

# Kapitel 6

## Bestimmung von Aerosoleigenschaften mit Lidardaten

### 6.1 Das LASD-Verfahren

In Kapitel 2 wurden Aerosolmodelle vorgestellt, im vorherigen Kapitel die Auswertung von Lidarmessungen. In diesem Abschnitt nun wollen wir versuchen, diese beiden Dinge zusammenzuführen. Das ASD-Problem kann folgendermaßen formuliert werden: Wir verfügen über die mit dem Aerosoldetektor (TAD) gemessenen optischen Parametern  $\beta_{355}$ ,  $\beta_{532}$ ,  $\beta_{1064}$  und  $\alpha_{355}^{\text{Ra}}$  sowie den aus den Ozon-DIAL-Daten invertierten Rückstreuoeffizienten bei 286.3 nm  $\beta_{286}$ , also über  $M = 5$  Meßgrößen. Darüber hinaus wurde bei einem Teil des Datensatzes auch die Depolarisation gemessen. Wir wollen nun ein Aerosol finden, dessen Eigenschaften die Meßdaten erklären kann.

Mathematisch formuliert bedeutet dies die Invertierung der Gleichung:

$$\beta_{\text{Mic}}(\lambda) = \int_0^{\infty} \sigma_{\text{Mic}}^{\text{back}}(\lambda, r) n(r) dr \quad (6-1)$$

bzw. der analogen Gleichung für den Extinktionskoeffizienten (EK).

Die unbekanntenen Größen, die wir gerne ermitteln möchten, sind die Größenverteilung, oder wenigstens einen mittleren Radius und eine Standardabweichung, sowie weitere mikrophysikalische Parameter wie die Phase und die chemischen Zusammensetzung.

Stellen wir eine starke Depolarisation fest, so kann die Mie-Theorie nicht zur Berechnung von  $\sigma$  verwendet werden (vgl. Kap 2.3.2). In diesem Fall brechen wir die weitere Auswertung an dieser Stelle ab und beschränken uns bei der Dateninterpretation auf qualitative Aussagen. Anderenfalls kann man aus dem Radius und dem Brechungsindex den Streuquerschnitt mit der Mie-Theorie berechnen. Damit ergibt sich auch eine Beziehung zwischen den Streuquerschnitten bei verschiedenen Wellenlängen. Aus 6-1 wird so ein Gleichungssystem aus  $N$  Gleichungen. Die Unbekannten sind dann noch der Real- und Imaginärteil des Brechungsindex, sowie die Größenverteilung.

Ein oft verwendeter Ansatz ([Donovan und Carswell, 1997], [Rajeev und Parameswaran, 1998]) zur Lösung des Problems beruht letztlich auf der Diskretisierung der Größenverteilung  $n(r)$  in  $m$  Unbekannte  $n(r_j)$ ,  $j=1..m$  [Twomey, 1977]. Damit läßt sich 6-1 in ein lineares Gleichungssystem überführen, das invertierbar ist. Dieser Ansatz setzt aber voraus, daß der Brechungsindex bekannt ist. Für die Stratosphäre, wo die Zusammensetzung des Hintergrund-Aerosols aus Schwefelsäure bekannt ist, kann man damit arbeiten [Stein, 1994]. Bei unbekanntem Brechungsindex läßt sich das Verfahren so nicht anwenden. Gleiches gilt für den Ansatz von Böckmann und Niebsch [1997].

Eine andere Möglichkeit besteht darin, die Größenverteilung in Form einer analytischen Funktion vorzugeben und mit Hilfe der Lidardaten deren Parameter zu bestimmen. Für Messungen an stratosphärischen Aerosolen wurden mit dieser Vorgehensweise bereits beachtliche Erfolge erzielt [DeGuasta et al., 1994], [Stein et al., 1994, 1997 und 1999] [Wedekind et al., 1995]. In Kapitel 2 wurde dargelegt, daß eine monomodale Lognormalverteilung auch eine gute Grundlage für die Beschreibung der Größenverteilung troposphärischer Aerosole darstellt. Diese ist gegeben durch den Median  $r_{med}$ , den Breitenparameter  $\sigma$  und die Anzahlkonzentration  $N$ . Mit den beiden Variablen des komplexen Brechungsindex liegen damit bereits fünf Unbekannte vor. Dies reduziert sich durch die Verwendung des eingeschränkten Satzes von Brechungsindizes, wie er durch die in Kapitel 2.4 vorgeschlagenen Aerosolmodelle vorgegeben wird, auf vier. Damit hat man ein System, das bei Verwendung von den TAD-Daten gerade determiniert ist, sofern ein verwertbares Raman-Signal vorliegt. Steht zusätzlich der RSK, der mit Hilfe des DIAL-Klett-Algorithmus bei 286.3 nm gewonnen werden kann, zu Verfügung, so ist das Problem sogar überbestimmt. Aber ist es auch tatsächlich umkehrbar? Dieser Frage soll hier nachgegangen werden.

Zunächst muß aber erklärt werden, wie das Gleichungssystem (6-1), das wie nachstehend formuliert werden kann und das im Weiteren als ASD-Problem bezeichnet wird, gelöst werden kann.

$$\alpha_i = \Psi(\lambda_i, n(\lambda, h), N, r_{med}, \sigma, h); \quad i = 1, \dots, M \quad (6-2)$$

$r_{med}$  und  $\sigma$  beschreiben die Größenverteilung des trockenen Aerosols, das entsprechend der Köhler-Gleichung (Kapitel 2.2.3) bei gegebener relativer Feuchte  $h$  aufquillt.

