

Kapitel 5

Datenauswertung

Bei Messungen im Labor oder bei In-Situ-Verfahren hat man die Möglichkeit, das Meßobjekt so zu präparieren, daß möglichst alle Einflüsse, die das Meßergebnis verfälschen, ausgeschlossen werden können. Bei Fernerkundungsverfahren hat man diese Möglichkeit nicht. Man muß den Untersuchungsgegenstand, die Atmosphäre, so nehmen, wie sie ist. In diesem komplexen Medium, das jeden Tag anders aussieht, ist daher eine genaue Analyse der Meßdaten notwendig und Vorsicht bei der Dateninterpretation geboten. Besonders wichtig ist auch die sorgfältige Behandlung der Meßfehler, da nur diese eine Beurteilung der Aussagekraft von Meßdaten zulassen. Ich möchte versuchen, diesen Ansprüchen gerecht zu werden und gebe deshalb im folgenden eine detaillierte Beschreibung der Auswertung der Lidardaten, wobei - insbesondere bei der Behandlung der DIAL-Daten - neue Ansätze verfolgt werden und eine erhebliche Verbesserung bei der Reduzierung systematischer Fehler erreicht werden konnte. Die Auswertung wurde so optimiert, daß aus der experimentellen Möglichkeit, Aerosole und Ozon gleichzeitig zu messen, größtmöglicher Nutzen gewonnen wird.

5.1 Invertierung von Lidar-Rückstreusignalen

Elastische Lidar-Rückstreusignale beinhalten Informationen über optische Größen von Aerosolen, namentlich den Rückstreukoeffizienten (RSK) β_{Mie} und den Extinktionskoeffizienten (EK) α_{Mie} . Ziel dieses Abschnitts ist eine Beschreibung der mathematischen Verfahren, wie diese Parameter aus den "Lichtechos" gewonnen werden. Wie also läßt sich die Lidar-Gleichung

$$I_{\text{R}}(r, \lambda) = I_0(\lambda) v_{\text{GK}}(r) \frac{A c}{r^2 2} \beta(r, \lambda) \exp\left(-2 \int_0^r \alpha(r', \lambda) dr'\right) \quad (5-1)$$

invertieren und aus der gemessenen Lichtintensität $I(r)$ die Koeffizienten α und β bestimmen?

Die Streukoeffizienten α und β in (5-1) setzen sich aus einem molekularen Anteil, der Rayleigh-Streuung und der Aerosolstreuung zusammen, so daß die letztere nur bestimmt werden kann, wenn die Rayleigh-Streuung bekannt ist.

5.1.1 Die "Rayleigh-Atmosphäre"

Grundlage der Auswertung von Rückstreulidar-Messungen ist die korrekte Bestimmung der Rayleigh-Streuung in der Atmosphäre. Die Streuung von Licht an Molekülen läßt sich aus der klassischen Elektrodynamik berechnen, indem man das Molekül als Dipol beschreibt, der im elektromagnetischen Wechselfeld erzwungene Schwingungen ausführt. Darüber hinaus müssen aber noch Korrekturen angewendet werden, da die Luftmoleküle eben nur in guter Näherung diesem klassischen Bild entsprechen. Diese Korrekturen werden mit empirischen Formeln eingeführt [Nicolet, 1984] [Young, 1980]. Bucholtz [1995]

gibt die folgenden Gleichungen zur Bestimmung der Extinktion $\sigma_{\text{Ray}} = \int \frac{d\sigma}{d\Omega} d\Omega$ und der Rückstreuung $\kappa_{\text{Ray}} = d\sigma/d\Omega|_{\Theta=\pi}$ durch Moleküle:

$$\sigma_{\text{Ray}}(\lambda) = \frac{8\pi}{3} \left[\frac{\pi^2 (n^2 - 1)^2}{N^2 \lambda^4} \right] \left[\frac{6 + 3\rho}{6 - 7\rho} \right]; \quad \kappa_{\text{Ray}}(\lambda) = \left[\frac{\pi^2 (n^2 - 1)^2}{N^2 \lambda^4} \right] \left[\frac{6}{6 - 7\rho} \right] \quad (5-2)$$

n = Brechungsindex der Luft

N = Teilchendichte,

$\left[\frac{6 + 3\rho}{6 - 7\rho} \right]$ = Kings Korrekturfaktor.

ρ trägt der Anisotropie der Luftmoleküle Rechnung und gibt die Depolarisation an.

Für sichtbare Wellenlängen wird ρ oft als konstant = 0.0279 [Young, 1980] angenommen. Tatsächlich ist ρ aber eine Funktion der Wellenlänge und weicht vor allem im Blauen und Ultravioletten stark von diesem Wert ab (vgl. Tabelle 5.1). Aus (5-2) berechnet man die

Streukoeffizienten α_s und β_s indem man σ_{Ray} bzw. κ_{Ray} mit der Anzahlkonzentration N_s von Luftmolekülen bei Standardbedingungen multipliziert, mit $N_s = 2.54743 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Tabelle 5.1 gibt diese Werte für die in dieser Arbeit verwendeten Wellenlängen an. Daraus lassen sich dann einfach die Streukoeffizienten bei anderen Drücken und Temperaturen herleiten, da $n^2 - 1$ proportional zu N ist:

$$\alpha_{\text{Ray}}(z) = \alpha_s \frac{N}{N_s} = \alpha_s \frac{p(z) T_s}{p_s T(z)}, \quad \beta_{\text{Ray}} \text{ analog} \quad (5-3)$$

Druck- und Temperaturprofile der unteren Atmosphäre lassen sich aus Radiosondenaufstiegen gewinnen, die regelmäßig an verschiedenen, hierzulande vom Deutschen Wetterdienst (DWD) betriebenen Stationen durchgeführt werden. In Lindenberglage, der Berlin am nächsten gelegenen DWD-Station, finden täglich vier Ballonaufstiege statt. Die Daten werden uns freundlicherweise über das Meteorologische Institut der FU Berlin zur Verfügung gestellt. Sie enthalten die Temperatur T , den Druck p , den Taupunkt τ , die Windrichtung und -Geschwindigkeit. Mit der barometrischen Höhenformel

$$dh = -(RT/g) d \ln p \quad (\text{hypsometrische Formel}) \quad (5-4)$$

läßt sich daraus die Temperatur und der Druck als Funktion der Höhe gewinnen. g ist die Schwerebeschleunigung und R die spezielle Gaskonstante für trockene Luft ($= 287,04 \text{ J kg}^{-1} \text{ mol}^{-1}$). In der Troposphäre ist es nötig, eine Korrektur wegen des Wasserdampfgehaltes einzuführen, da dieser einen Fehler von mehreren Prozent in (5-4) verursachen kann. Dies gelingt am einfachsten mit Hilfe des Konzepts der virtuellen Temperatur T_v . Anstatt R zu korrigieren (und damit eine weitere höhenabhängige Variable einzuführen) rechnet man die Temperatur so um, daß wasserdampfreiche und damit leichtere Luft so "abgekühlt" wird, daß ihre Dichte wieder die der trockenen Luft erreicht.

$$T_v = \frac{T}{1 - 3/8 \cdot e/p} \quad (5-5)$$

e ist der Dampfdruck des Wasserdampfes und läßt sich näherungsweise aus der Taupunkt-messung mit Hilfe der Magnus-Formel finden:

$$e = 610,7 \text{ Pa} \times 10^{a \tau / (b + \tau)} \quad (5-6)$$

a und b sind empirische Konstanten, die davon abhängen, ob die Temperatur oberhalb oder unterhalb des Gefrierpunktes liegt und ob Sättigung über Wasser oder Eis vorliegt [Warnecke, 1991]. In der vorliegenden Arbeit wurde der Einfachheit halber stets mit den Werten $a = 7,6$ und $b = 240,7 \text{ K}$, die Werte für Sättigung über Wasser unterhalb des Gefrierpunktes gerechnet. Der Fehler, der dadurch bei anderen Verhältnissen entsteht ist vernachlässigbar.

Mit den Angaben aus der Radiosonde und den obigen Formeln läßt sich nun das Lidarprofil der reinen Rayleigh-Atmosphäre berechnen:

$$P_{\text{Ray}}(r, \lambda) = \frac{1}{r^2} \beta_{\text{Ray}}(r, \lambda) \exp\left(-2 \int_0^r \alpha_{\text{Ray}}(r', \lambda) dr'\right) \quad (5-7)$$

5.1.2 Inversion elastischer Rückstreusignale

Im Falle elastischer Rückstreusignale setzen sich der Rückstreukoeffizient β , sowie der Extinktionskoeffizient α in (5-1) jeweils aus einem Rayleigh- (Molekülstreuung) und einem Mie-Anteil (Partikelstreuung) zusammen:

$$\alpha(r, \lambda) = \alpha_{\text{Mie}}(r, \lambda) + \alpha_{\text{Ray}}(r, \lambda), \quad \beta(r, \lambda) = \beta_{\text{Mie}}(r, \lambda) + \beta_{\text{Ray}}(r, \lambda) = R * \beta_{\text{Ray}}(r, \lambda) \quad (5-8)$$

$R(r)$ wird als Rückstreuverhältnis bezeichnet und ist folgendermaßen definiert:

$$R(r, \lambda) = \frac{\beta_{\text{Mie}}(r, \lambda) + \beta_{\text{Ray}}(r, \lambda)}{\beta_{\text{Ray}}(r, \lambda)} \quad (5-9)$$

Die elastische Rückstreuung wird von einer Gleichung beschrieben, die zwei Unbekannte enthält: R und α_{Mie} . Sie ist daher unterbestimmt und nicht ohne zusätzliche Annahmen lösbar. In der Literatur findet man zahllose Beiträge, die sich mit diesem Problem befassen. (Der interessierte Leser findet sie bei den in diesem Kapitel zitierten Autoren und deren Referenzlisten). Der meistzitierte Ansatz ist der von [Klett, 1981] und wird deshalb auch als Klett-Inversion bezeichnet (auch wenn die Grundlage für diesen Algorithmus bereits früher von anderen Autoren beschrieben wurden z.B. [Fernald, 1972], [Viezee, 1969]). Die grundsätzliche Idee dabei ist, eine Beziehung zwischen α_{Mie} und β_{Mie} festzulegen in der Form:

$$\alpha_{\text{Mie}}(r) = g(r) \beta_{\text{Mie}}(r) = g(r) (R(r)-1) \beta_{\text{Ray}}(r) \quad (5-10)$$

(Die Abhängigkeit der Größen von λ wird im Folgenden der Übersicht halber weggelassen). Das Verhältnis von Extinktion zu Rückstreuung g spielt für die Auswertung von Lidardaten eine wichtige Rolle und wird daher oft als Lidarverhältnis bezeichnet. Die von Konstanten und der r^{-2} -Abhängigkeit korrigierte Lidar-Gleichung (5-1) kann nun logarith-

