Durchmesser von 2,8 mm. Das gilt natürlich nur, wenn sich der Detektor genau im Brennpunkt der Sammellinse befindet und die Eintrittslinse richtig justiert ist. Für das infrarote Licht ist das in der Praxis schwer nachzuprüfen. Die aktive Fläche der Sekundärelektronenvervielfacher hat einen Durchmesser von mindestens 6 mm, also gerade ausreichend Platz für den Lichtfleck. Anders sieht es mit der Detektions-Diode für 1064 nm aus. Sie hat nur einen Durchmesser von 1,5 mm. Das Signal aus großflächigen Dioden mit 5 mm Durchmesser rauscht zu stark [Immler, 1995]. Deshalb verwenden wir einen Strahlteiler und zwei getrennte Dioden für Strato- und Tropo-Messungen.

Das Tropo-Teleskop weist noch eine Besonderheit auf. Im Stahlgang befindet sich vor der Fasereinkopplung ein drehbarer Glan-Thomson-Polarisationsfilter. Laserschüsse werden nur abgefeuert, wenn die Durchlassrichtung der Polarisation senkrecht oder parallel zur Polarisation des Laserstrahls ist. So gelangt abwechselnd Licht der einen oder der anderen Polarisation zum Detektor. Das digitalisierte Signal wird dann für jede Farbe in zwei Kanälen gespeichert. Der Teleskop-Aufbau und die Funktionsweise des Polarisators sind in Abbildung 3-11 illustriert.

Die Signale der Detektoren werden mit einer zeitlichen Auflösung von 20 MHz, d. h. 7,5 m Punktabstand, als 12-Bit-Werte digitalisiert und können gleichzeitig durch einen 250-MHz-Photonen-Zähler mit 63-stufigem Diskriminator erfasst werden. Das Eingangssignal wird für die beiden Digitalisierungsmethoden (ADC¹, PC²) aufgeteilt. Für den ADC gibt es drei Eingangsspannungsbereiche: -20 mV, -100 mV und -500 mV. Die gewandelten Signale werden in Zwischenspeichern abgelegt. Hier können bis zu 4096 Signale addiert werden. Um denselben Wandler für alternierende Signale verwenden zu können, gibt es zwei Takt-Eingänge, die über den Zwischenspeicher entscheiden, in dem das jeweilige Signal aufgenommen werden soll. Der Messrechner kommuniziert durch eine Parallelbuskarte der

1. ADC: Analog to Digital Converter

2. PC: Poton Counting



Ein Glan-Thomson-Polarisations-Teiler besteht aus zwei miteinander verklebten Kalkspat-Prismen (Calzit). Der linear polarisierte außerordentliche Strahl wird ohne Winkelablenkung transmittiert und der ordentliche Strahl an der Gehäusewand geblockt. Die Transmission liegt im Bereich zwischen 350 und 2300 nm über 25 %. Das maximal erreichbare Unterdrückungsverhältnis ist 10^{-5} [Melles-Griot, 2001]. Der gesamte Quader wird um die optische Achse gedreht. Dabei gibt er den Takt an, mit dem der Laser abgefeuert wird. Das passiert immer genau dann, wenn die Polarisation senkrecht oder parallel zum Sendestrahle ausgerichtet ist. Dadurch wird das nicht depolarisierte Laserlicht abwechselnd geblockt und durchgelassen. Aus dem Intensitätsverhältnis kann die depolarisierende Wirkung der Atmosphärenschichten abgeleitet werden.

Abb. 3-11 Aerosol-Lidar-Teleskop mit Depolarisations-Detektor. Optische Komponenten:
 Parabolischer Hauptspiegel: $d = 150 \text{ mm}$, $f = 900 \text{ mm}$,
 Offaxis-Paraboloid als Kollimator und 90° -Umlenkspiegel: $d = 2''$, $f = 1,5''$,
 Glan-Thomson Prismen,
 Offaxis-Paraboloid zum Bündeln in eine Glasfaser ($d = 1 \text{ mm}$), 60° - Umlenkung: $d = 13,6 \text{ mm}$,
 $f = 1''$.

Firma National Instruments mit den Transientenrekorder genannten Wandlermodulen. Von hier können einzelne oder eine beliebige Anzahl gespeicherter Signale abgerufen werden. Während der Datenübertragung kann nicht gemessen werden.

In Abbildung 3-12 wird ein gemessenes mit einem berechneten Signal verglichen. Die dynamische Kompression stimmt gut mit der Simulation überein. Das bedeutet, dass Laserstrahl und Teleskop richtig aufeinander justiert waren. In der planetaren Grenzschicht ist das gemessene Signal stärker als das simulierte. Das liegt am hohen Aerosol-Gehalt dieser Schicht. Bei Messungen mit grünem Licht sind solche Schichten deutlich sichtbar. In einer Höhe von 600 m ist das Signal um 4 Größenordnungen schwächer. Ab hier ist das Signal-zu-Rausch-Verhältnis zu schlecht, um noch quantitative Auswertungen machen zu können. Treten jedoch Wolken auf, wie hier im Bereich um 11 km, so sind diese deutlich erkennbar.

Laser:	Typ:	Spectra-Physics GCR-4, 30 Hz, SHG ^a & THG ^b
	Energie bei 1064,1 nm:	500 mJ
	Energie bei 532,05 nm:	300 mJ
	Energie bei 354,7 nm:	100 mJ
Teleskop klein:	Durchmesser:	150 mm
	Brennweite:	900 mm
	effektive $F_{\#}$ an der Fasereinkopplung:	3
	Polarisationsfilter:	Glan-Thomson-Prismen
Teleskop groß:	Durchmesser:	600 mm
	Brennweite:	1800 mm
Lichtleitfaser:	Durchmesser:	1 mm, Quarz
Detektion:	Infrarot-Kanal 1064,1 nm:	Silizium-Lawinen-Diode von EG&G
	sichtbarer Kanal 532,05 nm:	EMI-Sekundärelektronenervielfacher-Röhre
	ultravioletter Kanal 354,7 nm:	Hamamatsu H 6780-03 Modul (Abbildung 3-8)
	Raman-Kanal 386,65 nm:	- " -
Elektronik:	Analog-Digital-Wandler:	12 Bit, 20, 100 und 500 mV, 20 MHz
	Photonenzähler:	250 MHz, 63 Diskriminatorstufen
	Kanäle pro Modul:	2 PC + 2 ADC Speicher getrennt taktbar
Messgrößen:	Rückstreuoeffizient β in $\text{m}^{-1}\text{sr}^{-1}$:	bei 1064,1 nm, 532,05 nm und 354,7 nm
	Extinktion α in m^{-1} :	bei 386,65 nm
	Depolarisation des Laserlichts durch die Atmosphäre für alle Kanäle	
Abgeleitete Größen:	Lidar-Verhältnis α/β in sr:	bei 386,65 nm bzw. 354,7 nm
	Grenzschichthöhe:	
	Aerosol-Charakterisierung nach Aggregatzustand (Depolarisation) und Herkunft (Lidar-Verhältnis):	
	Partikelanzahl:	Annahmen über Aerosol notwendig
	Aerosol-Größenverteilung:	zur sicheren Bestimmung ist die Extinktion bei mindestens einer weiteren Wellenlänge erforderlich [Böckmann, 2001]
	mittlerer Aerosol-Brechungsindex:	

Tab. 3-5 Eigenschaften des Aerosol-Lidar der Charité-Station.

a. SHG: Second Harmonic Generation

b. THG: Third Harmonic Generation

3.2.2 Spurengas-Lidar

Auf der Charité-Station wird derzeit noch ein weiteres Lidar betrieben. Es ist vor allem zum Nachweis von Spurengasen geeignet. Sie werden mit der Methode der differentiellen Absorption (DAS-Lidar oder DIAL)¹ gemessen. Das Licht für die Messungen wird mit einem Titan:Saphir-Laser erzeugt, der über einen weiten Wellenlängenbereich abstimmbare

ist. Der Laserstrahl und das Sichtfeld des Empfangsteleskops werden über einen gemeinsamen großen Spiegel, die Berta, umgelenkt. Durch sie ist die Blickrichtung des Laser-Fernerkundungsgerätes frei wählbar. Ihr Azimuth- und Elevationswinkel werden durch eine elektronische Steuerung vom Messrechner aus bestimmt. Nun wird auch der Vorteil unseres erhöhten Standpunkts über den Dächern von Berlin deutlich. Wie das umlaufende Licht eines Leuchtturms, nur viel gerichteter, kann das Lidar eine Halbkugel um und über uns abtasten. Selbst horizontale Laserstrahlen sind wegen der Gebäudehöhe keine Gefahr für die Menschen in der Stadt. In Abbildung 3-9 ist die durchschnittliche horizontale Reichweite für Ozon-Konzentrations-Messungen illustriert. Tabelle 3-6 enthält häufig verwendete Elevationswinkel und die mit ihnen erfassten Höhenintervalle unter der Voraussetzung, dass in einem Bereich zwischen 800 und 3000 m entlang des Laserstrahls gemessen werden kann.

3.2.2.1 Der abstimmbare Zwei-Wellenlängen-Festkörperlaser

Der wichtigste Schritt bei der Konstruktion eines Absorptions-Lidar ist die Auswahl bzw. die Entwicklung eines Lasers, der genau die erwünschten Farben hervorbringt. Mindestens zwei von der zu vermessenden Substanz unterschiedlich stark absorbierte Wellenlängen sind erforderlich. Die Spektralbereiche außerhalb des sichtbaren sind eindeutig vorzuziehen, da dort die Intensität der Sonnenstrahlung geringer ist. Das schwächere Hintergrundlicht führt zu einem besseren Signal-zu-Rausch-Verhältnis und einer größeren Reichweite. Der ultraviolette Spektralbereich ist dem infraroten überlegen, da im UV-Bereich die Rayleigh-Streuung über die Aerosol-Streuung dominiert. Das führt zu stärkeren und gleichmäßigeren Signalen.

Wir verwenden einen Titan:Saphir-Laser mit Blitzlampen. Das ist recht ungewöhnlich, da aus heutiger Sicht stabil laufende Nd:Yag-Laser als optische Pumpe besser geeignet erscheinen. Dennoch ist nach einigem Experimentieren ein stabil laufender, optimal angepasster Laser entstanden, der es ermöglicht, Ozon- und NO₂-Konzentrationen zu messen. Im Abstimmbereich der dritten Harmonischen der Grundfrequenz liegen noch eine Vielzahl weiterer Absorptionsbanden interessanter Spurengase, deren Konzentration aber zur Zeit - zum Glück für die Umwelt - unterhalb der Nachweisgrenze unseres Verfahrens liegen.

1. DIAL: Differential Absorption Lidar

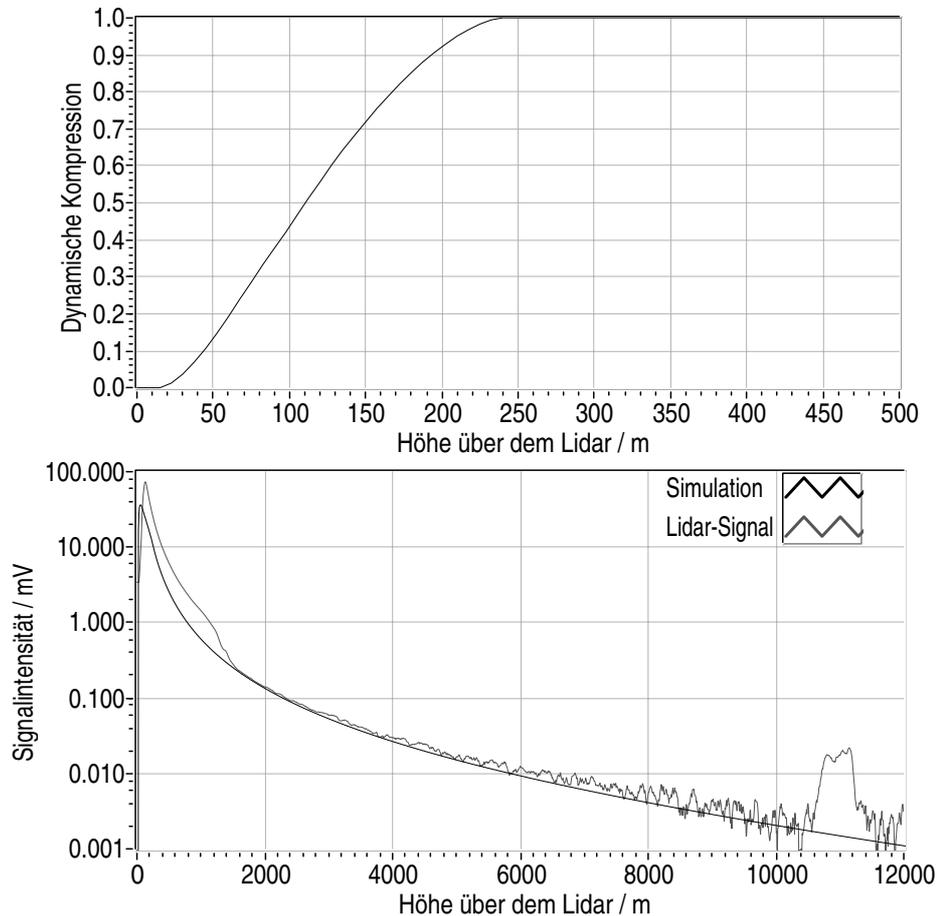


Abb. 3-12 Dynamische Kompression und Vergleich zwischen gemessenem und simuliertem Signal des Aerosol-Lidar der Charité-Station (532 nm, parallel zum Laser polarisiert, 2000 Schüsse gemittelt). Das gemessene Signal ist in der planetaren Grenzschicht und an der Tropopause etwas stärker als das berechnete Signal. Das liegt an der verstärkten Rückstreuung durch Aerosol bzw. Wolkentropfen, die in der Simulation nicht berücksichtigt wurden. Das Signal wurde am Nachmittag des 25.8.1999 gemessen.

Reichweite / m	Winkel / °							
	0°	4°	8°	15°	30°	35°	90°	
800 m	100	156	211	307	500	559	900	
3000 m	100	309	518	876	1600	1821	3100	

Tab. 3-6 Höhenintervalle über dem Boden für die am häufigsten verwendeten Elevationswinkel der Berta unter der Annahme eines auswertbaren Messbereichs zwischen 800 und 3000 m entlang des Laserstrahls.

Die Grundlagen des Titan:Saphir-Lasers wurden in den letzten Jahren ausführlich diskutiert [Hoffstädt, 1995, Kolenda, 1993, Frey, 1997]. Trotzdem blieb seine Anwendung schwierig und ist in entscheidendem Maße vom persönlichen Erfahrungsschatz des Betreibers abhängig.

Laser:	Typ:	Blitzlampen-gepumpter Ti:Al ₂ O ₃ ^a , SHG & THG
	Grundwellenlänge:	760 bis 866 nm; zwischen 120 und 150 mJ
	SHG:	380 bis 433 nm; zwischen 10 und 20 mJ
	Energie der THG:	255 bis 288 nm; zwischen 0,7 und 2 mJ
	Kalibration:	McPherson-Gitter-Monochromator mit Diode
	Energie-Monitor:	Molelectron-Bolometer
	Divergenz:	3,5 mrad
	Durchmesser:	5 mm
Sendeteleskop:	Offaxis-Parabol-Spiegel und achromatische Streulinse	
	Linse:	f = -100
	Teleskop-Durchmesser:	100 mm
	Brennweite:	2000 mm
	Aufweitung:	x 20
	Laserdivergenz nach Aufweitung:	175 µrad, Durchmesser 100 mm
Empfangsteleskop:	Durchmesser:	400 mm
	Brennweite:	1200 mm
	Lichtleit-Faser:	1,5 mm, Quarz
	F-Zahl:	3
	Sichtfeld:	1,25 mrad
Umlenkspiegel:	Beschichtung:	Aluminium enhanced uv
	Größe:	600 mm x 1300 mm
	Steuerung:	
Detektion:	Tageslichtfilter:	Gitter-Monochromator
	spektrale Auflösung:	4 nm pro 1 mm Eintrittsspalt
	NO ₂ -Interferenz-Filter:	CWL ^b : 397,66 ± 0,66 nm, HW ^c = 2 ± 0,5 nm
	Detektor:	EMI UV-Sekundärelektronenvervielfacher-Röhre
Elektronik:	Analog-Digital-Wandler:	12 Bit, 20, 100 und 500 mV, 20 MHz
	Photonenzähler:	250 MHz, 63 Diskriminatorstufen
	Kanäle:	2 PC + 2 ADC Speicher getrennt taktbar
Messgrößen:	Konzentration:	Ozon, NO ₂ , Toluol, SO ₂
	Rückstreukoeffizient β in m ⁻¹ sr ⁻¹ :	in Spektralbereichen ohne Molekular-Absorption
abgeleitete Größen:	Lidar-Verhältnis α/β in sr:	Da gleichzeitig ein Aerosol-Lidar betrieben wird, können die damit gemessenen Aerosoleigenschaften in die DIAL-Auswertung einbezogen werden (siehe DIAL-Klett [Immler, 1999]).
	UV:Extinktion in 1/m:	

Tab. 3-7 Eigenschaften des Spurengas-Lidar auf der Charité.

a. Titan-Saphir

b. Center Wavelength

c. Half Width

Im Laser-Oszillator sorgen drei hintereinander gestellte Prismen für eine Einschränkung des Spektralbereichs des emittierten Lichts auf etwa 1 \AA . Diese Linienbreite gilt allerdings nur pro Schuss. Im Mittel über 1000 Schüsse liegt sie dann bereits bei 1 nm . Mit einem Etalon ließen sich die dafür verantwortlichen Lasermoden einfach unterdrücken, wenn da nicht zu viele Punkte sehr hoher Energiedichte (hotspots) im Strahlprofil wären. Diese bearbeiten jedes Material, mit Ausnahme von Saphir, im Strahlengang des Oszillators, so dass die Oberfläche bald aussieht, als wäre ein Fingerabdruck darauf. Damit schwindet die Ausgangsenergie. Erfreulicherweise funktioniert eine (wenn auch energieverschwenderische) Methode, die Linienbreite der zweiten und vor allem der dritten Harmonischen einzuschränken. Für die Frequenzverdopplung wird ein LBO¹- und für die Verdreifachung ein BBO²-Kristall verwendet. Die Linienbreite ist dann durch den kleinen Phasenanpassungswinkel auf ca. $1,5 \text{ \AA}$ beschränkt. Der Abstimmbereich des Lasers ist durch die Reflektivität der dielektrisch beschichteten Oszillatorspiegel vorgegeben. Durch ihre maximale Reflektivität oberhalb des Maximums der Titan:Saphir-Verstärkungskurve (ca. 760 nm) liegt das Maximum der Ausgangsenergie bei 840 nm . Das ist wichtig, um durch Frequenzverdreifachung den günstigsten Spektralbereich für Ozon- und SO_2 -Messungen zu erreichen.

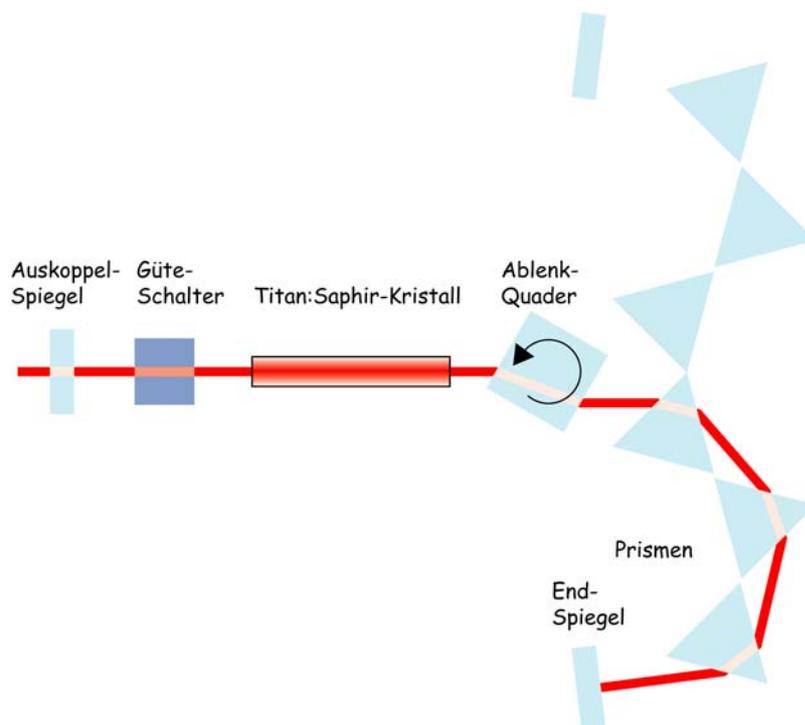


Abb. 3-13 Titan:Saphir-Laser mit Zwei-Wellenlängen-Oszillator

1. Lithium Triborat
2. Beta Barium Borat

Die Hauptarbeit bestand in der Optimierung des Oszillator-Designs. Das wurde dringend notwendig, da zwei der sehr teuren Laserstäbe unbrauchbar geworden waren. Im Inneren hatten sich kleine Bläschen gebildet, die zu starker Streuung führten und so den Kristall irreversibel unbrauchbar machten. Durch eine Anpassung der Krümmung und der Reflektivität des Auskoppelspiegels konnte die Ursache behoben werden. Der Laser-Oszillator ist nun sehr stabil und läuft mit vielen Moden. Das führt zu einem fast rechteckigen Strahlprofil und einer hohen Divergenz von 3,5 mrad, was eigentlich ungünstig für Lidar-Anwendungen ist. Die sichtbarste Veränderung nach dem Re-Design war, dass ein vorher nicht zu unterdrückendes Pre-Lasing nun bei guter Justage der Pockels-Zelle verschwand. Meine Annahme ist, dass durch das Vorab-Lasen kleine Bereiche im Moment des eigentlichen Schusses bevorzugt waren (seeding) und dort die thermische Beanspruchung zu mechanischen Veränderungen (Blasenbildung) führte. Zusätzlich wurde der gesamte Strahlengang im Laser verrohrt und ein elektrischer Schließmechanismus (shutter) im Oszillator angebracht. So kann der Strahlengang erst dann freigegeben werden, wenn alle Teile ihre Betriebstemperatur erreicht haben (etwa 20 min nach dem Einschalten). Die Wellenlänge und die Energie des Lasers werden mit einem Spektrometer und einem Bolometer ständig überwacht. Das hierfür notwendige Licht wird am letzten Umlenkspiegel vor dem Aufweitungsteleskop abgezweigt, der nur blaues und UV-Licht, nicht aber die Grundfarbe des Lasers reflektiert.

Außerdem waren umfangreiche Veränderungen am Laser-Netzteil notwendig, um die elektromagnetischen Abstrahlungen auf ein akzeptables Maß zu reduzieren.

3.2.2.2 Signalempfang und Erfassung

Das Empfangsteleskop besteht aus einem parabolischen Spiegel mit einem Durchmesser von 400 mm und einer Brennweite von 1200 mm. Im Brennpunkt befindet sich eine Quarzfaser mit einem Durchmesser von 1,5 mm. Durch sie wird das Licht über eine Entfernung von 6 m in den Detektionsraum geleitet. Auf diese Weise werden Laser und Detektor räumlich getrennt, um die Störungen durch elektromagnetische Abstrahlung gering zu halten. Im Detektionsraum gelangt das Licht zunächst in einen kleinen Gittermonochromator mit einem sphärischen Konkavgitter ($f = 150$ mm). Die Abbildung und Furchenanzahl des Gitters sind genau so gewählt, dass sich mit der durch den Faserdurchmesser (1,5 mm) gegebenen Eintrittsöffnung eine Auflösung von 6 nm ergibt (Gitterdispersion: 4 nm pro 1 mm Spaltöffnung). Wenn das Gitter staubfrei ist, erreicht man auf diese Weise eine Unterdrück-

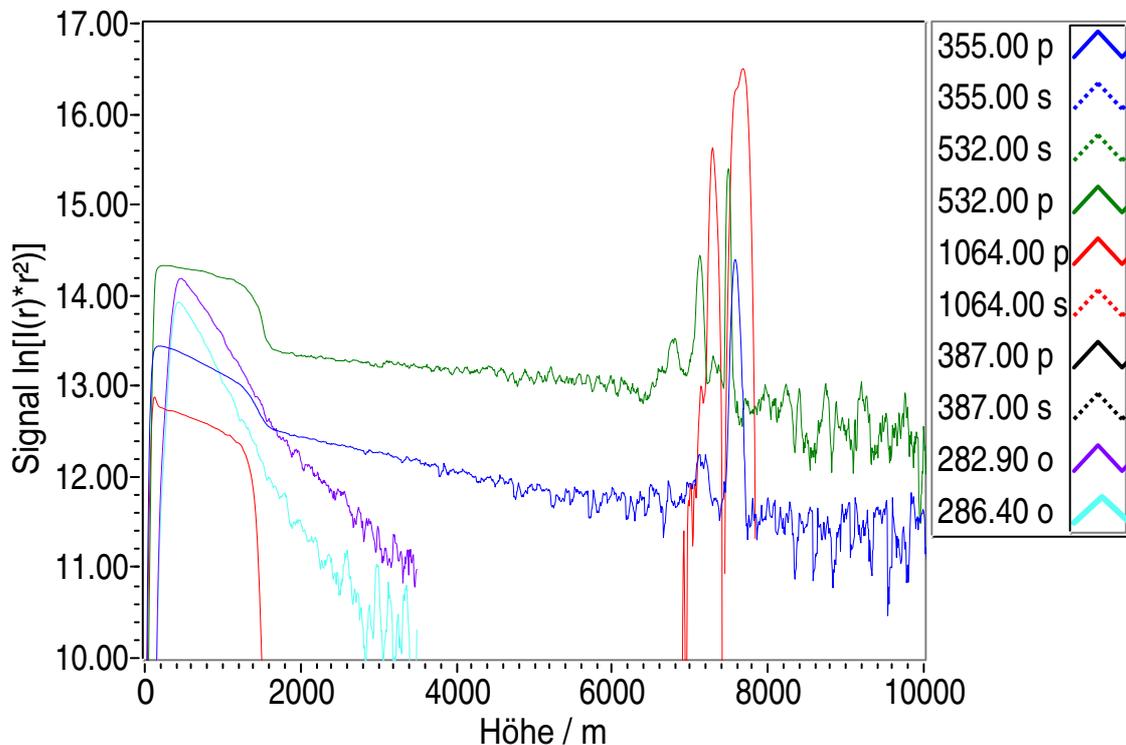


Abb. 3-14 Rückstreusignale des Lidar-Systems der Charité-Station.

kung des Hintergrundlichts um 4 Größenordnungen. Die Transmission durch den Monochromator liegt je nach Polarisation des Lichts zwischen 60 und 40 %. Am Ausgang wird das Licht durch einen UV-sensitiven Sekundärelektronenvervielfacher nachgewiesen. Als Wandler wird das gleiche Modul verwendet, das bereits im Abschnitt über das Aerosol-Lidar beschrieben wurde. Sowohl das stark als auch das schwach absorbierte Signal werden mit nur einem Detektor nachgewiesen und danach mit derselben Elektronik verarbeitet. Erst nach dem Analog-Digital-Wandler werden sie in verschiedene Speicher abgelegt. Durch dieses Konzept werden Fehler vermieden, die durch unterschiedliche Detektor- und Elektronik-Eigenschaften entstehen.

Das Lidar kann wahlweise mit oder ohne den großen, bereits erwähnten Umlenkspiegel namens Berta betrieben werden. Ein großes Problem eines solchen Spiegels ist die schnell schwindende Reflektivität. Eigentlich müsste Berta jedes Jahr neu beschichtet werden. Weil sie so groß und schwer ist, geht das aber nicht. Bei einigen Umlenkwinkeln reflektiert sie gerade noch 10 %. Hier gibt es also ein großes Potenzial für Verbesserungen. Interessant ist der Vergleich zwischen der Form des Signals mit und ohne Spiegel. Nur wenn Teleskopsichtfeld und Laserstrahl völlig parallel sind, haben die Signale mit und ohne Spiegel die

gleiche Form. Der Vergleich dient deshalb als Kontrolle für eine perfekte Alinierung von Sendestrahl und Teleskopsichtfeld.

3.3 Das Kilohertz-Lidar

Ein Projekt der Deutschen Bundesstiftung Umwelt hat es uns finanziell ermöglicht, die Vorteile von Lasern mit der hohen Wiederholrate von einem Kilohertz zu ergründen. Wir begannen 1997 mit dem ehrgeizigen Projekt, die Spurengasmessung durch Anwendung abstimmbarer UV- und IR-Laser zu verbessern. Am Anfang des Projekts stand die Entwicklung der Laser. Diese schwierige Aufgabe sollte an der Universität Kaiserslautern mit neuen OPO¹ gelöst werden, die mit industrietauglichen diodengepumpten Festkörperlasern (DPSS-Laser²) angeregt werden. Nach zwei Jahren Projektlaufzeit stellte sich jedoch heraus, dass der Pump-Laser nicht genügend Energie hat, um mit den OPO die erforderlichen Spezifikationen zu erreichen. Die Kosten für einen stärkeren Laser lagen über dem Budget. Daraufhin wurde beschlossen, Lidar-Messungen direkt mit dem bereits im Projekt vorhandenen Laser zu machen und einen durchstimmbaren UV-Laser auf andere Art zu bauen. Der IR-OPO befindet sich nun zum Ende des Projekts noch immer in Entwicklung. Durch den unerwarteten Projektverlauf haben sich bei den weiteren Arbeiten ganz neue Aspekte für Laser-Fernerkundungsmessungen aufgetan. Durch den zur Verfügung stehenden Laser und eine eigens für hohe Wiederholraten entwickelte Detektionsoptik und -elektronik konnten die Möglichkeiten und Grenzen zeitlich extrem hochauflösender Messreihen erforscht werden.

3.3.1 Vorteile und Grenzen hoher Pulswiederholraten

Weil die Verwendung hoher Pulswiederholraten eine Neuerung auf dem Gebiet der Laser-Fernerkundung darstellt, werden zunächst einige allgemeine Überlegungen über zu erwartende Vorteile und methodische und technische Probleme bei ihrer Nutzbarmachung angestellt.

Die Grenze bei der Erhöhung der Wiederholrate liegt methodisch bedingt bei einigen Kilohertz. Bevor der nächste Puls abgefeuert wird, sollte der vorhergehende bereits genügend Abstand gewonnen haben, damit sein Rückstreusignal sich nicht mit dem des Nachfolgers

1. Optisch-parametrischer Oszillator

2. Diode-Pumped Solid State Laser

überlagert. Bei einem Kilohertz liegt eine Millisekunde zwischen den Schüssen, was einem Abstand von 300 km entspricht. Der Abstand sollte, je nach Design der Detektionsoptik, nicht kleiner als 200 bis 30 km, also 1,5 bis 10 kHz werden.

Weiterhin stellt sich die Frage, welche Prozesse mit einer so hohen Abtastrate beobachtet werden sollen und welche technologischen Vorteile ein solcher Laser bringen könnte. Chemisch bedingte Konzentrationsveränderungen von Spurengasen oberhalb der Nachweisgrenze des DIAL-Verfahrens laufen viel langsamer, in Zeiträumen von Minuten bis Stunden, ab. Hier steht also eher die Verringerung der Nachweisgrenze im Vordergrund. Laser-Fernerkundungsverfahren benötigen mindestens eine Mittlungszeit von einigen Minuten, um Spurengaskonzentrationen zu messen.

Die Turbulenz in der planetaren Grenzschicht erzeugt Wirbel mit Ausdehnungen in der Größenordnung von 10^{-3} bis 10^3 m [Arya, 1988]. Jeder von ihnen kann das Laserlicht auf andere Weise streuen (Aerosol) oder brechen (Temperatur) und somit das Messsignal beeinflussen. Die durchschnittliche Windgeschwindigkeit kann etwa 30 m/s, d. h. 3 cm/ms, erreichen. Das bedeutet, dass die schnellsten Wirbel mit einer Ausdehnung entsprechend dem Durchmesser des Laserstrahls von z. B. 30 cm nur 10 ms brauchen, um ihn zu durchqueren. Hier zeigt sich, dass ein Kilohertz kein schlechter Wert ist, da man diesen Prozess mit 10 Schüssen vermessen könnte. Kleinere Wirbel als der Laserstrahl-Durchmesser werden natürlich keine bedeutende Spur im Signal hinterlassen. Es sollte also prinzipiell möglich sein, die Turbulenz in der planetaren Grenzschicht durch Rückstreuungsmessungen zu studieren.

Einen weiteren Vorteil bietet die hohe Wiederholrate, wenn die Richtung von Laserstrahl und Teleskop-Sichtfeld schnell veränderbar ist. Dann kann die Geschwindigkeit fliegender Objekte durch Korrelation von Signalen bestimmt werden. In erster Linie interessieren uns hier Wolken und Wirbel - aber auch künstliche Objekte wie Flugzeuge oder Raketen lassen sich so beobachten. Es scheint also durchaus lohnenswert, die entsprechende Technik zu entwickeln. Die besten Anwendungen offenbaren sich ohnehin selten durch Nachdenken, sondern im Experiment.

Die technischen Probleme zügeln schon eher die Phantasie. Wie groß muss die Energie eines Einzelpulses sein, damit Unterschiede zwischen den Rückstreusignalen nachweisbar sind? Im Vorfeld der Experimente ließ sich das nur durch Simulation oder Skalierung vorhandener Messungen auf die Ausgangsenergie des Kilohertz-Lasers abschätzen (siehe

Abbildung 3-16). Ein Schuss mit grünem Licht erzeugt im Aerosol-Lidar auf der Charité ein Rückstreusignal mit einem Maximum von ca. 200 mV bei 200 m Entfernung und einer Reichweite von 6 km, gemessen im Messbereich bis 500 mV mit 4096 Digitalisierstufen. Der dort verwendete Laser unterscheidet sich von unserem Kilohertz-Laser um einen Faktor 50 in der Wiederholrate (geringer) und der Ausgangsenergie (höher). Pulslänge (ca. 12 ns) und Durchschnittsleistung (ca. 5 W) sind etwa gleich. Das bedeutet, dass wir mit einem Signalmaximum von 4 mV und bei angepasstem Eingangsverstärker auch mit der gleichen Reichweite rechnen konnten. Trotz dieser Ermutigung mussten wir auf das Experiment warten, um herauszufinden, ob die Streuschwankungen aus dem Rauschen heraustreten.

