

Einleitung

Die Lufthülle, die unseren Planeten umgibt, ist der Teil des Systems Erde, dem wir im täglichen Leben am unmittelbarsten ausgesetzt sind. Dennoch waren die Vorstellungen der Menschen von der Atmosphäre lange Zeit sehr spekulativer Art. Durch ihre systematische Erforschung, die erst Anfang des neunzehnten Jahrhunderts einsetzte, hat die Atmosphäre nichts von ihrer Faszination verloren, im Gegenteil: Dieses komplexe System mit einer Vielzahl physikalischer und chemischer Prozesse in einem teils chaotischen dynamischen Regime stellt die erfahrensten Synoptiker und ihre leistungsstarken Rechenanlagen bei der Erstellung einer Wettervorhersage jeden Tag aufs Neue vor eine Herausforderung.

In den letzten Jahren ist besonders die Wechselwirkung des Systems Atmosphäre mit anderen großen Teilsystemen der Erde in den Mittelpunkt des Interesses der Atmosphärenforschung gerückt. Die Beziehungen und Rückkopplungen zwischen dem Ozean und der Atmosphäre konnten soweit aufgeklärt werden, daß eine Vorhersage des ENSO¹-Phänomens möglich war, das im Winter 98/99 die pazifische Region beherrschte und sich mit extremen Dürren in Indonesien und Australien und mit Überschwemmungen an den Westküsten Amerikas äußerte ("El Niño grande"). Dem Begriff Klima wird man nicht gerecht, wenn man nur die Atmosphäre isoliert betrachtet.

Von besonderer Bedeutung sind die Wechselwirkungen des globalen Klimasystems mit dem System "Menschheit" und der aus unserem wirtschaftlichen Handeln resultierenden Veränderung unserer Umwelt. Mit der Entdeckung des Ozonlochs und des anthropogen verstärkten Treibhauseffektes wurden Einflußfaktoren sichtbar, die die vitalen Eigenschaften der Atmosphäre in besorgniserregender Weise verändern.

¹ ENSO: El Niño Southern Oscillation

1.1 Forschungsgegenstand

Diese Arbeit untersucht zwei Teilgebiete der anthropogenen Veränderungen der Atmosphäre: das troposphärische Ozon und Aerosole in einer urbanen Umgebung. Der dreiatomige Sauerstoff spielt ebenso wie die in der Luft suspendierten Mikropartikel eine wichtige Rolle in Fragen der Luftreinhaltung auf lokaler Ebene. Darüber hinaus sind diese Bestandteile der Luft aber auch von zentraler Bedeutung für das weitläufige Beziehungsgeflecht von chemischen, dynamischen und physikalischen Prozessen, in dem atmosphärische Gase und Partikel, das Wetter und solare Strahlung miteinander wechselwirken. Die Auswirkungen menschlicher Eingriffe in dieses Gleichgewicht, wie sie sich z.B. in der Erhöhung der troposphärischen Ozonkonzentration äußern, lassen sich nur auf der Grundlage von soliden und zahlreichen Meßdaten beurteilen. Aus diesem Grund kann man sich von der Entwicklung und Anwendung von geeigneten Fernerkundungsmethoden zur Messung dieser Stoffe einigen Erkenntnisgewinn versprechen.

Hauptaufgabe dieses experimentell angelegten Forschungsberichts ist daher die Weiterentwicklung der Lidar-Meßtechnik zur quantitativen Erfassung von Ozon und Partikeln in der bodennahen, durch urbane Einflüsse geprägten "Berliner Luft". Der Schwerpunkt liegt dabei darauf, diese beiden Konstituenten simultan und mit hoher zeitlicher und räumlicher Auflösung in der gesamten Grenzschicht zu erfassen. Meßfehler, die Aerosole bei Lidarmessungen von Ozon verursachen, können so beseitigt werden. Korrelationen, die aufgrund von chemischen oder dynamischen Zusammenhängen zwischen Partikeln und Ozon bestehen, sollen sichtbar gemacht werden.