Tabelle 5.1 Standard Extinktions- und Rückstreukoeffizienten α_S und β_S ($p_S = 1013.25 \text{ hPa}$, $T_S = 288.15 \text{ K}$) nach Bucholtz, [1995]

| λ / nm | 355 | 532 | 750 | 1064 |
|-----------------------------------|------------------------------|------------------------------|------------------------------|------------------------------|
| α_S in m^{-1} | 7,019x10⁻⁵ | 1,314x10⁻⁵ | 3,261x10⁻⁶ | 7,967x10⁻⁷ |
| β_S in $(\text{m sr})^{-1}$ | 8,133x10⁻⁶ | 1,525x10⁻⁶ | 3,787x10⁻⁷ | 9,257x10⁻⁸ |
| ρ | 0,03010 | 0,0284 | 0,0278 | 0,0273 |

miert in folgenden Form ausgedrückt werden:

$$S(r) = c \ln(I(r)r^2) = \ln R(r) + \ln \beta_{\text{Ray}}(r) - 2 \int_0^r [\alpha_{\text{Ray}}(r') + (R(r') - 1)g(r')\beta_{\text{Ray}}(r')] dr' \quad (5-11)$$

Diese Gleichung läßt sich analytisch lösen. Zunächst definiert man dazu eine Funktion $F(r)$, die alle bekannten Größen enthält:

$$F(r) = S(r) - \ln \beta_{\text{Ray}}(r) - 2 \int_0^r [g(r')\beta_{\text{Ray}}(r') - \alpha_{\text{Ray}}(r')] dr' \quad (5-12)$$

Mit (5-11) ergibt sich:

$$F(r) = \ln R(r) - 2 \int_0^r R(r')g(r')\beta_{\text{Ray}}(r') dr' \quad (5-13)$$

Die Ableitung dieser Funktion nach r ergibt eine Bernoulli-Gleichung, die mit dem folgenden Ansatz gelöst wird:

$$R(r) = \frac{\exp F(r)}{\frac{1}{R_0} - 2 \int_{r_0}^r g(r')\beta_{\text{Ray}}(r') \exp F(r') dr'} \quad (5-14)$$

Für $r = r_0$ muß gelten: $R(r_0) = R_0 \exp F(r_0)$. Dies kann erreicht werden in dem man in (5-13) nicht von 0 sondern von r_0 bis r integriert. Den Startpunkt r_0 kann man frei wählen. Man tut dies in der Regel so, daß man an einem Ort mit der Inversion der Lidar-Gleichung beginnt an dem das Rückstreuverhältnis $R(r_0)$ bekannt ist, oder wo wenigstens eine gute Abschätzung möglich ist. Beides ist aber meist nicht der Fall.

In der Troposphäre stellt die Unbestimmtheit dieser Randbedingung eine der Hauptfehlerquellen, besonders im sichtbaren und infraroten Spektralbereich dar, da die Aerosolbelastung eine sehr variable Größe darstellt und Meßdaten meist nicht verfügbar sind [Matsumoto und Takeuchi, 1994]. Eine Lösung läßt sich finden, wenn die Transmission der betrachteten Wegstrecke bekannt ist [Kunz, 1996], aber dieses Datum ist nicht leicht zu messen und die Methode setzt voraus, daß das Lidarverhältnis bekannt ist, was meist auch nicht der Fall ist. Man ist daher in der Regel auf Modellannahmen angewiesen, sofern man mit der im folgenden beschriebenen Methode nicht weiter kommt.

5.1.2.1 Bestimmung der Grenzbedingungen

Unter bestimmten Voraussetzungen ist es möglich, die für die Inversion der Lidar-Gleichung benötigten Grenzbedingungen, also die Aerosolstreuung R_0 in der Höhe r_0 , aus den Signalen selbst zu gewinnen. Grundlage dafür ist die Annahme, daß in einem Höhenintervall $[r_1, r_2]$ das Rückstreuverhältnis R konstant ist. Geeignet dafür ist bei troposphärischen Messungen in der Regel die freien Troposphäre über der Grenzschicht. Hier finden wir an den meisten Tagen eine sehr geringe Aerosolbelastung, die - und auch das läßt sich

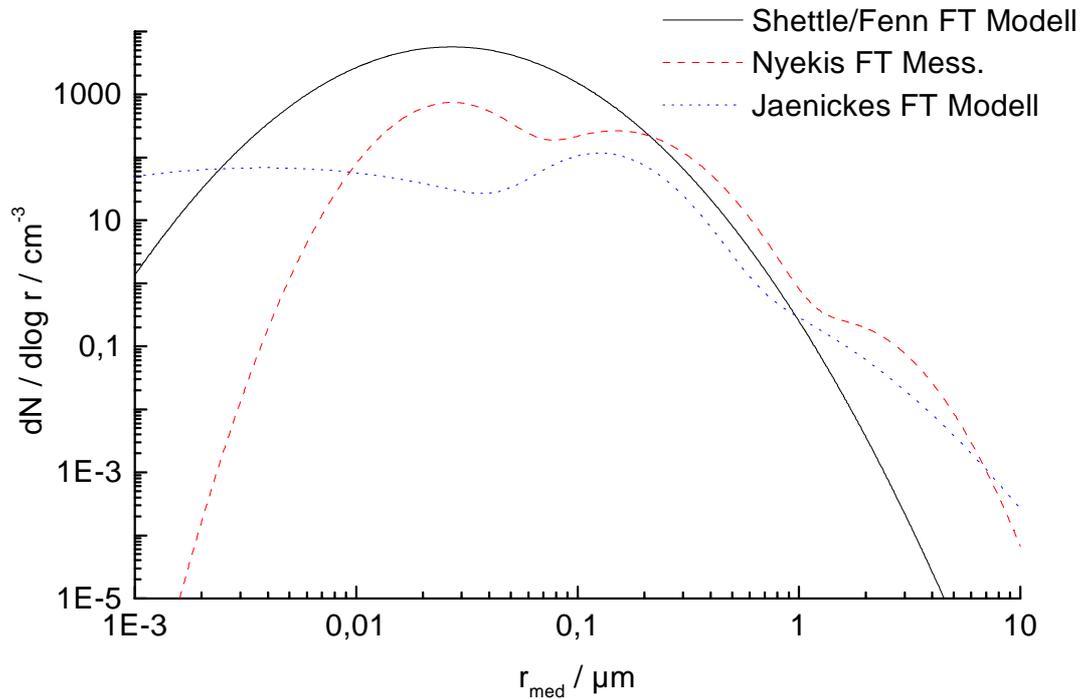


Abbildung 5.1 Aerosol-Größenverteilungen der Modelle für das Hintergrund-Aerosol

aus den Lidar-Signalen erkennen - relativ gleichmäßig verteilt ist. Die Aerosolextinktion ist dann, wie man aus (5-10) und (5-11) sieht:

$$\alpha_{\text{Mie}}(r) = -\frac{1}{2} \left(\frac{d}{dr} S(r) + \frac{1}{\beta_{\text{Ray}}} \frac{d}{dr} \beta_{\text{Ray}}(r) \right) - \alpha_{\text{Ray}}(r) \quad (5-15)$$

Numerisch kann α_{Mie} gewonnen werden, indem man das Signal zunächst durch (5-9) dividiert und dann die Ableitung mit Hilfe einer Regressionsgeraden bestimmt (analog zur Auswertung des Raman-Signals, siehe 5.1.3.2). Man erhält daraus die mittlere Extinktion $\alpha_M(r_1, r_2)$ über den gesamten Bereich $[r_1, r_2]$. Die Voraussetzung $R = \text{konstant}$ schließt aber mit ein, daß auch die Aerosolextinktion dem Dichteprofil der Molekül-atmosphäre ρ_M folgt. Der Extinktionskoeffizient α_0 in der Höhe $r_1 = r_0$ kann dann berechnet werden, indem man ihn mit dem mittleren Rayleigh-RSK skaliert:

$$\alpha(r_0) = \frac{\alpha_M(r_1, r_2) \beta_R(r_0) (r_2 - r_1)}{\int_{r_1}^{r_2} \beta_R(r) dr} \quad (5-16)$$

Um R_0 bestimmen zu können, braucht man dann noch eine Annahme über das Verhältnis α/β . Hierzu ist es nötig Literaturwerte heranzuziehen. Ebenso muß man auf Standardwerte zurückgreifen, wenn die Extinktion in der freien Troposphäre wegen zu geringer Signalin-

tensität oder wegen Wolken nicht nach (5-16) bestimmt werden kann. Die Messungen der Extinktion in der freien Troposphäre nach (5-15) ist mit den TAD Signalen wegen ihres geringen Signal zu Rausch-Verhältnisses in der betreffenden Höhe nicht sehr genau (vgl. Tabelle 8.1). zur Bestimmung von R_0 kommt dann noch die anzunehmende Abweichung von dem gewählten Standardwert des Lidarverhältnisse hinzu. Einen Vorteil erbringt die Methode aber noch dadurch, daß die Annahme von R_0 über (5-16) nicht mehr an einem Ort sondern in dem Bereich $[r_1, r_2]$ festgelegt wird und der statistische Fehler dabei reduziert wird.

Die in Kapitel 2 bereits erwähnten Modelle von Shettle und Fenn [1979] oder Jaenicke [1988] angegebenen Modelle beinhalten Angaben für das Hintergrund-Aerosol, aus denen sich die benötigten Größen R_0 und g_0 berechnen lassen (Tabelle 5.2). Außerdem kann auch auf Meßdaten zurückgegriffen werden. Das Paul-Scherrer-Institut mißt auf dem Jungfraujoch (3454 m) in der Schweiz Größenverteilungen unter Bedingungen, in denen angenommen werden kann, daß man die Luftmasse der freien Troposphäre sondiert [Nyeki, 1998]. Die verschiedenen Angaben über das Hintergrund-Aerosol unterscheiden sich beträchtlich, wie man Abbildung 5.1 entnehmen kann.. Ich werde in Kapitel 7 darauf eingehen, wie diese verschiedenen Hintergrund-Aerosole zu bewerten sind. Zunächst muß man hier von einer großen Unsicherheit ausgehen, sofern nicht besserer Angaben zu Verfügung stehen. Dieser Fehler muß im Invertierungsverfahren berücksichtigt werden und schlägt sich dann in großen Fehlerbereichen bei den Rückstreukoeffizienten wieder.