Daran schließt sich auch schon die nächste Frage an. Wie schnell nacheinander können Signale mit hoher Qualität aufgezeichnet und gespeichert werden? Die Arbeit an diesem Problem machte den größten Teil der elektronischen Entwicklungsarbeit im Projekt aus. Insbesondere mussten Entscheidungen über Abstriche in der Leistungsfähigkeit getroffen werden, da sich nicht alles gleichzeitig optimieren lässt. Wir benutzen nun eine Transferkarte zum Rechner, mit der 60 MB/s übertragen werden können. Die Grenze ist leider bisher die maximale kontinuierliche Transferrate auf die Festplatten von ca. 36 MB/s. Der neu entwickelte Wandler digitalisiert die Werte mit 14 Bit, d. h. in 16384 Stufen und einer Geschwindigkeit von bis zu 60 MHz. Die Genauigkeit der feinen Digitalisierstufen lässt sich aber nur bis etwa 20 MHz ausnutzen. Wie in den Modulen im Lidar auf der Charité können Signale mit einer maximalen Länge von 16.000 Punkten intern addiert und in zwei Speichern pro Kanal zur Abholung bereit gelegt werden. Für das aktuelle Konzept sind vier Kanäle erforderlich. Bei einem Kilohertz Einzelschussmessung, 4 Kanälen, 4000 Messpunkten pro Kanal und 2 Byte Werten ergibt sich eine Übertragungsrate von 32 MB/s. Das ist also gerade noch realisierbar. Noch höhere Abstraten atmosphärischer Prozesse werden aber mit Sicherheit in Zukunft durch schnellere Rechentechnik möglich sein. Die genannten Details sind nur die Spitze des Eisbergs aller Spezifikationen und sollen verdeutlichen, wo derzeit die Grenzen liegen.

Ein weiteres Problem im Vergleich zu herkömmlichen Laser-Fernerkundungsverfahren besteht darin, dass durch die etwa 50 mal häufigeren Messungen mit einem 50stel der Pulsenergie der Kontrast der Laserstrahlung gegenüber dem Tageslicht viel schlechter ausfällt. Die Lösung besteht in einer optimalen Anpassung der optischen Bandpassfilter an die zu erwartende Linienbreite des erwünschten Rückstreusignals. Mit Molekülphysik und Theo-

rien der Aerosol-Streuung muss deshalb genau ausgelotet werden, was zu erwarten ist. Schmale Bandbreiten erfordern dann geringere Toleranzbereiche der Komponenten in der Detektionsoptik.

Um die Vorteile des Kilohertz-Lidar zu nutzen, müssen schnelle atmosphärische Prozesse durch kräftige Signale und langsame Prozesse durch Mittlung über viele Laserschüsse aufgenommen werden. Konzentrationsmessungen von Spurengasen im Sub-ppm-Bereich mit der DIAL-Methode gehören in die Kategorie der langsamen Messungen, für die Messzeiten von einigen Minuten erforderlich sind. Wenn die Fluktuation der einzelnen Schüsse gleichzeitig gemessen wird, können die daraus entstehenden Fehler bei der Mittlung abgeschätzt, verhindert oder korrigiert werden.

Ein weiteres Augenmerk gilt der Robustheit, Sicherheit und Verfügbarkeit der Laser. Diodengepumpte Festkörperlaser scheint im Moment bei industriellen Anwendungen die Zukunft zu gehören. Die Wiederholraten sind leider meist höher als 10 kHz, da erst hier ungepulste Dioden bei gutem Wirkungsgrad verwendet werden können. Außerdem verlangt die Industrie beim Löcherbohren und Belichten nicht nach den kurzen Pulslängen, die für uns notwendig sind. Trotzdem gibt es die Laser, die wir brauchen - z. B. den Starline der Firma Lambda Physik. Von anderen Firmen, wie Cutting-Edge, sind Komponenten zu haben, die wie Bausätze zusammenpassen. Dioden ermöglichen ein gleichmäßigeres und schmalbandiges optisches Pumpen im Vergleich zu Blitzlampen. Dadurch kann das Problem der thermischen Linse, die der Laserkristall bildet, besser optimiert werden. Auf diese Weise erhält man TEM₀₀-Einmoden-Laser mit geringen Pulsenergie- und Richtungschwankungen, dünnen Strahlquerschnitten von ca. 1 mm und somit auch hoher Konversionseffizienz für nichtlineare Prozesse. Die dünnen Strahlen sind auch aufgeweitet noch mit kleinen Optiken übertragbar. Wegen der geringeren Energiedichte ist die Augensicherheit höher und die optischen Elemente haben eine höhere Haltbarkeit.

3.3.2 Das Raman-Aerosol-Ozon-Wasserdampf-Lidar

Für die Klimaforschung und die Modellierung von Chemie und Ausbreitung von Luftschadstoffen stehen langfristige Messreihen der dreidimensionalen Verteilung des Aerosols, des Wasserdampfs und des Ozons derzeit an erster Stelle der Wunschliste. Mit den in diesem Kapitel bereits beschriebenen Techniken ist man zwar bereits in der Lage, die erforderlichen Messungen durchzuführen, der technische Aufwand ist jedoch recht groß, da für jede

Messgröße andere Laser benötigt werden. Hinzu kommen die in Kapitel 2 beschriebenen methodischen Probleme bei der Inversion elastischer Signale und mit dem Aerosol-Rückstreuoeffizienten beim einfachen DIAL-Verfahren.

Eine gleichzeitige Lösung des Laser- und des methodischen Problems kann durch Messung von elastischen und Raman-verschobenen Signalen erreicht werden. Ozon kann wegen seiner geringen Konzentration leider nicht durch sein eigenes Raman-Signal nachgewiesen werden [Sigrist, 1994]. Sein außergewöhnlich breitbandiges Absorptionsspektrum im ultravioletten Spektralbereich ermöglicht jedoch die Messung durch unterschiedlich starke Absorption der in der Atmosphäre durch Raman-Streuung an Sauerstoff und Stickstoff frequenzverschobenen Rückstreusignale. Damit erübrigt sich auch das in § 2.2.3.2 beschriebene methodische Hauptproblem des DIAL-Verfahrens, weil die Rückstreuintensität nun unabhängig von der Aerosol-Streuung ist. Sie ist nur noch von den Raman-Streuquerschnitten, den Konzentrationen von Sauerstoff und Stickstoff, deren Verhältnis bis in große Höhen konstant bleibt, und der Extinktion abhängig. Das Raman-Signal des Wasserdampfs kann direkt zur Bestimmung seiner Konzentration benutzt werden. Für die Bestimmung von Aerosol-Eigenschaften eignen sich elastische und Raman-Signale außerhalb der molekularen Absorptionsbanden.

Eine Kombination der gerade beschriebenen Verfahren ist mit einem einzigen Nd:Yag-Festkörperlaser möglich. Dazu muss gleichzeitig die Grundwellenlänge und deren zweite und vierte Harmonische in die Atmosphäre gesendet werden. Die durch atmosphärischen Stickstoff und Sauerstoff Raman-verschobenen Signale der vierten Harmonischen dienen der Berechnung der Ozon-Konzentration und der UVB-Aerosol-Extinktion. Aus dem Wasserdampf-Raman-Signal wird die Wasserdampf-Konzentration abgeleitet. Die elastischen Signale ergeben die Aerosol-Rückstreuoeffizienten bei drei Wellenlängen und die Aerosol-Depolarisation. Mit einem weiteren Stickstoff-Raman-Kanal im sichtbaren Spektralbereich wird auch dort die Aerosol-Extinktion gemessen.

Ein solches Messsystem wurde mit einem halbleiterdiodengepumpten Nd:Yag-Festkörperlaser mit einer Pulswiederholrate von 1 kHz aufgebaut.

3.3.2.1 Laser und Drei-Wellenlängen-Sendeoptik

Der Laser emittiert Licht in drei verschiedenen Farben mit einer Pulswiederholrate von 1 kHz. Die Grundwellenlänge ist 1064,10 nm mit der für Nd:Yag-Laser typischen Linien-

Laser:	Typ:	Lambda Physik Starline Diodengepumpter Nd:Yag mit SHG und FHG
	Wellenlängen:	1064,10 nm, 532,05 nm, 266,03 nm
	Pulsenergie:	8 mJ, 5 mJ, 1 mJ
	Pulswiederholrate:	1 kHz
	Strahldurchmesser:	~1,5 mm
Sendeoptik:	Strahlaufweitung:	10 x Linsenteleskope
	Sendespiegel:	90°-Prisma
	Strahldivergenz nach Aufweitung:	0,7 mrad
Empfangsoptik:	Teleskopdurchmesser:	200 mm
	Teleskopbrennweite:	800 mm
	Teleskoptyp:	Dall-Kirkham
	Eintrittsblende:	variabel
	F-Zahl:	4
	Empfangskanäle:	1064,10 nm, 607,33 nm, 532,05 nm und ⊥, 294,67 nm, 283,60 nm, 277,51 nm, 266,03 nm
	Tageslichtunterdrückung:	schmalbandige Interferenzfilter
	Kanaltrennung:	Spiegel, Polarisationsquader
	Messrichtung:	frei wählbar
Elektronik:	Analog-Digital-Wandler:	Digitalisiergenauigkeit: 14 Bit (16384 Stufen) Messbereiche: 10, 20, 100 und 500 mV Zeitauflösung: 20 und 40 MHz Ortsauflösung: 7,5 bzw. 3,75 m Einzelschussaufzeichnung bis 1 kHz möglich
	Photonenzähler:	Zählrate: 800 MHz Höhenauflösung: 37,5 m
	Detektoren:	- Sekundärelektronenvervielfacherröhren von Hamamatsu mit spezieller Stromversorgung von Licel - Lawinen-Photodiode 3 mm von Licel
Messgrößen:	Konzentration:	Ozon, Wasserdampf
	Aerosol-Rückstreuoeffizient:	1064,10 nm, 532,05 nm, 266,03 nm
	Aerosol-Extinktion:	607,33 nm, 283,60 nm, 277,51 nm
	Aerosol-Depolarisation	
Sekundäre Größen:	Aerosol-Größenverteilung	Anzahl, Medianwert und Breitenparameter der Moden
	Aerosol-Brechungsindex	
	Mischungsschichthöhe	
	Energiespektrum der Turbulenz	
	...	

Tab. 3-8 Eigenschaften des Kilohertz-Aerosol-Ozon-Wasserdampf-Lidar.

breite von ca. 100 GHz (entspricht 0,38 nm). Durch zweifache Frequenzverdopplung werden die zweite und vierte Harmonische der Grundfrequenz erzeugt (532,05 nm, 266,03 nm). Alle Strahlen haben einen Durchmesser von ca. 1,5 mm und werden einzeln durch Linsenteleskope um das 10-fache aufgeweitet. Die Ausgangsdivergenz des Lasers, die je nach Kanal zwischen 0,7 und 3 mrad liegt, verringert sich somit um denselben Faktor und erreicht damit einen guten Bereich. Die Fluktuation der Ausgangsenergie liegt bei allen Kanälen unter 4 %.

Ein Ziel bei der Konstruktion war es, die Messrichtung variabel zu halten, ohne komplizierte oder anfällige Technik verwenden zu müssen. Deshalb ist die Teleskopaufhängung eine drehbar gelagerte Hohlachse. In ihrer Mitte verlaufen alle drei Sendestrahlen wohl aligniert. Ein technisches Problem ergab sich bei der Suche nach einem dielektrisch beschichteten Sendespiegel für die drei weit auseinanderliegenden Laserwellenlängen. Deshalb wird nun ein 90°-Prisma als Sendespiegel verwendet. Eine Kathete des Prismas schließt auch gleichzeitig die Hohlachse nach außen ab, so dass sich Laser und Elektronik in einem völlig geschlossenen Gehäuse befinden. In dieser Anordnung können das Sichtfeld des Teleskops und die drei Laserstrahlen gleichzeitig um eine Achse gedreht werden, ohne dass sich ihre Alinierung verändert.

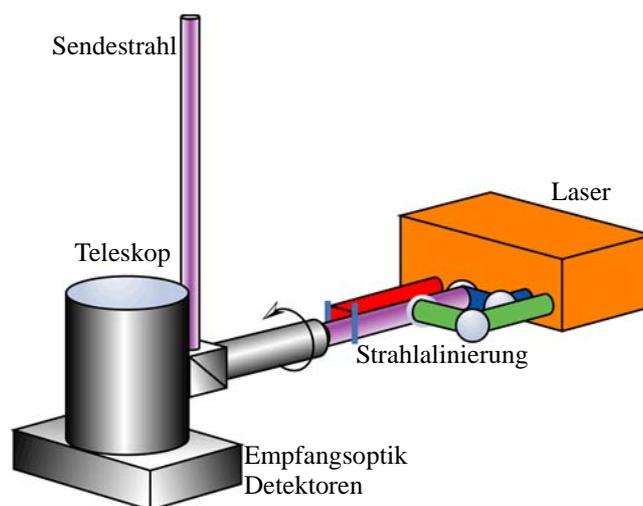


Abb. 3-15 Schema der Sende- und Empfangsoptik.

3.3.2.2 Multispektrale Empfangsoptik

Das Messprinzip beruht darauf, die drei elastisch gestreuten und vier Raman-verschobenen Rückstreusignale gleichzeitig zu erfassen. Dazu müssen die verschiedenen im Rückstreusignal enthaltenen Farben optisch voneinander getrennt werden. Zusätzlich sollen auch ela-

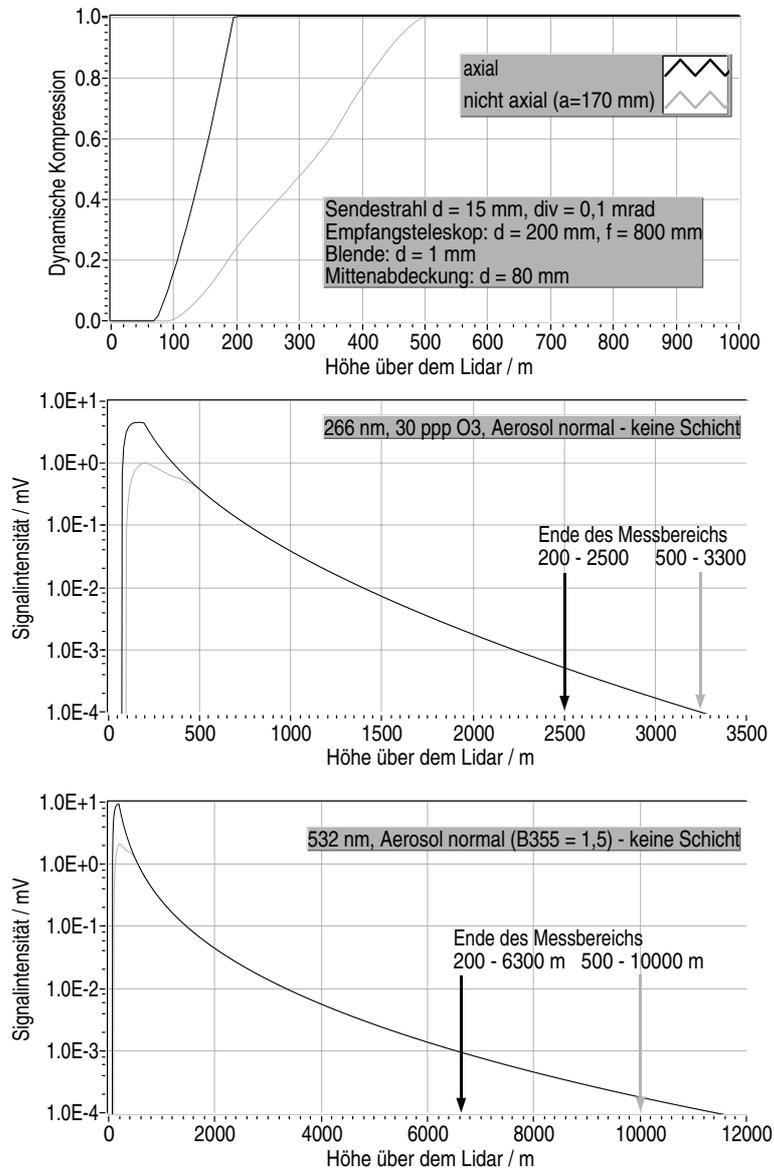


Abb. 3-16 Simulation der Signalform des KiloHertz-Lidar bei den Wellenlängen 266 und 532 nm. Die schwarzen Kurven sind das Ergebnis, wenn axial zum Teleskop gesendet wird, die grauen entsprechen einem Abstand von 170 mm zwischen Laserstrahl- und Teleskopachse.

stische Rückstreusignale mit paralleler und senkrechter Polarisation relativ zur Laserstrahlung voneinander getrennt empfangen werden, um so die Aerosol-Depolarisation zu messen. Insgesamt sind das acht Empfangskanäle.

Das Licht wird, wie in § 3.1.3 beschrieben, mit einem Teleskop empfangen. Bevor es auf den Detektor fällt, müssen das ebenfalls empfangene Hintergrundlicht und die jeweils anderen Rückstreusignale durch Filterung soweit unterdrückt werden, dass die nötige Reichweite erzielt wird, der Detektor durch hohen Dauerstrom nicht übersteuert wird und eine Überlagerung mit anderen Signalen ausgeschlossen ist. Das ist keine einfache Aufgabe, da

die Signalintensitäten sich um bis zu 4 Größenordnungen unterscheiden, und der Signal-zu-Rausch-Abstand gegenüber dem Hintergrundlicht wegen der geringen Pulsenergie des verwendeten Lasers klein ist. An dieser Stelle muss ein Nachteil eines Systems mit hoher Laserpulsrate durch die Empfangsoptik und -elektronik ausgeglichen werden. Deshalb wurden sehr schmalbandige Interferenzfilter eingesetzt. Diese haben natürlich auch sehr geringe Toleranzen gegenüber Winkeländerungen des einfallenden Lichts und Temperaturschwankungen. Außerdem ändert sich die Signalform im Bereich des Signalbeginns einzelner Kanäle unterschiedlich, wenn sich der Strahlengang in der Detektionsoptik nur minimal ändert. Das ist für Messungen in der planetaren Grenzschicht inakzeptabel. Deshalb ist ein temperaturstabiler und robuster mechanischer Aufbau des Teleskops und der daran anschließenden Optik ein sehr wichtiger Bestandteil des Systemdesigns. Das Ziel ist, die Abbildung durch das schwenkbare Teleskop mit angeschlossener Empfangsoptik in allen Positionen und selbst bei einseitiger Erwärmung des Gehäuses soweit konstant zu halten, dass sich die Signalform nicht ändert.

Ein einfaches Newton-Teleskop kommt für einen kompakten und stabilen Aufbau nicht infrage, da es einen relativ langen und damit temperaturempfindlichen Körper hat und die direkt angekoppelte umfangreiche Optik es unsymmetrisch an einer Seite belasten würde. Nach Ray-Tracing-Simulationen und Diskussionen mit Optik-Herstellern fiel die Wahl auf ein Dall-Kirkham-Teleskop. Es verbindet auf ideale Weise Kompaktheit, einfache Justierbarkeit, hohe Toleranzen bei gleichzeitig geringen Abbildungsfehlern und einen günstigen Preis. Letzteres ist wichtig, da kurzbrennweitige Teleskope mit symmetrischer Auskoppelung durch den Hauptspiegel nicht kommerziell erhältlich sind und somit eine Sonderanfertigung nötig ist. Sie sind für Astronomen von geringem Interesse und schwer herstellbar, da der Hauptspiegel stark gekrümmt sein muss. Abbildung 3-16 zeigt die Ergebnisse einer Simulation der Funktion der geometrischen Kompression und die resultierenden Rückstreuungssignale für die sichtbare und infrarote Laserstrahlung. Das Teleskop hat einen 200-mm-Hauptspiegel, einen 80-mm-Sekundärspiegel und eine effektive Brennweite von 800 mm.

3.3.2.3 Signalaufnahme

Die 8 Rückstreuungssignale werden mit 7 Sekundärelektronenvervielfachern und einer Photodiode empfangen. Um die verschiedenen starken Signale mit der jeweils bestmöglichen Zeitauflösung bei sehr gutem Signal-zu-Rausch-Verhältnis digital im Rechner zu verarbeiten,

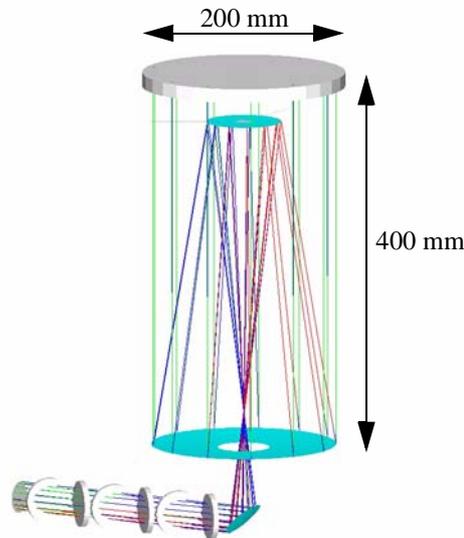


Abb. 3-17 Konstruktionszeichnung des Dall-Kirkham Teleskops, erstellt mit dem Optik-Design-Programm Zemax. Durch Spiegelverschiebungen und -verkippen und Veränderungen der Optik gegenüber den gegebenen Spezifikationen wurden die entsprechenden Veränderungen der Abbildung des Laserstrahls auf den Detektor bestimmt und die möglichen Toleranzen der optischen Komponenten und Halterungen festgelegt.

war die Entwicklung einer neuen Wandler-Elektronik erforderlich. Im Fall der elastisch gestreuten Signale reichen Einzelschussaufnahmen, um ein Signal zu messen, wohingegen bei Raman-Signalen über viele Schüsse addiert werden muss.

Zur Wandlung der elastischen Rückstreusignale wurde gemeinsam mit der Firma IRAS GmbH ein neuer „Transientenrekorder“, ein hochauflösender Analog-Digital-Wandler zur Aufnahme von Zeitsignalen, entwickelt. Das Hauptziel der Neuentwicklung war, Einzelschüsse mit einer Wiederholrate von bis zu 1 kHz aufzunehmen und gleichzeitig die sonstigen Parameter der bisher vorhandenen Geräte zu verbessern. Als Schranke für die Geschwindigkeit der Signalaufnahme stellten sich letztendlich die internen Datenübertragungsraten der Rechner heraus. Deshalb musste ein Kompromiss zwischen der Anzahl der Kanäle, der Anzahl der Datenpunkte pro Kanal (Reichweite) und der digitalen Auflösung des Wandlers gefunden werden. Das Gerät hat nun 4 Kanäle, die sich um weitere 4 ergänzen lassen, eine Reichweite von bis zu 16 000 (16 k) Punkten bei einem Punktabstand von wahlweise 20 oder 40 MHz (7,5 bzw. 3,75 m) und einer Digitalisiergenauigkeit von 14 bit (16384 Stufen). Für verschiedene Eingangsspannungen kann man zwischen 4 Messbereichen (10, 20, 100, 500 mV) wählen. Jedes Wandlermodul verfügt über einen Signalprozessor, der synchron zur Datenaufnahme in einem Zeitfenster arbeitet, in dem nicht mit Rückstreusignalen zu rechnen ist. Hier können einfache Vorauswertungen, wie z. B. Addi-

tion von Signalen, durchgeführt werden. Außerdem erlaubt eine besondere Logik, Signale durch verschiedene Trigger zu markieren und so im Rechner unterschiedlich zu behandeln. Das ist wichtig, wenn alternierende Signale mit einem Detektor aufgezeichnet werden sollen, was z. B. bei DIAL-Messungen mit einem Zwei-Wellenlängen-Oszillator günstig ist. Im Moment ist dieses Gerät einzigartig und stellt einen großen Fortschritt auf dem Weg zu genaueren Messungen dar.

Für die Weiterverarbeitung von Signalen nach der Wandlung gibt es zwei Ansätze. Zum einen kann ein digitaler Signalprozessor verwendet werden. Die Programmierung erfordert jedoch Spezialkenntnisse, deren Nutzen für einen Wissenschaftler nur von geringer Dauer sind, da die Entwicklung auf diesem Gebiet sehr rasant voranschreitet. Werden solche Rechenmaschinen im Wandlermodul integriert, kann es ausserdem leicht zu Messfehlern im Wandler durch minimale, zum Signal asynchrone, Pegelveränderungen kommen. Bei 1 kHz Wiederholrate der Signalaufzeichnung bleibt aber wenig Zeit zur Auswertung mit einem synchron arbeitenden Prozessor. Eine andere Möglichkeit ist die Auswertung in einem normalen PC. Die derzeitige Geschwindigkeit erlaubt es gerade so, diesen Weg zu gehen. Es ist aber mit entscheidenden Geschwindigkeitssteigerungen bei kommerziellen Rechnern in naher Zukunft zu rechnen. Der Hauptvorteil dieses Konzepts ist die Variabilität bei der Wahl der Programmiersprache. Für die komplizierten Auswertungsroutinen können vorhandene Bibliotheken eingebunden und in der bevorzugten Sprache gearbeitet werden. Deshalb wurde in das Wandlermodul nur ein frei programmierbarer Logikbaustein für einfache Rechenaufgaben wie Additionen integriert. Die Signale gelangen dann direkt in den Hauptspeicher eines PC oder auf dessen Festplatte.

Die Raman-Signale werden mit einer Photonenzählkarte aufgenommen. Pulsbreitemessungen der Einzelphotonensignale haben ergeben, dass mindestens eine Zählrate von 500 MHz nötig ist, um die Totzeit niedrig zu halten. Mit vorhandenen Lösungen stößt man auch bei diesem Messprinzip an die Grenzen des Machbaren bei einer Laserpuls-Wiederholrate von 1 kHz. Eine eigene Entwicklung ist bisher noch nicht abgeschlossen. Deshalb wird im System eine Karte verwendet, die mit einer Zählrate von 800 MHz arbeitet, die gezählten Ereignisse aus einem minimalen Zeitintervall von 250 ns jedoch zusammenfasst. Hinzu kommt noch eine Totzeit zum Speichern der Punkte von 50 ns. Damit erreicht man eine Ortsauflösung von 45 m bei Rückstreumessungen. Außerdem ist es möglich, über viele Signale zu mitteln, bevor das Ergebnis in den Rechner übertragen wird. Mit diesem Kon-

zept wird die Datenrate auch bei einer Wiederholrate von 1 kHz ausreichend reduziert, so dass der Rechner nicht unnötig belastet wird. Ohnehin sind Mittelungszeiten von einigen Minuten nötig, um auf die erforderliche Reichweite zur Untersuchung der planetaren Grenzschicht zu kommen.

Das vorgestellte und angewendete Konzept gestattet es, alle Signale mit ausreichender Intensität mit der Wiederholrate des Lasers (1 kHz) aufzunehmen. Dadurch lassen sich die Vorzüge der neuen Lasertechnik voll für die Fernerkundung ausnutzen. Gleichzeitig wird die Datenrate des Photonenzählsystems so weit gesenkt, dass die vorhandene Rechentechnik trotz der verwendeten Zählrate von 800 MHz nicht überfordert wird.

3.3.3 Das 1-kHz-Absorptions-Lidar

Die UV-Raman-Rückstreusignale der Sauerstoff- und Stickstoffmoleküle gestatten die Messung der Ozon-Konzentration mit einer eleganten Methode, da Aerosol-Rückstreuung als Fehlerquelle ausgeschlossen wird. Andere Spurengase haben jedoch wesentlich schmalere Absorptionslinien als Ozon, so dass es nicht ohne weiteres möglich ist, diese durch Raman-Verschiebung von Laserlinien durch die Atmosphäre zu treffen. Ursprünglich war die Entwicklung eines UV-OPO Lasers mit einem weiten Abstimmbereich geplant, um weitere relevante Spurengase der planetaren Grenzschicht mit dem neu entwickelten Laser-Fernerkundungssystem detektieren zu können. Dieses Vorhaben wurde jedoch nicht realisiert. Stattdessen wird nun ein Laserkristall verwendet, der ein Emissionsspektrum im Bereich zwischen 285 und 315 nm hat. Damit können Konzentrationen von Spurengasen mit Absorptionslinien in diesem Bereich mit der DIAL-Methode gemessen werden. Eine besondere technische Herausforderung bei der Entwicklung war die Wellenlängenumschaltung zwischen zwei Laserschüssen bei einer Pulswiederholrate von 1 kHz. Der Laser ist insgesamt so klein, dass er in den Strahlengang der FHG (266 nm) des bereits beschriebenen Systems eingesetzt werden kann. Dann wird statt der FHG ein zwischen zwei Wellenlängen alternierender Laserstrahl gesendet.

3.3.3.1 Der Ce:LiCaF-Ultraviolett-Festkörperlaser

Anfang der 90er Jahre wurden die ersten Berichte über erfolgreiche Versuche mit einem neuartigen Lasermaterial mit einem Emissionsspektrum im ultravioletten Spektralbereich veröffentlicht [Dubinskii et al., 1993, Marshall et al., 1994, Castillo und Quarles, 1995]. Die Emission beruht auf elektronischen Übergängen zwischen 5d- und 4f-Niveaus des Cerium-

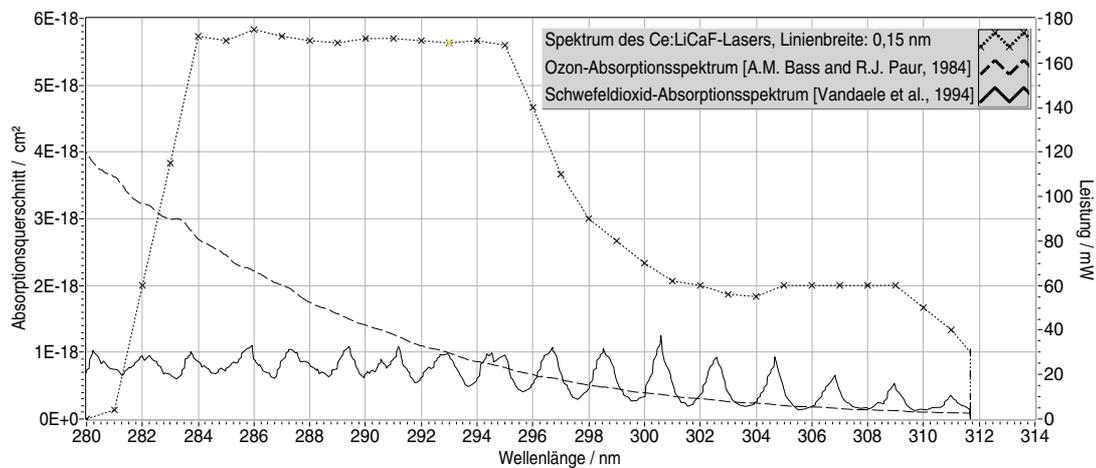


Abb. 3-18 Emissionsspektrum des Ce:LiCaF-Lasers mit Ozon- und Schwefeldioxid-Absorptionsspektrum [Bass und Paur, 1984, Vandaele et al., 1994].

ions Ce^{3+} , welches in Colquiriit-Kristalle eingelagert ist. Colquiriite haben eine trigonal-ditrigonal pyramidale Struktur. Bisher wurden Verbindungen mit den chemischen Formeln LiCaAlF_6 , $\text{LiSr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{F}_6$ und LiSrAlF_6 als Grundkristall für Lasermaterialien verwendet. Als Kurzform für die Namen haben sich die Bezeichnungen Ce:LiCaF und Ce:LiSAF eingebürgert. Der Emissionsbereich liegt bei $0,3 \mu\text{m}$. Als optische Pumpquelle kann die vierte Harmonische der Nd:Yag-Laser-Grundwellenlänge verwendet werden. Damit ist es möglich, kompakte Festkörperlaser für den in der Spektroskopie der Atmosphäre sehr interessanten Bereich um $0,3 \mu\text{m}$ zu bauen. Ein Bericht über erste DIAL-Messungen wurde Mitte der 90er Jahre veröffentlicht [Rambaldi et al., 1995].

Das Haupthindernis für eine schnelle Verbreitung des Lasermaterials waren anfängliche Probleme mit Solarisationseffekten, die zu einer Verminderung der Ausgangsenergie führen. Nachdem viel Geld in die Entwicklung der Kristallzüchtung investiert wurde, verbesserte sich die Lage etwas. Die hohe Pulswiederholrate des verwendeten Pumplasers von 1 kHz ermöglicht nun die Verwendung relativ kleiner Kristalle, welche einfacher in sehr guter Qualität herstellbar sind. Trotz niedriger Pulsenergie bleibt die Durchschnittsleistung die gleiche.

Mit Ce^{3+} -dotierten Colquiriite-Kristallen wurden die höchsten jemals gemessenen Wirkungsgrade bei Festkörperlaser-Materialien von 21 bis 29 % erreicht. Der Wirkungsgrad ist dabei stark von der Polarisation des Pumpstrahls abhängig und ist nur für parallel zur optischen Kristallachse polarisierte Strahlung erreichbar. Wenn als Pumpquelle Laserpulse mit einer Dauer von 10 ns und weniger verwendet werden, muss ein kurzer Laseroszillator ver-

wendet werden, um zu garantieren, dass die Photonen der gewünschten Energie ausreichend viele Oszillatordurchläufe zurücklegen können, um die Laserschwelle zu überschreiten. Der Grund liegt in der kurzen Zeit zwischen Pumpimpuls und dem Erreichen der maximalen Emissionsintensität von nur 12 ns.

Das technische Hauptproblem ist die Umschaltung zwischen zwei Wellenlängen innerhalb des Laser-Emissionsspektrums im Rhythmus von 1 kHz. Nach Abwägung verschiedener optischer und mechanischer Lösungen fiel die Wahl auf einen Laserscanner, der den Endspiegel entsprechend schnell und präzise zwischen zwei Winkelpositionen hinundherschalten kann.

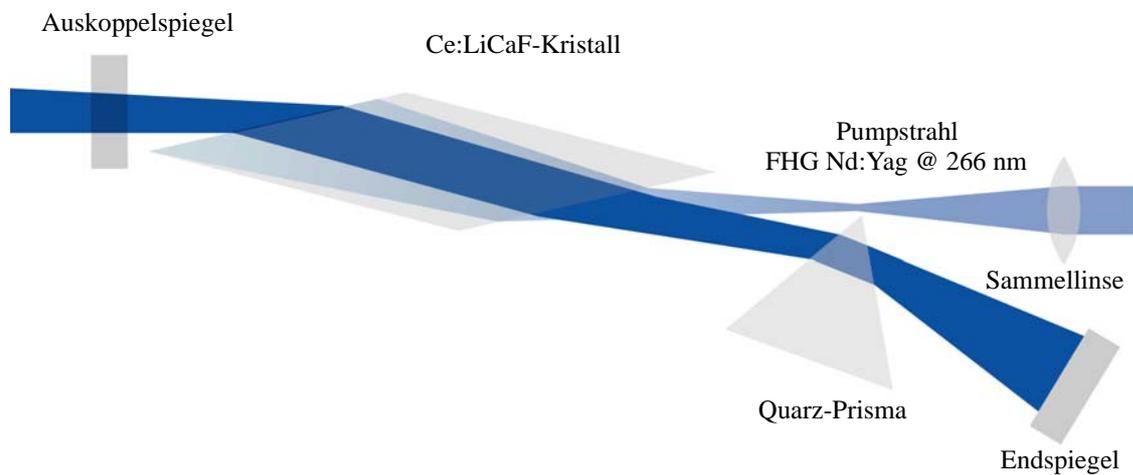


Abb. 3-19 Der Ce:LiCaF-Laser wird durch schnelles Kippen des Endspiegels zwischen zwei Wellenlängen innerhalb seines Abstimmbereichs hinundherschaltet.