Die Auswertung von Lidar-Signalen erfordert - wie bei anderen fernerkundenden Meßmethoden auch - große Anstrengungen zur Aufdeckung und Beseitigung von möglichen Meßfehlern und Fehlinterpretationen, so daß diesem Problem in der vorliegenden Arbeit erhöhte Aufmerksamkeit geschenkt wird. Entsprechend viel Raum nimmt daher die Beschreibung der Auswertung von Lidardaten ein (Kapitel 4). Als besondere Herausforderung muß dabei die Durchführung von Fernsondierungen in einer durch urbane Emissionen stark gestörten Atmosphäre gewertet werden, in der eine Vielzahl von Einflußfaktoren zu be-

Tabelle 1-1 Volumenanteile der wichtigsten Bestandteile der Atmosphäre

Stoff	Anteil	
Stickstoff	78,09%	(Anteil an trockener Luft)
Sauerstoff	20,95%	
Argon	0,93%	
Summe	99,97%	
Spurenstoffe (Auswahl)		
Wasserdampf	0 - 1%	
Kohlendioxid	330 ppm	
Methan		
Ozon	0,01-0,1 ppm (Troposphäre) 1-8 ppm (Stratosphäre)	
Partikel	1-100 ppm Massenanteil	

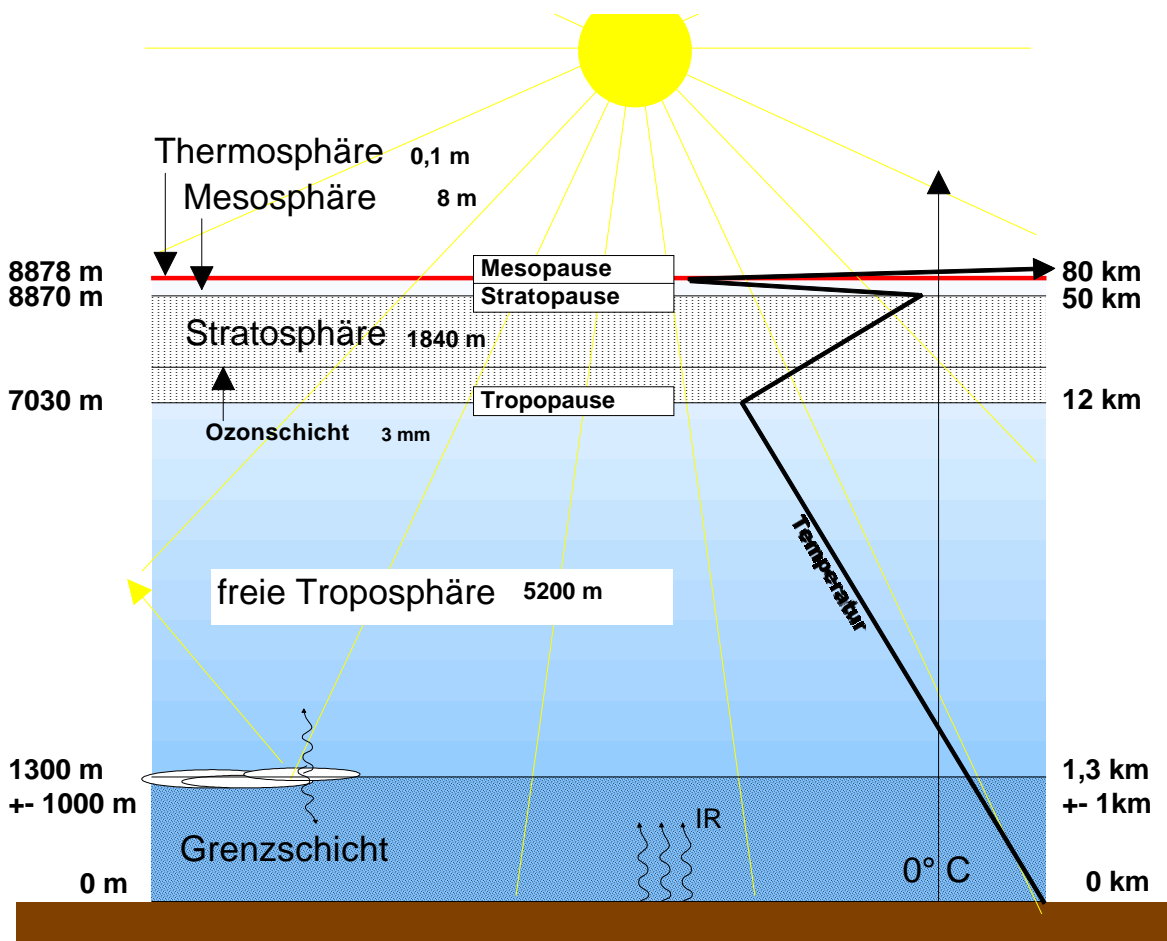


Abbildung 1.1 Der Atmosphärenozean. Unter der Annahme konstanter Dichte wäre die Atmosphäre 8878 m tief. Die Troposphäre macht knapp 80% der Masse der Atmosphäre aus, die Stratosphäre 20%, in der Mesosphäre befinden sich ca. 0,1 % der Gesamtmasse und in der Thermosphäre 0,001%. Rechts ist die tatsächliche Höhe der Schichten angegeben. Sammelt man alles Ozon in einer festen Höhe an, ergäbe dies einen ca. 3 mm (= 300 Dobson units, DU) dicken Film.

rücksichtigen und hohe zeitliche und räumliche Fluktuationen zu erwarten sind.

Es zeigt sich weiterhin, daß Lidardaten von Aerosolen nur auf der Grundlage von Überlegungen zur Physik von suspendierten Mikropartikeln und entsprechenden Modellvorstellungen interpretiert werden können. Deshalb muß auf diese Thematik näher eingegangen werden und ein geeignetes Aerosolmodell für die Auswertung von Lidardaten entwickelt werden (Kapitel 2).