5.1.2.2 Fehlerbetrachtung zur Klett-Inversion

Sofern R_0 nach dem eben beschriebenen Verfahren aus den Lidar-Signalen bestimmt werden kann, ergibt daraus ein statistischer Fehler (nach (5-29)), sowie ein systematischer Fehler, wegen der Ungewißheit über g_0 , dessen Größenordnung man aus Tabelle 5.2 entnehmen kann. Aus dem Gesamtfehler ΔR_0 berechnet sich nach 5-14 der darauf zurückgehende Fehler in $R(r)$ folgendermaßen:

$$\Delta R_{R_0}(r) = \frac{\partial R(r)}{\partial R_0} \Delta R_0 = \frac{R^2(r) \Delta R_0}{R_0^2 \exp F(r)} \tag{5-17}$$

Ein weiterer systematischer Fehler bei der Bestimmung von $R(r)$ hat seine Ursache in der ungenauen Kenntnis des Invertierungsparameters $g(r)$. Er errechnet sich am schnellsten indem man die Klett-Inversion für verschiedene, in Frage kommende Werte durchführt und die Ergebnisse vergleicht. Wir werden im folgenden Kapitel sehen, daß mit Hilfe einer

Tabelle 5.2 Beschreibung von Modell-Aerosolen für die freie Troposphäre

| Model: | Shettle, Fenn | | | Nyeki (trimodal) | | | Jaenicke (trimodal) | | |
|--|----------------------|------|------|----------------------|------|-------|----------------------|-------|-------|
| Medianwert / μm | 0,027 | | | 0,027 | 0,15 | 1,50 | 0,0036 | 0,127 | 0,259 |
| Breitenparameter σ | 2,24 | | | 1,6 | 1,73 | 1,6 | 4,4 | 1,8 | 2,66 |
| Anzahlkonzentration / cm^{-3} | 5000 | | | 380 | 158 | 0,118 | 129 | 60 | 0,635 |
| EK / m^{-1} | $4,6 \times 10^{-5}$ | | | $6,1 \times 10^{-5}$ | | | $1,9 \times 10^{-5}$ | | |
| RSK / $\text{m}^{-1} \text{sr}^{-1}$ @ 532nm | $1,1 \times 10^{-6}$ | | | $1,9 \times 10^{-6}$ | | | $7,1 \times 10^{-6}$ | | |
| Wellenlänge / nm | 355 | 532 | 1064 | 355 | 532 | 1064 | 355 | 532 | 1064 |
| Lidarverhältnis α/β | 34,1 | 41,1 | 47,1 | 19,3 | 31,2 | 57,9 | 18,1 | 26,8 | 47,8 |
| Rückstreuverhältnis R | 1,25 | 1,69 | 4,24 | 1,40 | 2,19 | 6,69 | 1,12 | 1,39 | 3,51 |

LIDAR-Station Charité: Aerosolmessung, 8.8.98, Rückstreuverhältnisse

Klett-Inversion mit $\beta_{355}=60$, $\beta_{532}=40$, $\beta_{1064}=30$

Klett-Inversion mit $\beta_{355}=90$, $\beta_{532}=75$, $\beta_{1064}=45$ (gestrichelt)

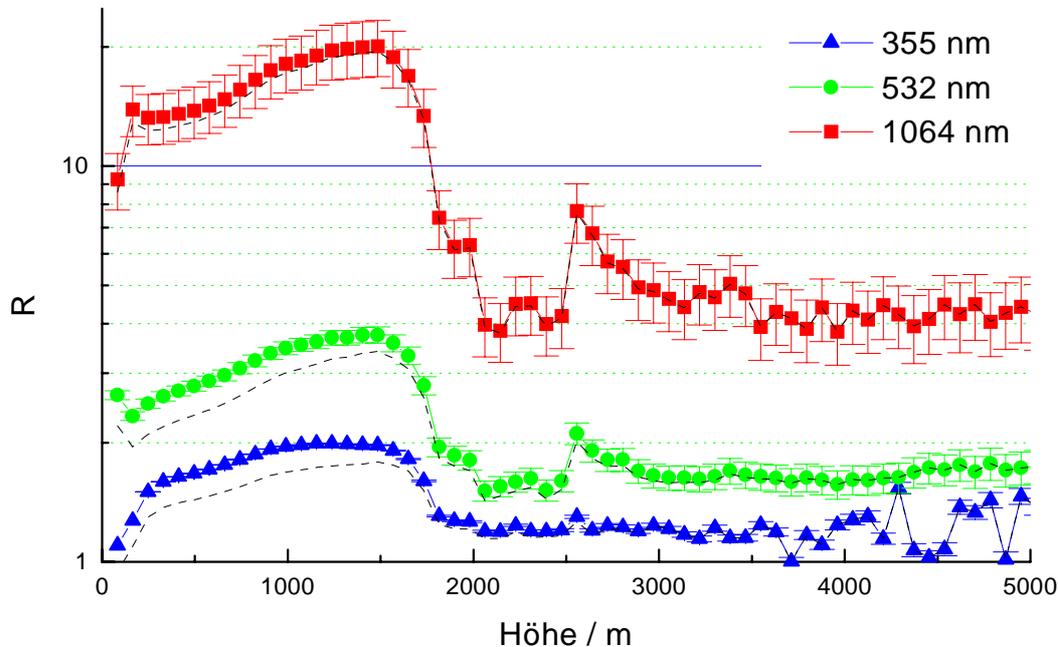


Abbildung 5.2 Klett-Inversion von Lidar-Signalen bei verschiedenen Wellenlängen. Der eingezeichnete Fehlerbalken ist $\Delta R_{R_0}(r)$ (nach 5-17), wobei die Werte für R_0 und ΔR_0 Tabelle 5.2 entnommen sind. Gestrichelt sind die Ergebnisse der Inversion eingetragen, die für unterschiedliche Lidar-Verhältnisse erhalten wurden.

iterativen Invertierung auf der Basis von Modell-Aerosolen begründeten Annahmen über $g(r)$ gemacht werden können.

In Abbildung 5.2 sind Ergebnisse dieser Fehleranalysen dargestellt. Im Infraroten bestimmt hauptsächlich ΔR_0 den Gesamtfehler, da wegen der ohnehin geringen Gesamtextinktion das Ergebnis von $g(r)$ kaum beeinflusst wird. Im Ultravioletten hingegen verhält es sich genau umgekehrt. Wegen des geringen Rückstreuverhältnisses in der freien Troposphäre von etwa 1,05 bis 1,2 ist der Fehler hier verhältnismäßig gering. Dagegen hat $g(r)$ einen starken Einfluß auf das Ergebnis und verursacht daher einen erheblichen Fehler.

Daher wäre es gerade im UV wünschenswert, wenn es gelänge, die Extinktion separat zu messen, ohne daß man sich auf ungewisse Annahmen stützen muß. Dies ist möglich, indem man neben der Rayleigh-Streuung auch die inelastischen Streuteile in einem separaten Kanal nachweist. Mit Hilfe der Raman-Streuung kann man die Aerosolextinktion direkt messen und den grundsätzlichen Nachteil der Klett-Invertierung, nämlich die Unbestimmtheit des Problems, umgehen (vgl. Abschnitt 5.1.3).

Eine weitere Fehlerquelle liegt in der Bestimmung der Rayleigh-Streuung und damit in der Bestimmung der Dichte der molekularen Atmosphäre. Sofern Radiosondendaten aus einer nicht zu weit entfernten Station zur Verfügung stehen, so ist diese Fehlerquelle vernachläss-

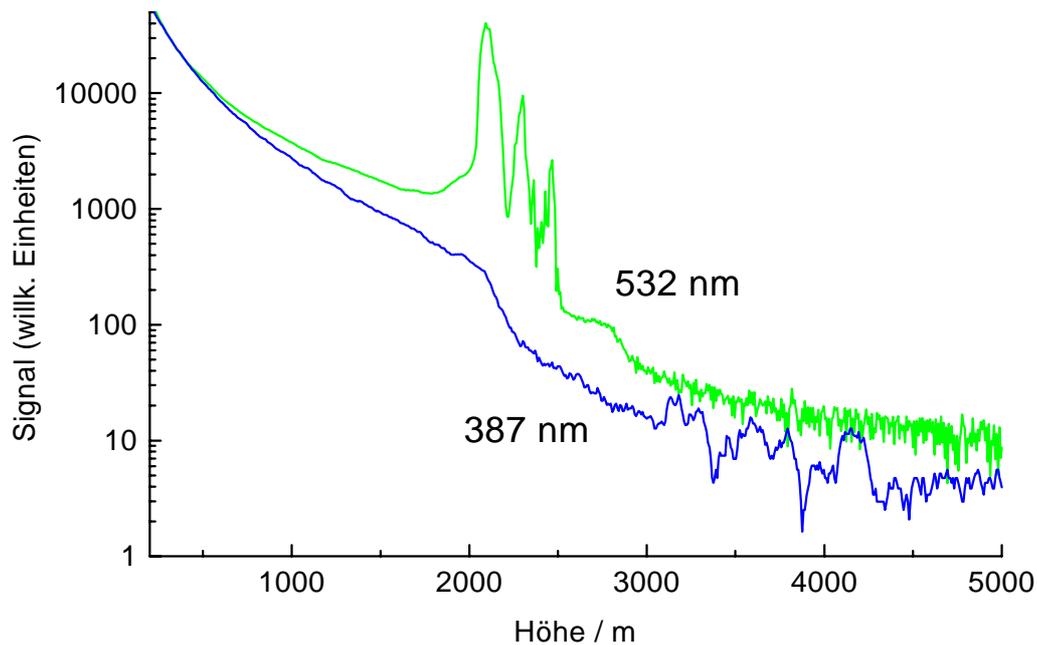


Abbildung 5.3 Raman-Signal bei 387 nm im Vergleich zu dem elastischen Rückstreusignal bei 532 nm. Die Wolke in 2000 m Höhe, die sich bei dem elastischen Signal durch stark erhöhte Rückstreuung bemerkbar macht, ist im Raman-Signal nur durch die stärkere Extinktion zu erkennen.

sigbar. Ist dies nicht der Fall, so ist man auf Standard-Atmosphären angewiesen. Diese läßt sich mit Hilfe gemessener Bodentemperatur und -drucks an die realen Gegebenheiten soweit anpassen, daß der Fehler innerhalb der Grenzschicht im Bereich von etwa 1% bleibt und damit eine untergeordnete Rolle spielt.

Bleibt der statistische Fehler. Dieser hängt mit der Signalintensität stark von der Entfernung r ab. Für die hier vorgestellten Messung in der Grenzschicht ist er - verglichen mit den beschriebenen systematischen Fehlern - in der Regel vernachlässigbar gering.

5.1.3 Der Raman-Kanal (387 nm)

5.1.3.1 Raman-Streuung

Neben der elastischen Rayleigh-Streuung, die das Licht mit derselben Wellenlänge in alle Raumrichtungen streut, wird an Molekülen auch ein kleiner Teil mit einer anderen Frequenz als der des einfallenden Lichtes emittiert. Grund dafür ist die Abgabe (Stokes) oder Aufnahme (Antistokes) von Energie durch Rotations- oder Vibrationszustände im Molekül. Die Verschiebung ist daher spezifisch für das streuende Molekül. Die Streuquerschnitte liegen etwa einen Faktor 100 (Rotation) bzw. 1000 (Vibration) niedriger als die der Rayleigh-Streuung. Die vibrationelle Verschiebung liegt typischerweise in der Größenordnung von 1000 cm^{-1} während die der Rotationslinien nur einige 10 Wellenzahlen beträgt. Der Nachweis der rotationellen Linien ist deswegen schwierig. Die Besetzung der verschiedenen Zustände hängt hier auch von der Temperatur ab, daher eignen sich diese zur Messung von Temperaturprofilen mit LIDAR [Waite, 1998], [Cooney, 1972].