3.4 Ergänzende und Vergleichs-Messungen

Während der zweiwöchigen OLAK¹-Kampagne in Berlin wurden Ozonmessungen von drei mobilen und dem fest installierten Lidar auf der Charité mit Messungen vom Flugzeug und vom Fesselballon verglichen [Weitkamp et al., 2001]. Außerdem wurde mit allen auf den fliegenden Messplattformen zur Verfügung stehenden Geräten ein Datensatz zur Charakterisierung des Aerosols gewonnen. Da die ballon- und flugzeuggestützt gemessenen Ozonwerte als Referenz für die Lidar-Systeme gedacht sind, waren sorgfältige Qualitätssicherungsmaßnahmen erforderlich, die sich in vier Teilbereiche gliedern lassen:

- Rückführbarkeit auf anerkannte Referenzstandards,
- regelmäßige Kalibrationen der Sonden und Dokumentation der Ergebnisse,

1. Ozon-Lidar-Aerosol-Korrektur

- Plausibilitätsprüfung durch Vergleich der Messsysteme Flugzeug und Fesselballon,
- Angabe von Messunsicherheiten für die Messung selbst und für die Repräsentativität.

Die O₃-Messungen sind auf den EMPA¹-Standard rückführbar. Durch den Bezug beider Messsysteme, Flugzeug und Fesselballon, ist gleichzeitig die Harmonisierung der Daten gewährleistet. Als Transferstandard für die zusätzlichen NO₂-Messungen dient ein Gasphasentitrationssystem, das ein Prüfgas mit konstantem Gehalt an NO₂ liefert. Der exakte Gehalt wurde mit Hilfe der nasschemischen Saltzmann-Methode bestimmt.

Die Zweipunkt-Kalibrationen erfolgten regelmäßig etwa alle 2 Stunden. Durch die so erhaltenen Nullpunkte und Empfindlichkeiten konnte das Verhalten der Messsonden auch bei der nachfolgenden Auswertung beurteilt werden. In seltenen Fällen wurden Messungen verworfen, wenn der Zustand der Sonden zweifelhaft erschien. Messungen während der Kernmesszeiten waren davon nicht betroffen.

Durch Vergleich der Messergebnisse des Flugzeugs und des Ballons wurde überprüft, ob die Harmonisierung der Referenzstandards auch zu einer Harmonisierung der Messsysteme geführt hat. Dazu wurden Situationen aus dem Messbetrieb ausgewählt, bei denen aufgrund der Austauschbedingungen (gute atmosphärische Vermischung) und der räumlichen Annäherung der beiden Systeme möglichst vergleichbare Bedingungen vorlagen.

3.4.1 Fesselballonsystem

Die meteorologischen Größen werden mit einer kommerziell erhältlichen Sonde der Firma AIR Boulder Co. vom Typ TS-3A-SP gemessen. Diese Sonde erfasst Luftdruck, Trocken-temperatur, Feuchttemperatur, Windrichtung und Windgeschwindigkeit. Aus diesen Größen werden wiederum der Wassergehalt in g/kg bzw. die relative Feuchte und die Höhe über Grund berechnet (barometrische Höhenformel).

1. Ozon wird mit der kommerziell erhältlichen Ozonsonde der Firma GFAS, Typ OS-B-2, gemessen. Dieser Sondentyp wurde speziell für ballongetragene Ozonvertikalprofile entwickelt. Er zeichnet sich durch geringes Gewicht und sehr kurze Einstellzeiten aus [Schurath et al., 1991]. Das Messverfahren beruht auf einer Chemilumineszenzreaktion von Ozon mit der Oberfläche beschichteter Metallplättchen. Die Probenluft wird mit einem Gebläse mit großem Volumenstrom von 100 l/min an dem Metallplättchen vorbei-

1. Eidgenössische Materialprüfungs- und Forschungsanstalt

Messgröße	Unsicherheit
Temperaturen (trocken und feucht)	+/- 0,5 °C
Feuchtebestimmung	+/- 3%
Luftdruck	+/- 1 hPa
Windgeschwindigkeit	+/- 0,25 m/s
Windrichtung	+/- 5°

Tab. 3-9 Messung meteorologischer Größen auf dem Fesselballon und deren Unsicherheit.

geführt. Die Reaktion ist spezifisch für Ozon. Andere oxidierende Spurengase wie NO_2 , H_2O_2 oder PAN¹ erzeugen keine Chemilumineszenz. Das Lichtsignal wird von einem Sekundärelektronenvervielfacher erfasst und verstärkt. Es handelt sich um ein relatives Messverfahren, bei dem ein linearer Zusammenhang zwischen Ozon-Konzentration und Ausgangssignal im Bereich von 0 - 250 ppb gegeben ist.

2. Stickstoffdioxid wurde mit einer von der Firma Scintrex entwickelten Sonde für troposphärische Ballonmessungen bestimmt [Pisano et al., 1997]. Die Messung beruht auf dem Luminol-Verfahren. Querempfindlichkeiten des Verfahrens sind für PAN und für O_3 bekannt. Die O_3 -Querempfindlichkeit wurde durch einen der Sonde vorgeschalteten O_3 -Scrubber beseitigt. Die PAN-Querempfindlichkeit muss hingenommen werden. Während der Messungen für OLAK wurden hohe NO_2 -Werte allerdings ausschließlich zu Tageszeiten beobachtet, zu denen nicht mit hohen PAN-Konzentrationen zu rechnen ist (abends, nachts und am frühen Morgen). Das Signal der Sonde ist im Bereich zwischen 2,8 und 80 ppb linear zur NO_2 -Konzentration. Größere Konzentrationen als 80 ppb treten bei OLAK nicht auf.
3. Zur Messung von Aerosol kommt ein Gerät der Firma Grimm, Modell 1.105, zum Einsatz [Grimm, 1996]. Es handelt sich um ein tragbares Gerät, dessen eigentlicher Haupteinsatzbereich Messungen in Innenräumen und an Arbeitsplätzen sind. Es liefert Messwerte für die Teilchenanzahl pro Liter Luft in acht Größenklassen oder für die Aerosolmasse in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Das Messprinzip beruht auf einem Streulichtphotometer, das einen Halbleiter-Laser als Lichtquelle hat. Der Probenluftstrom wird durch die Messkammer geführt, die vom Laserstrahl durchquert wird. Wenn Partikel den Laserstrahl queren, geben sie einen Lichtimpuls ab. Das 90°-Streulicht wird mit einem Öffnungs-

1. Peroxyacetylnitrat

winkel von 60° über einen Spiegel auf eine Empfängerdiode gelenkt. Das Signal der Diode wird nach einer entsprechenden Verstärkung in Größenklassen klassifiziert. Der Zusammenhang zwischen Signalhöhe und Partikelgröße wird werkseitig durch Kalibration mit Prüfaerosolen bestimmt. Aus der Größenverteilung kann unter Annahme einer mittleren Dichte des Aerosols die Aerosolmasse berechnet werden. Der genaue Algorithmus dieser Berechnung wird vom Hersteller nicht weitergegeben. Beim Einsatz im Rahmen von OLAK wurde das Gerät im Zählmodus betrieben. Die räumliche Auflösung der Messpunkte ist je nach Steiggeschwindigkeit des Ballons 50 - 100 m. Die Klassengrenzen für die Größenfraktionen betragen $0,75 \mu\text{m}$, $1 \mu\text{m}$, $2 \mu\text{m}$, $3,5 \mu\text{m}$, $5 \mu\text{m}$, $7,5 \mu\text{m}$, $10 \mu\text{m}$ und $15 \mu\text{m}$. Partikel der größeren Fraktionen, speziell Partikel $> 15 \mu\text{m}$ und $> 10 \mu\text{m}$ werden nur insoweit erfasst wie diese Partikel überhaupt durch das Ansaugsystem in die Messkammer des Geräts gelangen. Infolge ihrer Trägheit sind grobe Partikel nicht immer in der Lage, der Strömungsführung der Luftansaugung eines Messsystems zu folgen. Speziell dann, wenn die Luftansaugung im Wind steht, hat jede Ansaugung eine gewisse Abscheidecharakteristik. Diese Problematik besteht bei allen Messverfahren für Partikel. Je kleiner die Partikel sind, desto eher bewegen sie sich wie das Trägergas. Die Partikelgesamtzahl wird mit dem Gerät recht genau bestimmt, da der Luftvolumenstrom auf $1,2 \text{ l/min}$ geregelt ist. Dass einige der groben Partikel eventuell nicht durch das Ansaugsystem gelangen, ist bei der Anzahlbestimmung (nicht bei der Massenbestimmung) ohne Belang, da deren Anzahl im Vergleich zu den feinen Partikeln sehr gering ist.

3.4.2 Flugzeugmessungen

Alle Flüge wurden mit dem Flugzeug D-EAFU, Typ Cessna 207 T, des Instituts für Welt- raumwissenschaften der Freien Universität Berlin durchgeführt. Die Wahl fiel auf dieses Flugzeug, weil es für derartige Messeinsätze speziell ausgerüstet ist. So besitzt es eine Reihe von Öffnungen, die zum Anbringen von Ansaugleitungen und Sensoren geeignet sind. Zum anderen ist die Infrastruktur zum Betrieb von Messgeräten während des Fluges vollständig vorhanden.

Der Standort des Flugzeugs ist der Flughafen Tempelhof in Berlin. Das Messkonzept sah vor, von dort auf kürzestem Weg das Messgebiet (Polizeipräsidium Kruppstraße/Charité) anzufliegen, dort ab einer Höhe von 650 m über Grund bis etwa 3000 m aufzusteigen und anschließend wieder zur Ausgangshöhe zurückzukehren. Die Steig- und Sinkgeschwindig-

keit sollte dabei etwa 50 bis 100 ft/min betragen. Der zu fliegende Kurvenradius wurde auf ca. 1 km begrenzt. Dadurch sollte sichergestellt werden, daß der horizontale Abstand der Messsysteme nicht mehr als 3 km betrug. Bei diesen Flugdaten war ein Überlappungsbe- reich zwischen Ballon und Flugzeug von etwa 200 m gewährleistet.

Durch Auflagen der Flugsicherung war dieses Konzept nicht in allen Fällen zu realisieren. So ergaben sich Flüge, bei denen kein direkter Anschluss der Messwerte zwischen Ballon und Flugzeug gegeben war. Auch mussten in einigen Fällen für den Anflug bzw. den Abflug zum bzw. vom Messgebiet größere horizontale Umwege in Kauf genommen wer- den. In diesen Fällen wurde überprüft, inwieweit die mit dem Flugzeug gemessenen Ozon- daten aus größerer horizontaler Entfernung noch für den Vergleich herangezogen werden konnten.

Während der Messflüge wurde die Position des Flugzeugs durch GPS-Geräte (Hersteller Garmin) kontinuierlich aufgezeichnet. Infolge eines Senderausfalls liegen vom 22.08. keine GPS-Daten vor.

Messgröße	Maßeinheit	Anmerkungen
Höhe	m	Höhe über Grund
Zeit		
Ozon-Konzentration	ppB, μgm^{-3}	
geographische Breite und Länge		
Temperatur	$^{\circ}\text{C}$	
Luftdruck	hPa	
Taupunkt	$^{\circ}\text{C}$	
Streukoeffizient		Streukoeffizient: Streuwinkel: 7 bis 170°
Rückstreukoeffizient		Rückstreukoeffizient: Streuwinkel: 90 bis 170°
Partikelzähler	Partikel/l	Größenklassen: $>0.3 \mu\text{m}$, $>0.4 \mu\text{m}$, $>0.5 \mu\text{m}$, $>0.65 \mu\text{m}$, $>0.8 \mu\text{m}$, $>1.0 \mu\text{m}$, $>1.6 \mu\text{m}$, $>2.0 \mu\text{m}$, $>3.0 \mu\text{m}$, $>4.0 \mu\text{m}$, $>5.0 \mu\text{m}$, $>7.5 \mu\text{m}$, $>10.0 \mu\text{m}$, $>15.0 \mu\text{m}$, $>20.0 \mu\text{m}$
Kondensationskeimzähler	cm^{-3}	

Tab. 3-10 Zusammenfassung aller vom Flugzeug erfassten Messgrößen.

1. Das Ozon wird mit einem UV-Photometer gemessen. Dieses Gerät ist speziell für Flug- zeugeinsätze entwickelt worden. Hersteller ist das Paul-Scherer-Institut (PSI) in Zürich. Das Photometer arbeitet mit einer Absorptionsweglänge von 35 cm. Es wurde für die

hier beschriebenen Einsätze zusätzlich modifiziert. Es besitzt eine Küvette, die abwechselnd mit ozonhaltiger bzw. ozonfreier Luft gespült wird. Umgeschaltet zwischen ozonhaltiger und ozonfreier Luft wird alle zwei Sekunden. Das resultierende Signal der Photodiode ist ein etwa sinusförmiges Signal, dessen Amplitude proportional zur Ozon-Konzentration ist. Bei der Berechnung der Ozon-Konzentration werden Druck und Temperatur der Messzelle berücksichtigt. Die Berechnung erfolgt sofort innerhalb der Datenerfassungseinheit.

2. Temperatur und Feuchte: Bei allen Flügen wurde ein Taupunktspiegel vom Typ TP3-ST (Hersteller Meteolabor AG), eingesetzt. Dieses Gerät liefert Lufttemperatur und Taupunkttemperatur in °C. Als Messfühler dienen Thermoelemente aus Cu-Konstantan. Die Kühlung des Taupunktspiegels erfolgt über ein Peltier-Element. Die zeitliche Auflösung der Messungen beträgt 2 s. Das Gerät wird regelmäßig beim Hersteller kalibriert. Die letzte Kalibration wurde im Juli 1999 vorgenommen. Während die Messungen des Taupunkts für alle Flüge vorliegen, wurde die Lufttemperatur nur für einige Flüge aufgezeichnet.
3. Der Luftdruck wird mit einem Halbleiter-Druckaufnehmer, Typ XT (Hersteller Data Instruments), gemessen. Der Messbereich beträgt 0 - 15 psi. Die letzte Kalibration vor OLAK wurde im Juni 1999 im Kalibrierlabor des IFU¹ durchgeführt. Diese Druckmessung wird zur Berechnung der Flughöhe über Grund benutzt. Die Höhe des Flugplatzes Tempelhof wird dabei als Bezugshöhe genommen.

Mit dem Ziel, Hilfsgrößen für die Beurteilung des Einflusses von Aerosolpartikeln auf die Ozon-Lidarmessung bereitzustellen, wurden drei verschiedene Aerosol-Messgeräte an Bord des Flugzeugs eingesetzt:

4. Mit dem Kondensationskernzähler, Typ 3010 CPC (Hersteller TSI), wird die Partikelkonzentration für alle Aerosolpartikel mit einem Radius $> 0.01 \mu\text{m}$ erfasst. Um sie messen zu können, wird der die Partikel enthaltende Luftstrom durch eine mit Butanol übersättigte Kammer geleitet. Durch Kondensation des Butanol auf der Partikeloberfläche wachsen diese soweit an, dass sie optisch nachgewiesen werden können. Die Messung erfolgt durch Zählung der Butanoltröpfchen beim Durchgang durch ein mit einem Halbleiter-Laser beleuchtetes Volumen.

1. Fraunhofer Institut für Atmosphärische Umweltforschung

5. Zur Erfassung der Aerosolgrößenverteilung für die Partikel $> 0.45 \mu\text{m}$ wird ein Grimmzähler vom Typ 1.108 eingesetzt. Das Funktionsprinzip entspricht dem oben beschriebenen Gerät. Es unterscheidet sich jedoch in dem erfassbaren Größenbereich. Dieser reicht von 0.45 bis $20 \mu\text{m}$ Radius. Er wird in 15 Größenklassen unterteilt. Als Messwert wird die Partikelkonzentration für alle Partikel angegeben, die größer sind als der angegebene Grenzradius (Maßeinheit l^{-1}). Durch Differenzbildung über die Größenklassen lässt sich die Größenverteilung ermitteln. Die zeitliche Auflösung der Messung beträgt 6 s. Das Ansaugen der Messluft erfolgt isokinetisch.
6. Das 3-Wellenlängen-Nephelometer [Bodhaine et al., 1991], Typ 3560 (Hersteller TSI) (Abbildung 3-20), misst das Streulicht aus einem zylindrischen Volumen, in das bei halber Länge seitlich Licht einer Halogenlampe eingestrahlt wird. Der Gesamtstreuoeffizient berücksichtigt alle Raumwinkel zwischen 10 und 170° , für den Rückstreuoeffizienten wird ein Shutter eingeführt, der verhindert, dass das Messvolumen in Richtung der Photodetektoren ausgeleuchtet wird. Der Raumwinkel, aus dem die Rückwärtsstreuung gemessen wird, beträgt $90 - 170^\circ$. Zur Lichtdetektion werden drei Sekundärelektronenvervielfacher mit entsprechenden Interferenzfiltern eingesetzt. Das Gerät liefert Messdaten für die Wellenlängen 450 , 550 und 700 nm mit einer zeitlichen Auflösung von 6 s. Es wurde kurz vor der Kampagne ausgeliefert und während der Kampagne mit der Fabrikeinstellung für die Empfindlichkeit betrieben. Während der OLAK-Kampagne wurde die Kalibrierfunktion mit CO_2 (partikelfreies Gas mit charakteristischer Rayleigh-Streuung) überprüft und konnte innerhalb von 2 % verifiziert werden.

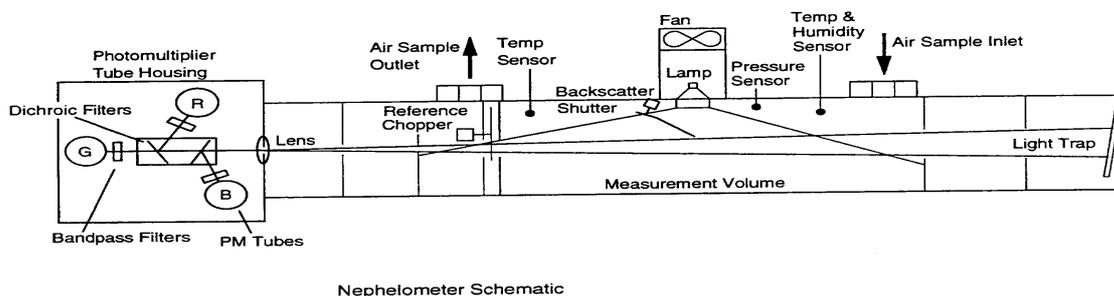


Abb. 3-20 Aufbau des Nephelometers TSI, Typ 3560 (aus der Betriebsanleitung des Herstellers).

3.4.3 In-Situ-Ozon- und Aerosol-Messungen der Charité-Station

Die Außenluft wurde über einen etwa 5 m langen Teflonschlauch mit einer Membranpumpe angesaugt. Die Bestimmung des Ozon-Mischungsverhältnisses erfolgte mit einem DASIBI-1009-CP-Ozonmonitor durch UV-Absorptionsmessung. Das Gerät wurde während der BERLIOZ-Kampagne mit QS-Ozonstandards kalibriert. Zusätzlich wurde der Ozonmonitor mit Ozonstandards eines HORIBA-Ozonmonitors verglichen und zeigte dabei gute Übereinstimmung. Die Nachweisgrenze des Geräts betrug unter den Messbedingungen auf der Charité ca. 1 ppb bei einer Zeitauflösung von 44 s. Der Probenfluss durch den Ozonmonitor von 1,5 l/min wurde täglich überprüft und erwies sich als konstant.

Die zu analysierende Außenluft wurde mit einer Membranpumpe durch eine 4 m lange 1/4“-Edelstahlkapillare angesaugt. Die Größenverteilung des gesammelten Aerosols wurde mit einem elektrostatischen Klassifizierer TSI 3071A und einem Partikelzähler TSI CPC 3022A gemessen. Das Aerosol wurde vor dem Eintritt in den elektrostatischen Klassifizierer durch einen Partikelabscheider geleitet, der durch Ausnutzung der Massenträgheit bei einem Partikeldurchmesser von 576 nm 50 % der Partikel absondert, um zu große Partikel wie Wassertröpfchen, Schwebstaub u. ä. von der Analyse auszuschließen. Die Analyse des Aerosols wurde im Klassifizierer durch Wahl der Gasflüsse und des elektrischen Feldes auf den Größenbereich von 12 - 615 nm begrenzt. Die einzelnen Größenklassen des Aerosols wurden anschließend in einem Partikelzähler durch Aufkondensation von übersättigtem n-Butanoldampf vergrößert und durch Lichtstreuung registriert. Mit einer Wahrscheinlichkeit von 50 % werden dabei Partikel mit einem Durchmesser von 8 nm detektiert. Bei einer Partikelkonzentration bis zu $5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-3}$ beträgt der Messfehler nach Angaben des Herstellers $\pm 10 \%$. Die Gesamtpartikelkonzentration im verwendeten Messbereich wurde durch Summierung aller registrierten Größenklassen bestimmt. Durch die Regelung des elektrischen Feldes im Klassifizierer wurde die Zeitauflösung der Aerosol-Messungen auf 5 min gesetzt. Die Gasflüsse durch den Klassifizierer und durch den Aerosolzähler wurden mit einem elektronischen Flussmessgerät J&W ADM3000 und zwei Bronckhorst-Flussreglern kalibriert. Der Gasfluss der Probennahme wurde während der Messkampagne täglich überprüft.

3.4.4 Berliner Luftgüte-Messnetz

Die Qualität der berühmten Berliner Luft wird seit 1975 durch das Luftgüte-Messnetz (BLUME) der Senatsverwaltung für Stadtentwicklung kontinuierlich geprüft. Das Messnetz besteht aus 21 ortsfesten Messstationen für Luftschadstoffe, zwei Messstationen für Schadstoffmessungen auf Türmen, zwei meteorologischen Stationen und einem Messbus für den mobilen Einsatz. Von den einzelnen Stationen werden die 3-Minuten-Werte jedes Schadstoffs zur Messzentrale in der Brückenstraße (Mitte) übertragen und daraus die Halbstunden- und Tageswerte als Basis für die weitere Auswertung berechnet.

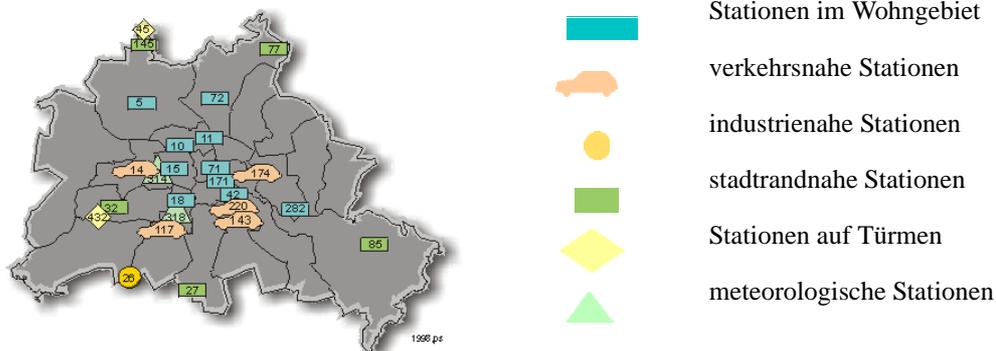


Abb. 3-21 Messstationen im Berliner Luftgüte-Messnetz (BLUME) [<http://www.met.fu-berlin.de/senum/>].

An allen Messstationen werden Stickoxide und an den meisten Schwefeldioxid und Schwebstaub gemessen, an achtzehn Kohlenmonoxid und an zehn Ozon. Da in den letzten Jahren die Belastung der Luft mit Schwefeldioxid und Schwebstaub deutlich zurückgegangen ist, und daher die Verunreinigung durch die Abgase der Kraftfahrzeuge zum Hauptproblem der Luftbelastung wurde, wurde das BLUME auf 21 Stationen reduziert, von denen fünf an Verkehrsstraßen, zehn im innerstädtischen Hintergrund (Wohn- und Gewerbegebiete), fünf im Stadtrand- und Waldbereich und eine in Industrienähe liegen. Fünf Stationen sind mit Geräten zur Messung von Benzol und Toluol ausgerüstet. 1998 wurden 30 kleinere und preiswerte Probensammler an Straßen neu eingerichtet. Mit diesen miniaturisierten Probenehmern werden Benzol und Ruß als Wochenproben gesammelt und im Labor analysiert.

Die Messdaten werden uns vom Senat täglich zugesandt. Im Messbereich der Charité-Station befinden sich fünf Stationen, die für direkte Vergleiche geeignet sind (in Tabelle 3-11 grau hinterlegt). Der Frohnauer Turm im Norden Berlins liegt zwar außerhalb des Messbereichs für Ozon, ist aber der einzige Meßpunkt in vergleichbarer Höhe (324 m).

Nr.	Ortsteil / Straße	RW	HW	Messgrößen
5	Tegel, Buddestr. 1 a	17280	28700	SO St NO _x CO
10	Wedding, Limburger/Amrumer Str.	21250	24000	SO St NO _x CO, Oz PAH BS
11	Wedding, Behmstr. 47-49	24450	24900	SO St NO _x CO
15	Tiergarten, Bachstr. 1-2	20560	21360	SO St NO _x CO
18	Schöneberg, Belziger Str. 52	21200	17650	SO St NO _x CO
26	Lichterfelde, Wupperstr.9	16050	9200	SO St NO _x CO
27	Marienfelde, Schichauweg 60, BGA-Gelände	22600	7950	SO St NO _x CO, Oz
32	Grunewald, Jagen 91, Waldstation (H = 25 m), (H = 3,5 m)	13300	16700	SO St NO _x CO, Oz WR WS WV TT RF SB PP NN pH LF
432	Grunewald, (H = 25 m)	13300	16700	SO NO _x CO Oz, WR WS WV TT, RF
42	Neukölln, Nansenstr. 10	27000	17900	SO PM NO _x CO, Oz PAH BS BTX
171	Mitte, Brückenstr. 6	25941	20760	SO St NO _x CO
71	Mitte, Parochialstr. 1-3	25300	21100	SO PM NO _x CO, Oz BTX
72	Pankow, Blankenfelder/Schillerstr.	24950	29200	SO St NO _x
77	Buch, Wiltbergstr. 50, Städtisches Klinikum	30800	34900	SO PM NO _x Oz
282	Karlshorst, Treskowallee, Nähe S-Bahnhof	33100	17200	SO St NO _x CO
85	Friedrichshagen, Müggelseedamm 307-310	41000	13300	SO St NO _x Oz
145	Frohnau, Funkturm, Jägerstieg 1, H = 3,5 m	17680	36360	SO ST NO _x CO, Oz
45	Frohnau, Funkturm, Jägerstieg 1, H=324 m	17680	36360	SO NO _x Oz

Straßenmeßstationen mit Meteorologie

14	Charlottenb., Lerschpfad 17, Stadtautobahn	16700	21200	SO St PM NO _x CO, Oz PAH BTX
117	Steglitz, Schildhornstr. 76	19125	15200	SO St NO _x CO, BS BTX
143	Neukölln, Silbersteinstr. 1	27550	15550	NO _x CO
174	Friedrichshain, Frankfurter Allee 86 b	29450	20750	SO ST NO _x CO, BS BTX
220	Neukölln, Karl-Marx-Str. 76	27050	17200	NO _x CO BS
314	Charlottenburg, Otto-Suhr-A. 100, (Rathaus), (H = 60 m)	18450	11200	WR WS
318	Schöneberg, Kärntner Str. 20, (H = 25 m)	21150	16700	WR WS TT RF, GS

Abkürzungen in der Stationsliste

PZ: postalischer Zustellbezirk, RW: Rechtswert, HW: Hochwert

Gemessene Schadstoffe

PM: PM-10 Staub, SO: Schwefeldioxid, St: Schwebstaub, NO_x: Stickoxide, CO: Kohlenmonoxid, Oz: Ozon, BTX: Benzol, Toluol, Xylol, BS: Black Smoke, PAH: polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe

Gemessene meteorologische Parameter

WR: Windrichtung, WS: skalar gemittelte Windgeschwindigkeit, TT: Temperatur, RF: relative Feuchte, WV: vektoriell gemittelte Windgeschwindigkeit, PP: Luftdruck, GS: Globalstrahlung, SB: Strahlungsbilanz, NN: Niederschlagsmenge, pH: pH-Wert, LF: Leitfähigkeit

Tab. 3-11 Messtationen des Berliner Luftgütenetzes, ihre Lage und die gemessenen Größen. Wichtige Vergleichsstationen sind grau hinterlegt.

4 Die planetare Grenzschicht aus der Sicht des Lidar

In diesem Kapitel werden ausgewählte Messergebnisse präsentiert, die mit den vorgestellten Methoden und Instrumenten gewonnen wurden. Sie demonstrieren, wie die planetare Grenzschicht mit einem Laser-Fernerkundungsgerät untersucht werden kann. Bei der Auswahl wurde der Schwerpunkt auf Ergebnisse gelegt, für die Vergleichsmessungen oder Modellrechnungen vorliegen. Diese sind besonders interessant, da sie der Weiterentwicklung der Messmethode dienen. Zeitreihen wie Tages-, Wochen-, und Jahregänge interessieren im Zusammenhang mit Ergebnissen von Simulationen. Im Verlauf meiner Tätigkeit haben wir gemeinsam mit anderen Forschergruppen am BERLIOZ-Experiment, das der Erforschung der Oxidantienbildung in der Berliner Stadtluft galt, und der OLAK-Kampagne, die Fragen zur Genauigkeit der Laser-Fernerkundungsmessungen von Ozon-Konzentrationen beantworten sollte, teilgenommen. Für den Zeitraum beider Experimente liegen zahlreiche Vergleichsmessungen und Ergebnisse des chemischen Ausbreitungsmodells CALGRID vor. Darüber hinaus werden erste Resultate des neu entwickelten Kilohertz-Lidar vorgestellt. Die Darstellung wird, entsprechend dem methodischen Ansatz der Arbeit, anhand der Messgrößen strukturiert, die Chronologie ist dabei untergeordnet.

4.1 Aerosol

Die Untersuchung des atmosphärischen Aerosols ist die populärste Anwendung der Laser-Fernerkundung. Im Gegensatz zu anderen Bestandteilen der Atmosphäre ist das Aerosol sehr inhomogen verteilt und starken zeitlichen Veränderungen unterworfen, was in

den farbigen Darstellungen der Messreihen deutlich zu erkennen ist. Die Abbildungen 4-1 und 4-2 zeigen zusammenhängende Zeitreihen des Aerosol-Rückstreuungskoeffizienten. Die zeitliche Auflösung entspricht ca. 4 min und die Höhenauflösung 7,5 m.

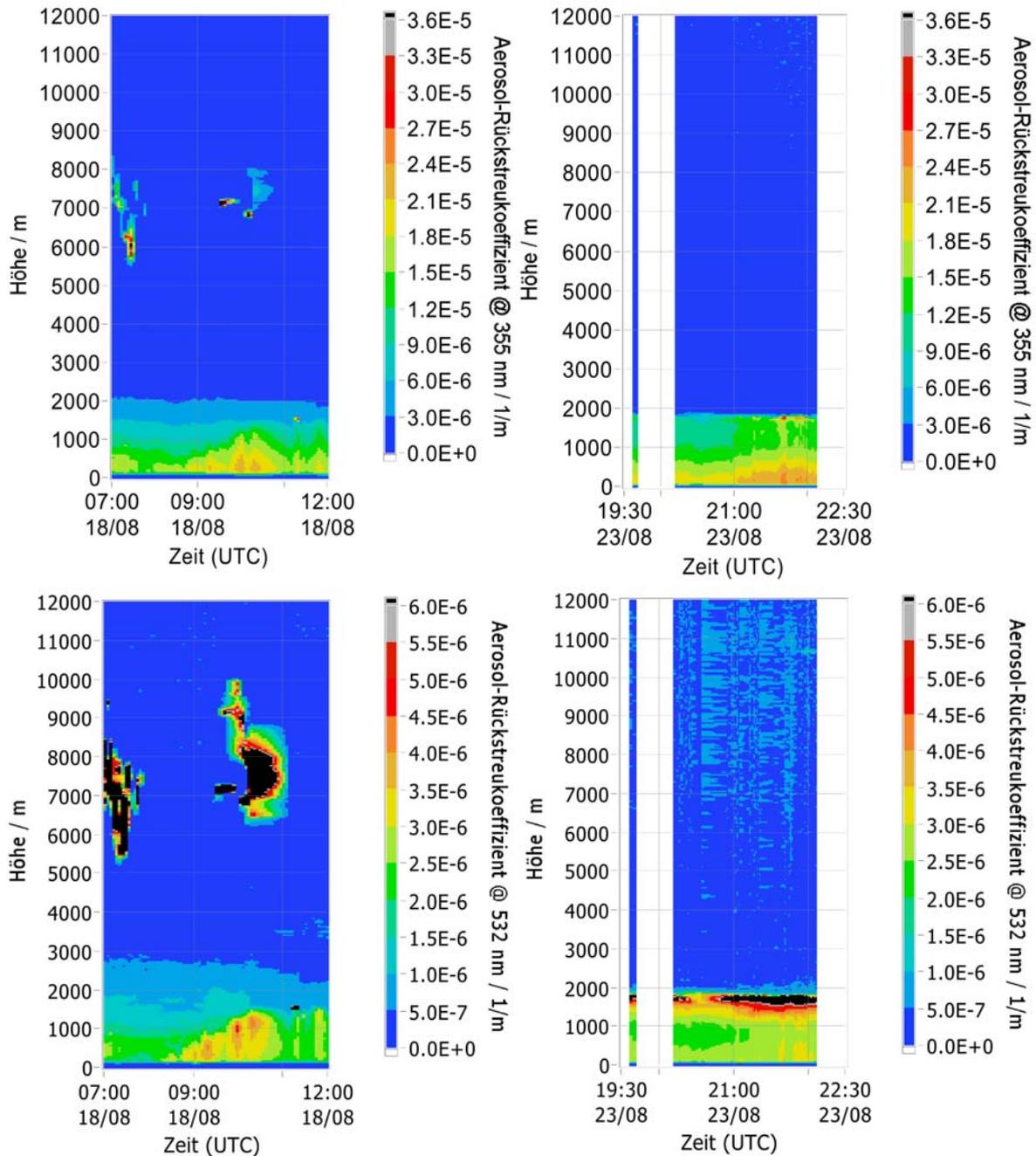


Abb. 4-1 Aerosol-Rückstreuungskoeffizient bei 355 und 532 nm am Morgen des 18. 8. und Abend des 23. 8. 1999 über dem Berliner Stadtzentrum (Lidar-Messstation Charité).