Die vom Institut für Experimentalphysik der FU Berlin auf dem Dach des Krankenhauses Charité in Berlin-Mitte eingerichtete Lidar-Station wurde für diese Aufgabenstellung entsprechend modifiziert und erweitert. Das System fand Anwendung in der BERLIOZ-Feldmeßkampagne im Juli und August 1998, der europaweit bisher größten Anstrengung, die chemischen und dynamischen Prozesse der Ozonentstehung in der Grenzschicht, den sogenannten Sommersmog, zu untersuchen. Die Resultate unseres Beitrages zu BERLIOZ werden in Kapitel 6 vorgestellt und anschließend diskutiert.

Zunächst möchte ich jedoch die wichtigsten Grundbegriffe aus der Atmosphärenphysik erläutern, die in diesem Zusammenhang von Bedeutung sind.

1.2 Atmosphäre und Strahlung

Das Stickstoffmolekül N_2 bildet mit 78 % vol. den Hauptbestandteil der Atmosphäre, gefolgt von Sauerstoff mit etwa 21 % vol.. Zusammen mit Argon (knapp 1 % vol.) bilden diese beiden Gase bereits rund 100% der Masse der Atmosphäre.

Die Wirkung der solaren Strahlung ist von grundlegender Bedeutung für die vertikale Struktur, sowie für die dynamischen und chemischen Prozesse in der Atmosphäre. Die oben genannten Moleküle besitzen aber keine starken Absorptionsbanden im Spektralbereich der solaren Strahlung und spielen deshalb in diesem Zusammenhang kaum eine Rolle. Der Strahlungshaushalt der Atmosphäre wird von einigen Spurengasen kontrolliert, die in sehr geringen Konzentrationen vorkommen (vgl. Tabelle 1-1). Deshalb ist das Strahlungsgleichgewicht auch so empfindlich auf anthropogene Einflüsse.

In diesem Zusammenhang ist es ganz anschaulich, sich die Luft als inkompressibles Medium mit der Dichte eines idealen Gases bei Normalbedingungen vorzustellen und damit die barometrische Höhenformel außer Kraft zu setzen. Die Atmosphäre würde dann einen weltumspannenden Ozean mit einer scharfen Oberkante in knapp 9 km Höhe bilden (Abbildung 1.1), die Spitze des Mount Everest würde diese Oberfläche fast erreichen.