5.1.3.2 Inversion der Raman-Signale

Für die Bestimmung der Aerosolextinktion ist insbesondere die vibrationelle Raman-Streuung an N_2 Molekülen interessant, da Stickstoff als stabilstes und häufigstes Molekül der Atmosphäre (80% vol.) gleichmäßig verteilt ist und die Raman-Linien noch gut nachweisbar sind. Der Streukoeffizient hängt lediglich von der Dichte der Atmosphäre ab. Die Verschiebung beträgt $2330,7 \text{ cm}^{-1}$ [Herzberg, 1989]. Bei einer Anregung bei 355 nm findet man daher die vibrationellen Raman-Linien bei 387 nm. Bei dieser Wellenlänge ist tagsüber mit einer hohen Hintergrundbelastung zu rechnen. Eine entsprechend gute Unterdrückung muß also bei Tageslichtmessungen gewährleistet sein. Mit dem im vorhergehenden Kapitel beschriebenen Aufbau waren nachts Messungen im Photoncounting-Betrieb bis ca. 5 km möglich, tags lediglich bis 1-2 km.

Im Gegensatz zur elastischen Lidar-Gleichung (5-1) tritt in den inelastischen Signalen kein Streuteil durch die Aerosole auf, d.h. $\beta(r) = \beta^{RA}(r)$. Im Extinktionsanteil bleibt der Aerosolanteil dagegen bestehen, da das Licht auf seinem Weg durch die Atmosphäre natürlich Aerosolstreuung erfährt. Es ist dabei lediglich zu berücksichtigen, daß die Wellenlänge jetzt bei Hin- und Rückweg nicht mehr dieselbe ist. Die Lidar-Gleichung für die Raman-Signale lautet daher:

$$I^{Ra}(r)r^2 = c\beta^{Ra}(r) \exp\left(-\int_0^r \alpha(r', \lambda_0) + \alpha(r', \lambda_{Raman}) dr'\right) \quad (5-18)$$

mit $\alpha(r, \lambda) = \alpha_{Ray}(r, \lambda) + \alpha_{Mie}(r, \lambda)$.

Für die reine Molekülatmosfera ist die Extinktion nach bekannt (vgl. 5.1.1), für $\lambda = 355 \text{ nm}$ und $\lambda_{Raman} = 387 \text{ nm}$ gilt:

$$\alpha_{Ray}(r, \lambda_{Raman}) = \left(\frac{\lambda_{Raman}}{\lambda}\right)^{-4} \alpha_{Ray}(r, \lambda) \approx 0,708 \alpha_{Ray}(r, \lambda) \quad (5-19)$$

Mit einer Annahme über die Wellenlängenabhängigkeit der Aerosolextinktion in der Form:

$$\alpha_{Mie}(r, \lambda_{Raman}) = \left(\frac{\lambda_{Raman}}{\lambda}\right)^{-A} \alpha_{Mie}(r, \lambda) \quad (5-20)$$

definieren wir wieder eine Funktion mit allen bekannten Größen:

$$S(r) = \sigma_{Ra} \rho_{Luft}(r) \exp\left(-\int_0^r 1,708 \alpha_{Ray}(r', \lambda) dr'\right) \quad (5-21)$$

Dabei ist σ_{Ra} der Rückstreuquerschnitt der Raman-Streuung, ($\beta^{RA}(r) = \sigma_{Ra} \rho_{N_2}(r)$), den wir zur Auswertung der Aerosolextinktion aber gar nicht zu kennen brauchen, da

$$\alpha_{Mie}(r, \lambda) = -\left(\frac{\lambda_{Raman}}{\lambda}\right)^{-A} \frac{d}{dr} \ln P(r)/S(r) \quad (5-22)$$

nicht von dieser Konstanten abhängt. Die numerische Auswertung der Ableitung erfolgt analog zu der DIAL-Auswertung (vgl. Abschnitt 5.2.1). Damit ist auch der statistische Fehler mit (5-29) gegeben.

Mit (5-22) kann also die Aerosolextinktion direkt bestimmt werden, einzige Annahme ist der Angströmkoefizient Dieser kann je nach Aerosolcharakteristik zwischen 0 und 3 schwanken. Das bedeutet einen Fehler von bis zu 25%. Der Fehler verringert sich, wenn die Eigenschaften des Aerosols näher bekannt sind. Genau diese sollen aber mit der Messung bestimmt werden. Genau wie bei der Bestimmung von $g(r)$ für die Klett-Inversion, kann diese Fehlerursache mit Hilfe eines iterativen Ansatzes minimiert werden (vgl. Kapitel 5).

5.2 Konzentrationsbestimmung nach dem DIAL-Verfahren

5.2.1 Das DIAL-Verfahren

Ein Gasmolekül besitzt eine Absorptionsbande bei der Wellenlänge λ_{on} und absorbiert nicht - oder deutlich schwächer - bei einer zweiten Wellenlänge λ_{off} . Sendet man Laserpulse mit diesen Wellenlänge in die Atmosphäre, erhält man zunächst durch Rayleigh- und Mie-Streuung verursachte elastische Rückstreusignale, die durch (5-1) gegeben sind. Wurden die im Kapitel 3.2.1 genannten Kriterien berücksichtigt, d.h. sind λ_{on} und λ_{off} so gewählt, daß

$$\alpha^{\lambda_{on}} = \alpha^{\lambda_{off}} + \Delta\kappa \quad (5-23)$$

wobei $\Delta\kappa$ der differentielle Absorptionskoeffizient des Moleküls ist, so erhält man durch Bildung des Quotienten der beiden für λ_{on} und λ_{off} :

$$\frac{I_R(r, \lambda_{on})}{I_R(r, \lambda_{off})} = C \exp\left(-2 \int_0^r \Delta\kappa dr'\right) \quad (5-24)$$

oder mit $\Delta\kappa = N(r) \Delta\sigma$:

$$N(r) = -\frac{1}{2\Delta\sigma} \frac{d}{dr} \ln\left(\frac{I_R(r, \lambda_{on})}{I_R(r, \lambda_{off})}\right) \quad (5-25)$$

Numerisch ist die Bildung des Logarithmus problematisch, da er für negative Zahlen nicht definiert ist. Wegen des Rauschens kann I_R nach Abzug des Signalhintergrundes aber auch negative Werte annehmen. Dieses Problem löst man, indem die Ableitung des Logarithmus durchgeführt wird. Man erhält so:

$$N(r) = -\frac{1}{2\Delta\sigma} \frac{I_R(r, \lambda_{off})}{I_R(r, \lambda_{on})} \left(\frac{d}{dr} \frac{I_R(r, \lambda_{on})}{I_R(r, \lambda_{off})} \right) \quad (5-26)$$

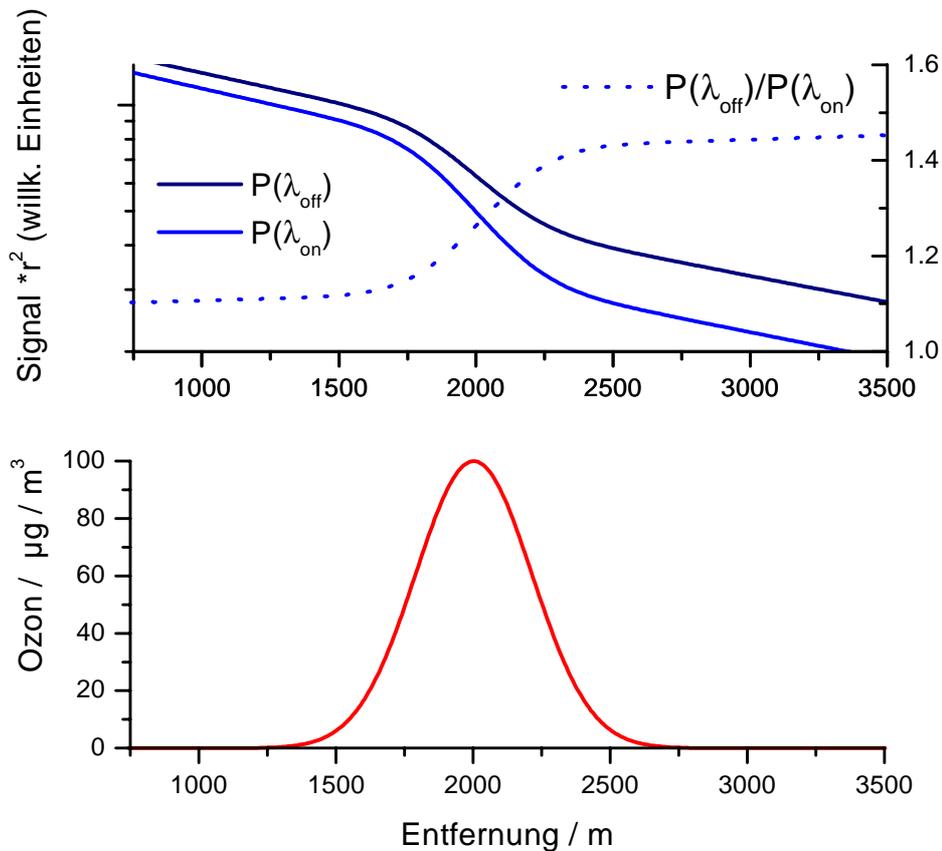


Abbildung 5.4 Simulierte Lidar-Signale bei den Wellenlängen λ_{on} und λ_{off} (a). Die x-Achse gibt die Entfernung in Metern an, die y-Achse die Signalintensität in willk. Einheiten und den Quotienten der beiden Signale (oben). Die Ableitung dessen Logarithmus, skaliert mit dem differentiellen Absorptionsquerschnitt ergibt die Konzentration des Spurengases (unten).