Die im Folgenden vorgestellten Lidar-Daten wurden mit dem Aerosol-Lidar auf dem Dach des Charité-Hochhauses in Berlin Mitte aufgenommen. Zum Vergleich stehen Messungen des in § 3.4 beschriebenen Messflugzeugs, des Fesselballons, der Radiosondenstation des

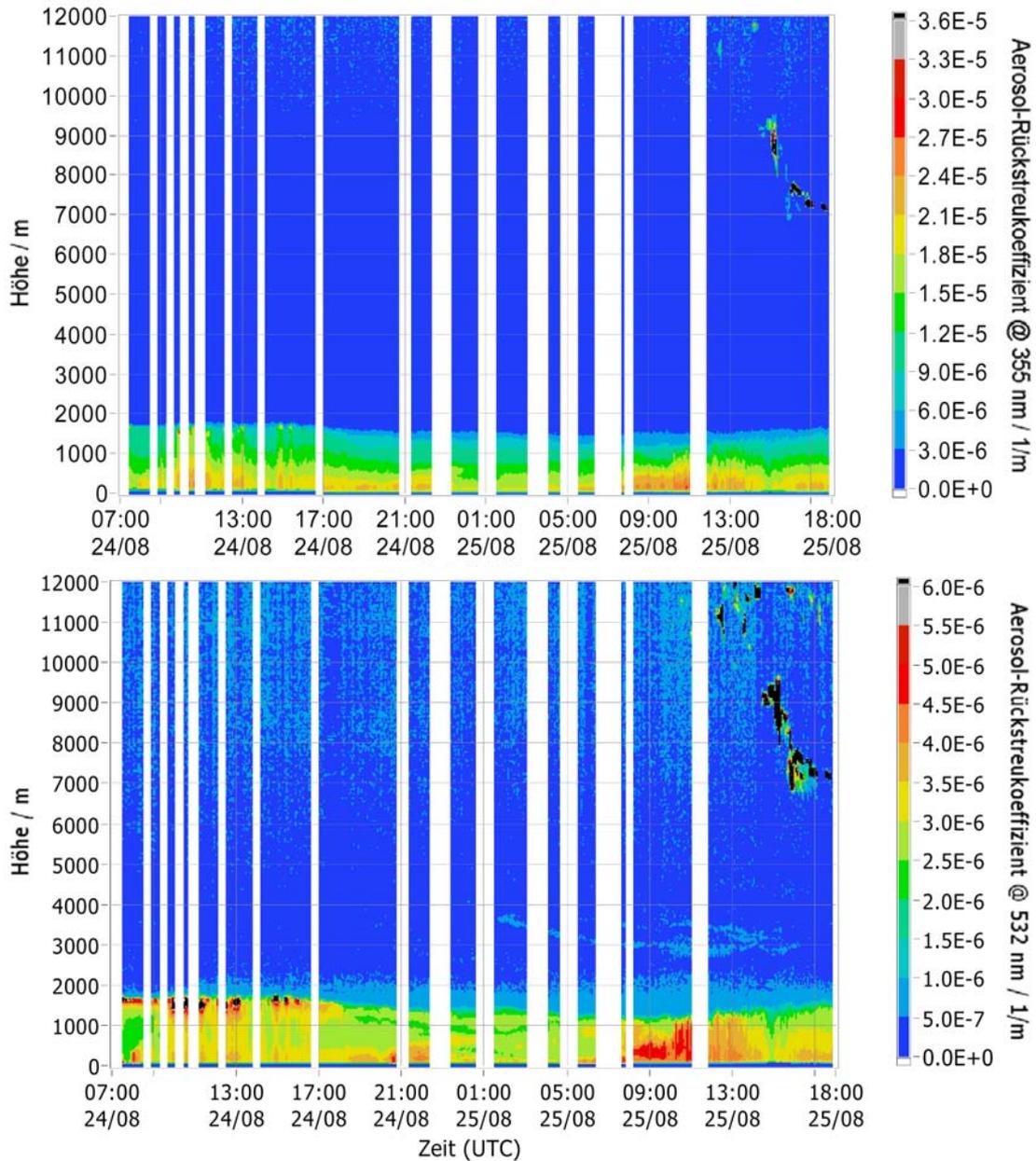


Abb. 4-2 Tagesgang des Aerosol-Rückstreuungskoeffizienten bei 355 und 532 nm am 24./25. 8. 1999 über dem Berliner Stadtzentrum (Lidar-Messstation Charité).

Deutschen Wetterdienstes in Lindenberg bei Berlin, des Berliner Luftgütemessnetzes und verschiedener In-Situ-Analysatoren der Charité-Station zur Verfügung. Der Anlass für die aufwendige 10-tägige Messreihe im August 1999 mit dem Kampagnennamen OLAK war, Laser-Fernerkundungssysteme zur Messung der Ozonkonzentration mit flugzeug- und ballongestützten In-Situ-Messungen zu vergleichen, und den Einfluss verschiedener Aerosol-Typen auf das Ozon-Messergebnis zu erforschen. In Abbildung 4-3 ist eine Messreihe der Aerosol-Größenverteilung dargestellt. Sie wurde mit einem Analysator mit 256 Größenklassen zwischen 12 und 600 nm auf dem Dach der Charité gemessen. Die angegebene Par-

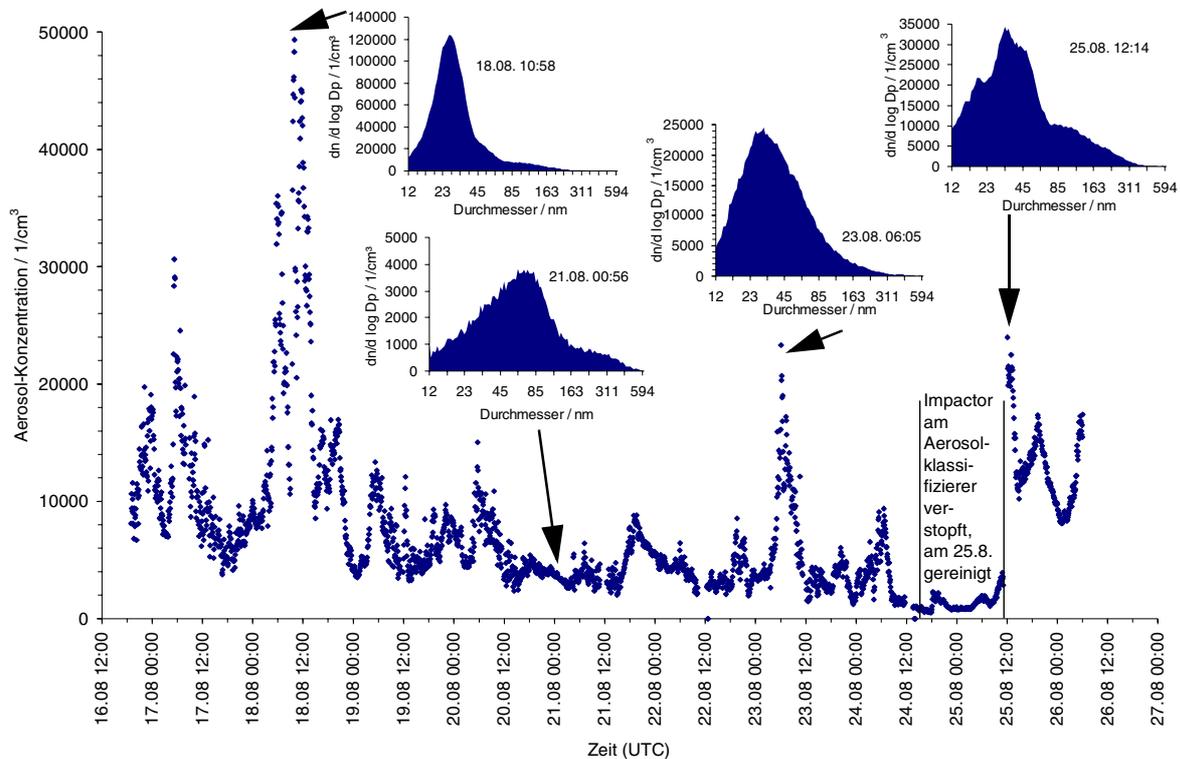


Abb. 4-3 Partikelkonzentration (Mittel über 4 min) für den gesamten Zeitraum und Aerosol-Größenverteilungen (12 bis 615 nm) für ausgewählte Zeitpunkte der OLAK-Vergleichskampagne [Spittler und Olatariu, 1999].

tikelkonzentration ist die über alle Kanäle des Analysators summierte Partikelzahl. Als Anhaltspunkt und Beispiel sind auch einige typische Spektren dargestellt. Bemerkenswert ist, dass die Konzentration im gesamten Zeitraum sehr niedrig ist. Spitzen mit gleichzeitigen Flugzeug- und Lidar-Messungen gibt es am 18., 23. und 25. 8. 1999. Kleine Partikel dominieren eindeutig die Größenverteilungsspektren. In den Lidar-Messungen vom Morgen des 18. 8. (Abbildung 4-1 links) ist deutlich erkennbar, wie zwischen 8:30 Uhr und 11:00 Uhr Aerosol aufsteigt. Das ist typisch für den Morgen eines Sommertags. Durch die Erwärmung des Bodens nach Sonnenaufgang entsteht Konvektion. Zusammen mit den Abgasen steigt Wasserdampf und Staub auf, was zur Aerosolbildung führt. Der hohe Wasserdampfgehalt der Luft erhöht außerdem den Wärmehalt der Luftpakete und ermöglicht so die Überwindung der in der Nacht entstandenen Temperaturinversionsbarrieren.

In den Abbildungen 4-1 und 4-2 sind zeitlich geschlossene Messreihen des Aerosol-Rückstreukoeffizienten bei 355 und 532 nm zu sehen. Aufnahmen dieser Art sind in Berlin wegen des unsteten Wetters nicht unproblematisch. Vertikale Rückstreusignale können nur ausgewertet werden, wenn auch Messwerte in der freien Troposphäre vorliegen, da erst dort das erforderliche Kalibrierintervall mit konstantem Aerosol-Rückstreuverhältnis zu finden

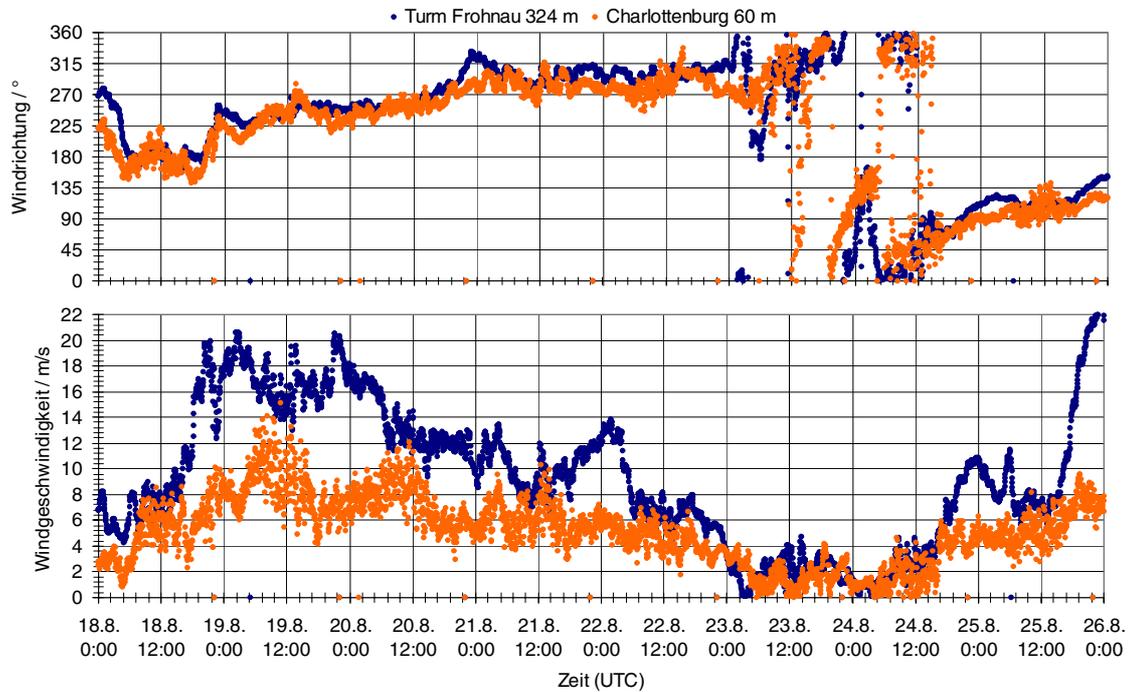


Abb. 4-4 Windrichtung und -geschwindigkeit im Zeitraum der Vergleichskampagne, gemessen im Berliner Luftgüternetz BLUME an der Station Charlottenburg (blau) im Stadtzentrum, in einer Höhe von 60 m, und auf dem Funkturm in Frohnau (orange) im Norden Berlins, in einer Höhe von 324 m.

ist. Bei geschlossener Wolkendecke ist die quantitative Auswertung schwer bis unmöglich und bei wechselnder Bewölkung müssen Signale mit zu geringem Signal-zu-Rausch-Verhältnis in der freien Troposphäre aussortiert werden. Regionen, in denen das Wetter weniger durch den Einfluss periodischer Tiefdruckgebiete beeinflusst wird, sondern vielmehr jahreszeitlich stabil ist, sind für Untersuchungen von Prozessen im Zeitraum von Tagen besser geeignet und wegen der meist höheren Verschmutzung auch interessanter. Die Rückstreuwerte in Schichten mit kleinen Wolken sind unzuverlässig, da die Signale mit und ohne Wolken summiert im Rechner gespeichert und ausgewertet werden. Das neu entwickelte Lidar mit Einzelschussaufzeichnung bringt in diesem Fall eine große Verbesserung, da Wolken in den Einzelschüssen trotz der verrauschten Signale klar identifiziert und nicht mit addiert werden. Die Qualität der infraroten Signale war zu schlecht, um sie für quantitative Auswertungen nutzen zu können.

Für die Klimaforschung und die Suche nach den typischen Aerosolquellen in einer Region wird eine Datenbasis über mehrere Zyklen der Jahreszeiten benötigt. Langfristige Messreihen, d. h. über ein oder mehrere Jahre, wurden in Berlin noch nicht aufgenommen, sie sind jedoch seit Oktober 2001 in Arbeit. Sofern es das Wetter zulässt, wird an mehreren Tagen

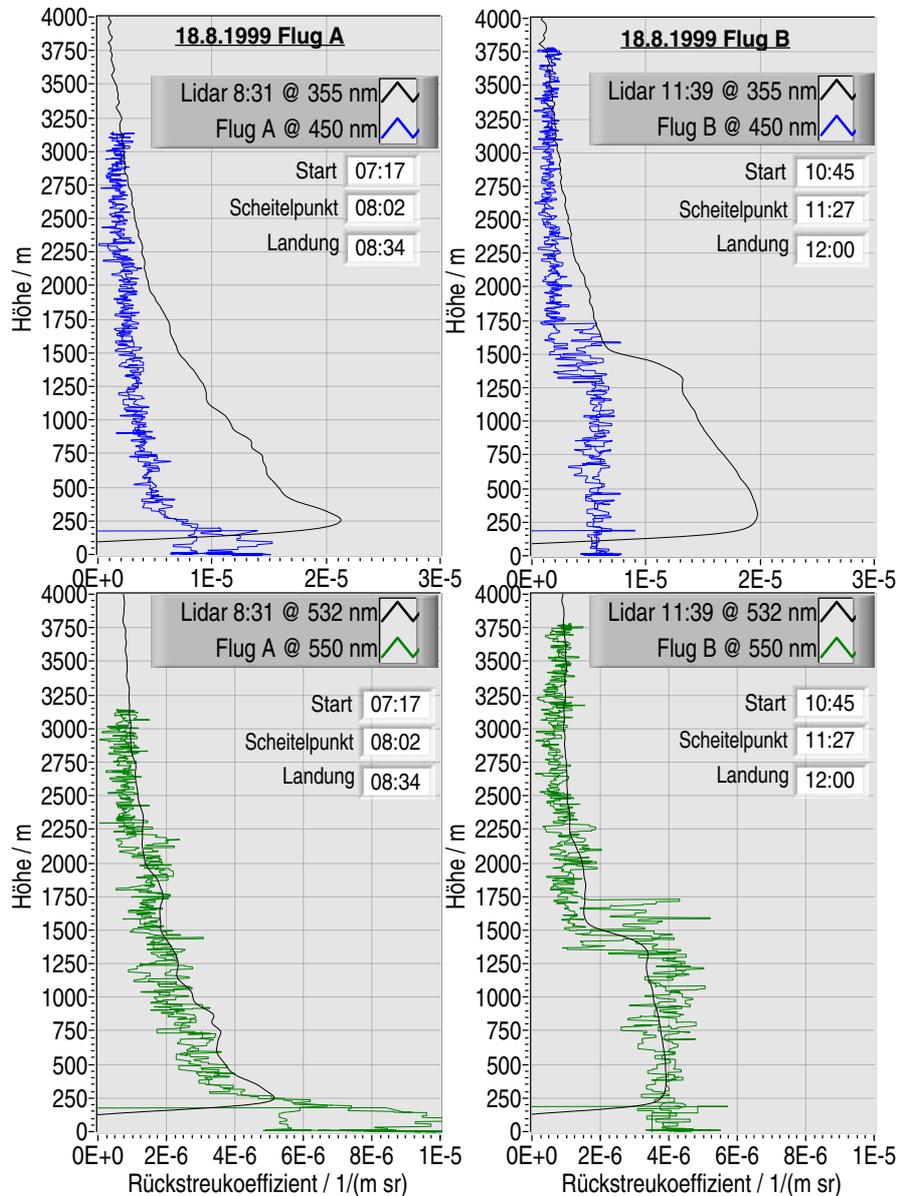


Abb. 4-5 Messungen des Aerosol-Rückstreukoeffizienten über der Messstation auf der Charité in Berlin Mitte mit zeitgleich aufgenommenen Flugzeug-Vergleichsmessungen am 18. 8. 1999.

in der Woche gemessen. Dazu werden Signale bei 355, 532 und 1064 nm, die Depolarisation und das Raman-verschobene Signal bei 387 nm aufgezeichnet.

Die Daten der Vergleichskampagne bieten die sehr seltene Möglichkeit, die Laser-Fernerkundungsergebnisse unabhängigen Messungen optischer und physikalischer Aerosol-Eigenschaften gegenüberzustellen. Wie bereits in § 2.2.3 erläutert, wird zur Berechnung des Aerosol-Rückstreuverhältnisses das Lidar-Verhältnis, ein Dichteprofil und das Rückstreuverhältnis in einem Kalibrationsintervall in der freien Troposphäre benötigt. Die Flugzeugmessungen bieten die Möglichkeit, üblicherweise verwendete Standardwerte bzw.

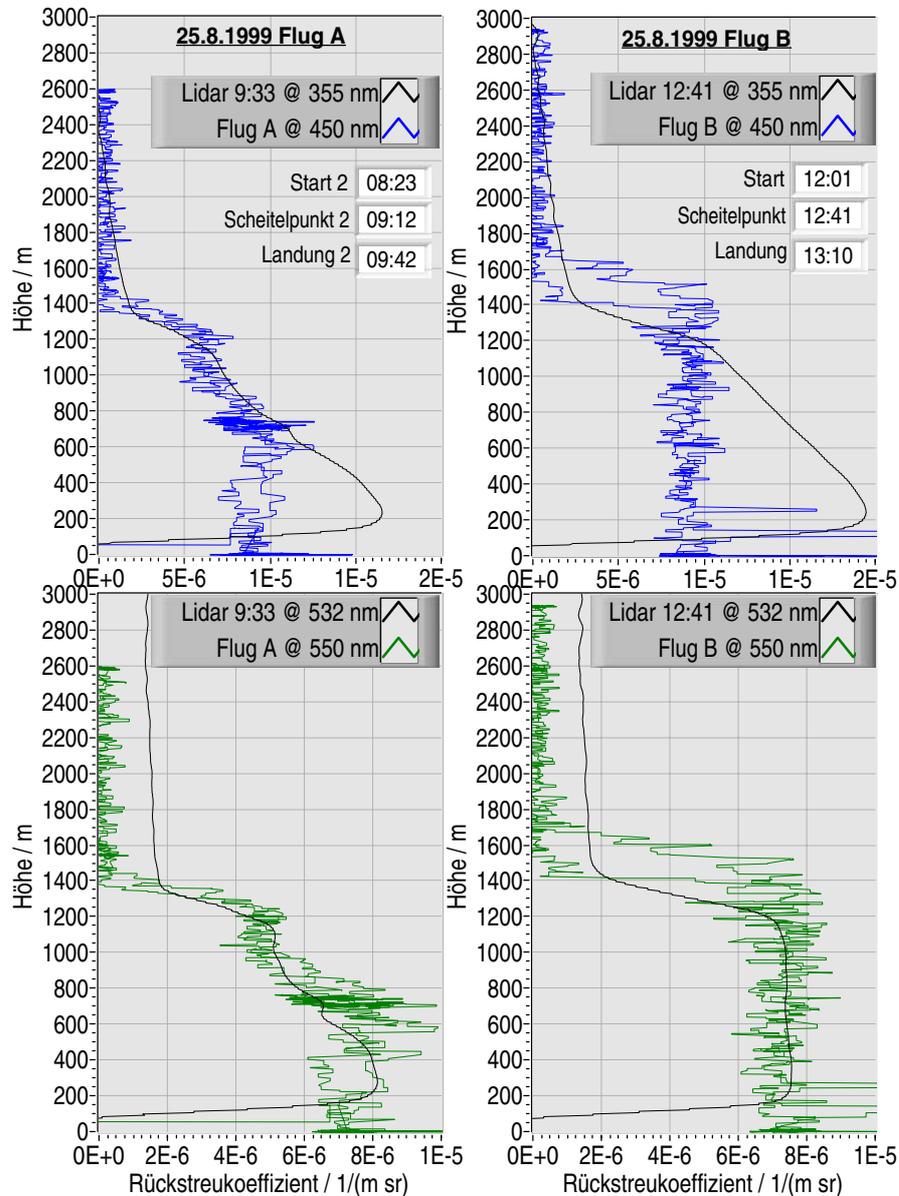


Abb. 4-6 Messungen des Aerosol-Rückstreukoeffizienten über der Messstation Charité in Berlin Mitte mit zeitgleich aufgenommenen Flugzeugvergleichsmessungen am 25. 8. 1999.

Radiosondenprofile weiter entfernter Stationen mit den Werten direkt am Laserstrahl zu vergleichen. Die sich ergebenden Unterschiede führen für die Vergleichsmessungen zu keinen nennenswerten Unterschieden bei der Auswertung.

Mit dem Nephelometer im Flugzeug wurden Extinktions- und Rückstreukoeffizienten des Aerosols direkt neben dem Laserstrahl bestimmt. Zu beachten ist jedoch, dass weder der erfasste Winkelbereich noch die Wellenlängen die gleichen wie beim Lidar sind. Das Nephelometer erfasst gestreutes Licht aus einen Winkelbereich zwischen 7 und 170° für die Extinktions- und zwischen 90 und 170° für Rückstreumessungen. Ein Lidar empfängt

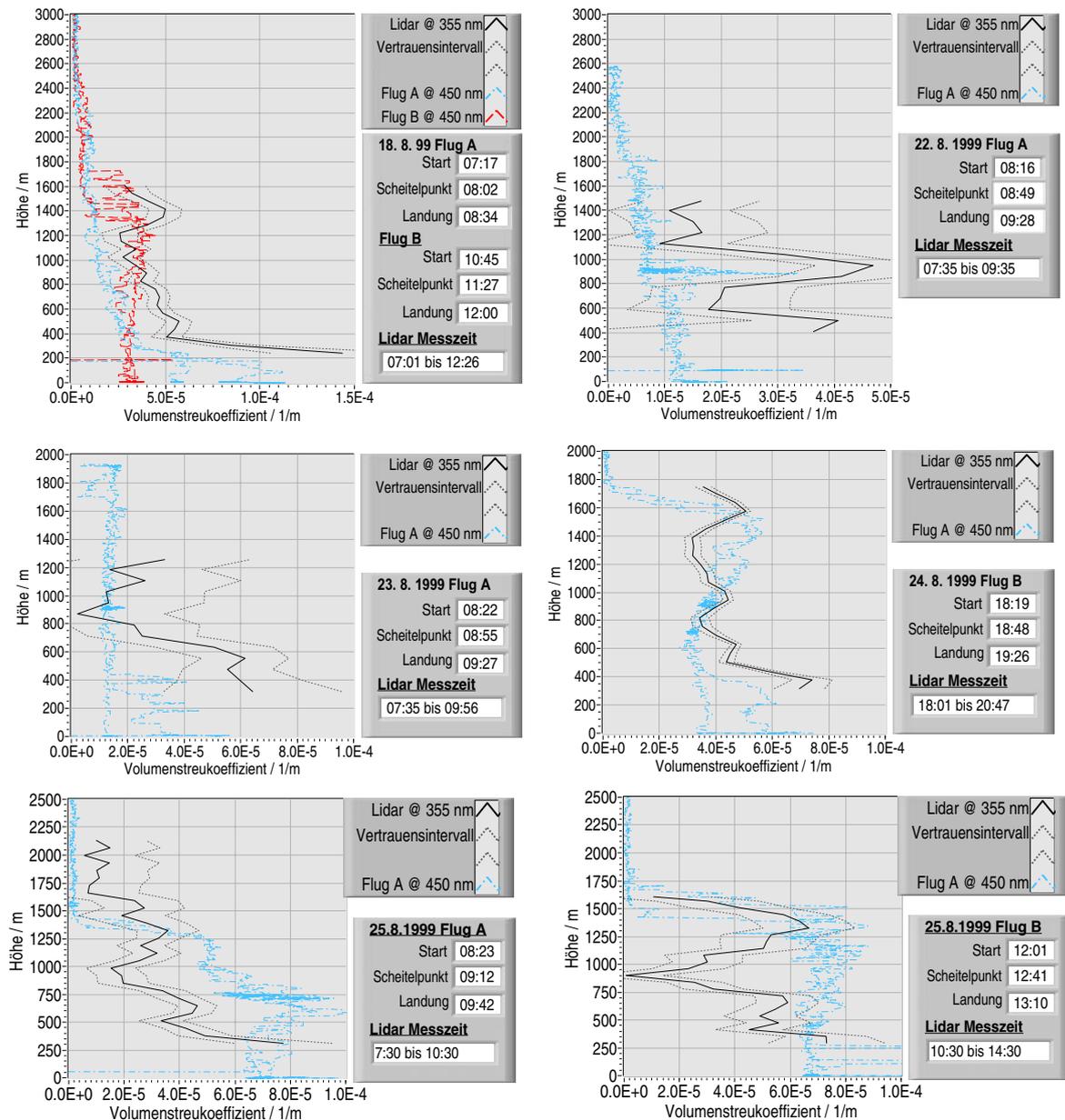


Abb. 4-7 Vergleichsmessungen der Aerosol-Extinktion. Die Raman-Lidar-Messungen wurden bei einer Wellenlänge von 355 bzw. 387 nm und die Nephelometer-Messungen bei 450 nm durchgeführt.

nur Licht aus dem sehr kleinen Streuwinkel von ca. $0,06^\circ$ (1 mrad). Die Wellenlängen unterscheiden sich im ultravioletten Bereich um etwa 100 nm. Gerade dort ist die Unsicherheit wegen der unbekanntenen Wellenlängenabhängigkeit der Aerosol-Streuung am größten. Die kürzeste Wellenlänge des Nephelometers ist 450 nm. Das grüne Licht stimmt in der Farbe sehr gut mit dem Lidar überein. Weiterhin ist bei Messungen mit beweglichen In-Situ-Geräten in Flugzeugen und Ballons zu bedenken, dass es sich um Momentanaufnahmen der Messgröße an jedem Punkt handelt. Lidar-Daten enthalten hingegen gleichzeitig Messwerte an vielen Punkten entlang des Laserstrahls für jeden Schuss. Abhängig von der

Auswertung und dem Signal-zu-Rausch-Verhältnis müssen jedoch Messpunkte der gleichen Entfernung mehrerer Schüsse addiert werden. Die Mittelungszeiten liegen bei Messungen des Rückstreukoeffizienten zwischen 30 s und 4 min und bei Extinktionsmessungen im Rahmen von Stunden. Angesichts dieser Einschränkungen der Vergleichbarkeit ist die gute Übereinstimmung der Messungen erstaunlich. Für die Berechnung der Rückstreukoeffizienten wurde ein konstanter Wert für das Lidar-Verhältnis im gesamten Höhenbereich angenommen. Bei der Simulation zur Bestimmung der nötigen Größen wurde das Aerosol der freien Troposphäre mit der Größenverteilung nach Jänicke [Jänicke, 1993] und dem Brechungsindex von Wasser verwendet. Die Dichteprofile entstammen den Radiosondaufstiegen der Station Lindenberg bei Berlin.

Die Rückstreukoeffizienten bei 532 nm stimmen in der Grenzschicht sehr genau mit den Vergleichsmessungen überein. Selbst kleinskalige Strukturen werden durch beide Messungen genauso wiedergegeben. Im Kalibrationsintervall in der freien Troposphäre fallen die Werte nur am 18. 8. 1999 (Abbildung 4-5) aufeinander. Am 25. 8. 1999 (Abbildung 4-6) hat das Nephelometer keine Aerosol-Streuung in der freien Troposphäre registriert. Wird dieses Resultat für die Kalibrierung bei der Lidar-Inversion verwendet, sind die Rückstreukoeffizienten in der Grenzschicht zu klein.

Trotz der Unterschiede bei den betrachteten Raumwinkeln wurden sehr ähnliche Ergebnisse gemessen. Das bestätigt die Mie-Simulationen, wonach der größte Teil des Lichts nach vorn und hinten gestreut wird. Die zusätzliche Messung von Licht aus anderen Winkelbereichen leistet nur einen unbedeutenden Beitrag.

Die Lidar-Extinktionsprofile bei 355 nm und die Nephelometermessungen haben die gleiche Höhenstruktur und sehr ähnliche Werte. Das Flugzeug hat beim Auf- und Abstieg in der Grenzschicht sehr unterschiedliche Werte gemessen, was auf eine hohe Variabilität hindeutet, die bei der Lidar-Messung nicht erfasst wird, da über längere Zeiten gemittelt werden muss. Anders als bei elastischen Rückstreumessungen führt das nicht zu Mittelungsfehlern, da das Aerosol keinen Einfluss auf die Rückstreuintensität hat, sondern nur auf die Messgröße, die Extinktion. Stickstoff-Raman-Aerosol-Extinktionsmessungen scheinen somit hervorragend geeignet zu sein, die Wirkung des Aerosols auf den Strahlungshaushalt zu untersuchen, da es dabei auf den Durchschnittswert der Streuparameter ankommt.

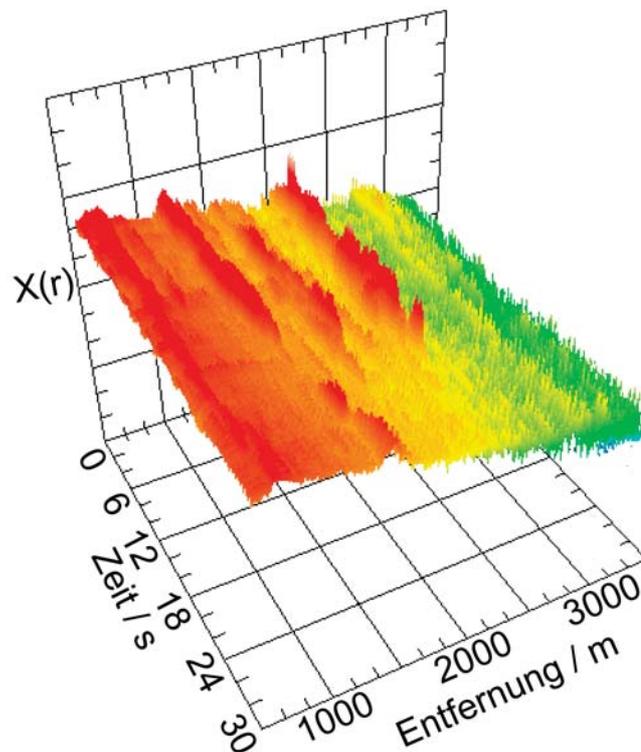


Abb. 4-8 Aerosol-Rückstreumessungen mit einer Zeitauflösung von 100 ms auf dem kleinen Feldberg im Taunus. Auf dem Foto sind der grüne Laserstrahl des Lidar und der weisse Strahl des DOAS-Gerätes zu sehen, im Hintergrund der Große Feldberg.

Mit dem neu entwickelten Ozon-Raman-DIAL-Lidar wurden bisher vorwiegend Testmessungen zur Erprobung der Methode und der neu entwickelten optischen und elektronischen Komponenten durchgeführt. Abbildung 4-8 zeigt den Laserstrahl des Lidar bei einer Kam-

pagne im Oktober 2000 auf dem kleinen Feldberg im Taunus. Sie wurde nicht zu Unrecht „Härtetest“ genannt. Fast die gesamte Zeit über war die Bergspitze mit allen Gerätschaften in Nebel gehüllt oder es regnete. Die Grafik zeigt eine über 30 s aufgenommene Signalfolge horizontaler Messungen mit einer zeitlichen Auflösung von 100 ms, also 300 Entfernungsprofile. Selbst auf dieser kurzen Zeitskala sind starke Veränderungen der Streuintensität sichtbar. Die Zeitauflösung lässt sich mit der neu entwickelten Elektronik bis zur Wiederholrate des Lasers von 1 kHz steigern. In Abbildung 4-20 sind Aerosol-Extinktionsmessungen im UV-Bereich dargestellt, die mit dem neuen System aufgenommen wurden. Das ist natürlich nur möglich, weil gleichzeitig die Ozonkonzentration mit dem Raman-DIAL-Verfahren ermittelt wird. Die großen Fehlerbalken der Messungen erklären sich durch die schlechte Transmission der im Test verwendeten Detektionsoptik und der Signalaufnahme durch einen Transientenrecorder. Im fertigen System wird eine Photonenzählkarte eingesetzt.

Ein robustes Messsystem, wie es auf der Lidar-Station im Zentrum Berlins existiert, ist für Untersuchungen des Aerosols sehr gut geeignet. Da es über einen längeren Zeitraum gewachsen ist, sind einige Lösungen nicht ideal und nicht überall wird die optimale Technik verwendet. Insbesondere ist der Gesamtaufbau mechanisch nicht stabil genug, und die optische Kopplung des Teleskops mit der Detektoroptik durch eine Lichtleitfaser ist problematisch. Wie die Praxis und die ray-tracing-Simulationen zeigen, ist die Justage einer guten Abbildung des Signals über den gesamten Entfernungsbereich eine Kunst. Das gilt insbesondere für den Infrarot-Kanal, da die Detektorfläche zu klein ist. Für Tageslichtmessungen der Extinktion müsste der Filter etwas schmalbandiger sein. In dem neu entwickelten System wurde versucht, die bereits bekannten Probleme von vornherein auszuschließen. Insbesondere soll das durch einen kompakten Aufbau und eine direkte Ankopplung der Empfangsoptik an das Teleskop erreicht werden. Sehr wichtig ist die Möglichkeit, einzelne Signale mit der Wiederholrate des Lasers aufzuzeichnen, um Mittelungsproblemen vorzubeugen.

4.2 Mischungsschichthöhe

Betrachtet man vertikale Profile des Aerosol-Rückstreuoeffizienten, hebt sich die freie Troposphäre deutlich durch ihre Sauberkeit von der bodennahen Grenzschicht ab. Aerosol, das durch Aufwirbelung und chemische Reaktionen der vom Boden stammenden Stoffe

gebildet wird, gelangt nur sehr selten über die Barriere zur freien Troposphäre. Die verschieden stark streuenden Schichten machen aber deutlich, dass Luftbeimengungen innerhalb der Mischungsschicht nicht homogen verteilt sind. Farbliche Darstellungen der zeitlichen Entwicklung der Höhenprofile, wie sie in den Abbildungen 4-1 und 4-2 zu sehen sind, geben ein eindrucksvolles Zeugnis der komplizierten Struktur, aber noch keinen objektiven Anhaltspunkt, wo die Obergrenze der Mischungsschicht liegt.