Die ionisierende Strahlung der Sonne wird bereits an der Oberfläche dieses "Luftmeeres" absorbiert und bildet so die gerade mal 10 cm tiefe Thermosphäre. Diese ist reich an Ionen (Ionosphäre) und es zeigen sich, insbesondere in den Polarregionen, eindrucksvolle Fluoreszenz-Erscheinungen (Polarlichter). Die Temperatur an der Oberfläche reicht über 1000 °C, sofern hier wegen der in Wirklichkeit geringen Dichte noch von Temperatur gesprochen werden kann. Darunter liegt eine Schicht, die nicht dazu in der Lage ist, größere Mengen von Strahlung zu absorbieren. In der unteren Thermosphäre sinkt die Temperatur daher bis ca. -100 °C an der Mesopause ab. Nirgendwo im System Erde ist es kälter.

In der unteren Mesosphäre und oberen Stratosphäre ist es der molekulare Sauerstoff, der in der Lyman-Bande unterhalb von 240 nm Strahlung aufnimmt. Dabei entsteht Ozon, ein sehr guter Absorber im Bereich bis 320 nm. Die so gewonnene Energie, 4% der solaren Strahlung, reicht aus, um die Temperatur an der Stratopause wieder bis nahe 0° C ansteigen zu lassen. In der darunter liegenden ozonreichen Stratosphäre wird die Strahlung aus diesem solaren Spektralbereich dann fast vollständig absorbiert und die Temperatur sinkt wieder bis ca. -60 °C an der Tropopause.

Die restliche Strahlung erreicht die Troposphäre und wird dort entweder in den Weltraum zurückreflektiert (24%), absorbiert (15%) oder erreicht den Erdboden (55%). Ihre Energie bezieht die Troposphäre daher in erster Linie vom Erdboden. Dieser wärmt sich durch die solare Strahlung auf und gibt diese Energie über Wärmeleitung, latenten Energietransport in verdunstetem Wasser oder durch infrarote Strahlung in die Atmosphäre zurück.

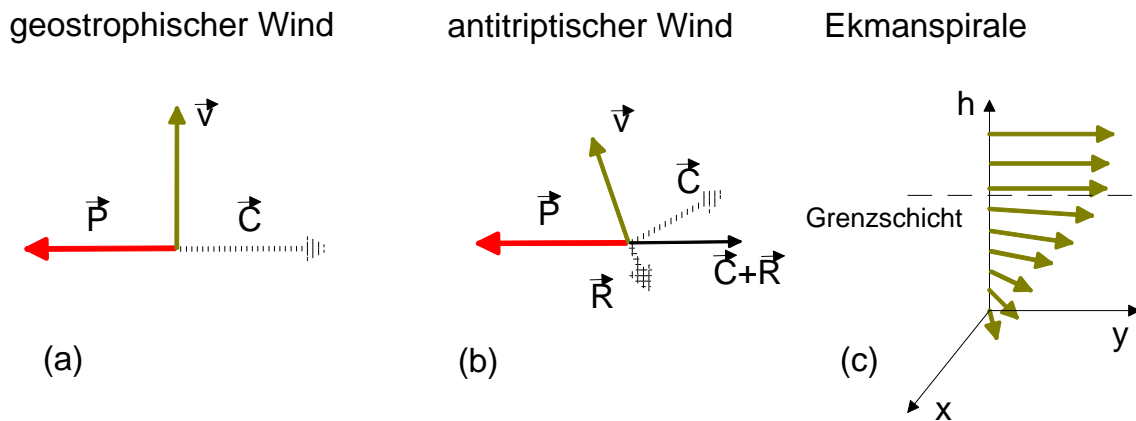


Abbildung 1.2 Darstellung der Kräftevektoren des geostrophischen Windes (isobarenparalleler) Wind der freien Troposphäre) und des antitriptischen Windes (b), der durch Reibungseffekte beeinflusst ist. Die Veränderung der Reibungskraft mit der Höhe führt zu einer Drehung des Windes mit der Höhe, der Ekmanspirale (c).