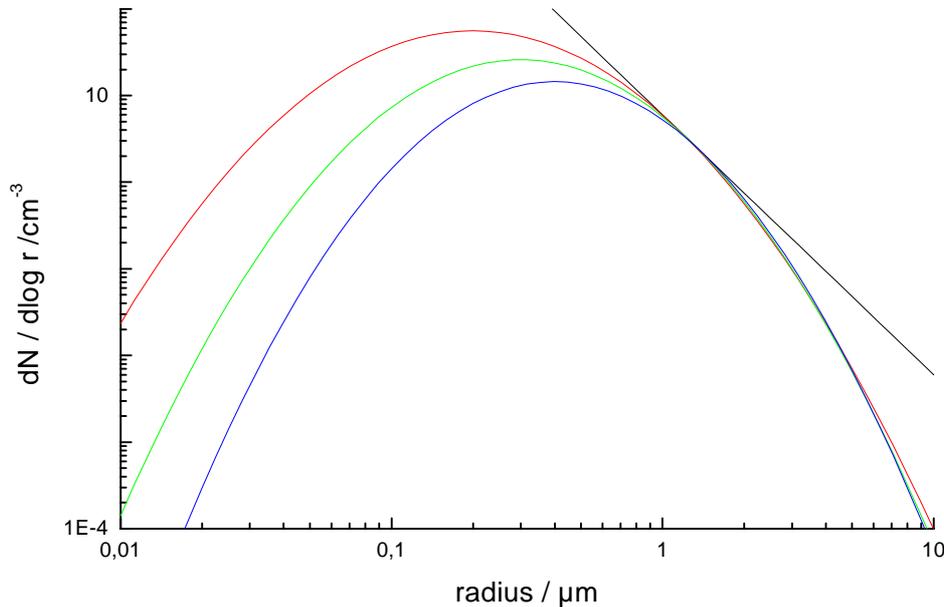


Abbildung 6.1 Schar von Lognormalverteilungen mit sehr ähnlicher rechter Flanke. Dadurch ergeben sich für das Aerosol auch ähnliche optische Eigenschaften.

Eine analytische Lösung ist schon deshalb nicht möglich, weil es keine analytische Darstellung von  $n = n(\lambda)$  gibt. Aus diesem Grund wurde das Problem diskretisiert und numerisch gelöst. Zunächst wurden aber weitere Vereinfachungen eingeführt. Die Anzahlkonzentration  $N$  geht linear in die Berechnung der Streukoeffizienten ein. Betrachtet man also jeweils nur die Verhältnisse  $\gamma_i$  von  $\alpha_i$  zu einer Bezugsmessung - wir verwenden hier immer den Rückstreukoeffizienten  $\beta$  bei 532 nm, so sind diese unabhängig von der Gesamtanzahlkonzentration  $N$ :

$$\gamma_i = \alpha_i / \beta(\lambda = 532 \text{ nm}) = \Psi^*(\lambda_i, n(\lambda_i, h), r_{\text{med}}, \sigma, h) / \Psi(\lambda_i, n(\lambda, h), N = 1 \text{ cm}^{-3}, r_{\text{med}}, \sigma, h) / \beta(\lambda = 532 \text{ nm}); \quad i = 1, \dots, M-1 \quad (6-3)$$

Die Anzahlkonzentration kann dann folgendermaßen errechnet werden:

$$N = \beta(\lambda = 532 \text{ nm}) / \Psi(532 \text{ nm}, n, N = 1 \text{ cm}^{-3}, r_{\text{med}}, \sigma, h) \quad (6-4)$$

Aus Abbildung 2.11 in Kapitel 2 wird deutlich, daß die Partikel an der rechten Flanke der Lognormalverteilung für die Streueigenschaften des Aerosols verantwortlich sind, während die kleineren Partikel kaum beitragen. Wie man in Abbildung 6.1 sieht, ist es möglich, lognormale Verteilungen so zu überlagern, daß sie an den rechten Flanken weitgehend übereinstimmen. Bei endlichen Meßfehlern findet man deshalb immer eine ganze Schar von Lognormalverteilungen mit den gleichen Streukoeffizienten, aber verschiedenen Werten für  $N$ ,  $\sigma$  und  $r_{\text{med}}$ . Es macht aus diesem Grund keinen Sinn zu versuchen alle drei Größen aus optischen Messungen zu invertieren. Es ist daher sinnvoll, den Breitenparameter zu

fixieren, so daß man jeweils nur noch eine Lösung erhält. Das ASD-Problem reduziert sich unter diesen Einschränkungen auf die Form

$$\gamma_i = \Psi^*(\lambda_i, n(\lambda_i), r_{\text{med}}, h); \quad i = 1, \dots, M-1 \quad (6-5)$$

Schon weil es keine analytische Darstellung von  $n(\lambda)$  gibt, ist diese Gleichung nicht analytisch invertierbar. Deshalb wurde das Problem numerisch untersucht und behandelt. Grundlage für die Diskretisierung sind die 20 in Kapitel 2 vorgestellten Modellannahmen für das troposphärische Aerosol. Daraus gewinnt man die Angaben für Real- und Imaginärteil des Brechungsindex bei den verwendeten Wellenlängen,  $\sigma$  wurde auf den Wert 2 fixiert und  $r_{\text{med}}$  auf einer logarithmischen Skala zwischen  $0,01 \mu\text{m}$  und  $1,4 \mu\text{m}$  mit 40 Werten realisiert. Die relative Feuchte, die aus Radiosondenmessungen bekannt ist, wurde ebenfalls diskretisiert (15 Werte). Für jede dieser relativen Feuchten gibt es also  $20 \times 40 = 800$  Modellaerosole, deren Streukoeffizienten nach Gleichung 6-1 berechnet werden können. Als Unbekannte bleiben lediglich der Modenradius  $r_{\text{med}}$  und die Frage, welches der 20 Modelle, die im folgenden mit  $j$  indiziert werden, einen mit den Meßdaten verträglichen Brechungsindex aufweist.