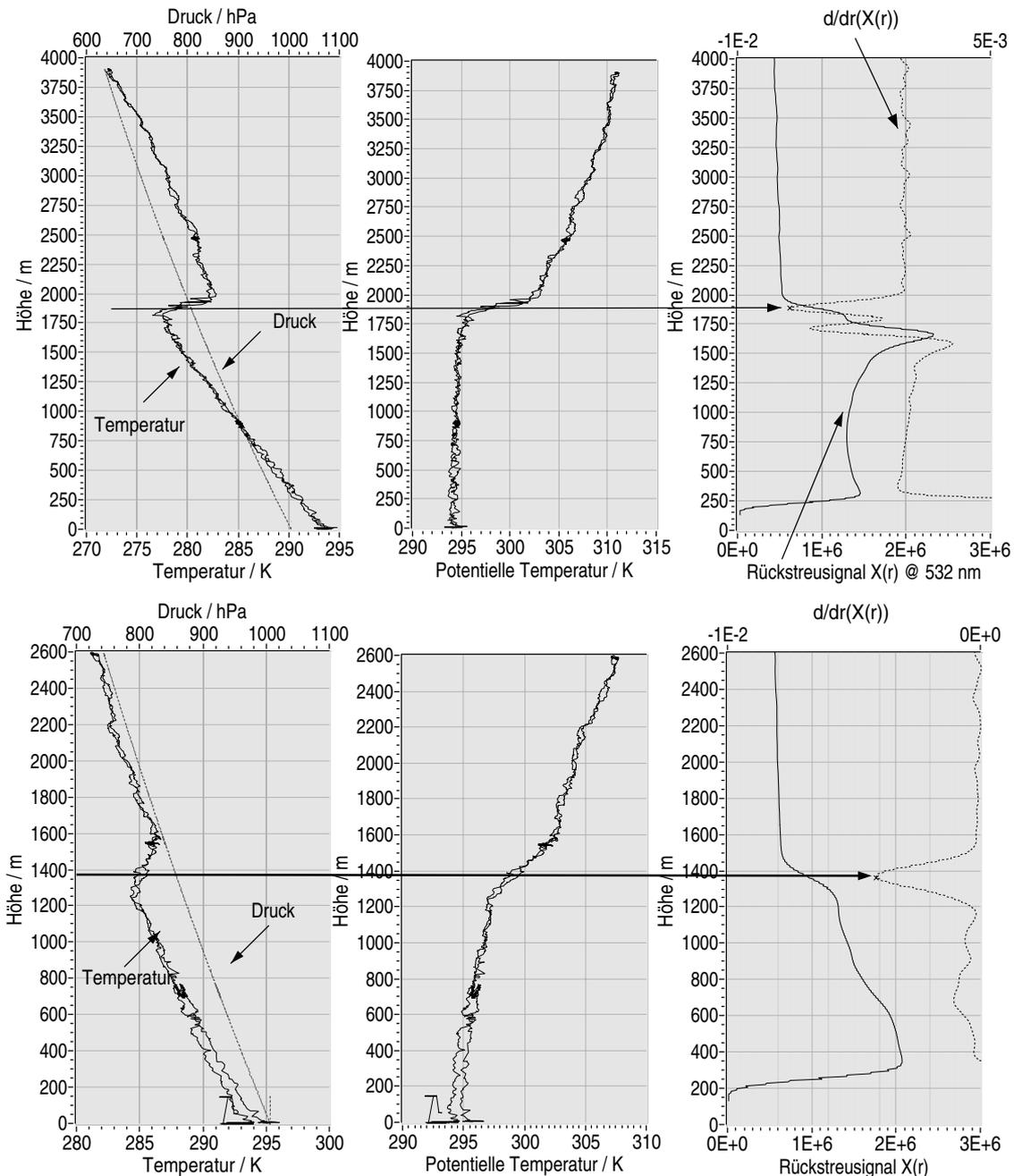


Abb. 4-9 Bestimmung der Mischungsschichthöhe. Druck und Temperaturprofil wurden am 25. 8. 1999 zwischen 8:23 und 9:42 Uhr und am 4. 8. 1999 zwischen 9:48 und 11:28 Uhr während eines Vergleichsfluges der OLAK-Kampagne gemessen. Das Rückstreuprofil bei 532 nm wurde um 9:13 Uhr bzw. 11 Uhr, jeweils zur Scheitelzeit des Fluges, aufgenommen.

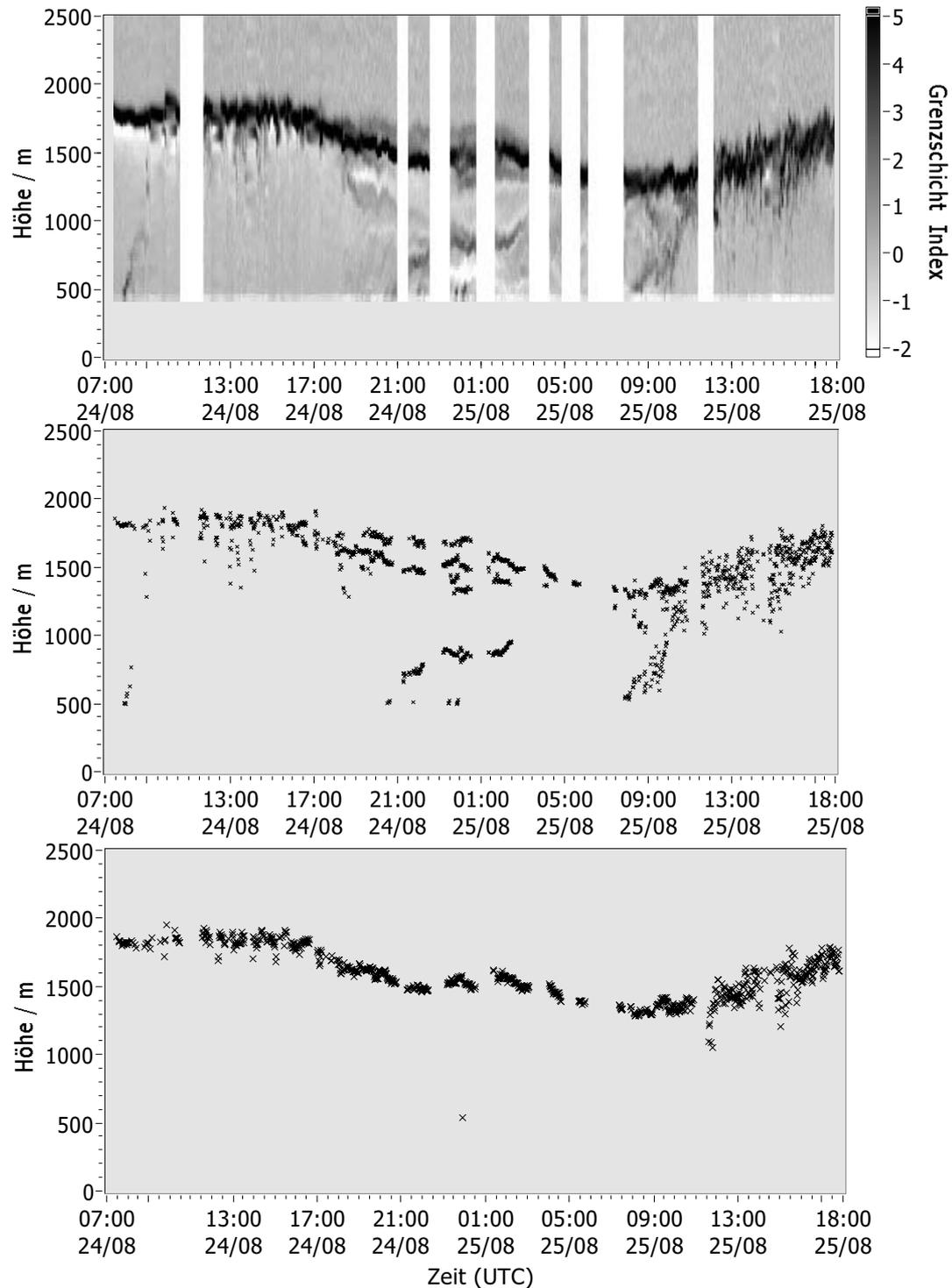


Abb. 4-10 Aus der Aerosolrückstreuung abgeleitete Mischungsschichthöhe am 24./25. 8. 1999.

Eine Möglichkeit ist, nach dem stärksten Gradienten des linearisierten Rückstreusignals zu suchen. Im differenzierten Signal ist er durch das globale Minimum einfach numerisch zu erkennen. Abbildung 4-9 zeigt Beispiele für Lidar-Messungen, für die auch unabhängige Vergleichdaten vorliegen. Im ersten Fall tritt das Maximum deutlich hervor und markiert

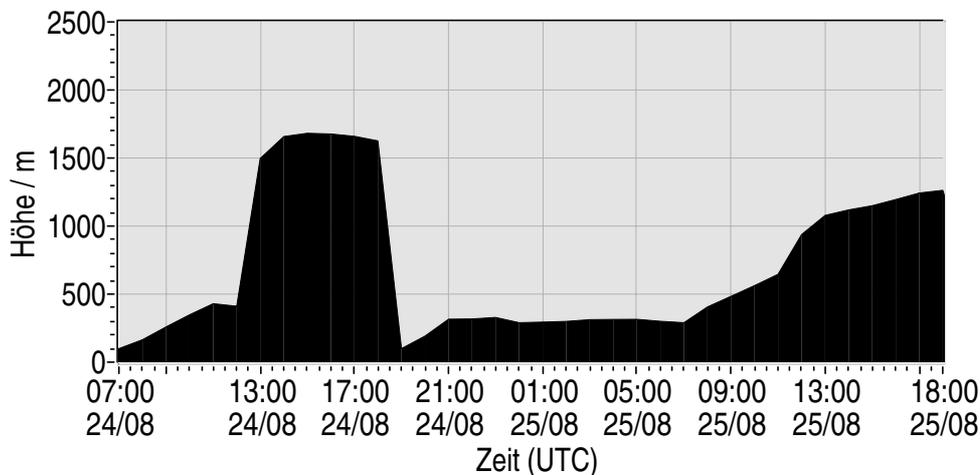


Abb. 4-11 Dem Modell CALGRID zugrundeliegende Mischungsschichthöhe am 24./25. 8. 1999.

die Mischungsschichthöhe bei 1400 m. Zwischen 600 und 800 m befindet sich noch ein schwächerer Gradient, der auf eine weitere Schichtung hindeutet. Wenn nur nach dem Hauptminimum gesucht wird, kann es passieren, dass die momentane Barriere für die Schadstoffausbreitung übersehen wird. Die Gefahr ist besonders groß, wenn noch verschmutzte Restschichten vorhanden sind, an denen der Rückstreukoeffizient stärker abfällt als an der untersten Schicht. Das ist typischerweise nachts der Fall. Deshalb müssen alle Minima bestimmt werden, wenn die Höhe der untersten Schicht gesucht wird.

Eine stark rückstreuende Schicht und Wolken ergeben ein Maximum mit einem darauf folgenden Minimum im differenzierten Signal. Während der in Abbildung 4-9 oben dargestellten Messungen herrschte lockere Bewölkung direkt an der Obergrenze der Mischungsschicht. Die Wolken sind an einem Maximum und dem darauf folgenden Minimum gut zu erkennen. Dann kommt in diesem Fall ein Sattelpunkt und danach der stärkste Gradient, welcher genau die Obergrenze der Grenzschicht bei etwa 1850 m markiert.

Für Berlin hat sich die relativ einfache Gradientenmethode bewährt. In komplizierterem Terrain kommt es häufiger vor, dass sich Schichten verschiedener Herkunft mischen, so dass die Anzahl der Minima unübersichtlich werden kann. In so einem Fall ist die Analyse des Signals durch eine Wavelet-Transformation zu bevorzugen.

In Abbildung 4-10 ist eine beispielhafte Messreihe über zwei Tage mit einer ganzen Nacht dargestellt. Für den Zeitraum liegen Vergleichsmessungen (Abbildung 4-9) und Modellvorhersagen (Abbildung 4-11) vor. Der Unterschied zwischen der gut durchmischten Grenzschicht am Tage und der komplizierten Schichtstruktur in der Nacht tritt in der oberen

Abbildung deutlich hervor. Man kann nun alle Minima, die einen bestimmten Grenzwert unterschreiten, oder das Hauptminimum suchen. Das Ergebnis der ersten Methode ist in der mittleren Abbildung (4-10) zu sehen. Sowohl die nächtliche Bodeninversion als auch die Residualschicht sind gut erkennbar. In der unteren Abbildung ist für jedes Signal nur die Höhe des Hauptminimums der Ableitung aufgetragen. Aus Sicht des Lidar reicht die Grenzschicht bis zur Linie dieser globalen Minima. Erwartungsgemäß liegt sie nachts tiefer als am Tag. Der Mischungsraum wird allerdings nachts durch die Bodeninversion beschränkt, deren Verlauf in der Abbildung 4-10 (Mitte) für beide Nächte zu erkennen ist. Diese Darstellung enthält alle Minima der abgeleiteten Signale. Die Boden-Aerosolschicht löst sich in der Nacht vom 24./25. 8. 1999 gegen 3 Uhr morgens auf. Nach Sonnenaufgang sieht man eine neu gebildete Aerosolschicht aufsteigen. Gegen 10 Uhr verschmilzt sie mit der Residualschicht vom Vortag.

Die ermittelten Grenzschichthöhen stimmen sehr gut mit den Vergleichsmessungen überein. Aerosol markiert die gleiche Höhe wie die potentielle Temperatur. Das Modell sagt nur einen sehr vereinfachten Verlauf voraus. Die Zeitpunkte der Veränderungen stimmen gut mit der Realität überein. Die Absoluthöhen, die Auflösung der nächtlichen Bodeninversion und die Mischung mit der Residualschicht werden nicht reproduziert.

4.3 Spurengase

Messwerte der dreidimensionalen Verteilung der Konzentration von Spurengasen sind von einer Vielzahl von Anwendern gefragt. Besonders die Modellierung der Ausbreitung und Chemie von Luftverunreinigungen und des Klimas erfordern eine der Gitterweite der Modelle entsprechende räumliche und zeitliche Abdeckung mit Messwerten. Ebenso interessant sind die Fernmessungen für die Überwachung des Schadstoffausstoßes von Industrie und Verkehr. Ein einzelnes Laser-Fernerkundungs-Messgerät liefert eine Vielzahl von Konzentrationsmesswerten entlang des Strahls. Die gewonnenen Messwerte sind natürlich schwer mit anderen zu vergleichen. Nur flugzeug- oder ballongetragene Messgeräte können annähernd Aufschluss über die Genauigkeit bzw. Vergleichbarkeit der Methode liefern. Die Anwender der Daten verlangen jedoch zu Recht hohe Qualitätssicherungsstandards, da auch von anderen Methoden bekannt ist, dass zwei Messgeräte an der gleichen Stelle selten das Gleiche messen.

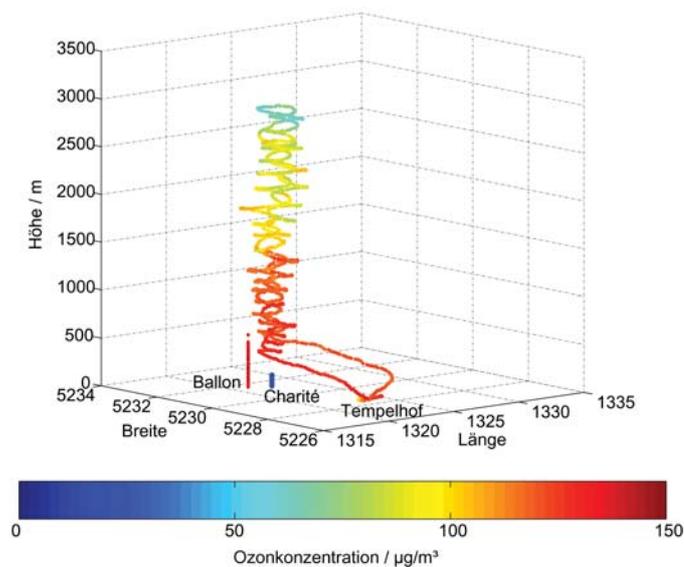


Abb. 4-12 Vergleichsmessungen der Ozonkonzentration mit Fesselballon und Flugzeug im Zentrum Berlins

Im Zusammenhang mit dem Berliner Ozon-Experiment BERLIOZ wurde im Zentrum Berlins im Sommer des Folgejahres (1999) eine Vergleichskampagne durchgeführt. Teilgenommen haben außer dem Lidar auf der Charité noch drei weitere, sehr ähnlich aufgebaute, jedoch mobile Instrumente, ein mit Messinstrumenten bestückter Fesselballon und ein Messflugzeug [Weitkamp et al., 2001]. Abbildung 4-12 illustriert die räumliche Anordnung während der Vergleiche. Das Flugzeug flog nach dem Start in Berlin-Tempelhof in einer Spirale um den Strahl des Lidar auf der Charité (dargestellt als blauer Turm). In der Farbe der Spirale ist die Ozonkonzentration codiert, wie sie vom Flugzeug gemessen wurde. In den unteren 600 bis 800 m wurde zusätzlich ein Fesselballon, etwa 1,8 km nordöstlich der Charité, eingesetzt. Seine Messdaten sind ebenfalls durch ein farblich codiertes Ozonprofil in Abbildung 4-12 dargestellt.

Das besondere Interesse lag natürlich auf der methodischen Schwäche des DIAL-Verfahrens, dem Effekt der Aerosol-Rückstreuung auf die gemessenen Ozonwerte. Mithilfe der bereits in § 4.1 vorgestellten Aerosol-Lidar-Messungen konnte außer der Standard-DIAL-Auswertung auch eine Auswertung mit dem Aerosol-DIAL-Verfahren durchgeführt werden. Eine Schwierigkeit besteht natürlich in der nötigen Extrapolation der optischen Aerosol-Parameter in den UV-Bereich. Der Erfolg der neuen Auswertungsmethode war sehr tagesabhängig, wobei die Übereinstimmung mit den Vergleichswerten nie schlechter als bei der Standard-DIAL-Methode ausgefallen ist. In Abbildung 4-13 ist die mit dem Verfahren nach DIN ISO 13752 [DIN, 1999] ermittelte Messunsicherheit für den

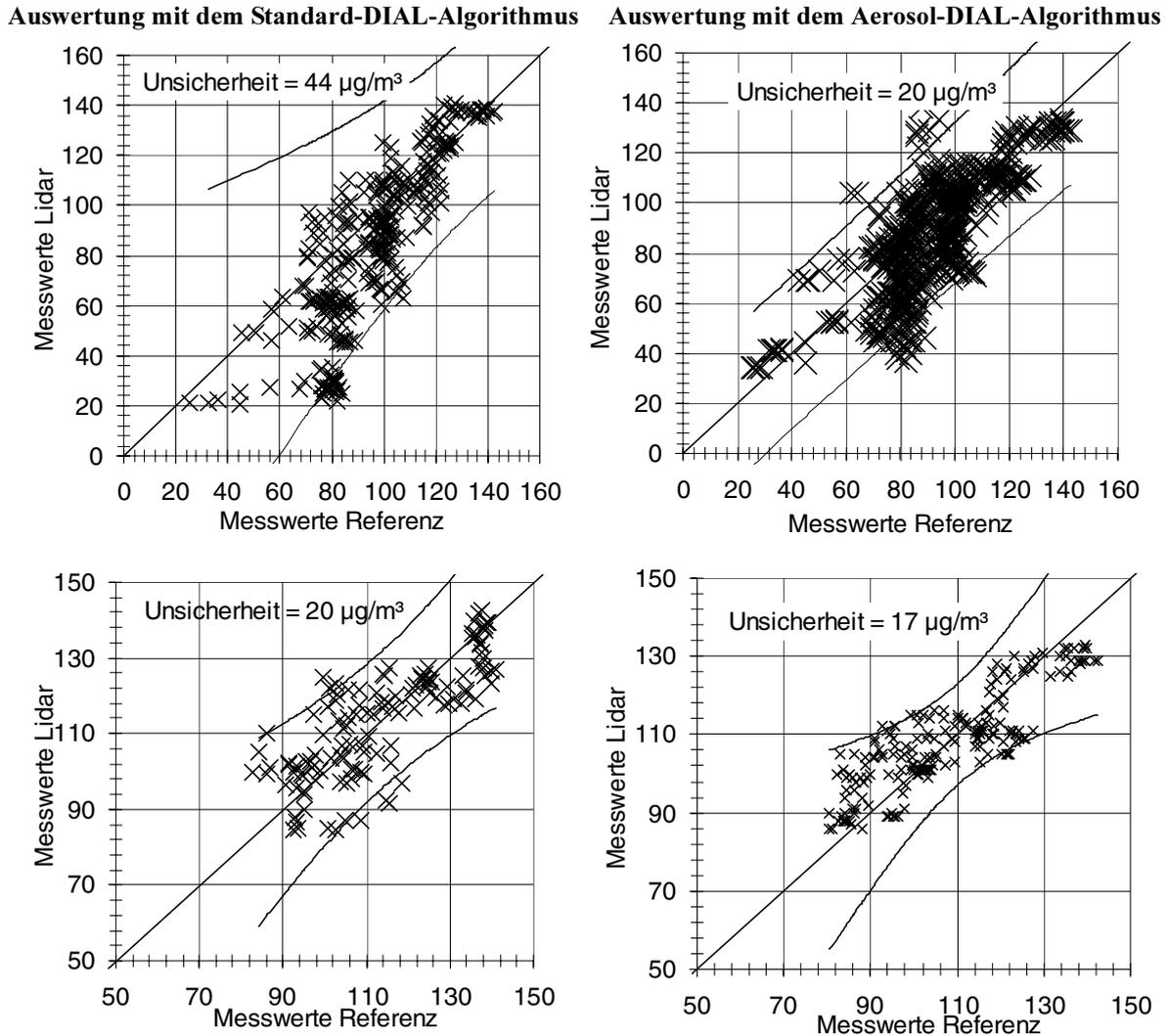


Abb. 4-13 Messunsicherheit bei DIAL-Messungen der Ozonkonzentration mit dem Messinstrument auf dem Charité-Hochhaus, bestimmt durch Vergleiche mit einem Referenzverfahren. Die oberen Abbildungen zeigen das Ergebnis aller im Blindversuch abgegebenen Daten für 8 Vergleichsflüge. Unten sind die Werte für einen ausgewählten Tag, den 25. 8. 1999, abgebildet.

Vergleich mit den Flugzeug- und Ballon-Referenzmessungen dargestellt. Die Aerosol-DIAL-Methode der Auswertung verringert die Abweichungen von durchschnittlich 44 auf $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Nicht an allen Tagen führte sie jedoch zu einer so drastischen Verbesserung, wie das Beispiel vom 25. 8. 1999 in Abbildung 4-13 unten zeigt. Die dargestellten Messunsicherheiten in Abbildung 4-13 sind direkt im Doppelblindversuch ermittelt worden. Das heisst, keiner Seite waren vor dem Vergleich durch eine unabhängige Person die anderen Daten bekannt. Die Ergebnisse sind im Abschlussbericht der OLAK-Vergleichskampagne [Weitkamp et al., 2001] und in der Diplomarbeit von F. Herb [Herb, 2000] dargestellt und erläutert.

Nachdem die Vergleichsprofile bekannt waren konnte nach schlecht gewählten Parametern des Datenauswertungsprogramms gesucht werden. Dabei kommt es natürlich darauf an, nur Werte zu verändern, die alle Messungen gleichermaßen verbessern. Die mit dem Lidar gemessenen Profile stimmen im Mittel sehr gut mit den Referenzdaten überein, zeigen aber zu viele kleinskalige Strukturen. Diese Strukturen verschwinden, wenn für die Ableitung des Signals eine längere Regressionsgerade verwendet oder nachträglich das laufende Mittel des Profils gebildet wird. Um keine weiteren Parameter zu beeinflussen wurde die zweite Variante gewählt. Das Optimum liegt bei einer Mittlung über 500 m, d. h. 10 Punkte, der in einem Originalabstand von 50 m liegenden Vergleichspunkte [Herb, 2000]. In den Abbildungen 4-14 und 4-15 sind auf diese Art erzeugte Vergleichsprofile beider Auswertungsmethoden und die Referenzwerte abgebildet. Die Messunsicherheit nach DIN verringert sich durch diese nachträgliche Manipulation auf ca. $7 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Diese Erfahrung ist sehr wertvoll. Es ist ausgesprochen schwer zu entscheiden, wie weit die Messsignale geglättet werden dürfen, um keine real existierenden Strukturen zu verlieren aber auch keine virtuellen zu erzeugen. Auf der anderen Seite ist aber auch Vorsicht geboten, denn eine gute Vergleichbarkeit mit herkömmlichen Methoden muss nicht heißen, das die Werte besser der Realität entsprechen. In diesem Fall wurde aber bewusst auf eine neue Auswertung verzichtet, um Zweifel an der Authentizität und der Nachvollziehbarkeit auszuräumen.

Am 22. 8. war die Sichtweite sehr gut und es herrschte wechselnde Bewölkung. Die Standard-DIAL-Auswertung ergab eine Ozonschicht in 600 m Höhe mit Konzentrationen, die um $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ höher als die Referenzwerte liegen. Beachtenswert ist, dass die Referenzverfahren in eben dieser Höhe keine gute Übereinstimmung zeigten, weshalb der sonst angegebene $2\text{-}\sigma$ -Bereich der auf Höhenintervalle von 50 m gemittelten Werte nicht angegeben ist. In diesem Fall ist eine Auswertung mit der Aerosol-DIAL-Methode sinnvoll. Durch die darin enthaltene Trennung der Rückstreu- und Ozonauswertung kommt der Rückstreufehler nicht zum Tragen. Die Streueigenschaften des Aerosols wurden mit den Parametern des urbanen Aerosols berechnet.

Am 23. 8. hat das Referenzverfahren einen starken Konzentrationsgradienten bei 500 m Höhe gemessen, der bei der Standard-DIAL-Auswertung nicht erkannt wurde, sehr gut dagegen mit der Aerosol-DIAL-Auswertung. Hier hat ein gleichzeitiger Wechsel der Aerosol-Streueigenschaften und der Ozonwerte zu falschen Ergebnissen geführt.

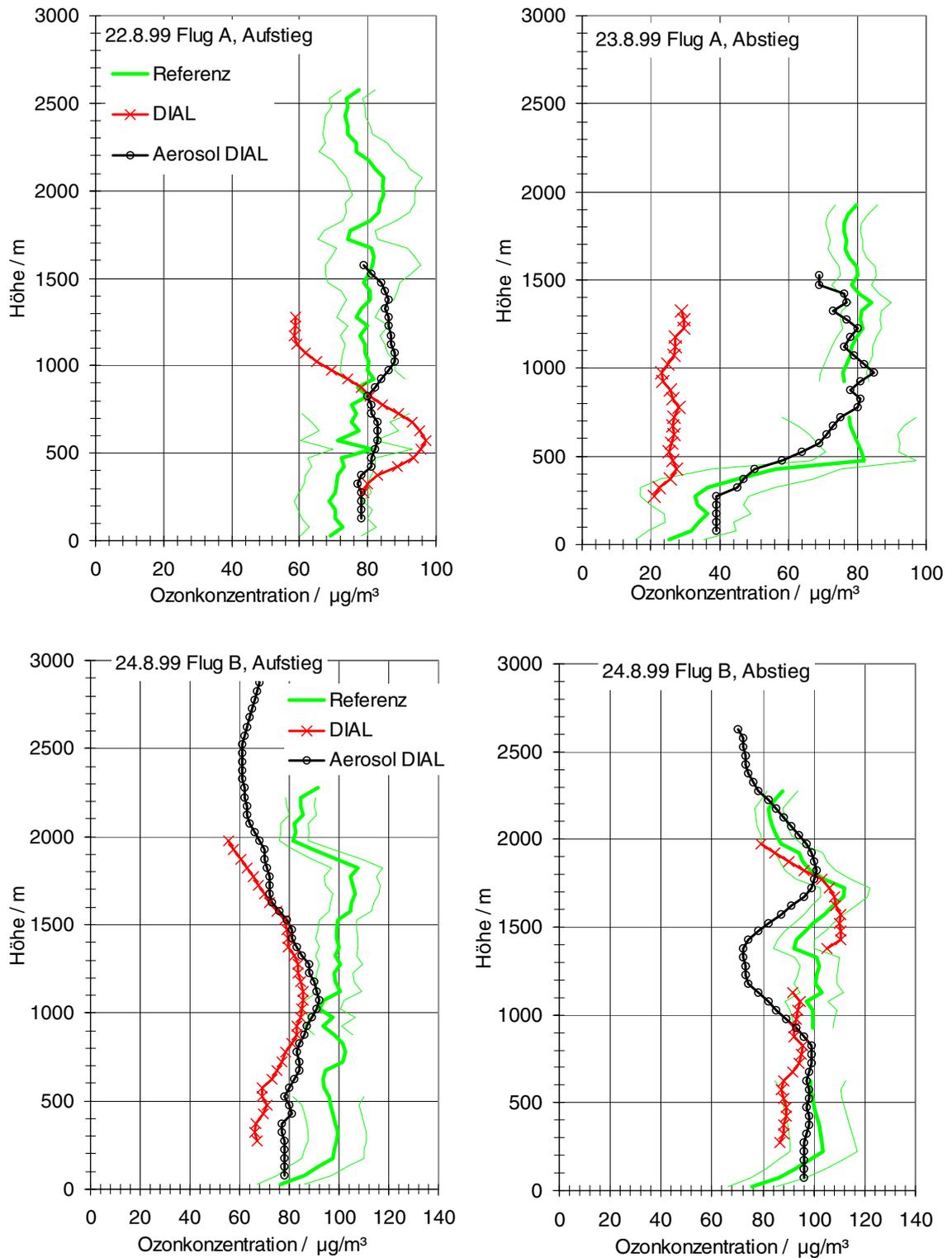


Abb. 4-14 Vergleichsmessung der Ozonkonzentration während der OLAK-Kampagne, 22./23./24. 8. 1999.

Am 24. 8. gab es viele kleine Wolken in einer Höhe von ca. 1400 m. Während des Aufstiegs des Flugzeugs wurden tendenziell niedrigere Werte durch das Lidar gemessen, die aber immer noch innerhalb des $2\text{-}\sigma$ -Bereichs der über 50-m-Intervalle gemittelten Flug-

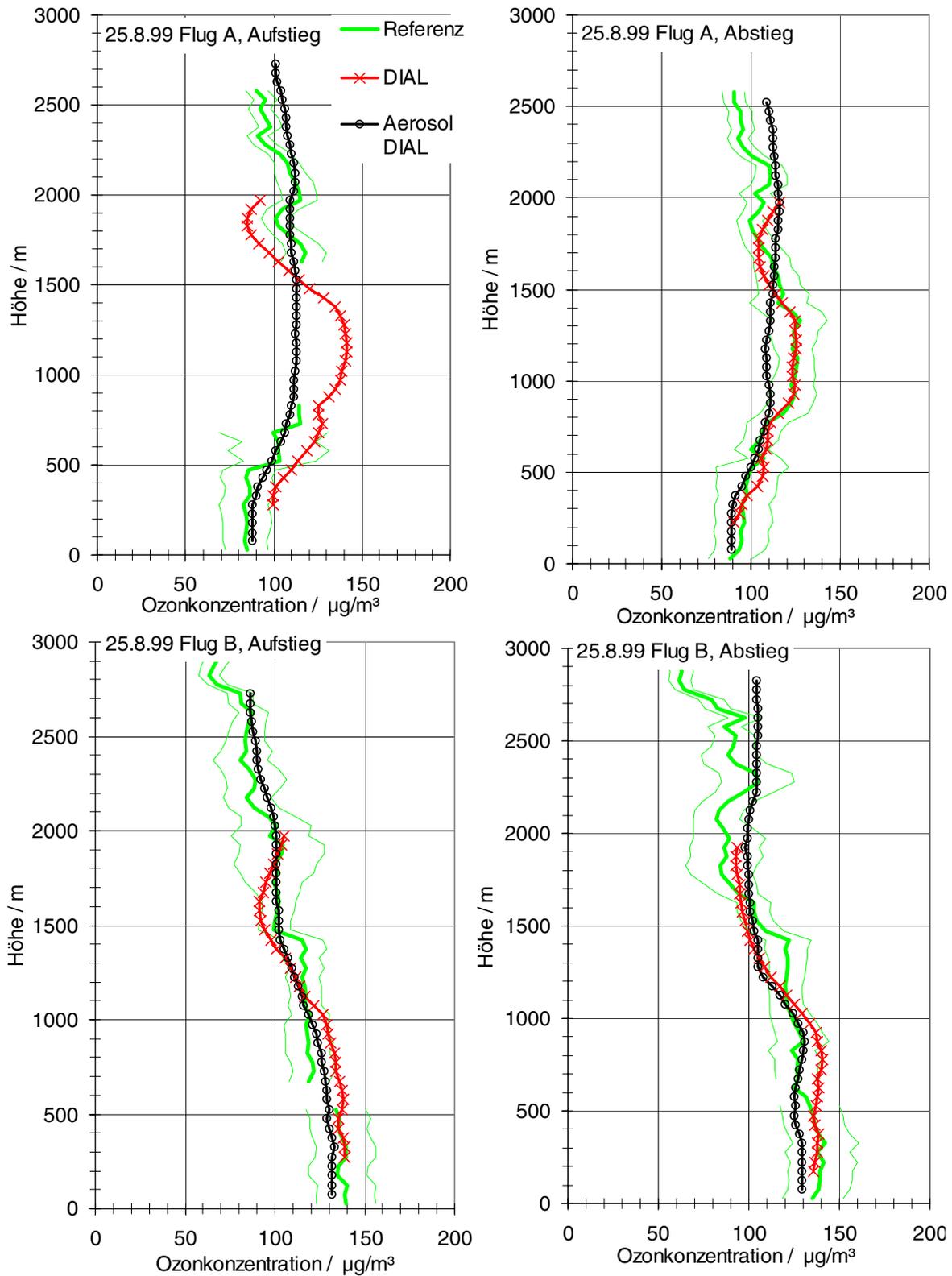


Abb. 4-15 Vergleichsmessung der Ozonkonzentration während der OLAK-Kampagne, 25. 8. 1999.

zeugmessungen liegen. Die während des Abstiegs gemessenen Signale konnten mit dem DIAL-Verfahren in der Höhe der Wolken gar nicht ausgewertet werden. Der Versuch, dies

mit dem Aerosol-DIAL-Verfahren zu tun, schlug erwartungsgemäß ebenfalls fehl. Oberhalb und unterhalb der Wolkenschicht stimmen die Ozonwerte jedoch sehr gut mit der Referenz überein. An diesem Beispiel wird die meiner Meinung nach gefährlichste Fehlerquelle der DIAL-Ozonmessungen deutlich. Die Signale werden bereits direkt nach der Wandlung, noch vor der Übertragung in den Rechner, aufaddiert. Dabei können zwischen einem und 4096 Schüssen gesammelt werden. Während der Übertragung in den Rechner werden jedoch keine weiteren Signale aufgenommen. Bei zu kleinen Mittelungszahlen führt das im Fall des Lidar zu einem zu schlechten Verhältnis von Laserschüssen zu aufgezeichneten Signalen. Die Gefahr besteht darin, dass ein einzelner Schuss gegen eine Wolke das Ergebnis der Addition bereits so stark verfälscht, dass unsinnige Konzentrationswerte in dieser Höhe berechnet werden. Andererseits ist die Signalveränderung zu klein, um sie sicher numerisch erkennen zu können. Die einzige Lösung des Problems besteht in einer schnelleren Datenübertragung, die die Evaluierung einzelner bzw. weniger Signale vor der für die DIAL-Auswertung nötigen Mittlung erlaubt, ohne in der Zwischenzeit die Signalaufnahme unterbrechen zu müssen.