Ein weiteres Problem ist die Ableitung eines verrauschten Signals. Bei einer Auflösung von 20 MHz, entsprechend einer Höhenauflösung Δr von 7.5 m, erhält man bei einfacher Punkt zu Punkt - Ableitung einen statistischen Fehler von weit über 100%. Dieser statistische Fehler lässt sich verkleinern, indem man die Ortsauflösung auf geeignete Weise reduziert. Dafür wurden die verschiedensten Glättungsverfahren für die Signale vorgeschlagen [Stelmasczyk, 1999]. Diese Methoden bergen aber einige Schwierigkeiten, die sich als Artefakte auf die Meßergebnisse auswirken. Aus diesem Grund wurde in dieser Arbeit die Ableitung ohne Glättung mit Hilfe einer Regressionsgeraden gebildet. Dazu wird ein Teil der Signale (Abbildung 5.4) ausgeschnitten und die Steigung $a(r)$ gemäß der folgenden Gleichung bestimmt:

$$a(r) = \frac{E(xy) - E(x)E(y)}{E(x^2) - E^2(x)} \text{ mit } E(x) = \frac{1}{N} \sum_{i_0 - j/2}^{i_0 + j/2} x_i \quad ; i_0 = \frac{r}{dr} ; j = \frac{\Delta r}{dr} \quad (5-27)$$

dabei ist x jeweils die Höhe und y der Quotient der beiden Signale an dieser Stelle. In 5-26 wird außerdem als statistisches Mittel für den Wert $1/y$ der entsprechende Punkt auf der Regressionsgeraden verwendet. Also:

$$\frac{1}{y} = \frac{I_R(r, \lambda_{\text{off}})}{I_R(r, \lambda_{\text{on}})} = a x_i + b \quad (5-28)$$

Δr in 5-27 ist die Länge der Regressionsgeraden, bzw. das Stück der Kurve, das zur Differenzierung herangezogen wurde und wird im folgenden Differenzierungsbreite genannt. Sie ist identisch mit der Ortsauflösung des Verfahrens und kann auch mit der Höhe variiert werden. Typischerweise wurde sie in einer Entfernung von 1000 m zu 300 m gewählt, und dann linear mit der Entfernung gesteigert, so daß sie bei 3000 m Entfernung bei 1000 m liegt. Der statistische Fehler Δa ist gegeben durch:

$$\Delta a(r) = \frac{E(y-f) - E^2(y-f)}{(N-1)(E(x^2) - E^2(x))} \quad \text{mit } f_i = ax_i + b; \quad b = E(y) - aE(x) \quad (5-29)$$

$\Delta a(r)$ wird beeinflußt durch die Anzahl der Punkte, die man in die Bestimmung der Ableitung miteinbezieht, also die Ortsauflösung, sowie das Signal-Rausch-Verhältnis. Letzteres muß größer als 5 sein um noch Meßergebnisse mit einem Fehler $< 20\%$ zu erreichen. Die Reichweite des Systems ist also durch die Entfernung r_{max} begrenzt, wo das Signal-Rausch-Verhältnis (S/N), im Roh-Signal den Wert 5 unterschreitet. Da der relative Fehler natürlich von der Konzentration selbst, sowie von andere atmosphärischen Parametern, wie der Hintergrundstrahlung und der Aerosol-Belastung abhängt, kann der oben genannte S/N-Wert, nur als Faustregel angegeben werden, der sich aus der Erfahrung ergibt.

5.2.2 Rayleigh-Korrektur

Die systematischen Fehler ergeben sich insbesondere aus der Voraussetzung, die in (5-23) formuliert wurde. Diese ist bestenfalls in guter Näherung erfüllt. Für den Rayleigh-Anteil des Extinktionskoeffizienten gilt:

$$\alpha_{\text{Ray}}(\lambda) = \alpha_{\text{Ray}}(\lambda_0) * \left(\frac{\lambda}{\lambda_0}\right)^{-4} \quad (5-30)$$

Wegen des Unterschiedes von etwa 4 nm bei den hier verwendeten DIAL-Wellenlängen verursacht die Rayleigh-Extinktion eine differentielle Extinktion, die einer Ozonkonzentration von ca. 1.8 ppb bei Normalbedingungen entspricht. Diese systematische Abweichung kann leicht korrigiert werden, indem man diesen Wert, der sich mit der Höhe ändert, von der aus Gleichung 5-26 erhaltenen Konzentration abzieht.

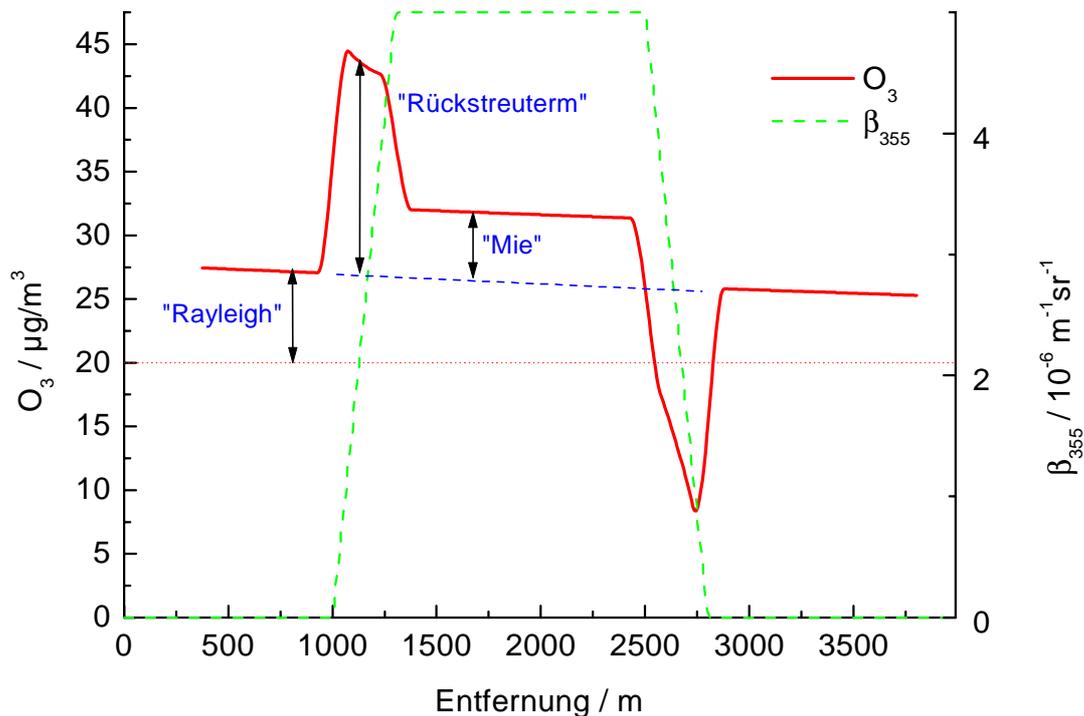


Abbildung 5.5 Fehler der DIAL-Methode:

Bei den beiden DIAL-Wellenlängen 282.9 und 286.3 nm wurden die Rückstreusignale einer Atmosphäre mit konstanter Ozonkonzentration von $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und einer Aerosolschicht von 1300 bis 2500 m Höhe mit einem RSK von konstant $5 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1}$ angenommen, die innerhalb von 300 ansteigt bzw. abfällt (gestrichelt, rechte Skala). Die Ozonkonzentration wurde dann mit der in 5.2.1 beschriebenen Methode ermittelt. Die Differenzierungsbreite (Ortsauflösung) beträgt 150 m. Alle Fehler dieser Methode werden in der Grafik sichtbar:

- Außerhalb der Aerosolschicht entsteht eine Abweichung von ca. $5\text{--}7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ aufgrund der Rayleigh-Extinktion.
- Innerhalb der Schicht kommt durch die Aerosolextinktion nochmals ein Fehler der gleichen Größenordnung hinzu.
- Dort, wo ein starker Gradient in der Aerosolbelastung auftritt (bei 1000 m und 2500 m) ergeben sich weitere Abweichungen von über $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ wegen des Rückstreuterm (siehe Text).

5.2.3 Aerosolextinktions-Korrektur

Ähnlich wie die molekulare Streuung führt auch die Streuung an Partikeln zu einer differentiellen Extinktion und damit zu einem Fehlern in der DIAL-Auswertung. Wie wir in späteren Kapiteln noch sehen werden, ist gerade die planetare Grenzschicht, die Schicht die uns für Ozonmessungen hier interessiert, zu jeder Tages- und Jahreszeit stark mit Aerosolen beladen. Es ist allerdings schwierig, hierfür einen Korrekturfaktor anzugeben, weil die optischen Eigenschaften des Aerosol zunächst nicht bekannt sind und ein Korrekturwert daher nicht angegeben werden kann. Da der Angströmkoefizient, wie wir in Kapitel 2 gesehen haben etwa zwischen $-0,5$ und $2,5$ variieren kann, kann sich der Effekt, der von dem

Aerosol erzielt wird, bei der DIAL-Auswertung in einer positiven oder negativen Abweichung von der Ozonkonzentration auswirken.

Die Größenordnung dieses Fehlers läßt sich mit Hilfe von Standard-Aerosolen abschätzen. Für das rurale Aerosol nach Shettle und Fenn [1979] läßt sich mit Hilfe der Mie-Theorie eine differentielle Extinktion bei den DIAL-Wellenlängen für Ozon von $\Delta\kappa_{\text{MIE}} = 2,5 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1}$ berechnen. Für die Ozonkonzentration bedeutet dies eine Abweichung von lediglich 0,6 ppb unter Normalbedingungen und ist damit für die hier behandelten Anwendungen vernachlässigbar. Bei einem dichten urbanen Aerosol kann der Fehler bis zu 2.5 ppb bei Normalbedingungen betragen und liegt damit über dem Wert, der von der Rayleigh-Streuung verursacht wird.

Mit Hilfe der TAD-Messungen können die Aerosoleigenschaften bestimmt und dieser Fehler korrigiert werden.

5.2.4 Aerosolrückstreu-Fehler

Eine weitere Ursache für systematische Meßfehler kann dann auftreten, wenn die Aerosolrückstreuung eine stark von der Entfernung r abhängt. In 5-25 wurde angenommen, daß der "Rückstreueterm" keinen Beitrag liefert, also:

$$\frac{d}{dr} \ln \frac{\beta(r, \lambda_{\text{on}})}{\beta(r, \lambda_{\text{off}})} \equiv 0 \quad (5-31)$$

Wegen

$$\beta_{\text{Ray}} = \sigma_{\pi}(\lambda) N_{\text{M}}(r) \quad (5-32)$$

$N_{\text{M}}(r)$ = Anzahldichte der Moleküle

ist für die Rayleigh-Streuung alleine 5-31 erfüllt und daher kein Beitrag zu erwarten. Schreiben wir wieder

$$\beta(r, \lambda) = \beta_{\text{Ray}}(r, \lambda) R(r, \lambda), \quad (5-33)$$

wobei R das Rückstreuverhältnis der Aerosole darstellt so wird aus 5-31:

$$\frac{d}{dr} \ln \left(\frac{\beta_{\text{Ray}}(r, \lambda_{\text{on}}) R(r, \lambda_{\text{on}})}{\beta_{\text{Ray}}(r, \lambda_{\text{off}}) R(r, \lambda_{\text{off}})} \right) = \frac{d}{dr} \ln \frac{R(r, \lambda_{\text{on}})}{R(r, \lambda_{\text{off}})} \quad (5-34)$$

Diese Ableitung ist dann verschieden von Null, wenn sich das Aerosol mit der Höhe in seiner Menge oder seinen optischen Eigenschaften deutlich verändert. Gerade in der Grenzschicht ist hiervon in der Regel auszugehen.

Um die Größenordnung dieser Fehlerquelle zu veranschaulichen, gehen wir von einer Aerosolschicht mit einem Rückstreuverhältnis von 1,5 bei 286,4 nm aus, die innerhalb von 200 m abbricht. Wegen der λ^{-4} Abhängigkeit der Rayleigh-Streuung ergibt sich bei gleichem Mie-Streuanteil ein R von 1,476 bei 282,9 nm. Aus 5-34 ergibt dies mit 5-25 dann

eine systematische Abweichung von der tatsächlichen Ozonkonzentration von -17 ppb (Abbildung 5.5)!