Die Lösung des ASD-Problems, beruht also letztlich darauf, daß mit einem geeigneten Anpassungsverfahren aus den Aerosolmodellen dasjenige bestimmt wird, das mit den gemessenen optischen Eigenschaften am Besten verträglich ist. Die Parameter dieses Modells geben dann Aufschluß über den Medianradius der optisch aktivsten Mode und über die Zusammensetzung der Partikel. Diese Vorgehensweise wird im folgenden als LASD-Verfahren (für Lognormal Aerosol Size Distribution) bezeichnet.

## 6.2 Der Anpassungs-Algorithmus

Die sehr überschaubare Anzahl verschiedener Realisierungen von ASDs erlauben die Verwendung eines Anpassungs-Algorithmus, der das gesamte Datenfeld nach einer geeigneten Realisierung absucht. Die Streuparameter  $\gamma_i$  der Modellverteilungen nach 6-3 berechnet und in einer Datenbank abgelegt. Die gemessenen Streukoeffizienten  $\alpha(355 \text{ nm})$ ,  $\beta(355 \text{ nm})$ ,  $\beta(532 \text{ nm})$ ,  $\beta(1064 \text{ nm})$  (TAD) und  $\beta(286.3 \text{ nm})$  (DIAL) werden nun durch den Rückstreukoeffizienten bei  $532 \text{ nm}$  dividiert und die so gebildeten gemessenen Streuparameter  $\gamma_i^g$  mit den theoretisch berechneten Modelldaten verglichen. Dazu bildet man die  $\chi^2$ -Summe wie folgt:

$$\chi^2(j, r_{\text{med}}) = \sum_{i=1}^{M-1} \frac{(\gamma_i(j, r_{\text{med}}) - \gamma_i^g)^2}{s_i^2} \quad (6-6)$$

wobei  $s_i$  die Standardabweichung von  $\gamma_i^g$  ist, also die geometrische Summe aus statistischen und systematischen Meßfehlern. Der Wert  $\exp(-\chi^2)$  kann unter der Annahme, daß die Meßfehler normalverteilt sind, als Wahrscheinlichkeit dafür interpretiert werden, daß das gefundene Modellaerosol mit dem gemessenen übereinstimmt. Dort wo  $\chi^2$  ein Minimum annimmt, ist also die Wahrscheinlichkeit am größten, daß das Modellaerosol dem gemessenen entspricht. Damit sind ein Wert  $\langle r_{\text{med}} \rangle$  und  $\langle j \rangle$  des passenden Modells gefunden.

Eine Abschätzung des Meßfehlers erhält man durch eine gewichtete Bildung der Standardabweichung:

$$\Delta \langle r_{\text{med}} \rangle = \sqrt{\frac{\sum_{j, r_{\text{med}}} \exp(\chi^2(j, r_{\text{med}})) (\overline{r_{\text{med}}} - r_{\text{med}})^2}{\sum_{j, r_{\text{med}}} \exp(\chi^2(j, r_{\text{med}}))}} \quad (6-7)$$

Analog kann man die Standardabweichung für die anderen Parametern des Modellaerosols berechnen, also beispielsweise den Brechungsindex oder den Rußgehalt.

### 6.3 Bewertung der Invertierbarkeit des ASD-Problems

Die Frage, ob 6-5 umkehrbar ist, kann nun numerisch untersucht werden. Zu diesem Zweck gehen wir davon aus, daß wir die Streukoeffizienten des Modellaerosols ( $r_{\text{med}}, j$ ) durch eine Lidarmessung bestimmt haben, mit einem festen relativen Meßfehler, und bestimmen dann gemäß 6-7 die Standardabweichung als Maß für die Eindeutigkeit der Invertierung. Dieses wird dann für alle 800 Modelle (bei gegebener relativer Feuchte) wiederholt.

Das Ergebnis ist in Abbildung 6.2 zu sehen, welche den relativen Fehler von  $\langle r_{\text{med}} \rangle$  als Funktion von  $r_{\text{med}}$  (y-Achse) und  $j$  (x-Achse) zeigt. Die x-Achse gibt die 20 in Tab.2-2 spezifizierten Aerosolmodelle wieder. Beim oberen Bild wurden nur die Rückstreuoeffizienten bei den drei Nd:YAG-Wellenlängen benutzt, sowie der Raman-Kanal (387 nm). Bei der unteren Darstellung geht zusätzlich der RSK bei 286.3 nm ein.

Es ergibt sich in beiden Fällen ein deutlich zweigeteiltes Bild: Während die Größenverteilungen mit einem Modenradius  $> 0,1 \mu\text{m}$  recht gut durch ihre optischen Eigenschaften identifiziert werden können, trifft dies für die kleineren ASDs nicht zu. Die Grenze zwischen diesen beiden Fällen schiebt sich bei Verwendung der UV-Daten erwartungsgemäß etwas nach unten, zu den kleineren Radien, während der relative Fehler nur geringfügig abnimmt. Er bleibt aber in jedem Falle unter etwa 30 %, so daß also auch Größenverteilungen mit Medianradii unter  $0,1 \mu\text{m}$  - wie man es bei starker Nukleationstätigkeit erwarten könnte - eindeutig als solche erkannt werden können. Bei den ASDs im Bereich der Akkumulationsmode ( $r_{\text{med}} > 0,1 \mu\text{m}$ ) und darüber bleiben die Fehler unter 10%. Man erkennt hier undeutlich diagonal verlaufende Strukturen, die darauf zurückzuführen sind, daß das Streuverhalten der Aerosole mit abnehmendem Radius bei zunehmendem Imaginärteil des Brechungsindex (hier konkret größerem Rußanteil) ein ähnliches ist.