Der 25. 8. war ein Tag ohne Bewölkung, an dem beide Methoden der Signalauswertung ähnlich gute Ergebnisse brachten. Am Nachmittag zog von Westen eine Regenfront heran, die auch im Tagesgang der Rückstreuung gut zu erkennen ist. Besonders während des morgendlichen Aufstiegs (Flug A) entstand durch das typischerweise zu dieser Tageszeit im Sommer aufsteigende Aerosol ein Fehler bei der DIAL-Auswertung, der wiederum durch die Aerosol-DIAL-Methode umgangen werden konnte. Dieser Tag war der einzige mit nennenswerter Ozonbildung während der Vergleichskampagne. Daher habe ich ihn ausgewählt, um Vergleiche mit anderen Messreihen und Modellvorhersagen durchzuführen. Abbildung 4-16 zeigt die farbig dargestellten Zeitreihen der Ozonprofile über der Charité und die entsprechende Vorhersage des Modells. Es wird sofort deutlich, dass die gemessenen Werte in etwa um einen Faktor 2 höher liegen. Die am Nachmittag aufziehende Front drückte offensichtlich weniger ozonhaltige Luft nach unten. Dieser Effekt wird im Modellergebnis nicht wiedergegeben. Ansonsten stimmt die Struktur der Ozonkonzentration gut mit den Messwerten überein. In der auf denselben Höhen- und Zeitbereich vergrößerten Darstellung der Aerosol-Rückstreuoeffizienten ist zu sehen, wie sich die Front auf das Aerosol der Grenzschicht auswirkt. Die Rückstreuung nimmt gegen 14 Uhr drastisch ab, während der darauffolgenden Hauptverkehrszeit jedoch wieder zu.

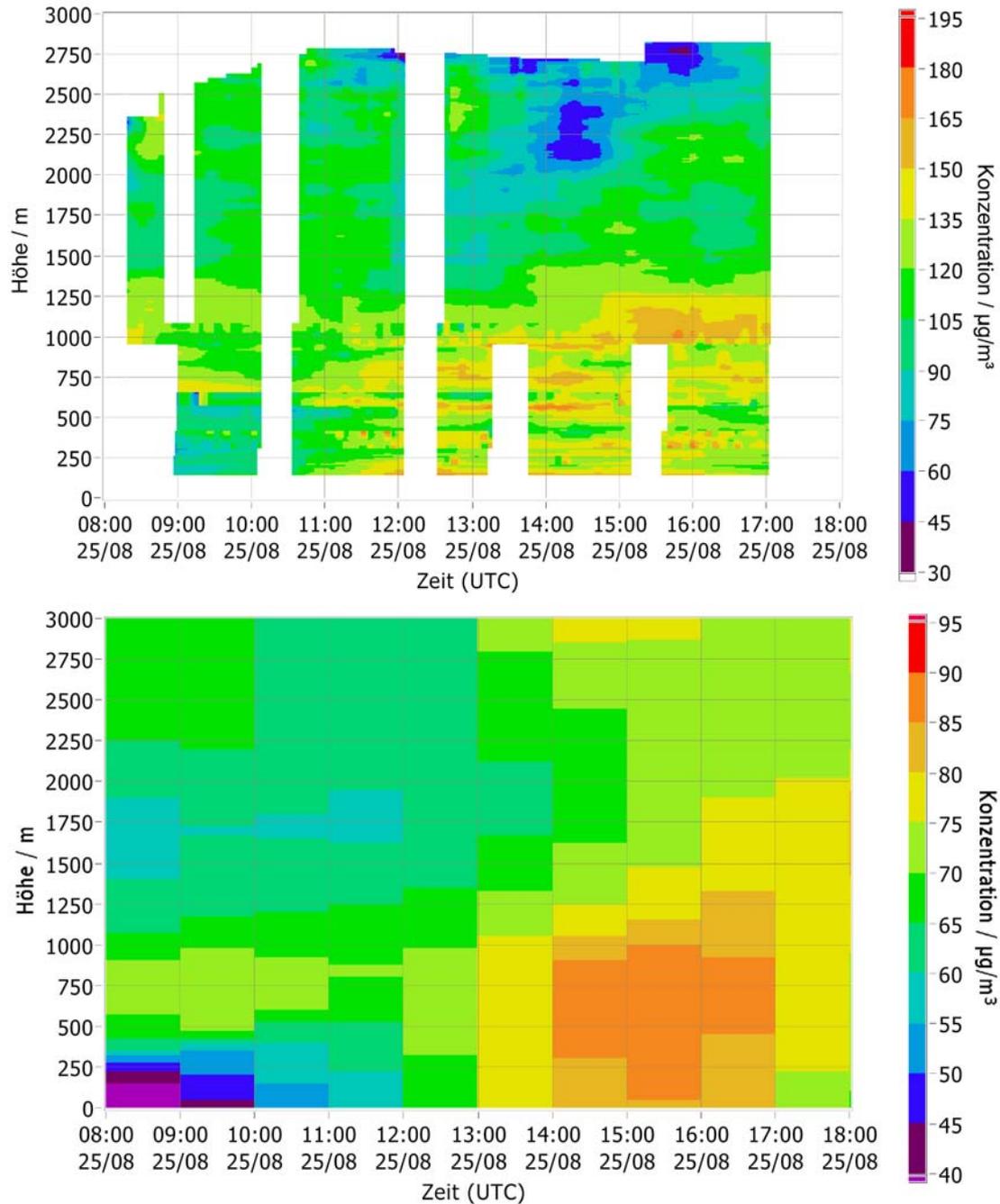


Abb. 4-16 Ozonmessung über der Charité und entsprechende Modell-Vorhersage, 25. 8. 1999.

In Abbildung 4-18 sind Vergleichskurven des Verlaufs der Ozonkonzentration für verschiedene Höhenbereiche vom 25. 8. dargestellt. Die Messungen des Berliner Luftgütemessnetzes BLUME zeigen den gleichen Tagesgang wie die Lidar-Messungen in der entsprechenden Höhe, obwohl die Messtation auf einem Turm etwa 8 km nördlich der Lidar-Station ist. Die Modellvorhersage kann das Höhenprofil nicht nachvollziehen. Die Bodenmessungen stimmen am Morgen und am Abend recht gut mit dem Modell überein. Die Tagespitze liegt jedoch bei den Messungen etwa $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ höher. Je größer die Höhe,

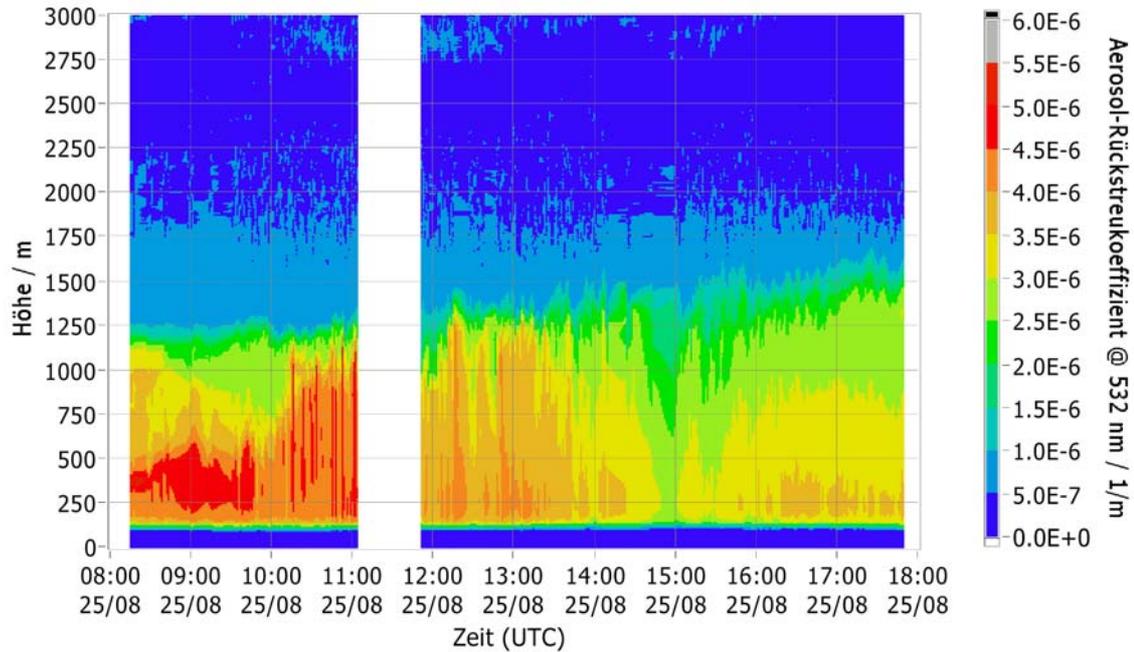


Abb. 4-17 Aerosol-Rückstreukoeffizienten bei 532 nm über der Lidar-Messstation auf der Charité, 28. 8. 1999.

desto größer werden die Abweichungen zwischen Modell und Messung. Die Zeitreihen der Ozonkonzentration in der unteren Grafik in Abbildung 4-18 sind entsprechend der Modellauflösung zeitlich und räumlich gemittelt. In niedrigen Höhen ist der Modellverlauf der Konzentration den Messungen noch sehr ähnlich, wenn auch die Absolut-Konzentrationen niedriger liegen. Den Einfluss der nachmittäglichen Front auf die Konzentration oberhalb 700 m wurde aber gar nicht vorhergesehen.

Leider liegen nicht viele derartig geschlossene Messreihen der Ozonkonzentration mit gleichzeitigen kleinskaligen Modellsimulationen vor. Das regnerische Wetter während der BERLIOZ- und der OLAK-Kampagne ließ kaum Smog entstehen. Danach wurden die Ozonvorhersageberechnungen eingestellt. Einige Vergleichstage lassen natürlich noch keine Rückschlüsse auf die Qualität des Modells zu. In dem Beispiel vom 25. 8. 1999 wird aber eine Gefahr deutlich, der bei statistischen Auswertungen der Übereinstimmung von Modell und Messung vorgebeugt werden muss. Das Modell unterschätzte die Ozonwerte, erzeugte aber einen typischen Anstieg der Werte gegen Nachmittag. Zu dieser Zeit fiel die Konzentration oberhalb von 700 m in Zusammenhang mit der Front. Die gefallen gemessenen Werte stimmen in dem Zeitabschnitt mit den gestiegenen Modellwerten überein, weil das Modell die Front und ihre Auswirkung nicht vorhersah. Eine rein statistische Betrachtung könnte zu dem Ergebnis kommen, das die Modellabläufe richtig sind und damit eine

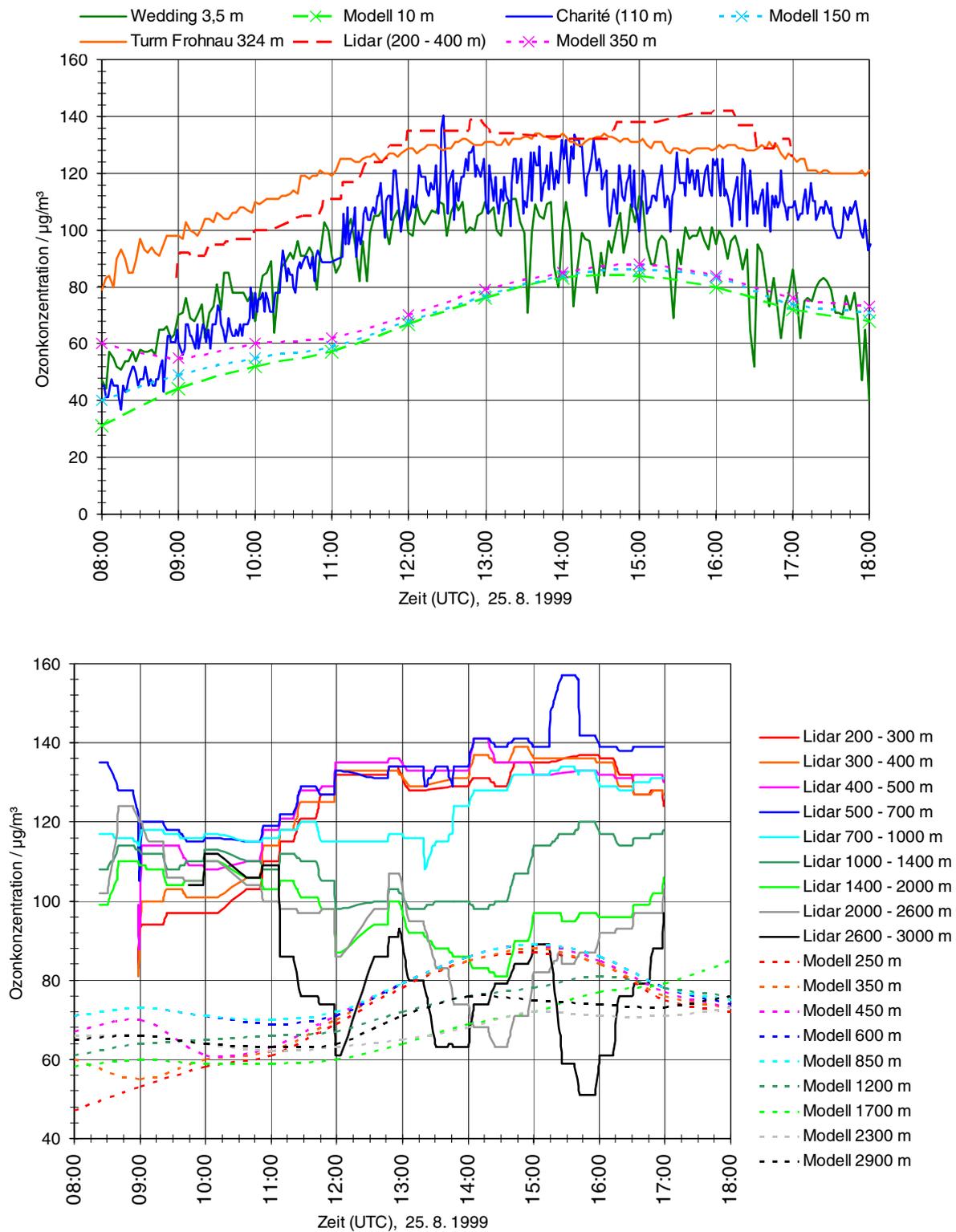


Abb. 4-18 Tagesgang von Lidar-Ozon-Messungen, BLUME-Messungen und Vorhersagemodell CALGRID am 25. 8. 1999.

falsche Bestätigung geben. Dieses Beispiel unterstreicht die Bedeutung geschlossener Messreihen zur Analyse der Ozonbildungs- und Transportprozesse.

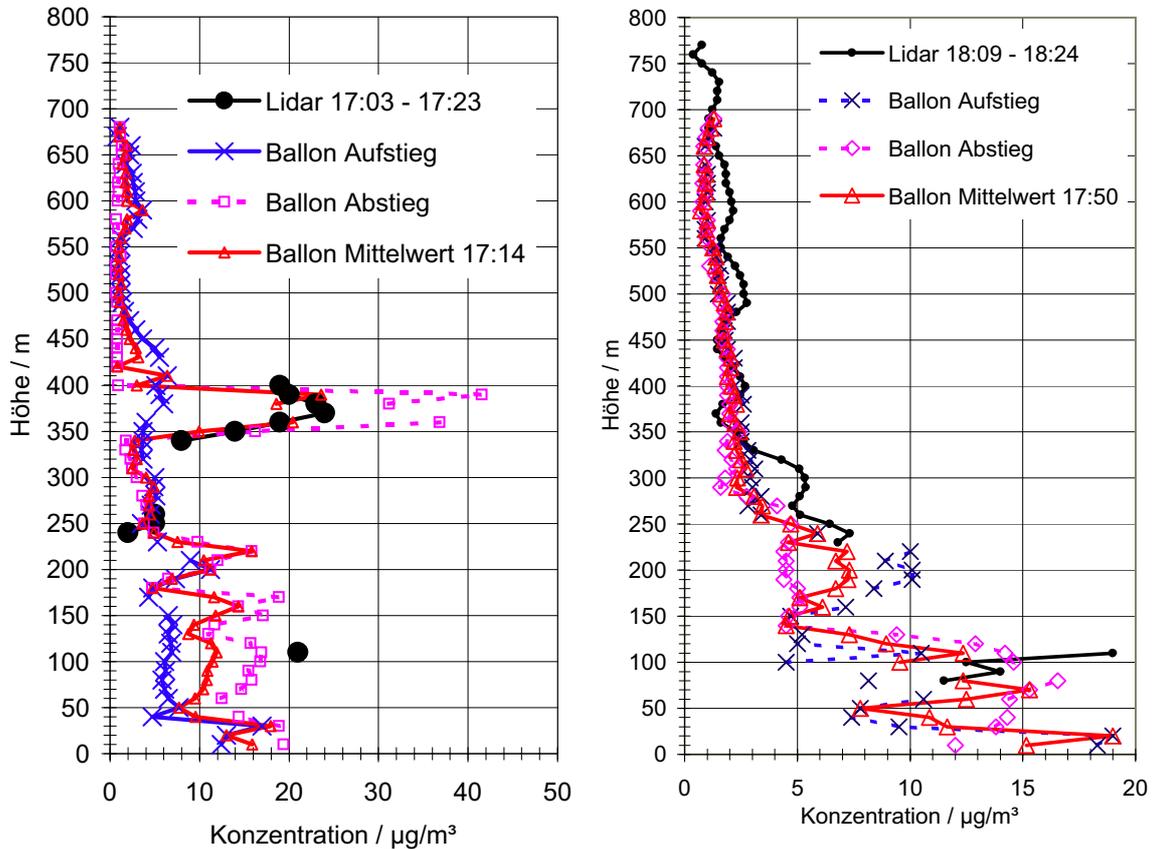
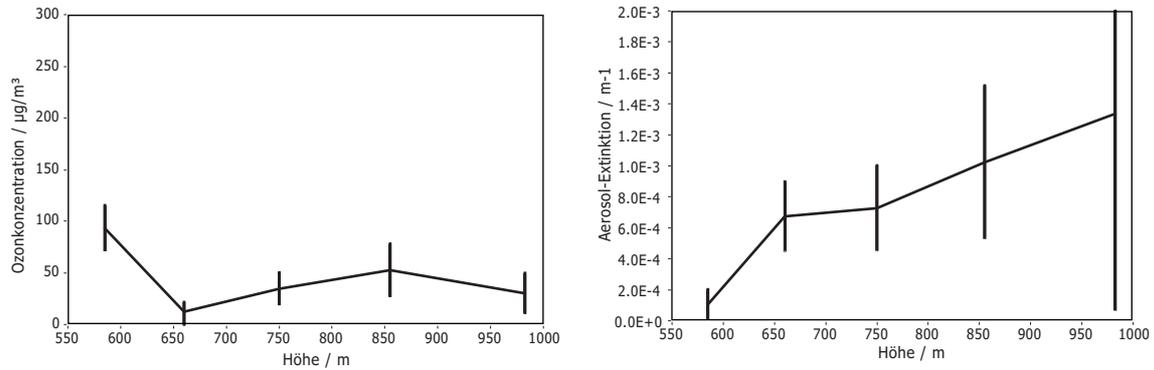


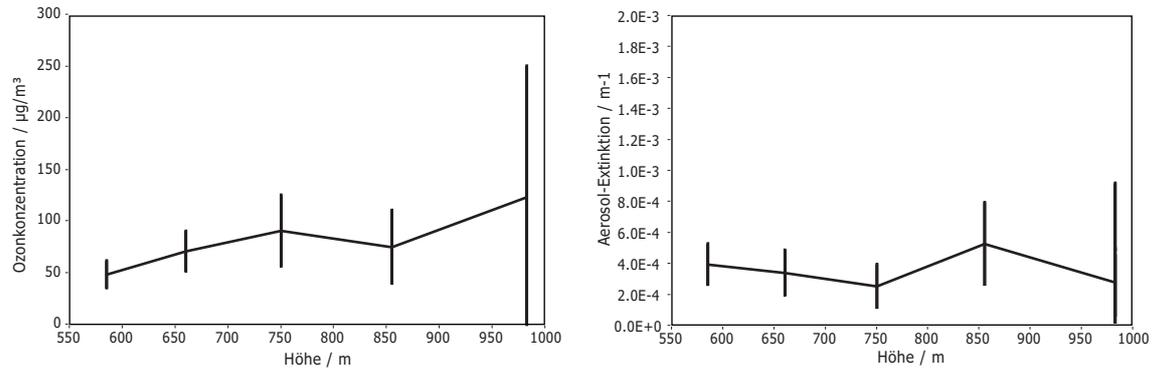
Abb. 4-19 NO₂ Vergleichsmessung 23. 8. 1999 zwischen dem Charité-DIAL und einem Fesselballon.

Während der OLAK-Kampagne wurden auch Vergleichsmessungen von NO₂ durchgeführt. Der Fesselballon war zu diesem Zweck mit einem Sensor ausgestattet. Eine Schwierigkeit stellen die niedrigen NO₂-Konzentrationen in der Berliner Luft dar, die meist unterhalb der Nachweisgrenze des Lidar liegen. Nur in der Nacht, wenn eine niedrige Bodeninversion die Autoabgase am Verflüchtigen hindert und gleichzeitig keine Photochemie abläuft, steigen die Konzentrationen auf messbare Werte an. Die linke Grafik in Abbildung 4-19 zeigt eine kurzzeitige Ausnahmesituation. Sowohl der Ballon als auch der Laserstrahl haben eine NO₂-Schicht in 350 bis 400 m Höhe erfasst. Dabei handelt es sich sehr wahrscheinlich um Abgase des Kraftwerks in Spandau, dessen Rauchfahne beim Verlassen des Schlots in die Richtung des Messvolumens zeigte, dort aber schon nicht mehr sichtbar war. Die Messungen wurden als Scan mit dem großen Umlenkspiegel durchgeführt. Um die Konzentrationspitze zu erfassen, konnten nur Daten aus einem kleinen Entfernungsbereich benutzt werden. Deshalb sind nur so wenige Messpunkte aufgetragen. Bei der Messung nach einer Stunde (rechte Abbildung) war die NO₂-Spitze nicht mehr zu finden.

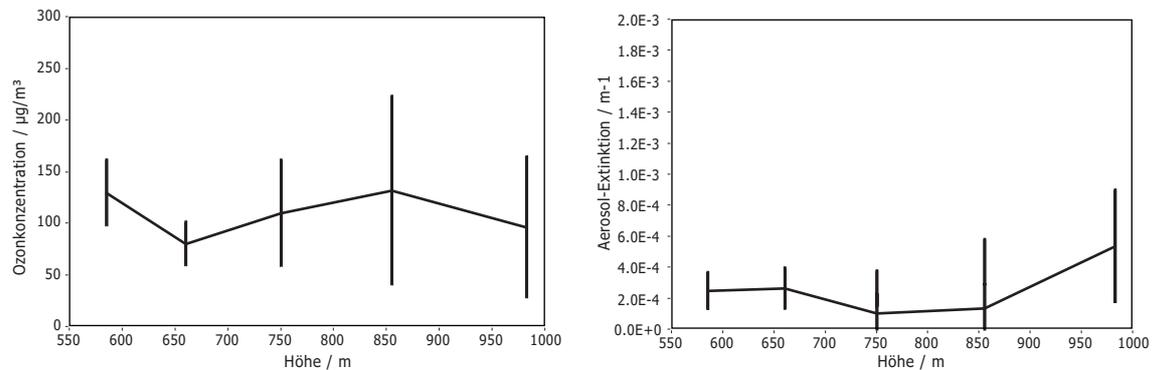
Ozon-Konzentration 29. 5. 2001, 16:45 bis 17:15 Uhr Aerosol-Extinktion 29. 5. 2001, 16:45 bis 17:15 Uhr



Ozon-Konzentration 29. 5. 2001, 19:15 bis 19:45 Uhr Aerosol-Extinktion 29. 5. 2001, 19:15 bis 19:45 Uhr



Ozon-Konzentration 29. 5. 2001, 21:00 bis 21:30 Uhr Aerosol-Extinktion 29. 5. 2001, 21:00 bis 21:30 Uhr



Ozon-Konzentration 1. 6. 2001, 15:30 bis 16:00 Uhr Aerosol-Extinktion 1. 6. 2001, 15:30 bis 16:00 Uhr

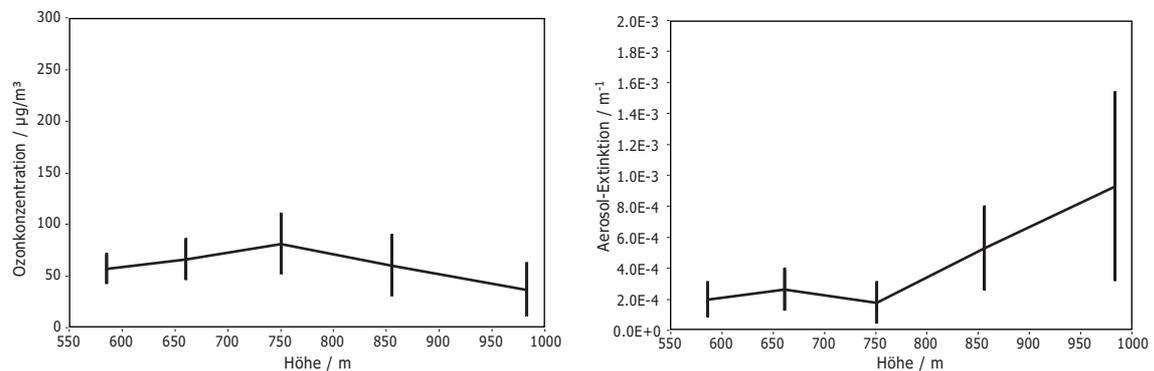


Abb. 4-20 Vibrations-Raman-DIAL: Ozonkonzentrations- und Aerosol-Extinktions-Messungen in Berlin-Dahlem.

Mit dem neu entwickelten Raman-DIAL-Lidar wurden erste Testmessungen durchgeführt, um die Funktionsfähigkeit der Idee zu zeigen und die erforderlichen Gerätschaften und Komponenten zu spezifizieren. In Abbildung 4-20 sind erste Ergebnisse dargestellt. Das Prinzip erlaubt es, ohne Annahmen unbekannter Größen Ozonkonzentration und UVB-Aerosol-Extinktion zu messen. Die Fehlerbalken der Ergebnisse sind recht groß, da die provisorische Messanordnung zu schlechten Signal-zu-Rausch-Verhältnissen der Signale führte. Mit der Testanordnung wurden Reichweiten von ca. 1 km bei einer Mittlungsdauer von einer halben Stunde erreicht.

Die Vergleichsmessungen haben gezeigt, dass mit dem DIAL-Verfahren sehr wertvolle und mit anderen Methoden übereinstimmende Ergebnisse erzielt werden können. Bei der Bedienung der Messgeräte ist auf strikte Einhaltung der Protokolle zu achten, um subjektive Fehleinschätzungen bei der Justage zu vermeiden. Das Lidar der Freien Universität auf der Charité wurde immer zu Ausbildungszwecken genutzt, was dazu führt, dass die Bediener aufhören zu messen, wenn sie eine ausreichende Routine erworben haben. Diese Erfahrung hat gezeigt, dass DIAL-Geräte für den Einsatz in der Atmosphärenforschung kaum Spielraum für Veränderungen von Parametern haben sollten, um eine gleichbleibende Qualität zu gewährleisten. Die Aerosol-DIAL-Methode trägt bei bestimmten Bedingungen sehr zur Verbesserung der berechneten Ozonkonzentration bei. Voraussetzung sind jedoch realistische Annahmen über die Streueigenschaften des Aerosols im UV. Auf der Charité werden sie gleichzeitig mit einem zweiten Lidar gemessen. Das erhöht natürlich den technischen Aufwand beträchtlich und es entstehen neue Fehlerquellen, wenn so viele komplizierte Geräte gleichzeitig betrieben werden müssen. An dieser Stelle wird der Vorzug der neuen Raman-DIAL-Methode deutlich. Es ist nur ein einziger industrietauglicher, kommerziell erhältlicher Laser erforderlich, um alle Informationen zu erhalten.

4.4 Temperatur

Über die Temperaturmessungen ist zum gegenwärtigen Zeitpunkt noch nicht viel zu berichten. Das System wurde bisher nicht bei Messkampagnen eingesetzt. Einen Anhaltspunkt für die Plausibilität der Messwerte, aber keinen echten Vergleich, lieferte die Radiosonde der nahe Berlin gelegenen Station des Deutschen Wetterdienstes in Lindenberg. Das ist bisher die einzige Möglichkeit, die Qualität der nötigen Spektrenanpassung durch unabhängige Messungen zu überprüfen.

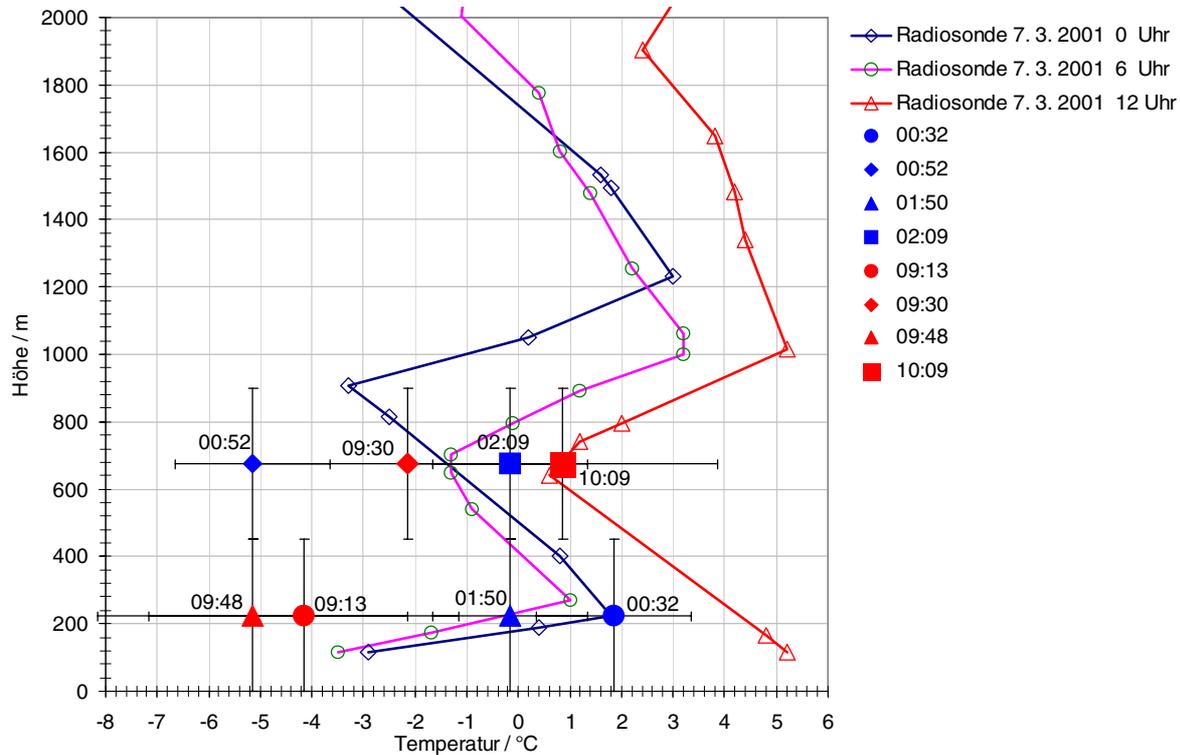


Abb. 4-21 Vergleich von Rotations-Raman- und Radiosonden-Temperaturmessungen.

Die Messwerte des Lidar in Berlin und der Radiosonde in Lindenberg können als übereinstimmend betrachtet werden.

Die verwendete Rotations-Raman-Methode, bei der mit einer Kamera die kompletten Spektren aufgenommen werden, ist für die Bestimmung der Temperatur in der planetaren Grenzschicht sehr gut geeignet. Die Messung muss nicht kalibriert werden und die Auswertung kann direkt am Boden beginnen, da man bei der Auswertung nicht auf eine konstante Gerätefunktion angewiesen ist. Das ist ein für Routinemessungen sehr interessantes Ergebnis. Mit der neu entwickelten Kurvenanpassungsmethode sind auch keine speziellen schmalbandigen Laser für die Messungen notwendig. Vorhandene Aerosol-Lidar-Systeme können mit einer entsprechenden Detektion, bestehend aus einem Spektrometer und einer Kamera, nachgerüstet werden.

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit Methoden der Laser-Fernerkundung und deren Besonderheiten bei Untersuchungen der planetaren Grenzschicht. Das Ziel ist die Untersuchung der zeitlichen Entwicklung der räumlichen Struktur der Atmosphäre anhand verschiedener Messgrößen. Der Ausgangspunkt ist die Suche nach Fehlerquellen bei Spurengaskonzentrations-, Aerosol- und Temperaturmessungen und nach Wegen, um sie zu vermeiden. Entstanden ist die Fragestellung beim Aufbau und Einsatz von Lidar-Geräten, und bei der Auswertung der Ergebnisse verschiedener Messkampagnen: der Arktis-Expedition „ARCTOC“ zur Erforschung plötzlichen Ozonschwunds in Bodennähe, der meridionalen Atlantikquerung „ALBATROS“ zur Erforschung des Einflusses stark bevölkerter Gebiete auf die Zusammensetzung der maritimen Luft [Frey, 1997] und des „BERLIOZ“-Experiments zur Erforschung der Chemie der Ozonbildung am Beispiel Berlins [Frey et al., 2001]. Während der daraufhin organisierten Kampagne „OLAK“ in Berlin wurden vier sehr ähnliche DIAL-Instrumente mit unabhängigen Messungen eines Flugzeugs und eines Fesselballons verglichen. Das Ziel war, den Einfluss der Aerosol-Streuung auf Ozonmessungen zu untersuchen. Da sich die Luftbestandteile im Messvolumen nicht künstlich trennen lassen, müssen die im Rückstreusignal überlagerten Wechselwirkungsprozesse durch spektroskopische Methoden wieder getrennt werden. Ein sehr wichtiger Aspekt für die Auswahl einer Methode ist die Anwendbarkeit und Umsetzbarkeit in ein feldtaugliches und robustes Messgerät.