Auch wenn die Aerosolmenge gleich bleibt, sich aber die optischen Eigenschaften der Partikel drastisch ändern, kann ein erheblicher Fehler auftreten. Ändert sich beispielsweise der Angströmkoefizient innerhalb von 200 m von $A=2$ nach $A=0$ (z.B. durch Änderung des Brechungsindex von 1.5 nach 1.35 und des mittleren Radius von 30 nm nach 400 nm), so hat dies eine Abweichung von ca. 9 ppb zur Folge (5-34). Die Frage ist: Wie kann man diesen Fehler korrigieren?

In Abbildung 5.5 sind die Auswirkung der Fehlerquellen der DIAL-Methode anhand von simulierten Daten dargestellt. Der Fehler läßt sich natürlich vollständig berechnen, wenn man das Rückstreu- und Extinktionsprofil des Aerosols bei den verwendeten Wellenlängen genau kennt. Mit Hilfe der parallel laufenden Aerosol-Sondierung können, bis zu einem gewissen Grad, solche Parameter gewonnen werden und auf der Grundlage eines geeigneten Aerosolmodells auf den Spektralbereich der DIAL-Messung interpoliert werden (vgl. Kapitel 5).

Dennoch wäre es wünschenswert eine DIAL-Auswertung zu haben, die den Einfluß der Aerosole direkt berücksichtigt. Dies sollte auch möglich sein, da man ja gerade deshalb eine zweite Wellenlänge als Reverenz verwendet. Weist das zu messende Spurengase eine ausreichend scharfe Absorptionslinie bei λ_{on} auf, so könnte man die Referenzmessung bei λ_{off} nach dem Klett-Verfahren invertieren, sofern hier die Absorption vernachlässigbar ist. Der Fehler, der durch den Rückstreuterm entsteht, ließe sich dann vollständig korrigieren. Das dies auch bei nicht ganz so idealen Bedingungen möglich ist wird im nächsten Kapitel gezeigt.

5.2.5 Entwicklung des "DIAL-Klett-Algorithmus"

Wir haben im vorigen Abschnitt gesehen, daß die Anwesenheit von Aerosolen zu großen Fehlern bei der Berechnung von Spurengaskonzentrationen nach dem DIAL-Verfahren führen können. Typischerweise wird versucht, diese Fehler im nachhinein zu korrigieren. Dazu benutzt man eine zusätzliche Referenzwellenlänge außerhalb der Ozonabsorption und entsprechende Annahmen über die Wellenlängenabhängigkeit der Streuparameter. Da diese aber nicht bekannt sind, ist das Ergebnis wegen des großen spektralen Abstandes der Referenz zu den DIAL-Wellenlängen meist unbefriedigend [Kovalev und McElroy, 1994].

Die Information über die Aerosolstreuung ist in den gemessenen DIAL-Signalen aber bereits enthalten. Wenn man die Aerosolstreuung bei der Invertierung explizit berücksichtigt, anstatt sie zunächst zu vernachlässigen, kann ein Inversionsalgorithmus für DIAL-Signale angegeben werden, in dem der Rückstreuterm als Fehlerquelle gar nicht erst auftritt! Der Vorteil besteht insbesondere darin, daß die Aerosolstreuung bei den DIAL-Wellenlängen selbst berechnet wird und daher die optischen Eigenschaften der Aerosole eine untergeordnete Rolle spielen, weil sie nicht mehr über eine große spektrale Distanz extrapoliert werden müssen. Die Annahmen, die über die optischen Eigenschaften des Aerosols gemacht werden, der Angströmkoefizienten und das Lidarverhältnis g , sowie - analog zum Klett-Verfahren - die Randbedingung R_0 , verursachen daher, wie wir sehen werden, keinen großen Meßfehler bei der Ozonkonzentration mehr.

Ein weiterer Vorteil dieses Verfahrens besteht darin, daß man, quasi als "Nebenprodukt" zu den aerosol-korrigierten Spurengasprofilen, die Rückstreuprofile des Aerosols bei den DI-AL-Wellenlängen erhält und diese zu Klassifizierung des Aerosols nutzen kann.

Zu lösen sind die beiden Lidar-Gleichungen für λ_{on} und λ_{off} , die, nachdem sie durch den Beitrag der Rayleigh-Streuung

$$S_{\text{Ray}}(r) = \beta_{\text{Ray}}(r) \exp\left(-2 \int_0^r \alpha_{\text{Ray}}(r') dr'\right) \quad (5-35)$$

dividiert und logarithmiert wurden, in der folgenden Form geschrieben werden können

$$S_{\text{on}}(r) = \ln R_{\text{on}}(r) - 2 \int_0^r (N(r')\sigma_{\text{on}} + \alpha_{\text{on}}^{\text{Mie}}(r')) dr' \quad (5-36)$$

$$S_{\text{off}}(r) = \ln R_{\text{off}}(r) - 2 \int_0^r (N(r')\sigma_{\text{off}} + \alpha_{\text{off}}^{\text{Mie}}(r')) dr'$$

Dabei ist N die Konzentration des Spurengases, σ der jeweilige Absorptionsquerschnitt und R die Rückstreuverhältnisse, die über

$$R_{\text{on}} = \frac{\beta_{\text{on}}^{\text{Ray}} + \beta_{\text{on}}^{\text{Mie}}}{\beta_{\text{on}}^{\text{Ray}}} = (R_{\text{off}} - 1) \left(\frac{\lambda_{\text{off}}}{\lambda_{\text{on}}} \right)^{4-A} + 1 \quad (5-37)$$

verknüpft sind. A ist der Angströmkoefizient der Aerosolrückstreuung, der als bekannt vorausgesetzt wird. Ferner wird, analog zur Klett-Invertierung elastischer Rückstreusignale, eine Beziehung zwischen α_{Mie} und β_{Mie} der Form:

$$\alpha_{\text{Mie}}(r) = g(r) \beta_{\text{Mie}}(r) = g(r) (R(r) - 1) \beta_{\text{Ray}}(r) \quad (5-38)$$

angenommen. Dabei sei $g(r)$ für beide Wellenlängen gleich. 5-36 stellt ein System gekoppelter Bernoulli-Gleichungen dar, die beiden Unbekannten sind $N(r)$ und $R_{\text{off}}(r)$, die es zu finden gilt.

Dieses Gleichungssystem läßt sich lösen, indem man zunächst davon ausgeht, $N(r)$ sei bekannt und dann ganz analog zum Klett-Verfahren eine Lösung für $R_{\text{off}}(r)$ für die eine der beiden Gleichungen sucht (vgl. 5.1.2). Man definiere also wieder eine Funktion F, die alle bekannten Größen, einschließlich N enthält:

$$\begin{aligned} F_{\text{off}}(r) &= S_{\text{off}}(r) + 2 \int_{r_0}^r (N(r')\sigma_{\text{off}} - \beta_{\text{Ray}}^{\text{off}}(r')g(r')) dr' = \\ &= \ln R_{\text{off}}(r) - 2 \int_{r_0}^r R_{\text{off}}(r) \beta_{\text{Ray}}^{\text{off}}(r') g(r') dr' \end{aligned} \quad (5-39)$$

Die Lösung kennen wir bereits vom Klett-Verfahren:

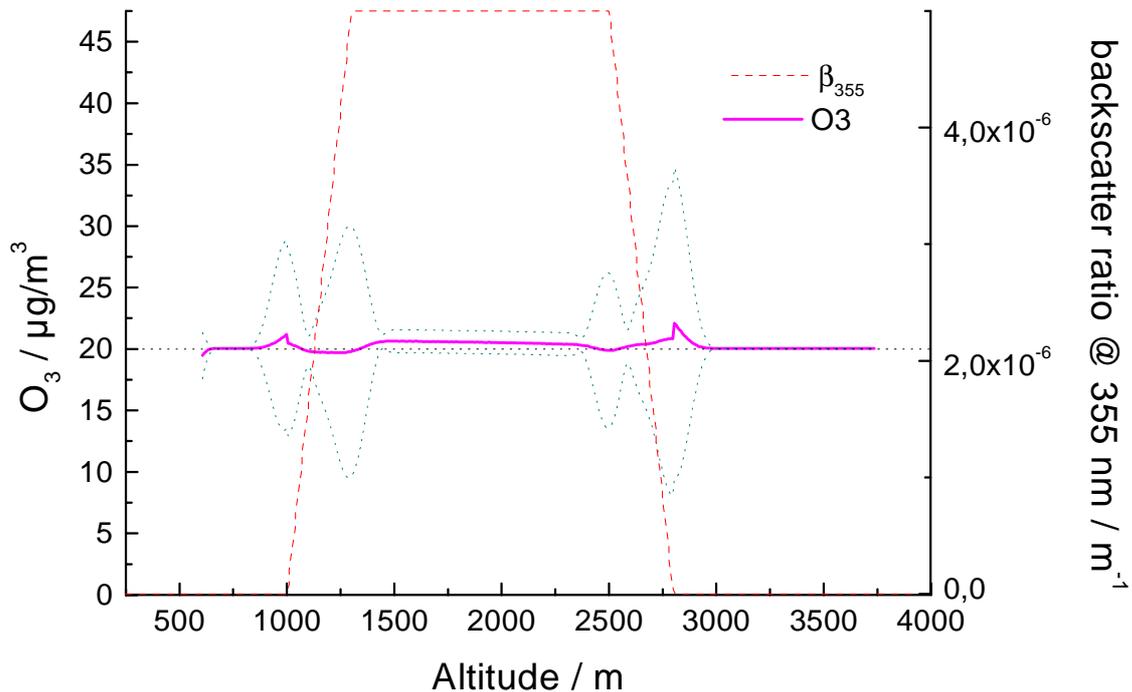


Abbildung 5.6 Ozonbestimmung nach dem DIAL-Klett-Verfahren. Mit simulierten Eingangsdaten wie in Abbildung 5.5 wurde die Spurengasbestimmung durchgeführt. Der Angström-Koeffizient und das Lidarverhältnis des Aerosol wurde korrekt vorgegeben. Der Algorithmus berechnet dann fehlerfrei die Konzentration von konstant $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Die geringen Abweichungen sind auf die endliche Differenzierungsbreite von 150 m zurückzuführen. Die gepunktete Linie gibt den statistischen Fehler wieder, der aufgrund der Unstetigkeit der Ableitung an der Aerosolgrenze verhältnismäßig groß ist.

$$R_{\text{off}}(r) = \frac{\exp F_{\text{off}}(r)}{\frac{1}{R_{\text{off}}^0} - 2 \int_{r_0}^r g(r') \beta_{\text{Ray}}(r') \exp F_{\text{off}}(r') dr} \quad (5-40)$$