1.3 Der Treibhauseffekt

Insbesondere wegen der starken Absorptionsbanden des Wassermoleküls ist die Atmosphäre im Bereich der Planck'schen Wärmestrahlung der Erde um die $10 \mu\text{m}$ nahezu undurchsichtig. Nur 6% der terrestrischen Strahlung erreicht den Weltraum. Der Rest wird in der Atmosphäre absorbiert und von dort zur Erdoberfläche zurückgestrahlt (atmosphärische Gegenstrahlung). Man nennt dies den natürlichen Treibhauseffekt. Neben H_2O spielen auch Kohlenstoffdioxid und Methan eine bedeutende Rolle als Treibhausgas.

Letztere sind insbesondere durch die Nutzung fossiler Energieträger seit der Industrialisierung deutlich in ihren Konzentrationen angestiegen und haben den Treibhauseffekt dadurch verstärkt. Die Folge ist eine globale Erwärmung, die sich in den letzten Jahrzehnten schon leicht bemerkbar machte ($+0,6 \text{ K}$ global). Eine weitere deutliche Zunahme im nächsten Jahrhundert ist nach den Worten der UNEP kaum noch aufzuhalten [UNEP, 1999].

Eine Erhöhung der Konzentration der Treibhausgase verstärkt die oben beschriebene atmosphärische Gegenstrahlung, man bezeichnet diese Veränderung als den Strahlungsantrieb (engl. "radiative forcing" in W/m^2). Die CO_2 -Konzentration ist von dem vorindustriellen Wert von 280 ppm auf derzeit etwa 330 ppm angestiegen. Daraus resultiert ein Strahlungsantrieb von $1,5 \text{ W}/\text{m}^2$. Verglichen mit den $342 \text{ W}/\text{m}^2$, die der Erde von der Sonne zur Verfügung stehen ein geringer Wert, aber genug, um die globale Mitteltemperatur um etwa ein halbes Kelvin ansteigen zu lassen.

Neben den genannten Molekülen spielen auch troposphärisches Ozon und Aerosole eine wichtige Rolle in diesem Kontext. Darauf gehe ich in den ersten beiden Kapiteln dieser Arbeit näher ein.

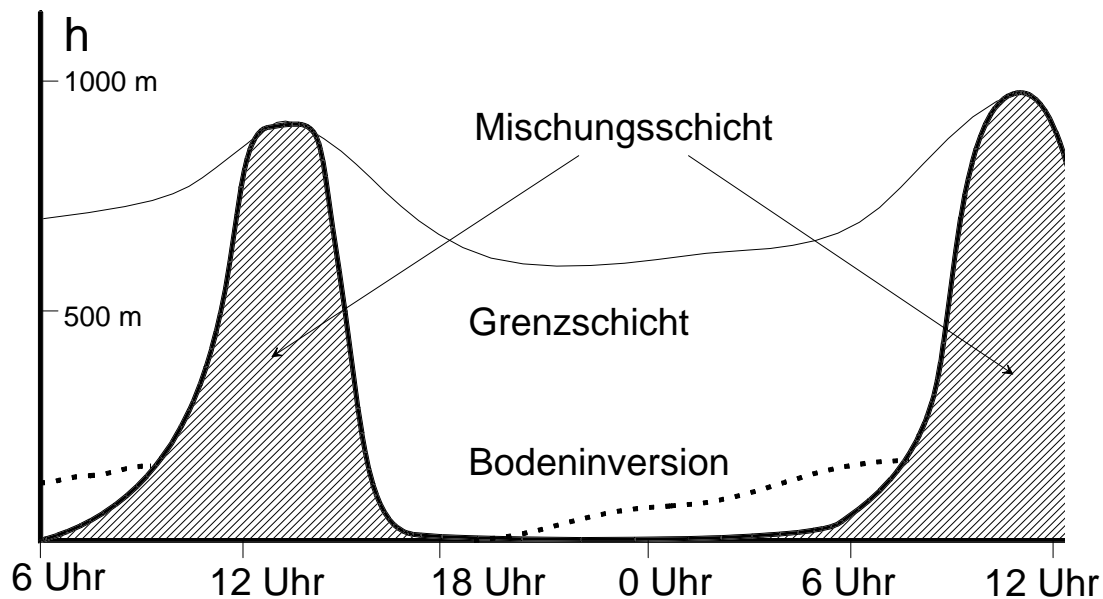


Abbildung 1.3 Tageszeitliche Entwicklung von Grenz- und Mischungsschicht. Nach Warnecke [1991]