Vergrößert man den Meßfehler, ändert sich an diesem Bild nichts grundsätzliches. Natürlich werden die relativen Fehler von  $r_{\text{med}}$  entsprechend größer, bei einem Meßfehler von 30% erreicht der Fehler von  $r_{\text{med}}$  für die kleinen ASDs die 100% Marke. Umgekehrt kann die Aerosol-Größenverteilung mit abnehmendem Meßfehler immer besser identifiziert werden, d.h.  $\Delta \langle r_{\text{med}} \rangle$  geht dann ebenfalls gegen 0. Damit ist gezeigt, daß das Problem in dieser Form eindeutig umkehrbar ist. Bei einem Meßfehler von knapp 1 % erreicht man die hier verwendete Diskretisierung von 5% (=  $d \log r = dr/r$ ).

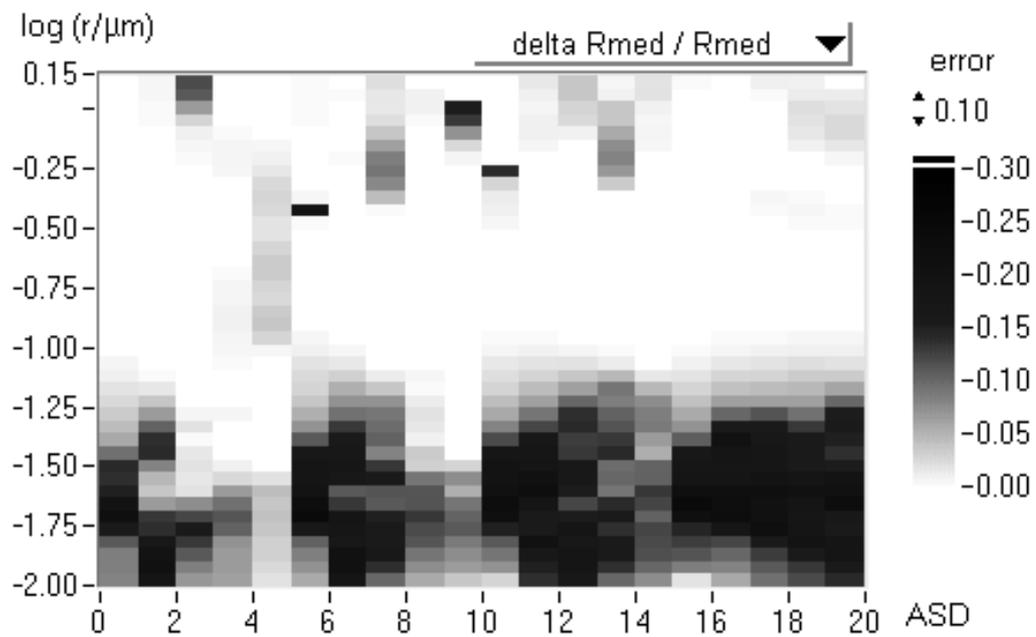
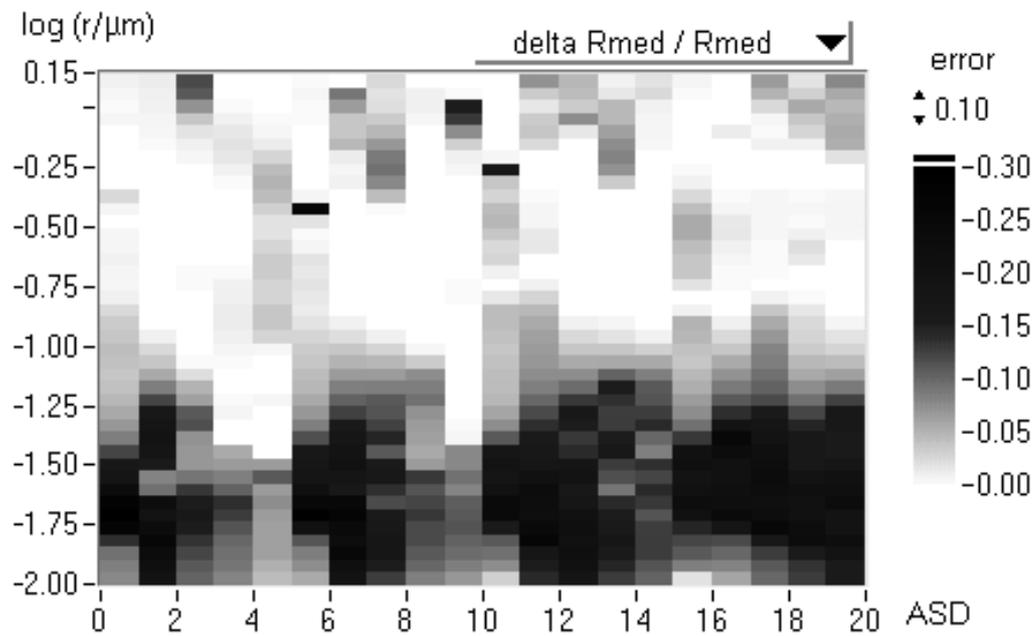


Abbildung 6.2 Ergebnisse des numerischen Experiments zur Eindeutigkeit der Invertierung des ASD-Problems. Der Meßfehler wurde mit 10 % angenommen. Oben nur TAD-Daten, unten TAD +  $\beta_{286}$ . Erläuterung im Text.