Ausgehend von diesen Erfahrungen wurde das ebenfalls in dieser Arbeit beschriebene Raman-DIAL-Instrument entworfen und gebaut. Mit diesem Gerät kann die Ozonkonzentration in der planetaren Grenzschicht ohne den durch Aerosol-Schichten verursachten Fehler gemessen werden. Gleichzeitig misst es die Wasserdampfkonzentration und die

optischen Eigenschaften des Aerosols im ultravioletten, sichtbaren und infraroten Spektralbereich. Durch die Nutzung eines modernen diodengepumpten Festkörperlasers mit einer Puls wiederholrate von 1 kHz und die Entwicklung einer entsprechend schnellen Empfangseinheit können nun auch kleinskalige Prozesse, wie z. B. die Turbulenz in Bodennähe, untersucht werden und Messungen langsam veränderlicher Größen lassen sich wesentlich verbessern. Zur Konzentrationsbestimmung anderer Spurengase neben Ozon und Wasserdampf wurde ein wellenlängenabstimmbarer Ultraviolettlaser auf der Basis des Colquiriite-Kristalls Ce:LiCaF gebaut, der es erlaubt, mit der Pulsfolgefrequenz von 1 kHz zwischen den benötigten Farben umzuschalten. Alternativ kann dieser Laser in den Strahlengang des Nd:Yag-Lasers eingesetzt werden, um differentielle Absorptionsmessungen durchzuführen.

Des Weiteren wurde ein Verfahren zur Temperaturmessung entwickelt und erprobt, mit dem bereits vorhandene Aerosol-Lidar ohne großen Aufwand erweitert werden können. Die Messung beruht auf der Temperaturabhängigkeit der Besetzungszahl von Rotations-Raman-Niveaus in Stickstoff- und Sauerstoffmolekülen. Durch Variation der Temperatur wird ein simuliertes Spektrum an das gemessene Stokes- und Anti-Stokes-Spektrum zu beiden Seiten der Laserlinie angepasst. Entscheidend für die Güte der Anpassung ist die Verwendung einer experimentell bestimmten Linienform anstatt einer analytischen Funktion zur Faltung mit den simulierten Spektrallinien, da wegen der Linienbreite eines normalen Nd:Yag-Lasers die einzelnen Rotations-Raman-Linien nicht aufgelöst werden können. Ein neu entwickelter Auswertungsalgorithmus macht es möglich, Temperaturmessungen mit einer Genauigkeit von 1 bis 5 °C durchzuführen, wobei der Fehler vor allem von der Trennung des Raman-Spektrums vom elastischen Streulicht bestimmt wird. Das gelingt besser, wenn nur senkrecht zur Laserstrahlung polarisiertes Licht detektiert wird. Die Methode ist, im Unterschied zu sonst üblichen Messungen in zwei Teilbereichen des Spektrums, unabhängig von Kalibrationen. Am Sender sind für die Nachrüstung des Temperatursensors keine Veränderungen notwendig. Die Empfangseinheit besteht aus einem handelsüblichen Spektrometer mit geringem Auflösungsvermögen und einer schnell schaltbaren Kamera.

Für das Design von Laser-Fernerkundungsgeräten und die Auswertung der mit ihnen gewonnenen Messdaten ist es notwendig, die Streueigenschaften der Atmosphäre möglichst genau berechnen zu können. Deshalb wurden im Rahmen dieser Arbeit die Streuspektren

Messgröße	Methode	Eingabeparamter	Vor-und Nachteile
Schichtstruktur, Wolkenhöhe	elastisches Rückstreu-Lidar	keine	+ einfachster Aufbau + Entfernung ist die einzige quantitative Messgröße
Mischungsschichthöhe	Gradientenmethode oder Wavelet-Analyse	keine	• Messung ist von der Aerosol-Streuung abhängig!
Aerosol-rückstreu-koeffizient und Depolarisation	elastisches Rückstreu-Lidar ohne molekulare Absorption	Entfernungsprofil der • Dichte und • des Lidar-Verhältnisses • Rückstreuverhältnis für ein Intervall des Signals (z. B. freie Troposphäre)	+ experimentell einfach + Inversionsalgorithmus gut untersucht und numerisch stabil (nur Integrale) - abhängig von der Kalibration mit dem Rückstreuverhältnis der freien Troposphäre - falsches Lidar-Verhältnis kann zu Fehlern führen
	HSRL (High Spectral Resolution Lidar)		+ kalibrationsfreie Messung - aufwendiges Experiment, da schmalbandiger Laser und Filter erforderlich sind
Aerosol-Extinktion	Raman-Lidar ohne molekulare Absorption	• Entfernungsprofil der Dichte • Ängström-Koeffizient	+ robuste, gute Laser vorhanden - das im Vergleich zu elastischen Messungen um 3 bis 5 Größenordnungen schwächere Signal erfordert eine bessere Detektionsoptik und -elektronik - Tageslichtmessungen nur bedingt möglich - Berechnung der Konzentration ist sehr empfindlich auf numerischen Algorithmus, insbesondere die Glättung (da differenziert werden muss)
Spurengase (Ozon, H ₂ O, SO ₂ , NO ₂ , Toluol, ...)	DIAL	• Entfernungsprofil der Dichte • Absorptionsquerschnitte • optische Aerosol-Eigenschaften	• Laser mit guten Strahleigenschaften und 2 Farben im Absorptionsbereich des Gases erforderlich + Konzentration aller Gase messbar - Berechnung der Konzentration ist sehr empfindlich auf numerischen Algorithmus, insbesondere die notwendige Glättung (wegen Ableitung) - ohne zusätzliche Aerosol-Messungen kann es zu nicht korrigierbaren Fehlern durch Rückstreuterm und Extinktion kommen
Ozon	Raman-DIAL	• Entfernungsprofil der Dichte • Ängström-Koeffizient	+ nur eine Laserwellenlänge erforderlich (z. B. FHG des Nd:Yag) + kein Einfluss der Aerosol-Streuung + gleichzeitige Messung der Aerosol-Extinktion

Tab. 4-1 Untersuchte und angewendete Verfahren zur Laser-Fernerkundung der planetaren Grenzschicht.

Messgröße	Methode	Eingabeparamter	Vor-und Nachteile
Wasserdampf	Wasserdampf-Raman	<ul style="list-style-type: none"> Entfernungsprofil der Dichte Kalibrationskonstante Verhältnis der Raman-Rückstreuquerschnitte für Stickstoff und Wasserdampf Aerosolextinktion Ängström-Koeffizient 	<ul style="list-style-type: none"> da die Signalstärke direkt von der Dampfkonzentration abhängt, ist keine Messung in trockenen Gegenden möglich + Wasserdampfmessung mit vergleichsweise geringem experimentellem Aufwand - Kalibration notwendig - Tageslichtmessungen nur eingeschränkt möglich, mit Ausnahme von Messungen im UVB
Temperatur	Sauerstoff -DIAL	s. o. unter DIAL	s. o. unter DIAL
	Rotations-Raman-Intensitätsverhältnis in zwei Bereichen	<ul style="list-style-type: none"> Kalibrationskonstante 	<ul style="list-style-type: none"> + Temperaturprofile in hoher zeitlicher Auflösung - Kalibration notwendig
	Rotations-Raman - Auswertung des kompletten Spektrums		<ul style="list-style-type: none"> + kalibrationsfrei + einfach in vorhandenen Aerosol-Lidar nachzurüsten - die Messung muss nacheinander für mehrere Höhenbereiche durchgeführt werden, zeitliche Auflösung geringer

Tab. 4-1 Untersuchte und angewendete Verfahren zur Laser-Fernerkundung der planetaren Grenzschicht.

für Stickstoff- und Sauerstoffmoleküle sowie verschiedene Aerosol-Typen neu berechnet. Für alle erforderlichen Simulationen wurden Module in der Programmiersprache Labview erstellt, die direkt in Design- und Auswertungsroutinen benutzt werden.

In Tabelle 2-10 sind die berechneten Werte für die Streuquerschnitte und die Depolarisation und in Tabelle 2-15 die Streukoeffizienten für normale Luft jeweils für Stickstoff und Sauerstoff und die in dieser Arbeit verwendeten Wellenlängen des Nd:Yag-Lasers und der entsprechenden Raman-Linien aufgelistet.

Das verwendete Aerosol-Streumodell beruht auf der Mie-Theorie. In einem separaten, weil zeitaufwändigen, Schritt müssen die Streuquerschnitte für die zu erwartenden Partikelgrößen und gewünschten Wellenlängen berechnet werden. Als Eingangsparameter braucht man das Spektrum der mittleren Brechzahl des gefragten Aerosol-Mischungstyps. Ist die Datenbasis der Streuquerschnitte erstellt, können die Streukoeffizienten für beliebige Größenverteilungen ohne Probleme und schnell berechnet werden. Somit kann das Aerosol-Streumodell an die Messbedingungen angepasst werden, da die für die Auswertung benötigten Lidar- und Rückstreuverhältnisse stärker von der Größenverteilung als vom Brechzahlenspektrum abhängig sind. Die Tabellen 2-11, 2-12 und 2-13 enthalten berechnete

Lidar- und Rückstreuverhältnisse sowie Ångström-Koeffizienten für vier Mischungstypen, sieben Größenverteilungen und alle für die Arbeit mit dem Nd:Yag-Laser relevanten Wellenlängen. Bei der Berechnung der Streukoeffizienten konvergiert das Integral für alle Größenverteilungen bei Partikeldurchmessern kleiner als 50 μm (außer bei Wüsten-Aerosol). Das Lidarverhältnis wird vor allem von der Form der Verteilungsfunktion beeinflusst, während das Rückstreuverhältnis von der Aerosol-Konzentration direkt abhängt.

Die Nachweise von Spurengasen und Aerosol durch Laser-Fernerkundung lassen sich methodisch nicht getrennt behandeln. Das hat für die Untersuchung der planetaren Grenzschicht große Auswirkungen, da hier die Konzentration des Aerosols besonders hoch und die Verteilung inhomogen ist. Bei Absorptionsmessungen mit elastisch rückgestreutem Licht (DIAL) überlagern sich die Streuprozesse von Molekülen und Aerosol sowohl durch den Rückstreuprozess, der als Signalquelle im Messvolumen fungiert, als auch bei der Schwächung des Lichts auf dem Weg durch die Atmosphäre. An der Grenze zwischen Schichten, die Aerosol mit unterschiedlichen Streueigenschaften enthalten, kann es zu Messfehlern kommen, die unter ungünstigen Umständen größer als die zu erwartenden Gaskonzentrationen sind. Die Aerosol-Extinktion führt ebenfalls zu einem scheinbaren Beitrag zur Spurengaskonzentration, der jedoch gering gegenüber den bei der numerischen Auswertung entstehenden statistischen Fehlern ist. Diese Probleme werden bei Ozonmessungen mit dem neu entwickelten Raman-DIAL völlig vermieden.

Mit der Entwicklung eines schnellen Signalwandlers zur Aufnahme von Einzelschüssen bis zu einer Pulsfolgefrequenz von 1 kHz kann nun auch der Fehler vermieden werden, der durch Mittlung von Rückstreusignalen bei stark veränderlichen Streubedingungen entsteht. Das ist eine entscheidende Verbesserung für Untersuchungen der planetaren Grenzschicht, da sich an ihrer Obergrenze häufig kleine Wolken bilden. Vor allem für DIAL-Messungen von Spurengasen müssen oft viele Signale gemittelt werden, um das Signal-zu-Rauschverhältnis zu reduzieren. Die Auswirkung weniger Laserschüsse, die auf eine Wolke treffen, verändern das gemittelte Signal visuell kaum, erzeugen aber einen bedeutenden Fehler bei der Konzentrationsberechnung. Signale der Einzelschüsse sind zwar nicht geeignet, um Konzentrationen zu berechnen, ein eventueller Wolkentreffer lässt sich aber klar erkennen. Zur Auswertung werden dann nur Signale ohne Wolken verwendet. Die Auswertung der Einzelschüsse erlaubt darüber hinaus bisher schwer zugängliche Vorgänge, wie z. B. die Turbulenz, zu untersuchen.

Das Gesamtsystem aus zwei Lidar-Geräten auf dem Charité-Hochhaus erfüllt alle Anforderungen, um qualitativ hochwertige Aerosol- und Spurengasmessungen in der planetaren Grenzschicht durchzuführen. Um dieses Ziel zu erreichen, waren zahlreiche Veränderungen und Umbauten notwendig. Der wellenlängenabstimmbare Titan:Saphir-Laser wurde an die Aufgabe angepasst, Ozonkonzentrationen über längere Zeiträume mit gleich bleibender Qualität zu messen. Dafür wurde der Zweiwellenlängenoszillator einem Redesign unterzogen, eine Überwachung der Laserstrahleigenschaften ergänzt und zahlreiche Umbauten an der Stromversorgung und Strahlführung verwirklicht. Wegen der Empfangsoptik konnte ursprünglich erst ab 2 km Entfernung gemessen werden, weshalb diese ebenfalls verändert wurde. Das Stratosphären-Aerosol-Lidar wurde um ein Teleskop für Grenzschicht- und Troposphärenmessungen erweitert. Jetzt können die optischen Aerosol-Eigenschaften im ultravioletten, sichtbaren und infraroten Spektralbereich gleichzeitig mit den Spurengaskonzentrationen gemessen werden. Neben der wertvollen direkten Information über das Aerosol dienen die Daten zur Korrektur der Spurengaskonzentrationsmesswerte. Das Konzept, mit einem zweiten Lidar Aerosol-Eigenschaften zu messen, um Spurengaskonzentrationsmessungen zu korrigieren, ist theoretisch sinnvoll und auch praktisch durchführbar. Wegen des komplexen Aufbaus ergeben sich jedoch insbesondere bei Spurengaskonzentrationsmessungen zahlreiche Möglichkeiten für Fehlbedienungen. Für die meisten Messstandorte ist es auch nicht möglich, eine so umfangreiche Ausrüstung zu installieren und zu betreiben. Insofern ist das neu entwickelte Raman-DIAL-Ozon-Wasserdampf-Aerosol-Instrument eine bedeutende Vereinfachung und damit ein wichtiger Schritt auf dem Weg der Verbreitung der Messmethode, da es nur einen einzigen, wellenlängenstabilen Industrielaser und eine Empfangseinheit zur Bestimmung vieler Größen benötigt und gleichzeitig die methodischen Fehler von vornherein ausgeschlossen werden.

Um die Simulationsrechnungen des Chemie- und Ausbreitungsmodells „CALGRID“ direkt mit Messwerten der Laser-Fernerkundung vergleichen zu können, wurde ein Lese- und Auswertungsprogramm für die im „GrADS-Format“ vorliegenden Ergebnisse erstellt. Damit können die Modell-Daten in Zukunft sofort durch Messdaten evaluiert werden, um so die Prognosegenauigkeit zu verbessern. Sowohl die für Berechnungen sehr wichtige Mischungsschichthöhe als auch die resultierenden Ozonkonzentrationen stimmten an den wenigen Vergleichstagen nicht gut mit den Messwerten überein. Die leider im Moment

unmögliche Neuberechnung mit den durch Messwerte verbesserten Parametern, bleibt ein wichtiges Projekt für die Zukunft.

Natürlich bleiben bei der Weiterentwicklung und Anwendung der Laser-Fernerkundung für Untersuchungen der planetaren Grenzschicht noch viele Aufgaben zu lösen. Um die Atmosphäre besser zu verstehen, fehlt der Zugang zu vielen weiteren, heute noch nicht erschließbaren, Messgrößen. Die vorgestellte Arbeit beschäftigt sich nur mit einigen ausgewählten Methoden. Insbesondere sind das spektral hochauflösende Lidar (HSRL), das Doppler-Lidar und Methoden der Heterodyn-Detektion sehr gut für Untersuchungen der planetaren Grenzschicht geeignet. Leider ergab sich bisher für mich nicht die Möglichkeit, mit ihnen zu experimentieren.

Atmosphärisches Aerosol beeinflusst das Leben der Menschen in vielerlei Hinsicht. Der Einfluss troposphärischen Aerosols, welches sich größtenteils in der planetaren Grenzschicht befindet, auf den Strahlungshaushalt der Erde ist derzeit der größte Unsicherheitsfaktor bei der Vorhersage der drohenden Klimaveränderung [IPCC, 2001]. Viele offene Fragen gibt es auch in Bezug auf die Chemie des Aerosols und seinen Einfluss auf die Gesundheit von Menschen, Tieren und Pflanzen. Für ein besseres Verständnis ist ein dichtes Messnetz auf allen Kontinenten erforderlich, da die Eigenschaften des Aerosols wegen der kurzen Lebensdauer regional geprägt und sehr unterschiedlich sind. Weil Aerosol auch vertikal sehr inhomogen verteilt ist, werden räumlich aufgelöste Messungen benötigt, wie sie die Laser-Fernerkundung liefert. In Europa wurde Ende 2000 das Lidar-Netzwerk „EARLINET“ gegründet, um Eigenschaften, Transport, Quellen, Senken, regionale Dynamik und besondere, noch unbekannte, Ereignisse zu erforschen. Mit unserer Messstation im Berliner Stadtzentrum haben wir im Oktober 2001 mit einer Langzeitmessreihe begonnen, um neben den beobachteten Kurzepisoden von wenigen Tagen auch statistisch relevante Aussagen über jahreszeitliche und hoffentlich auch längere Perioden zu erhalten. Für den afrikanischen Kontinent haben wir gemeinsam mit 18 Partnern aus Europa und Afrika ein Projekt bei der Europäischen Union eingereicht, um ein Aerosol-Lidar-Messnetzwerk zu gründen. In Lateinamerika ist ebenfalls ein Antrag in Vorbereitung. Von den Erfahrungen werden auch für die Zukunft geplante Satellitenmissionen profitieren. Die Auswertung der aus dem Weltraum gemessenen Daten ist eine größere Herausforderung, da die Instrumente einfach aufgebaut sein müssen und jedes Signal aus einer anderen Region stammt. Es ist nicht mög-

lich, Zeitreihen zu messen, und ohne kontinentale Netzwerke werden keine Erfahrungswerte zur Datenauswertung existieren.

Ähnliches Interesse besteht an Konzentrationsmessungen vieler Gase. Vor allem die Nachstellung und Vorhersage von Konzentrationen und Prozessen durch dreidimensionale Modelle sind nur durchführbar und überprüfbar, wenn neben Bodenmessungen für möglichst viele Gitterpunkte im Zeitraster der Rechnung gemessene Werte vorliegen. Ozon kann in der planetaren Grenzschicht aus Vorläuferstoffen gebildet werden, die anthropogenen Ursprungs sind. Erhöhte Konzentrationen haben erhebliche Auswirkungen auf Lebewesen und Klima. Genaue Messungen bodennahen Ozons durch Satelliten sind wegen der hohen Konzentrationen in der Stratosphäre bisher unmöglich. Die Modellierung ist wegen der Vielfalt an den Reaktionen beteiligter Beimengungen, der wechselhaften Bestrahlungsstärke und der komplizierten Dynamik der planetaren Grenzschicht ein schwieriges Unterfangen. Für die Behandlung dieser Probleme sind Zeitreihen der räumlichen Verteilung von Aerosol, Ozon und anderen Stoffen erforderlich.

Neben der Überführung der Laser-Fernerkundungsmessverfahren in den Routinebetrieb interessieren mich besonders Untersuchungen physikalischer und chemischer Prozesse in der realen Atmosphäre anhand dreidimensionaler Datensätze. Die hohe zeitliche Auflösung des neu entwickelten Lidar ermöglicht z. B. die Erforschung von turbulenten Strömungen, des Lichttransfers durch inhomogene Medien und der Aerosol-Bildung. Durch die Messung der optischen Turbulenz mit dem Kilohertz-Lidar, ließen sich beispielsweise adaptive Optiken an die atmosphärischen Veränderungen anpassen. Besonderen Reiz hat auch eine Kombination aus klassischen Lidar-Messungen mit denen des neuen mobilen Femtosekunden-Lidar „Terramobil“ [Langlotz, 1998]. Das ausgesandte Licht mit einer Zentralwellenlänge von 800 nm und einer Linienbreite von ca. 10 nm erzeugt durch Wechselwirkungsprozesse mit der Atmosphäre ein breites, kontinuierliches Spektrum, auch Weißlicht genannt, ohne das der Laserstrahl seine Richtung und Bündelung verliert. Da die Lichtquelle gepulst ist, steht damit eine einzigartige ortsauflösende, multispektrale Messmethode zur Verfügung. Die Nutzung, aber auch die Erforschung der Weißlichtentstehung bergen noch viele ungelöste Fragestellungen. Noch für dieses Jahr sind Messungen zum direkten Vergleich des „konventionellen“ und des Femtosekunden-Lidar und Untersuchungen der Vorgänge im Weißlichtstrahl durch Probemessungen geplant.

Verzeichnis verwendeter Symbole

Symbol	Bezeichnung	Einheit / Wert
α, α_R, \dots	Extinktionskoef., Rayleigh-Volumenstreucoef.	m^{-1}
A	Fläche	m^2
\hat{a}, \hat{A}	Ångström-Exponent und. -Faktor	
\hat{a}	Anisotropie des Polarisierbarkeitstensors	cm^3
β	Rückstreukoeffizient	$\text{m}^{-1}\text{sr}^{-1}$
B	Rotationskonstante	$B = h/(8\pi^2 c \mu R^2)$
$B(r)$	Rückstreuverhältnis $B(r) = (\beta_A(r) + \beta_R(r))/(\beta_R(r))$	
c	Lichtgeschwindigkeit	$299.792.458 \text{ m s}^{-1}$
C_n	Strukturparameter der Brechzahl	
D	Durchmesser	m
$D_n(R)$	Strukturfunktion des Brechungsindex	
$\delta, \delta_R, \delta_A$	Depolarisation, Rayleighdepol., Aerosoldepol.	
χ	$\chi = c_p / c_v$	1,334
C	Gerätekonstante eines Lidar $C = I_0 \cdot (c \cdot t_L)/2 \cdot \eta_r(r) \cdot \eta_\lambda(\lambda) \cdot A_T$	
$c_{p,w}$	spezifische Wärmekapazität von Wasserdampf bei	$1952 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$
$C_{p,w}$	konstantem Druck	$35,14 \text{ mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$
$c_{v,w}$	spezifische Wärmekapazität von Wasserdampf bei	$1463 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$
$C_{v,w}$	konstantem Volumen	$26,33 \text{ mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$
D_p^{med}	Medianwert einer Lognormalverteilung	μm
D_p	Partikeldurchmesser	μm
E_{vib}	Energieniveaus des quantenmech. Vibrators	
E_{rot}	Energieniveaus des quantenmech. Rotator	
ϵ_0	Influenzkonstante	$8,854187817 \cdot 10^{-12} \text{ As/Vm}$
ϵ	relative Anisotropie, Dielektrizitätskonstante	
$F(r)$	Lösungsfunktion der Lidar-Gleichung (enthält alle bekannten Parameter)	
F_k	King-Faktor	
$\Phi_n(\kappa)$	Kolmogorov-Spektrum	
γ	Temperaturgradient	$\gamma = -dT / dz$

Symbol	Bezeichnung	Einheit / Wert
Γ	trocken-adiabatischer Temperaturgradient	$\Gamma = -(dT/dz)_{\text{adiab.}}$
$g(r)$	Lidarverhältnis $g(r) = (\alpha_A(r))/(\beta_A(r)) = (\alpha_A(r))/(\beta_R(r) \cdot (B(r) - 1))$	
G_{vib}, \dots	Term (statt Energie in der Spektroskopie üblich)	cm^{-1}
G	freie Enthalpie	
g_s	Standard-Erdbeschleunigung	$9,80665 \text{ m s}^{-2}$
g_j	Kernspinwichtungsfaktor	
h	Planck-Konstante	$6,626\,068\,76 \cdot 10^{-34} \text{ J s}$
\hbar	Planck-Konstante	$1,054\,571\,596 \cdot 10^{-34} \text{ J s}$
H	Skalenhöhe	$H = RT/M_{\text{Luft}}g$
I, I^\perp, I^\parallel	Intensität, parallel bzw. senkrecht zur Anregung	W/m^2
\hat{i}	mittlere Polarisierbarkeit	
J	Rotationsquantenzahl	
k	Boltzmann-Konstante	$1,380.650.3 \cdot 10^{-23} \text{ J/K}$
L	äußere Skalenzlänge bzw. Monin-Obuchov-Länge	m
l	innere Skalenzlänge (kleinste Turbulenzzellen)	m
λ	Wellenzlänge	$\mu\text{m}, \text{nm}$
M	molare Masse	$M_{\text{Luft}} \approx 28,97 \text{ g/mol}$
μ	im Schwerpunkt vereinigte Masse eines Körpers	
μ	Permeabilität	
N	Anzahl (z. B. Moleküle, Partikel, ...)	cm^{-3}
N_A	Avogadro-Konstante (Teilchen pro mol)	$6,022.141.99 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$
n_N, n_V, \dots	Anzahl-, Volumen-, ...Größenverteilung	
n, n'	Real- und Imaginärteil der Brechzahl	
Nd:Yag	Neodym-dotiertes Yttrium-Aluminium-Granat	
$\tilde{\nu}$	Wellenzahl	cm^{-1}
ν_{vib}	Schwingungsquantenzahl	
$P(\theta)$	Streu-Phasenfunktion	
p	Druck	$1 \text{ hPa} = 10^2 \text{ N / m}^2$
p_x^s	Sättigungsdampfdruck der Komponente x	mPa
$p_{\text{H}_2\text{O}}^s$	Sättigungsdampfdruck von Wasser	mPa
π		$3,141592653589793 \dots$
p_x	Partialdruck der Komponente x	mPa
$\eta_r(r)$	Sichtfeldfunktion (Empfangseffizienz des Lidar)	

Symbol	Bezeichnung	Einheit / Wert
θ	potentielle Temperatur	K
Q	Streueffizienz	
ρ	Dichte	kg/m ³
R	molare Gaskonstante (k/N_A)	8,314.472 J mol ⁻¹ K ⁻¹
RH	relative Feuchtigkeit	%
R_L	spezielle Gaskonstante für trockene Luft	287,0 J K ⁻¹ kg ⁻¹
R_w	spezielle Gaskonstante für feuchte Luft	461,5 J · K ⁻¹ kg ⁻¹
σ	Oberflächenspannung	
σ	Standardabweichung	
σ	Streuquerschnitt	cm ²
r	Entfernung, Distanz, Höhe	m
S	Entropie	
S_1, S_2	Mie-Streuamplituden	
σ_g	Breitenparameter einer Lognormalverteilung	
τ	optische Dicke	
τ	Totzeit beim Photonen zählen	s
T	Temperatur	273,15 K = 0 °C
T	Transmission	
U	innere Energie	
V	Volumen	m ³
v	Schwingungsquantenzahl	
X(r)	linearisiertes Rückstreusignal $X(r) = \ln(I(r) \cdot r^2/C)$	
x	Größenparameter $x = (k \cdot D)/2 = (\pi \cdot n_2 \cdot D)/\lambda$	
ξ_{H_2O}	Mischungsverhältnis	%, ppm, ppb, ppt

Literaturverzeichnis

- Ackermann, R. (2000). *Auswirkungen von Kraftfahrzeugemissionen in der urbanen Atmosphäre*. Doktorarbeit, Naturwissenschaftlich Mathematische Gesamtfakultät der Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg.
- Allen, R. J. und Platt, C. M. R. (1977). Lidar for Multiple Backscattering and Depolarisation Observation. *Applied Optics*, 16(12):3193 – 3199.
- Andreae, M. O. und Crutzen, P. J. (1997). Atmospheric Aerosols: Biogeochemical Sources and Role in Atmospheric Chemistry. *Science*, 276:1052 – 1058.
- Andrews, L. C. und Phillips, R. L. (1998). *Laser Beam Propagation through Random Media*. SPIE Press, Bellingham, Washington USA.
- Andrews, L. C., Phillips, R. L. und Hopen C. Y. (2001). *Laser Beam Scintillation with Applications*. SPIE Press, Bellingham, Washington USA
- Ångström, A. (1929). On the Atmospheric Transmission of Sun Radiation and on Dust in the Air. *Geografis Annal.*, 11:156–166.
- Argoul, F., Arneodo, A., Grasseau, G., Gagne, Y., Hopfinger, E. J., und Frisch, U. (1989). Wavelet Analysis of Turbulence Reveals the Multifractal Nature of the Richardson Cascade. *Nature*, 338:51 – 53.
- Arya, S. P. (1988). *Introduction to Micrometeorology*. Academic Press, INC, San Diego, New York, Berkley, Boston, London, Sydney, Tokyo, Toronto.
- Atkinson, R. (2000). Atmospheric Chemistry of VOCs and NO_x. *Atmospheric Environment*, 34:2063–2101.
- Banakh, V. A., Smalikho, I. N., und Werner, C. (2000). Numerical Simulation of the Effect of Refractive Turbulence on Coherent Lidar Return Statistics in the Atmosphere. *Applied Optics*, 39(30):5403 – 5414.
- Banakh, V. A. und Mironov, V. L. (1986). *Lidar in a Turbulent Atmosphere*. Artech House, INC., 685 Canton Street, Norwood, MA 02062, USA.
- Barrie, L., Bottenheim, J., Schnell, R., Crutzen, P., und Rasmussen, R. (1988). Ozone Destruction and Photochemical Reactions at Polar Sunrise in the Lower Arctic Atmosphere. *Nature*, 334:138–141.
- Bass, H., Ledford, A., und Lauffer, A. (1976). Extinction Coefficients of NO₂ and N₂O₄. *J. Res. NBS*, 80a:143–166.
- Bass, A. und Paur, R. (1984). The Ultraviolet Cross-Section of Ozone. In Zeferos, C. und Ghazi, A., editors, *Atmospheric Ozone: Proceedings of the Quadrenial Ozone Symposium Held in Halkidiki*, pages 606–621. D. Reidel Publishing Company.

- Bates, D. R. (1984). Rayleigh Scattering by Air. *Planetary and Space Science*, 32:785 – 790.
- Behrendt, A. (2000). *Fernmessung atmosphärischer Temperaturprofile in Wolken mit Rotations-Raman-Lidar*. Doktorarbeit, Fachbereich Physik der Universität Hamburg.
- Beyerle, G. (2000). Detection of Stratospheric Sulfuric Acid Aerosols with Polarization Lidar: Theory, Simulations and Observations. *Applied Optics*, 39(27):4994 – 5000.
- Böckmann, C., Biele, J., und Neuber, R. (1998). Analysis of Multi-Wavelength Lidar Data by Inversion with Mollifier Method. *Pure Appl. Opt.*, 7:827 – 836.
- Böckmann, C. (2001). Hybrid Regularization Method for the Ill-Posed Inversion of Multi-Wavelength Lidar Data in the Retrieval of Aerosol Size Distributions. *Applied Optics LP*, 40(9):1329–1342.
- Bodhaine, B. A., Ahlquist, N. C., und Schnell, R. C. (1991). Three-Wavelength-Nephelometer Suitable for Aircraft Measurement of Background Aerosol Scattering Coefficient. *Atmospheric Environment*, 25A, No. 10:2268–2276.
- Bohren, C. F. und Huffman, D. R. (1998). *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. Wiley-Interscience Publication.
- Bronstein, I. N. und Semendjajew, K. A. (1998). *Taschenbuch der Mathematik*. Verlag Nauka, Moskau und BSB B. G. Teubner Verlagsgesellschaft, Leipzig.
- Browell, E., Ismail, S., und Shipley, S. (1. Sept. 1985). Ultraviolet Dial Measurements of O₃ Profiles in Regions of Spatially Inhomogeneous Aerosols. *Applied Optics*, 24(17):2827–36.
- Bruscaglioni, P., Flesia, C., Ismaelli, A., und Sansoni, P. (1998). Multiple Scattering and Lidar Returns. *Pure Applied Optics*, 7:1273 – 1287.
- Buchholtz, A. (1995). Rayleigh-Scattering Calculations for the Terrestrial Atmosphere. *Applied Optics*, 34(15):2765–2773.
- Bukreev, V., Vartapetov, S., Veselovskii, I., und Shablin, Y. (1996). Measurement of Ozone in the Lower Troposphere by a Differential Absorption Lidar System. *Quantum Electronics*, 26(4):355–359.
- Cairo, F., Donfrancesco, G. D., Adriani, A., Pulvirenti, L., und Fierli, F. (1999). Comparison of Various Linear Depolarisation Parameters Measured by Lidar. *Applied Optics*, 38(21):4425 – 4432.
- Calpini, B., Jeanneret, F., Bourqui, M., Kirchner, F., Vajtai, R., und van den Bergh, H. (1998). Pump-and-Probe Lidar: an OH Fluorescence Study in the Troposphere. *Journal of Geophysical Research*.
- Carter, W. (1990). A Detailed Mechanism for the Gas-Phase Atmospheric Reactions of Organic Compounds. *Atmospheric Environment*, 24A:3.
- Castillo, V. K. und Quarles, G. J. (1995). Progress in Crystal Growth of ce:LiSAF. *SPIE Proceedings*, 2380:43 – 50.

- Chance, K. V. und Spurr, R. J. (1997). Ring Effect Studies: Rayleigh Scattering, Including Molecular Parameters for Rotational Raman Scattering, and the Fraunhofer Spectrum. *Applied Optics*, 36(21):5224–5230.
- Coquart, B., Genouvrier, A., und Merienne, M. (1995). The NO₂ Absorption Spectrum: II Absorption Cross Sections at Low Temperatures in the 400-500 nm Region. *J. Atmos. Chem.*, 21:251–261.
- Cross, P. L. (1998). Database Lasers. Technical report, NASA-LaRC, MS 474 NASA-LaRC Hampton, Va 23681-2199, <http://aesd.larc.nasa.gov/gl/laser/dbmain.htm>.
- D’Almeida, G., Koepke, P., und Shettle, E. P. (1991). *Atmospheric Aerosols: Global Climatology And Radiative Characteristics*. Deepak Publication, Hampton, Virginia, USA.
- Demtröder, W. (2000). *Laserspektroskopie, Grundlagen und Techniken*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg.
- Dierkesmann, R. und Sandermann, H. (2000). Wirkung von Ozon auf Menschen und Pflanzen. *Promet*, 26:151 – 161.
- Doty, B. (1995). The Grid Analysis and Display System GrADS. Technical Report, Center for Ocean-Land-Atmospheric Studies, <http://grads.iges.org/grads/head.html>.
- Dubinskii, M. A., Semashenko, V. V., Naumov, A. K., Abdulsabirov, R. Y., und Korableva, S. L. (1993). Ce + -Doped Colquiriite: A New Concept of All-Solid-State Tunable Ultraviolet Laser. *Journal of Modern Optics*, 40(1):1–5.
- Dyer, A. und Hicks, B. (1970). Flux-Gradient Relationships in the Constant Flux Layer. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 96:715–721.
- Eichler, J. und Eichler, H. J. (1998). *Laser*. Springer Verlag Berlin Heidelberg New York.
- Etzkorn, T., Klotz, B., Sorensen, S., Patroescu, J. V., Barnes, I., Becker, K. H., und Platt, U. (1999). Gas-Phase Absorption Cross Sections of 24 Monocyclic 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(5):652 – 653.
- Finlayson-Pitts, B. J. und Pitts, J. N. (1997). Tropospheric Air Pollution: Ozone, Airborne Toxics, Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Particles. *Science*, 276:1045 – 1050.
- Fiocco, G. und DeWolf, J. B. (1968). Frequency Spectrum of Laser Echoes from Atmospheric Constituents and Determination of Aerosol Content of Air. *Journal of Atmospheric Science*, 25:488 – 496.
- Flemming, J., Reimer, E., und Stern, R. (2000). Long Term Evaluation of the Ozone Forecast by an Eulerian Model. *Physics and Chemistry of the Earth*.
- Focus Software, I. (2001). *ZEMAX Optical Design Program Users Guide*. Focus Software Inc., P.O. Box 18228, Tucson, AZ 85731-8228 USA, 10 edition.
- Folinsbee, L. J., Horstman, D. H., Kehrl, H. R., Abdul-Salaam, S. H. A. S., und Ives, P. J. (1994). Respiratory Responses to Repeated Prolonged Exposure to 0,12 ppm Ozone. *American Journal of Respiratory Care Medicine*, 149:98 – 105.