Mit $R_{\text{off}}^0 = R_{\text{off}}(r_0)$ als Randbedingung. Mit 5-37 kann nun R_{on} berechnet werden und damit auch ein neuer Wert für $N(r)$, hier mit $N^*(r)$ bezeichnet, der errechnet werden kann, wenn man die zweite Gleichung in 5-36 zunächst nach r differenziert und sie dann nach N auflöst:

$$N^*(r) = \frac{d}{dr} F_{\text{on}}(r) - \frac{\frac{d}{dr} R_{\text{on}}(r)}{R_{\text{on}}(r)} + 2(R_{\text{on}} - 1) \beta_{\text{on}}^{\text{Ray}}(r) g(r) \quad (5-41)$$

mit

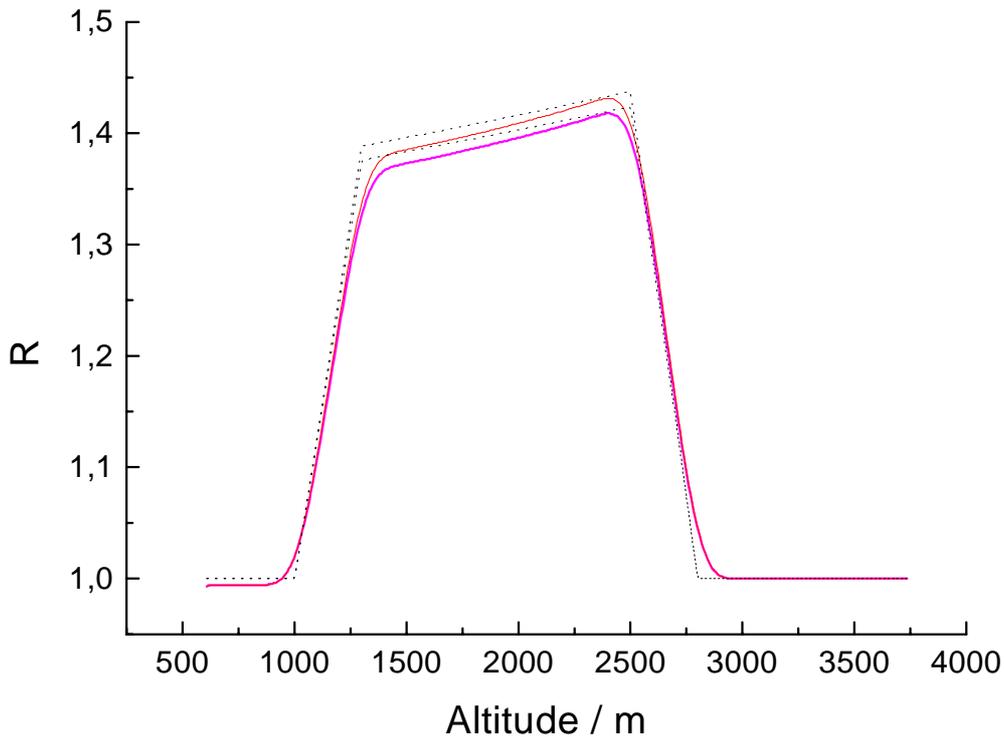


Abbildung 5.7 Die durchgezogenen Linien zeigen das Rückstreuverhältnis R_{on} und R_{off} bei den beiden DIAL-Wellenlängen, wie sie mit dem DIAL-Klett-Algorithmus berechnet wurden für die selben simulierten Daten wie in Abbildung 5.5. Gepunktet sind die tatsächlichen Rückstreuverhältnisse eingezeichnet. Der Algorithmus gibt das Aerosolprofil also recht genau wieder. Die Abweichungen sind letztlich wieder auf die endliche Differenzierungsbreite (hier 150 m) zurückzuführen

$$\begin{aligned} \frac{d}{dr} R_{on}(r) &= \frac{d}{dr} R_{off}(r) \left(\frac{\lambda_{off}}{\lambda_{on}} \right)^{4-\Lambda} = \\ &= \left(\frac{\lambda_{off}}{\lambda_{on}} \right)^{4-\Lambda} * \left(R_{off}(r) \frac{d}{dr} F_{off}(r) + 2R_{off}^2(r)g(r)\beta(r) \right) \end{aligned} \quad (5-42)$$

Die richtige Lösung für $N(r)$ und $R(r)$ ergibt sich nun, indem man lokal N so variiert daß N^* (innerhalb eines Toleranzbereiches) den selben Wert ergibt und dies innerhalb des Klett-Algorithmus für jedes r wiederholt.

Das Ergebnis, das mit den selben Beispieldaten, wie sie für Abbildung 5.5 verwendet wurden mit dem neuen Algorithmus erzielt wird ist in Abbildung 5.6 gezeigt. Alle Fehler des traditionellen Verfahren werden mit dem neuen Verfahren vermieden, ohne daß es nachträglicher Korrekturen bedarf. Zusätzlich erhält man die Aerosol-Rückstreuprofile aus den beiden DIAL-Signalen (Abbildung 5.7).

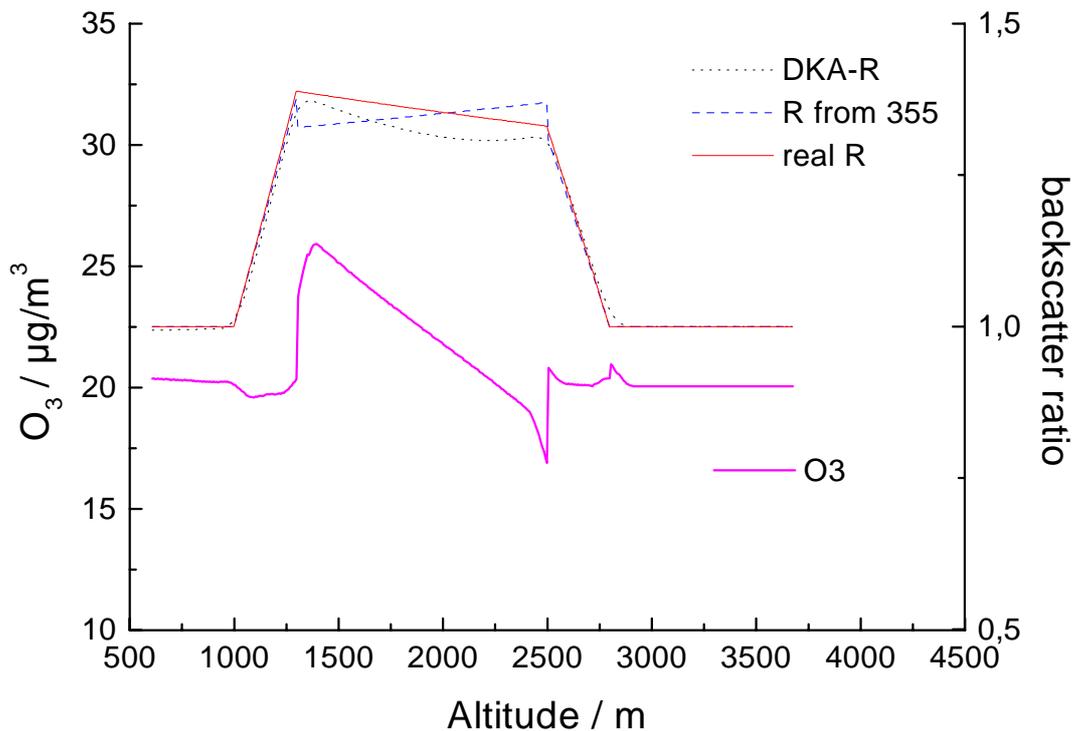


Abbildung 5.8 Invertierung von simulierten DIAL-Signalen nach dem DIAL-Klett Verfahren mit einer inhomogenen Aerosolschicht. In der Schicht zwischen 1300 m und 2500 m ändert sich der Angströmkoefizient A kontinuierlich von 1.3 auf 0 und das Lidarverhältnis g von 40 sr auf 60 sr. Für die Invertierung wurde für diese Schicht mit konstant 0,7 bzw. 50 sr gerechnet. Dadurch entsteht ein Fehler von ca. $7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Skala links). Diese Abweichungen sind stet absolut und hängen nicht von der Hintergrundkonzentration ab. Neben dem vorgegebene Rückstreuverhältnis ("real R") wird oben die Aerosol-Rückstreuung dargestellt, wie man es, unter der Annahme konstanter Aerosolparameter, aus R ($\lambda = 355 \text{ nm}$) interpoliert, bzw. mit dem DIAL-Klett-Algorithmus erhält.

5.2.6 Fehlerbetrachtung des Dial-Klett-Algorithmus

5.2.6.1 Statistischer Fehler

Der statistische Fehler des Verfahrens kann analog zum einfachen DIAL-Verfahren bestimmt werden. Zunächst rechnet man die Standardabweichung der Steigung der Regressionsgeraden aus (5-29), mit der die Ableitungen bestimmt wurden. Während im einfachen DIAL jedoch die Ableitung des Logarithmus des Verhältnisses der beiden Lidar-Signale gebildet wurde, müssen nun die Funktionen $S_{\text{on/off}}$ separat abgeleitet werden. Das birgt Probleme, weil für diese Funktionen, gerade an den Aerosolschichtgrenzen von einer Geraden nur sehr schlecht nachvollzogen werden. Der statistische Fehler bei der Auswertung ist entsprechend hoch. In diesem Beispiel von Abbildung 5.6 entsteht der Fehler ausschließlich wegen dieser schlechten Anpassung, da ein Rauschen in den Daten nicht vorkommt. Der Fehler läßt sich durch eine bessere Anpassung, z.B. durch die Verwendung von Po-

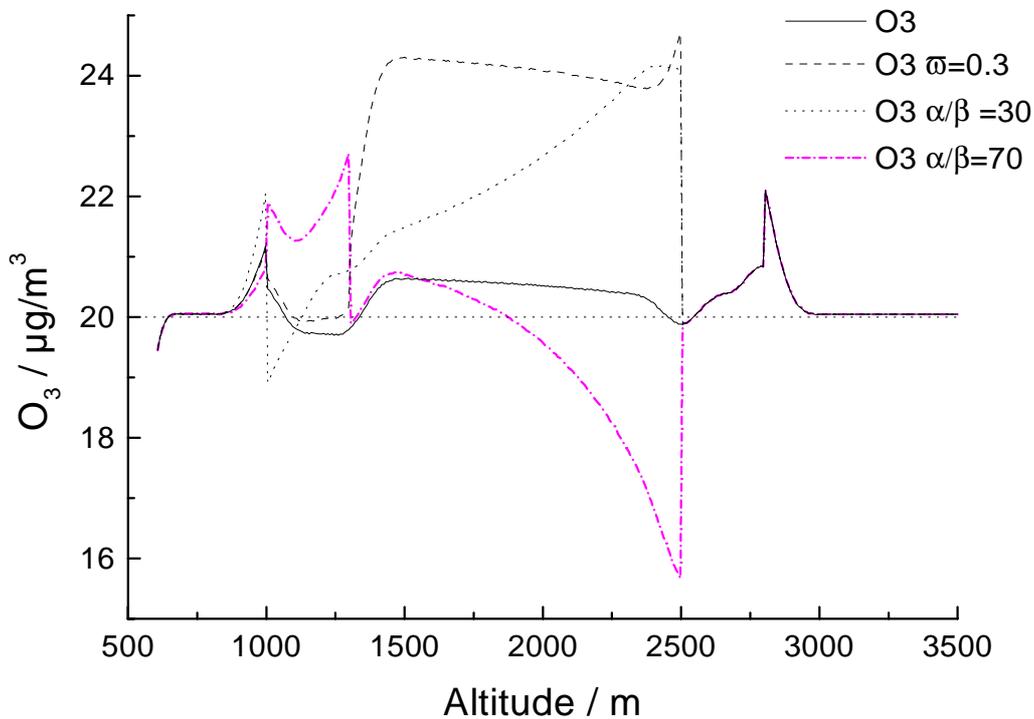


Abbildung 5.9 Einfluß der Aerosolparameter α/β und v auf die Konzentrationsbestimmung mit dem DIAL-Klett-Verfahren. Die korrekten Werte lauten $\alpha/\beta = 50 \text{ sr}$ und $v = 1.3$. Für die Schicht zwischen 1300 m und 2500 m wurden diese Parameter wie angegeben verändert. Eine Änderung von v auf 0.3 bewirkt eine konstante Verschiebung der Ozonkonzentration um ca. $+4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (gestrichelt). Eine Änderung von α/β um 40% nach oben oder unten bewirkt eine Änderung der Konzentration an der Oberkante der Schicht um knapp $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ der in beiden Fällen nach unten hin abnimmt.

lynomen, reduzieren. Es zeigt sich aber, daß für die Auswertung realer Signale die Gerade ein brauchbare Anpassung darstellt.