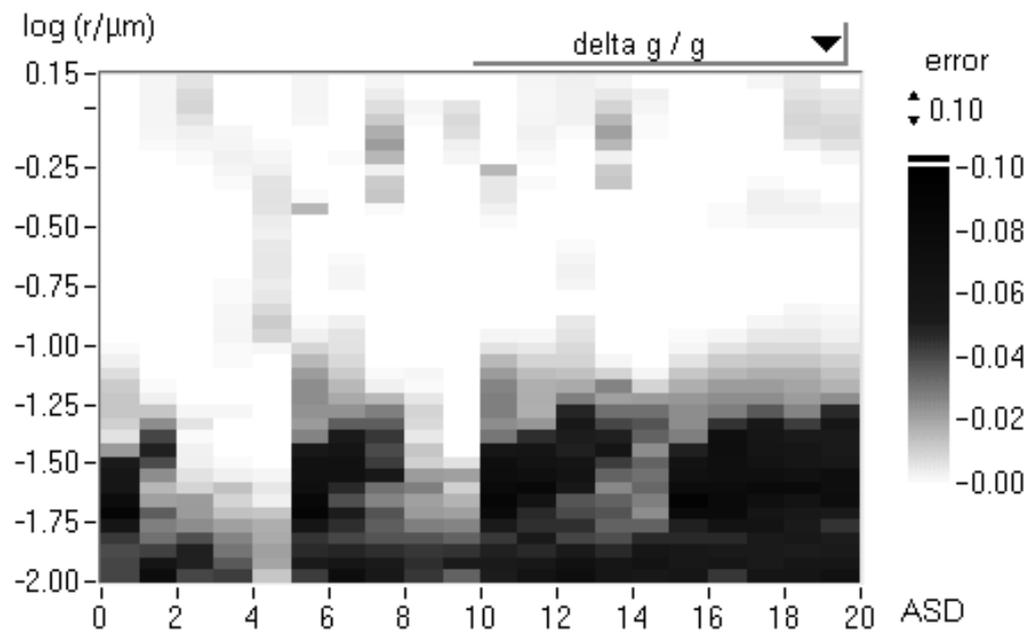


Abbildung 6.3 Relative Fehler des Lidarverhältnisses  $g$  bei 532 nm ( $\alpha/\beta$ ) als Funktion des Aerosolmodells und  $r_{med}$  bei einem Meßfehler von 10 %.  $\Delta g/g$  bleibt stets im Bereich des Meßfehlers, beziehungsweise darunter

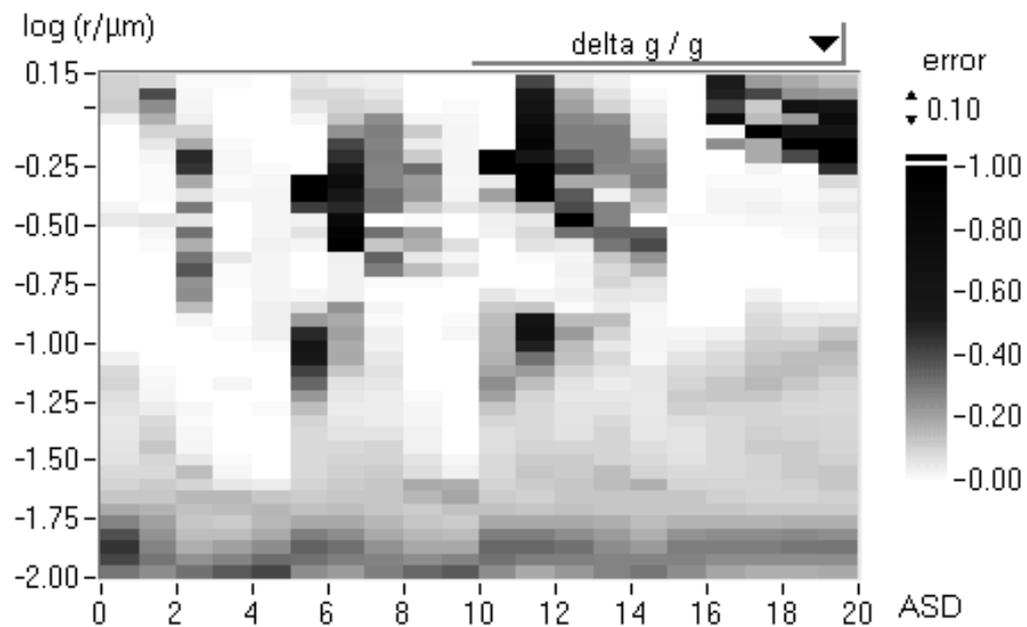


Abbildung 6.4 Dieses Bild ändert sich dramatisch, wenn keine direkte Messung der Extinktion mit Hilfe eines Raman-Kanals vorliegt. (Man beachte die andere z-Skala). Hier können nun auch große ASDs nicht richtig identifiziert werden, der relative Fehler von  $\alpha_{532}/\beta_{532}$  beträgt stellenweise über 100%.