1.4 Die Grenzschicht

Die unterste Schicht der Atmosphäre wird durch den Kontakt mit der Erdoberfläche in charakteristischer Weise geprägt und wird als planetare Grenzschicht bezeichnet (engl. "planetary boundary layer", PBL). Insbesondere zwei Einflußfaktoren modifizieren hier die Luftbewegungen:

- Die mechanische Bodenreibung, die das vertikale Windprofil beeinflusst und sich in Turbulenz äußert.
- Thermische Austauschprozesse, ebenfalls mit der Turbulenz eng verbunden, führen zu Konvektion.

Die Definition der Grenzschicht beruht auf dem ersten Effekt, der Bodenreibung. Diese verändert den, in der freien Troposphäre reibungsfreien und deswegen isobarenparallelen Wind in der in Abbildung 1.2 dargestellten Weise. Da der Einfluß der Reibung mit der Höhe abnimmt, resultiert daraus ein Wind, der mit der Höhe zunimmt und sich dabei nach rechts (auf der Südhemisphäre nach links) dreht.

Die Obergrenze der Grenzschicht wird nun als die Höhe definiert, in der der Wind erstmals in Isobarenrichtung weht, in der also der Einfluß der Reibungskraft verschwindet. Die Mächtigkeit der PBL hängt damit von der Windgeschwindigkeit, der Bodenrauigkeit und der Stabilität der Schichtung, also vom Temperaturprofil ab. Da diese Größen starken tages- und jahreszeitlichen Schwankungen unterliegen, variiert auch die Höhe der Grenzschicht stark.

Am Tage wärmt sich die bodennahe Luft durch die Sonneneinstrahlung auf, die Schichtung wird dadurch instabil und es bildet sich in der Grenzschicht eine stark turbulente, durchmischte Schicht aus, die dann meist gegen Mittag die gesamte Grenzschicht einnimmt und deren Höhe anwachsen läßt. Diese wird als Mischungsschicht bezeichnet (Abbildung 1.3).

Bei nachlassender Sonneneinstrahlung am Abend bricht die starke Turbulenz zusammen und zurück bleibt eine durchmischte, nurmehr schwach turbulente Grenzschicht, während sich in Bodennähe nachts oft eine Bodeninversion ausbildet.

Emissionen werden durch die hier beschriebenen Prozesse effizient in der Grenzschicht verteilt, während sie in die freien Troposphäre nur langsam durch Diffusion eindringen können. Dadurch sind Emissionen mit einer Lebensdauer von einem Tag oder länger gute Tracer für die Mischungsschicht, wozu insbesondere die Aerosole gehören. Da die Bestimmung der Grenzschichthöhe nach der oben genannten Definition eine Messung der Windrichtung voraussetzt, die nicht leicht durchzuführen ist, bietet eine Profilmessung der Aerosolbelastung eine gute Alternative. Im Rahmen dieser Arbeit wird dies aufgezeigt und begründet.

Natürlich ist die meteorologische Situation nicht immer so einfach und die Grenzschicht nicht immer so klar definiert, wie in Abbildung 1.3 dargestellt. Mitunter kann es z.B. an Kaltfronten oder bei Gewittern zu einer Destabilisierung der gesamten Troposphäre kommen. In dieser Arbeit sind aber insbesondere stabile Hochdrucklagen von Interesse, zum einen weil nur unter wolkenfreien Bedingungen Messungen mit dem Lidar-Verfahren durchgeführt werden können, zum anderen weil die Bildung von photochemischem Smog, die hier speziell untersucht werden soll, auf solche Wetterlagen beschränkt ist. Die Struktur der Grenzschicht, wie sie hier beschrieben wurde, ist für diese Bedingungen ein geeignetes Modell.

Die Untersuchungen dieser Arbeit richten sich besonders auf die Vorgänge innerhalb der Grenzschicht. Der derzeitige Wissensstand über die Chemie, die hier eine Rolle spielt, wird im nun folgenden Kapitel besprochen.