- Frey, S. (1997). Untersuchung von atmosphärischem Ozon in Reinluftgebieten mit Lidar. Diplomarbeit, Freie Universität Berlin, Fachbereich Physik.
- Geurts, W. H. (2001). Raman Lidar for the Retrieval of Ozone Concentration and Temperature Profiles in the Planetary Boundary Layer. Diplomarbeit, Freie Universität Berlin / Vrije Universiteit Amsterdam.
- Gobbi, G. P. (1998). Polarization Lidar Returns from Aerosols and Thin Clouds: A Framework for the Analysis. *Applied Optics*, 37(24):5505 – 5508.
- Graedel, T. E. und Crutzen, P. J. (1996). *Atmosphäre im Wandel, Die empfindliche Lufthülle unseres Planeten*. Spektrum Akademischer Verlag Heidelberg Berlin Oxford.
- Graps, A. (1995). An Introduction to Wavelets. *IEEE Computational Science and Engineering*, 2(2).
- Grimm (1996). *Bedienungsanleitung für die Staubmessgeräte*. Grimm Labortechnik GmbH & Co KA, Dorfstraße 9, D-83404 Ainring.
- Grossmann, S. (1990). Turbulenz: Verstehen wir endlich dieses nichtlineare Phänomen. *Physikalische Blätter*, 46(1):2 –7.
- Haken, H. und Wolf, H. C. (1994). *Molekülphysik und Quantenchemie*. Springer Verlag, Berlin Heidelberg London Paris Tokyo Hong Kong Barcelona Budapest.
- Hanna, S., Schulman, L., Paine, R., Pleim, E., und Baer, M. (1985). Development and Evaluation of the Offshore and Coastal Dispersion Model. *JAPCA*, 35(10):1039–1047.
- Harwood, M. H. und Jones, R. (1994). Temperature Dependent Ultraviolet Visible Absorption Cross Sections of NO₂ and N₂O₄: Low Temperature Measurements of the Equilibrium Constant of 2NO₂ - N₂O₄. *J. Geophys. Res.*, 99:22955 – 22964.
- Hazucha, M. J. (1987). Relationship Between Ozone Exposure and Pulmonary Function Change. *Journal of Applied Physiology*, 62:1671 – 1680.
- Herb, F. (2000). Qualitätssicherung und Anwendung von Lidar-Daten zum Verständnis der Entstehung räumlicher Spurengaskonzentrationen in der Troposphäre. Diplomarbeit, Freie Universität Berlin, Fachbereich Physik.
- Herzberg, G. (1989). *Molecular Spectra and Molecular Structure: Spectra of Diatomic Molecules*. Krieger Publishing Company, 2. edition.
- Hoffstädt, A. (1995). *Physikalische und Technische Grundlagen von Lampengepumpten Hochleistungs-Ti:Saphir-Laser-Oszillatoren und -Verstärkern*. Doktorarbeit, Fachbereich Physik, Technische Universität Berlin.
- Houghton, J. T., Jenkins, G. J., und Ephraums, J. J. (1990). *The IPCC Scientific Assessment*, chapter 1, Cambridge University Press.
- Huffaker, R. M. und Reveley, P. A. (1998). Solid-State Coherent Laser Radar Wind Field Measurement System. *Pure-Applied Optics*, 7:863 – 873.
- Immler, F. (1995). *Mehrwellenlängen-Lidar mit 1064-nm-Detektion zur Fernerkundung stratosphärischer Aerosole*. Diplomarbeit, Freie Universität Berlin, Fachbereich Physik.

-
- Immler, F. J. (1999). *Lidar-Fernerkundung von Troposphärischem Ozon und Aerosol in einer urbanen Umgebung*. Doktorarbeit, Fachbereich Physik der Freien Universität Berlin.
- Inaba, H. (1976). *Detection of Atoms and Molecules by Raman Scattering and Resonance Fluorescence*, volume 14 of *Topics in Applied Physics*, chapter 5, pages 153 – 232. Springer Verlag Berlin Heidelberg New York.
- IPCC (2001). IPCC Third Assessment Report - Climate Change 2001. Technical Report 3, Intergovernmental Panel on Climate Change, WMO/UNEP.
- Jacob, D. J. (2000). Heterogeneous Chemistry and Tropospheric Ozone. *Atmospheric Environment*, 34:2131 – 2159.
- Jamal, R. und Pichlik, H. (1999). *Labview, Programmiersprache der 4. Generation, Das Anwenderbuch*. Prentice Hall.
- Jänicke, R. (1993). Tropospheric Aerosols. In Hobbs, P. V., editor, *Aerosol-Cloud-Climate Interactions*, chapter Tropospheric Aerosols, pages 1 – 31. Academic Press, San Diego, CA.
- Jenkin, M. E. und Clemitshaw, K. C. (2000). Ozone and Other Secondary Photochemical Pollutants: Chemical Processes Governing their Formation in the Planetary Boundary Layer. *Atmospheric Environment*, 34:2499–2527.
- 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, C. E. (1963). *Air Chemistry and Radioactivity*. International Geophysics-Series ; Academic Press.
- Keeling, C. D., Whorf, T. P., Wahlen, M., und Van der Plicht, J. (1995). Interannual Extremes in the Rate of Rise of Atmospheric Carbon Dioxide Since 1980. *Nature*, 375:666–670.
- Klett, J. D. (1981). Stable Analytical Inversion Solution for Processing Lidar Returns. *Applied Optics*, 20, No. 2:211–220.
- Klett, J. D. (1983). Lidar Calibration and Extinction Coefficients. *Applied Optics*, 22(4):514 – 515.
- Klett, J. D. (1985). Lidar Inversion with Variable Backscatter/Extinction Ratios. *Applied Optics*, 24(11):1683.
- Klett, J. D. (1986). Extinction Boundary Value Algorithm for Lidar Inversion. *Applied Optics*, 25(15):2462 – 2464.
- Kolenda, J. (1993). *Anwendung des blitzlampengepumpten Titan:Saphir-Lasers in der Lidar-Technik*. Doktorarbeit, Fachbereich Physik, Freie Universität Berlin.
- Koschmieder, H. (1924). Theorie der horizontalen Sichtweite. *Beiträge zur Physik der Freien Atmosphäre*, 12:33 – 53.
- Kovalev, V. und McElroy, J. (20. Dec. 1994). Differential Absorption Lidar Measurement of Vertical Ozone Profiles in the Troposphere that Contains Aerosol Layers with Strong Back-scattering Gradients: a Simplified Version. *Applied Optics*, 33(36):8393–401.

- KRdL (1999). Fernmessverfahren, Messungen in der Atmosphäre nach dem Lidar-Prinzip, Messen gasförmiger Luftverunreinigungen mit dem DAS-Lidar. Technical Report VDI 4210, Verein Deutscher Ingenieure.
- Langlotz, M. R. (1998). Femtosekunden-Weißlicht-Lidar: Ortsaufgelöste Absorptionsspektroskopie in der Atmosphäre. Diplomarbeit, Fachbereich Physik, Freie Universität Berlin.
- Leighton, P. A. (1961). *Photochemistry of Air Pollution*. Academic Press, New York.
- Liu, Z. S., Chen, W. B., Zhang, T. L., Hair, J. W., und She, C. Y. (1997). An Incoherent Doppler Lidar for Ground-Based Atmospheric Wind Profiling. *Applied Physics B*, 64:561 – 566.
- Long, D. A. (1977). *Raman Spectroscopy*. McGraw-Hill International Book Company.
- Mallat, S. G. (1989a). Multiresolution Approximations and Wavelet Orthonormal Bases in $l^2(\mathbb{R})$. *Trans. of the American Math. Society*, 315(1):69–87.
- Mallat, S. G. (1989b). A Theory for Multiresolution Signal Decomposition: The Wavelet Representation. *IEEE TPAMI*, 11(7):674–693.
- Marshall, C. D., Speth, J. A., Payne, S. A., Krupke, W. F., Quarles, G. J., und Castillo, V. (1994). Ultraviolet Laser Emission Properties of Ce^+ -Doped LiSrAlF_6 and LiCaAlF_6 . *Journal of the Optical Society of America*, 11(10):2054 – 2065.
- Matthias, V. (2000). *Vertikalmessungen der Aerosolextinktion und des Ozons mit einem UV-Raman-Lidar*. Doktorarbeit, Max-Planck-Institut für Meteorologie Hamburg.
- McClung, F. J. und Hellwarth, R. W. (1962). Giant Optical Pulseations from Ruby. *J. Appl. Phys.*, 33:828 – 829.
- Measures, R. M. (1984). *Laser Remote Sensing*. Wiley-Interscience Publications.
- Meller, R., Moortgat, G. K., Roeth, E.-P., und Ruhnke, R. (1998). UV / VIS Spectra of Atmospheric Constituents. Technical Report, Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V..
- Melles-Griot (2001). Catalog: The Practical Application of Light. Technical Report, Melles Griot.
- Meng, Z., Dabdub, D., und Seinfeld, J. H. (1997). Chemical Coupling Between Atmospheric Ozone and Particulate Matter. *Science*, 277:116 – 119.
- Mielke, B., Cherbakov, V., Stein, B., Kolenda, J., Rairoux, P., und Wolf, J. P. (1992). Error Analysis of Restoring Stratospheric Aerosol Parameters from Single Frequency Lidar Sounding. *SPIE*, 1688:212.
- Misiti, M., Misiti, Y., Oppenheim, G., und Poggi, J.-M. (2000). *Wavelet Toolbox For Use with Matlab*. The MATH WORKS Inc.
- Molina, L. und Molina, M. (20. Dec. 1986). Absolute Absorbtion Cross Section of Ozone in the 185 to 350 nm Wavelength Range. *Journal of Geophysical Research*, 91(D13):14501–8.

- Müller, D., Wagner, F., Wandinger, U., Ansmann, A., Wendisch, M., Althausen, D., und von Hoyningen-Huene, W. (2000). Microphysical Particle Parameters from Extinction and Backscatter Lidar Data by Inversion With Regularization: Experiment. *Applied Optics*, 39(12):1879–1892.
- Müller, M., Neuber, R., Beyerle, G., Kyrö, E., Kivi, R., und Wöste, L. (2001). Non-Uniform PSC Occurrence within the Arctic Polar Vortex. *Accepted for Publication in Geophysical Research Letters*.
- Müller, M. (2001). *Polare Stratosphaerenwolken und Mesoskalige Dynamik am Polarwirbelrand*. Doktorarbeit, Freie Universität Berlin, Fachbereich Physik. Lidar Woeste.
- NI (1998). *Signal Processing Toolset: Reference Manual*. National Instruments Cooperation.
- Nyeki, S., Li, F., Weingartner, E., Streit, N., Colbeck, I., Gäggeler, H., und Baltensberger, U. (1998). The Background Aerosol Size Distribution in the Free Troposphere: An Analysis of the Annual Cycle at a High Alpine Site. *Journal of Geophysical Research*, page 31749.
- Pal, S. R. und Carswell, A. I. (1973). Polarization Properties of Lidar Backscattering from Clouds. *Applied Optics*, 12(7):1530–1535.
- Penney, C. M., Peters, R. L. S., und Lapp, M. (1974). Absolute Rotational Raman Cross Sections for N₂, O₂ and CO₂. *Journal of the Optical Society of America*, 64(5):712–716.
- Penney, C. M. und Lapp, M. (1976). Raman-Scattering Cross Sections for Water Vapor. *Journal of the Optical Society of America*, 66(5):422–425.
- Piironen, P. (1994). *A High Spectral Resolution Lidar Based on an Iodine Absorption Filter*. Doktorarbeit, University of Wisconsin–Madison Space Science and Engineering Center.
- Pisano, J. T., Mckendry, I., Steyn, D. G., und Hastie, D. R. (1997). Vertical Nitrogen Dioxide and Ozone Concentrations Measured from a Tethered Balloon in the Lower Fraser Valley. *Atmospheric Environment*, 31, No. 14:2071–2078.
- Pruppacher, H. R. und Klett, J. D. (1980). *Microphysics of Clouds and Precipitation*. Reidel, Dordrecht, The Netherlands.
- Rabinowitz, P., Jacobs, S., Targ, R., und Gould, G. (1962). Homodyne Detection of Phase Modulated Light. *Proc. IRE*, 50:2365.
- Rambaldi, P., Douard, M., und Wolf, J.-P. (1995). New UV Tunable Solid-State Lasers for Lidar Applications. *Applied Physics*, B 61:117–120.
- Ravishankara, A. R. (1997). Heterogeneous and Multiphase Chemistry in the Troposphere. *Science*, 276:1058–1065.
- Reimer, E., Wiegand, G., Flemming, J., Dlabka, M., Enke, W., Berendorf, K., Weiß, W., und Stern, R. (2000). Development of an Ozone Short Range Forecast for the Smog Warning System, Final Report. Technical Report 29543817, UBA.
- Reimer, E. und Scherer, B. (1992). An Operational Meteorological Diagnostic System for Regional Air Pollution Analysis and Long-Term Modelling. *Air Poll. Modelling and its Applications*, IX.

- Richardson, L. F. (1920). The Supply of Energy from and to Atmospheric Eddies. *Proceeding of the Royal Society*, A 97:354–73.
- Roedel, W. (1994). *Physik unserer Umwelt, Die Atmosphäre*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York.
- Rothman, L., Rinsland, C., Goldman, A., Massie, S., Edwards, D., Flaud, J.-M., Perrin, A., Camy-Peyret, C., Dana, V., Mandin, J.-Y., Schroeder, J., McCann, A., Gamache, R., Wattson, R., Yoshino, K., Chance, K., Jucks, K., Brown, L., Nemtchinov, V., und Varanasi, P. (1998). The HITRAN Molecular Spectroscopic Database and HAWKS (HITRAN Atmospheric Workstation): 1996 edition. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 60:665–710.
- Saleh, B. E. A. und Teich, M. C. (1991). *Fundamentals of Photonics*. John Wiley and Sons, Inc.
- Sassen, K. (1991). The Polarization Lidar Technique for Cloud Research: A Review and Current Assessment. *Bull Am. Meteorol. Soc.*, 72:1848 – 1866.
- Schurath, U., Speuser, W., und Schmidt, R. (1991). Principle and Application of a Fast Sensor for Atmospheric Ozone. *Fresenius Journal for Analytical Chemistry*, 340:544–547.
- Schwiesow, R. L. (1984). A Comparative Overview of Active Remote-Sensing Techniques. In Lenschow, D. H., editor, *Probing the Atmospheric Boundary Layer*, page 269. American Meteorological Society.
- Scire, J., Insley, E., Yamartino, R., und Fernau, M. (1995). A Users Guide for the CALMET Meteorological Model. *EARTH TECH*.
- Segelstein, D. (1981). The Complex Refractive Index of Water. Diplomarbeit, University of Missouri Kansas City.
- Seinfeld, J. H. und Pandis, S. N. (1997). *Atmospheric Chemistry and Physics, From Air Pollution to Climate Change*. John Wiley & Sons, INC.
- 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, AFGL.
- Shettle, E. P. und Fenn, R. W. (1979). Models for the Aerosols of the Lower Atmosphere and the Effect of Humidity Variations on their Optical Properties. *Environmental Research Papers*, AFGL-TR-79-0214:676.
- Sigrist, M. W. (1994). *Air Monitoring by Spectroscopic Techniques*. John Wiley & Sons, Inc.
- Sonnefeld, A. (1957). *Die Hohlspiegel*. Verlag Technik Berlin.
- Stern, R., Scherer, B., und Fath, J. (1997). Ermittlung und Bewertung der Wirkung von Ozonminderungsmaßnahmen im Großraum Berlin-Brandenburg mit Hilfe des photochemischen Ausbreitungsmodells CALGRID. Technical report, Abschlußbericht im Rahmen des FE-Vorhabens 10402812/01 des Umweltbundesamts "Aktionsprogramm und Maßnahmenplan Ozon".

- Stern, R. (1994). Entwicklung und Anwendung eines dreidimensionalen photochemischen Ausbreitungsmodells mit verschiedenen chemischen Mechanismen. *Meteorologische Abhandlungen*, Serie A Band 8, Heft 1.
- Stribling, B. E. (1994). *Laser Beam Propagation in Non-Kolmogorov Atmospheric Turbulence*. Doktorarbeit, Air Force Institute of Technology.
- Stull, R. B. (1989). *An Introduction to Boundary Layer Meteorology*. Kluwer Academic Publishers, P.O.Box 322, 3300 AH Dordrecht, The Netherlands.
- Tatarov, B., Trivonov, T., Kaprielov, B., und Kolev, I. (2000). Dependence of the Lidar Signal Depolarisation on the Receiver's Field of View in the Sounding of Fog and Clouds. *Applied Physics B*, 71:593 – 600.
- Trost, B., Stutz, J., und Platt, U. (1997). UV-Absorption Cross Sections of a Series of Monocyclic Aromatic Compounds. *Atmospheric Environment*, 31(23):3999 – 4008.
- Umwelt-Bundesamt (2001). Ozonsituation 2001 in der Bundesrepublik Deutschland. Technical report, UBA.
- Vandaele, A., Simon, P., Guilmot, Carleer, M., und Colin, R. (1994). SO₂ Absorption Cross Section Measurements in the UV Using a Fourier Transform Spectrometer. *J. Geophys. Res.*, 99:25599–25605.
- Vandaele, A., Simon, P., Guilmot, Carleer, M., und Colin, R. (1994). SO₂ Absorption Cross Section Measurements in the UV Using a Fourier Transform Spectrometer. *J. Geophys. Res.*, 99:25599–25605.
- VBG_93 (1995). Unfallverhütungsverordnung Laserstrahlung. Technical Report, Berufsgenossenschaften, VDI.
- Veselovskii, I., Cha, H., Kim, D., Choi, S., und Lee, J. (2001a). Raman Lidar for the Study of Liquid Water and Water Vapor in the Troposphere. *Applied Physics B*, 71(1):113–117.
- Veselovskii, I. A., Cha, H. K., Kim, D. H., Choi, S. C., und Lee, J. M. (2001b). Study of Atmospheric Water in Gaseous and Liquid State by Using Combined Elastic-raman Depolarisation Lidar. *Applied Physics B*, 73(7):739–744.
- 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. *Beiträge zur Physik der Atmosphäre*, 69(1):177–187.
- Völger, P. (1993). Optische Eigenschaften von Aerosolpartikeln und deren Auswirkungen auf Ozonmessungen mit einem Lidar. Diplomarbeit, Meteorologisches Institut der Universität Hamburg.
- Warnecke, G. (1991). *Meteorologie und Umwelt*. Springer Verlag, London, Paris, Tokyo, Hong Kong, Barcelona, Budapest.
- Wedekind, C. (1997). *Lidar-Untersuchungen von Bildung und Dynamik polarer Stratosphärenwolken in der Arktis*. Doktorarbeit, Freie Universität Berlin, Fachbereich Physik.

- Wehrli, C. (1985). World Climate Research Programme. *WCRP Publication Series WMO ITD-No. 149*, 7:119–126.
- Weil, J. und Brower, R. (1983). Estimating Convective Boundary Layer Parameters for Diffusion Application. *Draft Report Prepared by Environmental Center, Martin Marietta Corp. for Maryland Dept. of Natural Resources*.
- Weingartner, E., Nyeki, S., und Baltensperger, U. (1999). Seasonal and Diurnal Variation of Aerosol Size Distributions ($10 < d < 750$ nm) at a High-Alpine Site Jungfraujoch (3580 m asl). *J. Geophys. Res.*, 104:26809–26820,.
- Weitkamp, C., Thomsen, O., und Bisling, P. (1992). Mess- und Vergleichswellenlängen zur Elimination von SO_2 -Querempfindlichkeiten bei der Lidar-Fernmessung troposphärischen Ozons. *Laser- und Optoelektronik*, 24(2):46–52.
- Weitkamp, C., Baumbach, G., Becker, K. H., Braun-Schoen, S., Burger, H., Dinev, S., Fabian, R., Frey, S., Fritzsche, K., Glaser, K., Glauer, J., Herb, F., Immler, F., Junkermann, W., Kanter, H. J., Lindemann, C., Loescher, A., Mohnen, V. A., Möller, D., Neidhart, B., Olariu, R., Reimer, E., Schmidt, V., Schubert, G., Spittler, M., Vogt, U., Weidauer, D., Windholz, L., und Wöste, L. (2001). *Vergleichsmessungen von Ozon-Vertikalprofilen zwischen vier Lidar- und drei In-Situ-Messsystemen*, volume 24 of *GKSS report*. GKSS.
- Wenzel, L. (1998). Digitale Signalverarbeitung ist keine Hexerei (13 Folgen). *Elektronik*, 1998/23 - 1999/21.
- Wenzel, L. (2000). Kalman-filter: Ein mathematisches Modell zur Auswertung von Messdaten für die Regelungstechnik (4 Folgen). *Automatisieren & Regelungstechnik*, 6 - 13.
- Wieliczka, D. M., Weng, S., und Query, M. R. (1989). Wedge Shaped Cell for Highly Absorbent Liquids: Infrared Optical Constants of Water. *Applied Optics*, 28(9):1714–1719.
- Wippermann, F. (1971). Die "Scales" als ein Ordnungsprinzip für alle Turbulenzvorgänge der Atmosphäre. *promet*, 1/2:16 – 20.
- Wiscombe, W. J. (2001). Spectra and Software, <ftp://climate.gsfc.nasa.gov/pub/wiscombe/>.
- Young, A. T. (1982). Rayleigh Scattering: Questions of Terminology are Resolved During a Historical Excursion Through the Physics of Light-Scattering by Gas Molecules. *Physics Today*, pages 42 – 48.
- Zimmer, W. (1997). Anwendung des Lidar-Verfahrens zur Bestimmung der Konzentration von Ozon und Toluol im Berliner Stadtgebiet. Diplomarbeit, Freie Universität Berlin, Fachbereich Chemie.

Danksagung

Die wissenschaftliche Arbeit in der Gruppe von Prof. Dr. Ludger Wöste ist nicht zuletzt wegen seines Einfühlungsvermögens in Verbindung mit erfolgreicher strategischer Planung sehr angenehm. Ich möchte ihm für die Betreuung meiner Arbeit, die Lösung der alltäglichen Probleme und das erfolgreiche Management der Gruppe und der Fördervorhaben danken. Die Arbeitsatmosphäre in der Gruppe und das fruchtbare Chaos in Verbindung mit viel persönlicher Freiheit schafften für mich die Voraussetzung, meinen eigenen Arbeitsstil zu finden.

Herr Prof. Dr. Kramer hat dankenswerterweise die Aufgabe des Zweitgutachters übernommen. Er stand mir jederzeit mit Rat und Tat zur Verfügung und führte mir vor Augen, dass ein scharfer Geist in Verbindung mit viel Humor keine Frage des Alters sind.

Gemeinsam mit Franz Immler, Wiebke Zimmer, Frieder Herb, Wilm Geurts, Kamil Stelmaczyk und Elmar Bergeler habe ich die Troposphäre mit dem Laser und anderen Hilfsmitteln erforscht. Ohne die gemeinsame Erörterung unserer Gedanken und viele Arbeitsstunden aller wären die Ergebnisse nicht zustande gekommen. Die Arbeit mit den Diplomanden war mir eine große Freude. Für die ausdauernden und erfolgreichen Messungen auf der Charité, besonders während der Vergleichskampagne, möchte ich Frieder danken und Wilm für die ausführliche und tiefgründige Betrachtung der Molekülstreuung und die Messungen mit dem Raman-Lidar.

Ohne Patrick Rairoux hätte ich wohl nie die Freude entdeckt, die es bereitet, die Innereien eines Lasers zur Zusammenarbeit miteinander und mit mir zu bewegen. Er hat mir beigebracht was es bedeutet, die Fehler eines Messgeräts zu suchen und zu beseitigen.

Als Bernhard Stein die Universität nach seiner Habilitation verließ, ließ er die Doktoranden der Laser-Fernerkundung enthauptet zurück und konnte bis jetzt nicht ersetzt werden. Ich hatte seine ruhige Art, die Gruppe zu leiten, schätzen gelernt und ließ mich gern von seinen kritischen Fragen inspirieren.

Die Themengebiete in der Arbeitsgruppe sind so vielfältig wie ihre Mitglieder. Dieses Ambiente gemeinsamer Arbeit an verschiedenen Zielen hat mir sehr gefallen. Denjenigen, die daran Anteil hatten, möchte ich danken. Besonders ergiebig waren für mich die Gespräche mit Holger Wille, der bei Problemen aller Art ein zuverlässiger Ratgeber ist, Hermann Vortisch, dessen Mie-Routine noch immer für mich rechnet, Miguel Rodriguez, mit dessen Hitran-Programmen ich die Infrarotspektren für diese Arbeit erstellt habe, Andreas Bartelt, der mir durch seine Fragen viele Denkanstöße gab, Wiebke Zimmer, nach deren Weggang unser soziales Leben viel langweiliger wurde und Marion Müller, wenn es um Fragen der Meteorologie und die Liebe zum hohen Norden ging. Durch das Interesse an meiner Arbeit, ein geduldiges Ohr und kritische Fragen haben mir einige Kollegen, wie z. B. Mariam Eljazyfer, die Möglichkeit gegeben, die Bedeutung der Ergebnisse zu erkennen und in einen Kontext einzuordnen.

Mein besonderer Dank gilt auch den Kollegen aus der Meteorologie, insbesondere Eberhard Reimer, Jürgen Fath, Bernhard Scherer und Felix Neissner aus dem Institut für troposphärische Umweltforschung der Freien Universität Berlin. Sie stellten mir die Ergebnisse des Ozonmodells und regelmäßig Radiosondendaten zur Verfügung und gewährten mir jedwede Unterstützung. Mit ihrem Interesse an den Fernerkundungsdaten haben sie sehr zu meiner Motivation beigetragen.

Die Senatsverwaltung für Stadtentwicklung hat viel für die Förderung der Messstation auf dem Charité-Hochhaus getan und uns die Messdaten über die Berliner Luftgüte zur Verfügung gestellt.

Für die gute Zusammenarbeit bei der OLAK-Kampagne, die Bereitstellung der Messdaten und die Arbeit am Abschlussbericht danke ich Klaus Weitkamp und Mitarbeitern von der GKSS, Wolfgang Junkermann und Prof. Mohnen vom IFU und den Fesselballonspezialisten vom IVD Stuttgart.

Die Zusammenarbeit mit der Firma Elight Laser Systems bei der Entwicklung eines Ozon-Profilers ermöglichte mir Einblicke in die industriellen Anwendung von Forschungsergebnissen. Dafür möchte ich insbesondere Derk Weidauer und Bernd Sumpf danken.

Prof. Jean-Pierre Wolf und seine Mitarbeiter und die Firma Lambda Physik verdanke ich die Möglichkeit, ihr Material und ihre Erfahrungen beim Design und bei der Konstruktion eines Ultraviolett-Lasers aus dem Ce:LiCaF-Kristall zu nutzen.

Der Deutschen Bundesstiftung Umwelt und dem von ihr geförderten Arbeitskreis Atmosphärische Analytik gilt besonderer Dank für die Finanzierung der Entwicklung des Kilohertz-Lidar. Trotz nötiger Änderungen am geplanten Projekt ist es dank der Betreuung von Dr. Jan Peter Lay gelungen, alles zu einem erfolgreichen Ende zu bringen. Die Treffen des Arbeitskreises und die gemeinsamen Messungen auf dem kleinen Feldberg wurden durch seine und Berit Kirchhoffs Organisation zu menschlichen, wissenschaftlichen und kulturellen Höhepunkten der Arbeit.

Das Bundesministerium für Bildung und Forschung hat unsere Arbeit im Rahmen des Troposphärenforschungsschwerpunkts mit den Messkampagnen BERLIOZ und OLAK gefördert. Durch das Interesse an der Anwendung der Messergebnisse und die Möglichkeit zu Vergleichsmessungen wurde so zur methodischen Weiterentwicklung der Laser-Fernerkundung und hoffentlich zu erhöhter Akzeptanz beigetragen.

Die Aufgaben der Projektverwaltung wurden mir sehr durch die effiziente Arbeit der Fachbereichsverwaltung erleichtert. Frau Apelt danke ich in diesem Zusammenhang für die unkomplizierte Verwaltung der komplizierten Projektfinanzierungen.

Ohne die gute Arbeit der Werkstätten des Fachbereich Physik und die hervorragende Studentenwerkstatt hätten die Geräte nicht gebaut werden können.

Frau Siegel und Frau Dobrikat hielten als Sekretärinnen der Arbeitsgruppe so manches herausfordernde Verwaltungsproblem und tägliche Scherereien von mir fern oder haben mir bei der Lösung geholfen.

Meine Eltern bekamen mich in den letzten Jahren nicht oft zu Gesicht. Trotzdem ist die enge und mir sehr wichtige Beziehung erhalten geblieben. Auf ihren Rat und ihre Unterstützung konnte ich mich mein ganzes bisheriges Leben verlassen.

Dank meiner Freundin Tine und ihrer Mutter Romi wurde mein Manuskript an die Regeln der deutschen Rechtschreibung und Grammatik angepasst. Tine hat mich trotz der wiederholten Verlängerung des Zeitraums der Zusammenschrift bis zum Ende mit viel Geduld unterstützt und in den richtigen Augenblicken für Ablenkung gesorgt. Ihr gebührt der größte Dank.

Lebenslauf

27. 12. 1970 geboren in Weimar
- 1989 Abitur
- 1989 / 90 Nationale Volksarmee der DDR und Zivildienst
- 1990 Aufnahme des Studiums der Physik in Jena
- 1993 Vordiplom im Fach Physik
- 1995 Beginn der Diplomarbeit an der Freien Universität Berlin
- 1996 erster Forschungsaufenthalt in Ny-Ålesund auf Spitzbergen, Lidar-Messungen der Ozonkonzentration für die ARCTOC-Kampagne
- 1996 meridionale Atlantiküberquerung mit dem Forschungsschiff Polarstern, Lidar-Messungen von Aerosol und Ozonkonzentration
- 1997 zweiter Forschungsaufenthalt in Ny-Ålesund auf Spitzbergen, Lidar-Messungen von Aerosol und Ozonkonzentration
- 1997 Abschluss der Diplomarbeit mit dem Thema: „Untersuchung von atmosphärischem Ozon in Reinluftgebieten mit Lidar“
- 1997 Beginn der Arbeit an der Dissertation an der Freien Universität Berlin
- 1997 / 98 stratosphärische Aerosol-Messungen mit Lidar in Sodankylä in Lappland
- 1998 Lidar-Messungen für das Berliner Ozon-Experiment (BERLIOZ)
- 1999 Entwicklung eines Lidar-Ozon-Profilers mit der Firma Elight Laser Systems
- 1999 Vergleichsexperimente zur Auswirkung atmosphärischen Aerosols auf Lidar-Ozon-Konzentrationsmessungen
- 2000 / 01 Entwicklung des Kilohertz-Lidar im Auftrag der Deutschen Bundesstiftung Umwelt

Veröffentlichungen

- Frey, S. (1997). *Untersuchung von atmosphärischem Ozon in Reinluftgebieten mit Lidar*. Diplomarbeit, Freie Universität Berlin, Fachbereich Physik.
- Frey, S., Geurts, W., und Woeste, L. (2001a). Urban Air Pollution Studies by Laser Remote Sensing in Berlin. *Geophysical Research Abstracts*, page 4612. European Geophysical Society.
- Frey, S., Geurts, W., und Wöste, L. (2001b). Studying the Planetary Boundary Layer by Laser Remote Sensing. *Geophysical Research Abstracts*, page 4146. European Geophysical Society.
- Waite, D., Frey, S., Immler, F., und Mueller, M. (1998). Multiple Wavelength Rotational Raman Lidar for Calibration Free Determination of Tropospheric Temperatures. In Singh, U. N., Ismail, S., und Schwemmer, G., editors, *Nasa Conference Publication Issue 207671*, pages 425–428.
- Weidauer, D., Frey, S., Hoffstadt, A., Rairoux, P., Schulte, S., Sumpf, B., Ulbricht, M., und Wöste, L. (2000). The Ozone Profiler - a Stand-alone LIDAR System for the Continuous Measurement of the Vertical Ozone Distribution. *Proceedings of "20th International Laser Radar Conference"*.
- Weitkamp, C., Baumbach, G., Becker, K. H., Braun-Schoen, S., Burger, H., Dinev, S., Fabian, R., Frey, S., Fritzsche, K., Glaser, K., Glauer, J., Herb, F., Immler, F., Junkermann, W., Kanter, H. J., Lindemann, C., Loescher, A., Mohnen, V. A., Möller, D., Neidhart, B., Olariu, R., Reimer, E., Schmidt, V., Schubert, G., Spittler, M., Vogt, U., Weidauer, D., Windholz, L., und Wöste, L. (2000a). Blind Ozone Differential-Absorption Lidar Comparison. *Proceedings, 20th International Laser Radar Conference*.
- Weitkamp, C., Baumbach, G., Becker, K.-H., Braun-Schoen, S., Burger, H., Dinev, S., Fabian, R., Frey, S., Fritzsche, K., Glaser, K., Glauer, J., Herb, F., Immler, F., Junkermann, W., Kanter, H. J., Lindemann, C., Loescher, A., Mohnen, V. A., Möller, D., Neidhart, B., Olariu, R., Reimer, E., Schmidt, V., Schubert, G., Spittler, M., Vogt, U., Weidauer, D., Windholz, L., und Wöste, L. (2000b). Wie richtig sind Lidarmessungen der Ozonverteilung? *Gefahrstoffe - Reinhaltung der Luft*, 60(7/8):284–279.
- Weitkamp, C., Baumbach, G., Becker, K. H., Braun-Schoen, S., Burger, H., Dinev, S., Fabian, R., Frey, S., Fritzsche, K., Glaser, K., Glauer, J., Herb, F., Immler, F., Junkermann, W., Kanter, H. J., Lindemann, C., Loescher, A., Mohnen, V. A., Möller, D., Neidhart, B., Olariu, R., Reimer, E., Schmidt, V., Schubert, G., Spittler, M., Vogt, U., Weidauer, D., Windholz, L., und Wöste, L. (2001). *Vergleichsmessungen von Ozon-Vertikalprofilen zwischen vier Lidar- und drei In-Situ-Messsystemen*, volume 24 of GKSS report. GKSS.