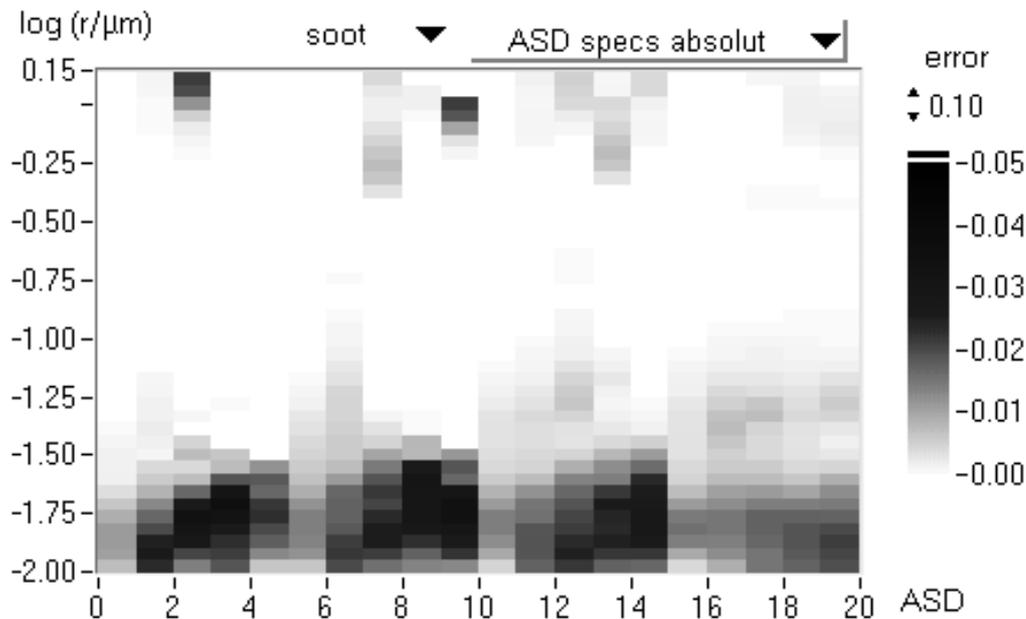


Abbildung 6.5 Der Rußgehalt des Aerosols kann bei einem Meßfehler von 10% selbst bei kleiner Partikelgröße auf 5% (Absolutwert) bestimmt werden.

Für die Invertierung der Lidar-Signale ist das Lidarverhältnis  $g = \alpha/\beta$  von besonderer Bedeutung. Diese Verhältnis kann man für die Modellaerosole berechnen und analog zu 6-7 den aus dem Invertierungsverfahren resultierenden Fehler bestimmen. Es zeigt sich, daß dieser Fehler stets kleiner oder gleich dem Meßfehler ist (Abbildung 6.3). Dies ist der direkten Messung der Extinktion bei 355/387 nm mit Hilfe des Raman-Kanals zu verdanken. Liegt diese nicht vor, so kann das Lidarverhältnis nicht mehr bestimmt werden, auch nicht bei den Aerosolen in der Akkumulationsmode (Abbildung 6.4) Das gleiche gilt natürlich auch für die Bestimmung von  $r_{med}$ , auch hier ist die Extinktionsmessung wichtigstes Standbein der Invertierung.

Abbildung 6.5 zeigt die Möglichkeit dieser Methode, auch auf die Zusammensetzung der Partikel Rückschlüsse zu ziehen. Wir erinnern uns, daß bei der Herleitung der Brechungsindizes  $n$  der Aerosolmodelle ihre Zusammensetzung einging. Besonders empfindlich reagiert  $n$  auf den Rußanteil, insbesondere der Imaginärteil  $n_{im}$ . Entsprechend deutlich sollte sich der Rußanteil in den optischen Eigenschaften niederschlagen und daraus wieder abgeleitet werden können. Abbildung 6.5 können wir entnehmen, daß ein Rußanteil von 5% im Aerosol noch deutlich festgestellt werden kann, da der Fehler für alle Modelle niedriger liegt.

#### 6.4 Kritik am LASD-Verfahren

Hauptkritikpunkt an der oben vorgestellten Herleitung dürfte die Reduzierung auf monomodale Größenverteilungen sein. In Kapitel 2 hatten wir Aerosolmodelle vorgestellt, die in den meisten Fällen von bi- oder trimodalen Spektren ausgehen. Man kann daher nicht davon ausgehen, daß ein monomodaler Ansatz den Verlauf realen ASD korrekt wiedergibt. Dies soll hier zunächst näher untersucht werden.