Dieser Fehler in N , der zunächst nur am Ort r wegen des Signalrauschens entsteht, pflanzt sich bei der invertierung der Signale von Ort zu Ort fort und muß, unter Berücksichtigung der bekannten Fortpflanzungsregeln, durch den Algorithmus durchgezogen werden. Da die entsprechenden Formeln eher unhandlich sind, das Vorgehen aber straight forward, wird auf deren Darstellung an dieser Stelle verzichtet.

5.2.6.2 Systematische Fehler

Systematische Fehler entstehen durch Fehlannahmen im Angströmoeffizienten, dem Lidarverhältnis α/β und der Randbedingung R_0 . Der Fehler auf die Spurengaskonzentration ist von diesen Größen nicht von großer Bedeutung, da der Einfluß des Aerosols insgesamt nicht besonders stark ist. Die Eigenschaft des einfachen DIAL-Verfahrens, durch geeignete Wahl der Wellenlängen den Einfluß dieser Störgrößen möglichst gering zu halten, bleibt

auch bei dem neuen Verfahren erhalten. In Abbildung 5.9 wird dieses deutlich. Der Fehler, der durch eine Fehlannahme von R_0 verursacht wird, ist vernachlässigbar gering.

Der Vorteil der hier vorgestellten neuen Methode liegt im Gegensatz zu den bisherigen Ansätzen darin, daß dem Aerosol direkt Rechnung getragen wird. Insbesondere der Rückstreuterm (5-34) wird so gänzlich vermieden. Während bei einer nachträglichen Korrekturmethode [Browell et. al., 1985], die Korrekturgrößen stark von den Aerosolparametern abhängen, ist diese Abhängigkeit jetzt deutlich geringer. Wie man in Abbildung 5.9 sieht, tritt der große Fehler an den Aerosolschichtgrenzen (vgl. (Abbildung 5.5) jetzt - bis auf die, durch die endliche Differenzierungsbreite verursachten, geringen Schwankungen - nicht mehr auf, selbst wenn die Aerosolparameter fehlerhaft angenommen werden.

Eine zusätzliche Schwierigkeit entsteht, wenn die Aerosolparameter mit der Höhe variieren. Sind g und A als Funktion von r bekannt, kann der Algorithmus die Signale nach wie vor korrekt invertieren. In 5-42 muß dann zusätzlich die Ableitung $\frac{d}{dr} A(r)$ berücksichtigt werden. In der Regel sind aber die Aerosolparameter nicht genau bekannt und man muß mit der Näherung konstanter Werte, zumindest über bestimmte Bereiche, auskommen. In Abbildung 5.8 sind die daraus resultierenden Fehler zu erkennen. Sie sind trotz der verhältnismäßig starken Aerosol-Inhomogenität moderat. Die Darstellung der mit dem DIAL-Klett-Algorithmus abgeleiteten Rückstreuverhältnisse $R(r)$ zeigt zugleich die Stärke des Verfahrens. Das Profil gibt den vorgegebenen Verlauf relativ gut wieder. Da dieses nicht parallel zu dem Rückstreuprofil bei 355 nm (multipliziert mit $(355/532)^{-A}$) verläuft, läßt sich aus der Messung schließen, daß diese Aerosolschicht inhomogen ist und die Annahme für A und g entsprechend verbessern. Voraussetzung dafür ist natürlich, daß ein korrekt invertiertes Meßsignal bei 355 nm (oder einer anderen Referenzwellenlänge) vorliegt, wie es Dank der TAD-Messung der Fall ist.

5.2.7 Weiter Fehlerquellen

Betrachten wir die Lidar-Gleichung und die DIAL-Formel (5-24) auf der Suche nach weiteren Ursachen für systematische Fehler, so fällt einem zunächst der Faktor $v_{GK}(r)$ auf, der die geometrische Kompression beschreibt. Um diesen als Fehlerquelle auszuschließen, können zwei Strategien verfolgt werden:

1. $v_{GK}(r, \lambda_{on}) \equiv v_{GK}(r, \lambda_{off})$, d.h. für alle r sind die Faktoren für die beiden Wellenlängen identisch. Da in dem hier verwendeten Aufbau beide Wellenlängen in dem selben Laser-Oszillator erzeugt werden, scheint dieser Wege durchaus möglich. Eine genauere Analyse der Funktion $v_{GK}(r, \cdot)$ (vgl. Kapitel 3.1) zeigt aber, daß insbesondere der Winkel zwischen Sendeachse und Teleskopachse auf weniger als 0,1 mrad differieren dürfen. Das kann aufgrund der Erzeugung der 2. und 3. Harmonischen in verschiedenen Kristallen nicht gewährleistet werden.
2. $v_{GK}(r, \lambda_{on}) \equiv v_{GK}(r, \lambda_{off}) \equiv 1$ für $r > r_{min}$. Der optische Aufbau der Sende- und Empfangseinheiten wird so gewählt, daß in einem geeigneten Entfernungsbereich der vollständige Überlapp von Laser und Teleskopsichtfeld sichergestellt ist. Da der erste Punkt keinen gangbaren Weg darstellt, muß also die geometrische Konfiguration mit entsprechender Sorgfalt gewählt werden, so daß dieses gewährleistet ist. Darüber hinaus muß die Alignierung des Sendestrahles vor der Messung korrekt justiert werden. Um dieses sicherzustellen, wurde im Rahmen dieser Arbeit eine automatische Justieroutine pro-

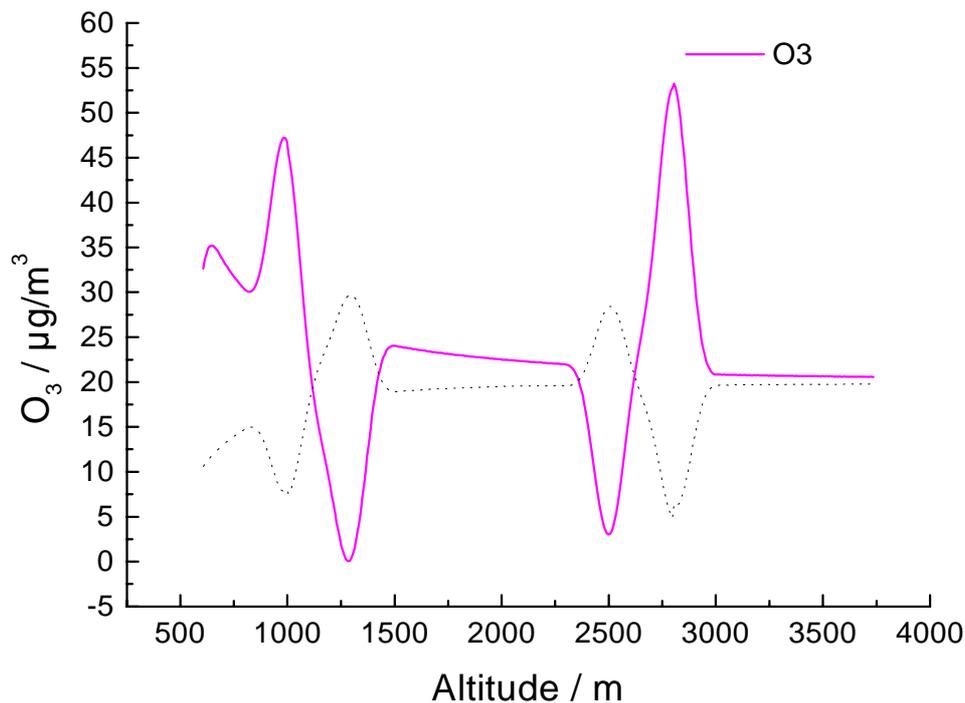


Abbildung 5.10 Durch Verschiebung des Signalnullpunktes verursachter Fehler in der Spurengaskonzentration: Bei der durchgezogenen Linie wurde der Nullpunkt von S_{off} um ein bin (7.5 m) nach links verschoben, bei der gestrichelten um ein halbes bin (3.75 m) nach rechts. Die tatsächliche Ozonkonzentration betrug bei der Simulation konstant $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

grammiert, die den mit Picomotoren ausgestatteten Sendespiegel durch das Gesichtsfeld des Teleskops fährt und anhand eines Vergleiches der dabei aufgenommenen Rückstreuungssignale mit simulierten Signalen die optimale Einstellung fixiert. Hiermit kann die geometrische Kompression als Fehlerquelle für die DIAL-Auswertung ausgeschlossen werden.

Eine weitere Quelle für Fehler ist ein falscher Startpunkt in der Zeit/Höhen-Achse. Während das "Offset" der Signalstärke zuverlässig korrigiert werden kann, indem man am Ende der Transiente, wo das Signal/Noise Ratio weit unter 1 liegt einen Mittelwert bildet und diesen vom gesamten Signal abzieht, liegt die Höhenachse nur als Diskretisierung vor. Diese erlaubt ein Verschieben des Nullpunktes lediglich um diese diskreten Einheiten. Ein Jitter im Triggersignal, das die Akquisition startet, kann bewirken, daß der Nullpunkt um kleinere Einheiten gegeneinander verschoben sind. Die Auswirkung einer solchen Verschiebung kann man in Abbildung 5.10 erkennen. Während der Fehler in der aerosolfreien Region ($>3000 \text{ m}$) gering bleibt, treten an den Schichtgrenzen erhebliche Abweichungen auf. Diesen Fehler vermeidet man, indem entsprechend hohen Anforderungen an die Triggerelektronik gestellt werden und darüber hinaus bei der Datenauswertung den Signalnullpunkt stets überprüft.

Der Absorptionskoeffizient σ von Ozon ist eine Funktion der Temperatur. In dem Temperaturbereich, der hier von Interesse ist, sind die Veränderungen von σ aber so gering, daß hier kein nennenswerter Fehler zu berücksichtigen ist. [Frey, 1997]