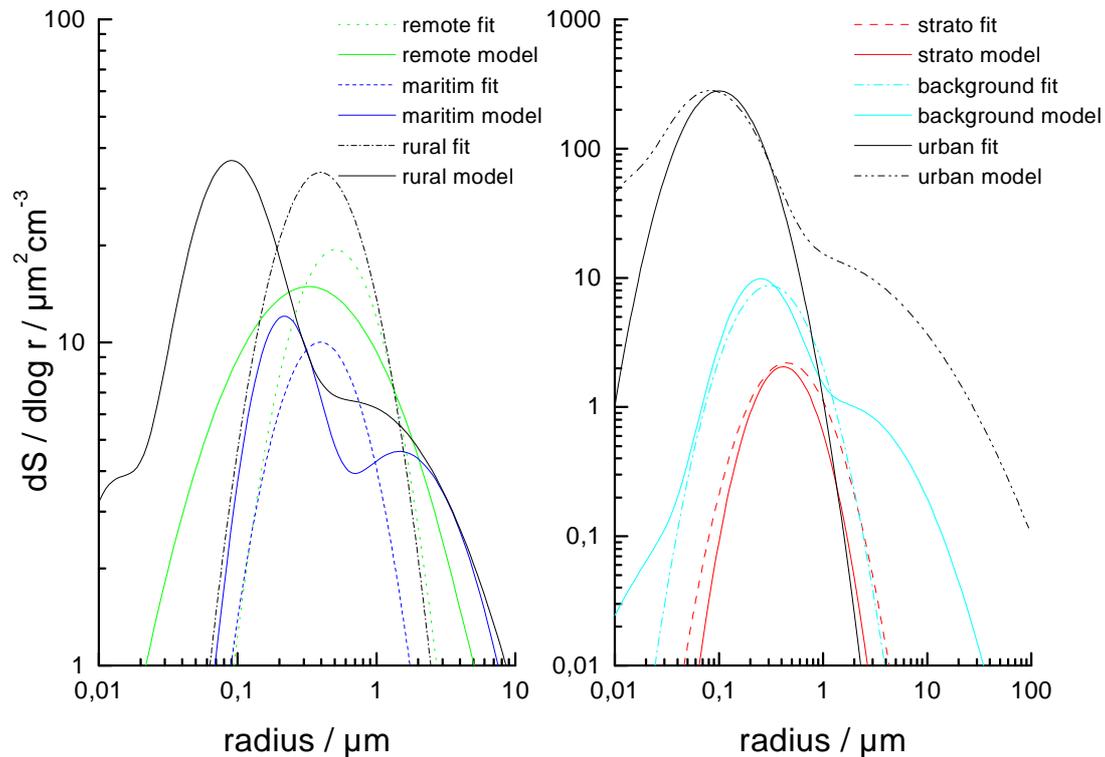


Abbildung 6.6 Vergleich Oberflächenverteilungen von Modellaerosolen (nach Jaenicke) mit den aufgrund ihrer optischen Eigenschaften reproduzierten Modelle. In den Fällen, wo eine Mode in den Modellen klar dominiert (Bild rechts), wird diese von dem Fit-Algorithmus gefunden. In den anderen Fällen ergibt das Verfahren etwa einen Mittelwert auf der Oberflächenskala.

Dazu wurden mit Hilfe der Mie-Theorie die Streukoeffizienten der in Kapitel 2 beschriebenen trimodalen Aerosolmodelle nach Jaenicke berechnet. Die Brechungsindizes wurden dabei je nach der von Jaenicke angegebenen Zusammensetzung des Aerosols mit Hilfe der bei Shettle und Fenn [1979] tabellierten Werte eingesetzt. Wie nehmen an dies seien die tatsächlichen Aerosole und wir hätten deren Streukoeffizienten mit dem Lidar gemessen. Wir versuchen nun, nach dem oben beschriebenen Algorithmus die Größenverteilungen anhand der "gemessenen" Streukoeffizienten herzuleiten. Es wird davon ausgegangen, daß alle fünf Parameter ( $\alpha(355 \text{ nm})$ ,  $\beta(355 \text{ nm})$ ,  $\beta(532 \text{ nm})$ ,  $\beta(1064 \text{ nm})$  und  $\beta(286.3 \text{ nm})$ ) mit einem relativen Meßfehler von 10% behaftet sind. Der Einfachheit halber gehen wir von trockenen Aerosolen aus. Das mit dem LASD-Verfahren bestimmte Modellaerosol wird im Folgenden als "Fit" bezeichnet.

In Abbildung 6.6 sind die "echten" ASDs in Form der Oberflächenverteilung, also  $n(r) \pi r^2$  dargestellt. Dadurch werden die größeren Partikel hervorgehoben, so daß diese Darstellung stärker als  $n(r)$  der optischen Bedeutung der Teilchen entspricht. In den, in der Abbildung rechts dargestellten Größenverteilungen dominiert eine der drei Moden die Oberflächenverteilung, daher ist zu erwarten, daß diese Mode auch die optischen Eigenschaften in erster Linie bestimmt. In diesen Fällen sollte das LASD-Verfahren eine Größenverteilung finden, die im wesentlichen dem Verlauf dieser Mode folgt. Dies ist, wie in Abbildung 6.6

*Tabelle 6-1 Vergleich von Aerosol-Parametern der Modelle von Jaenicke mit denen, die mit dem hier verwendeten Invertierungs-Algorithmus produziert werden: Angegeben ist jeweils die stärkste Mode des Modells von Jaenicke*

Modell	Zusammensetzung reproduziert?	Modenradii / $\mu\text{m}$	$\log \sigma$	Modenradius Fit / $\mu\text{m}$	$\log \sigma$
Strato	ja	0,22	0,25	0,17	0,3
Remote	ja	0,02 6,2	0,51 0,28	0,20	0,3
Background	ja	0,13	0,25	0,12	0,3
Urban	ja (20% Ruß)	0,007	0,66	0,04	0,3
Maritim	nein (cont)	0,13 0,29	0,21 0,40	0,152	0,3
Rural	nein (sea_dust)	0,04 0,27	0,27 0,56	0,152	0,3

*Tabelle 6-2 Vergleich der optischen Parameter des Modellaerosols mit dem daraus invertierten Aerosol. Angegeben ist der Angströmkoefizient bei den verschiedenen Wellenlängen bezogen auf 532 nm ( $A(\lambda) = -\ln(\beta(\lambda)/\beta(532 \text{ nm})/\ln(\lambda/532 \text{ nm}))$ ), sowie  $g (= \alpha/\beta)$  bei 355 nm:*

Aerosol	A (286)	A (355)	A (1064)	g(355)
maritim	-0,21	0,68	1,04	15,7
maritim fit	-0,21	0,63	1,54	22,1
urban	0,15	0,33	0,81	154
urban fit	0,16	0,39	0,87	140

zu sehen ist, auch der Fall. Aus Tabelle 6-1 ist ersichtlich, daß  $r_{\text{med}}$  und  $\sigma$  der Akkumulationsmode des Jaenicke-Modells und die des Fits zwar stark differieren, aus den oben beschriebenen Argumenten der Ähnlichkeit von Lognormalverteilungen ergibt sich dennoch eine gute Übereinstimmung (siehe Abbildung 6.1).

Man kann also davon sprechen, daß das Verfahren dazu in der Lage ist die optisch aktive Mode zu identifizieren und korrekt anzugeben, auch wenn  $r_{\text{med}}$  und  $\sigma$  keine guten Parameter sind, um eine solche Verteilung eindeutig zu beschreiben. Der Median des Fits  $r_M$  kann als optischer Modenradius bezeichnet werden, der per Definition das beobachtete Aerosol in seinen optischen Eigenschaften in Form einer monomodalen Lognormalverteilung mit einer Breite von  $\sigma = 2$  und einem Median  $r_M$  beschreibt.

Besonders hervorzuheben ist die Fähigkeit dieses Verfahrens den Rußanteil korrekt zu reproduzieren. Gerade durch die explizite Berücksichtigung des komplexen Brechungsindex unterscheidet sich das hier vorgeschlagene Fit-Verfahren von den Invertierungsmethoden, die auf einer Junge-Verteilung basieren, wie sie zu Beginn dieses Abschnitts diskutiert wurden. Das erlaubt Rückschlüsse auf die Zusammensetzung der Aerosole, sofern diese signifikant die optischen Konstanten beeinflussen. Dies ist bei Rußbeimengungen - Dank der hohen Absorption von schwarzem Kohlenstoff - der Fall. Die übrigen Bestandteile (Staub, Sulfat, Seesalz) können dagegen bei kleinen Aerosolen ( $r_{\text{med}} < 0,1 \mu\text{m}$ ) nicht identifiziert werden.

Schwieriger ist die Interpretation der Ergebnisse bei den Aerosolmodellen nach Jaenicke, bei denen zwei Moden etwa gleichbedeutend sind. Wie in Abbildung 6.6 (linkes Bild) zu sehen ist, gibt der Fit den tatsächlichen Verlauf der Größenspektren erwartungsgemäß nicht korrekt wieder. In allen Fällen ergibt der Fit eine Mode, die zwischen den beiden dominanten Moden liegt (vgl. auch Tabelle 6-1). Der Vergleich der optischen Parameter des "echten" Aerosols mit denen des Fits zeigt, daß letzterer die optischen Eigenschaften des Aerosols innerhalb des Fehlerbereiches (hier 10%) richtig repräsentiert, obwohl die Größenverteilung nicht korrekt wiedergegeben werden kann (Tabelle 6-2).

Daraus ergibt sich auch, daß die bimodale Verteilung und der monomodale Fit aufgrund der mit der Lidar - Technik gemessenen optischen Eigenschaften prinzipiell nicht unterscheidbar sind. Es handelt sich hier also nicht um ein Problem, daß durch das Fit-Verfahren hervorgerufen wird, sondern um ein grundsätzliches Problem der Herleitung von Größenverteilungen mit Hilfe optischer Messungen.

Man kann daher nicht erwarten mit polychromen Rückstreulidarmessungen die Größenverteilungen von Aerosolen korrekt wiedergeben zu können, egal welches Verfahren man auch verwendet. Selbst wenn mehr optische Parameter gemessen werden, als die Fünf mit dem hier verwendeten Instrument, verbessert sich die Situation nicht entscheidend [Müller und Quenzel, 1985].

Dennoch denke ich, daß mit den Fit-Resultaten brauchbare Informationen über troposphärisches Aerosol gewonnen werden. Das Verfahren gibt den effektiven optischen Modenradius und ein geeignetes Modell für deren Zusammensetzung an. Die optischen Parameter des Aerosols können damit für alle Wellenlängen abgeleitet werden. Man erhält so, etwa für Berechnungen des Transfers solarer Strahlung zuverlässig die nötigen optischen Parameter. Darüber hinaus können Aussagen über Herkunft und mögliche Quellen des Aerosols abgeleitet werden.

## 6.5 Iterative Inversion von Lidardaten

In Kapitel 4 wurde die Inversion von Lidardaten besprochen. Neben der Randbedingung  $R_0$ , muß zur Berechnung der Aerosolstreuoeffizienten nach dem Klett-Verfahren zusätzlich das Lidarverhältnis  $g(\lambda) = \alpha(\lambda)/\beta(\lambda)$  bekannt sein. Gewöhnlich nimmt man für  $g$  einen Wert an, der aus anderen Aerosol-Messungen oder einem geeigneten Modell abgeleitet wird. Bei einer Fehlannahme von  $g$  erhält man eine fehlerhafte Extinktionskorrektur, die mit zunehmendem Abstand von der Fithöhe  $r_0$  ansteigt. In der Nähe von  $r_0$  - beziehungsweise beim Eintritt in eine Aerosolschicht - ist dieser Fehler also recht gering.

Wie in diesem Kapitel dargestellt wurde, können mit Hilfe der Lidardaten die optischen Eigenschaften, also auch das Lidarverhältnis, recht gut bestimmt werden. Es liegt daher nahe, diese Daten in einem iterativen Verfahren zu nutzen und in die Invertierung der Lidar-Signale miteinfließen zu lassen, um so den Extinktionsfehler des Klett-Verfahrens zu minimieren.

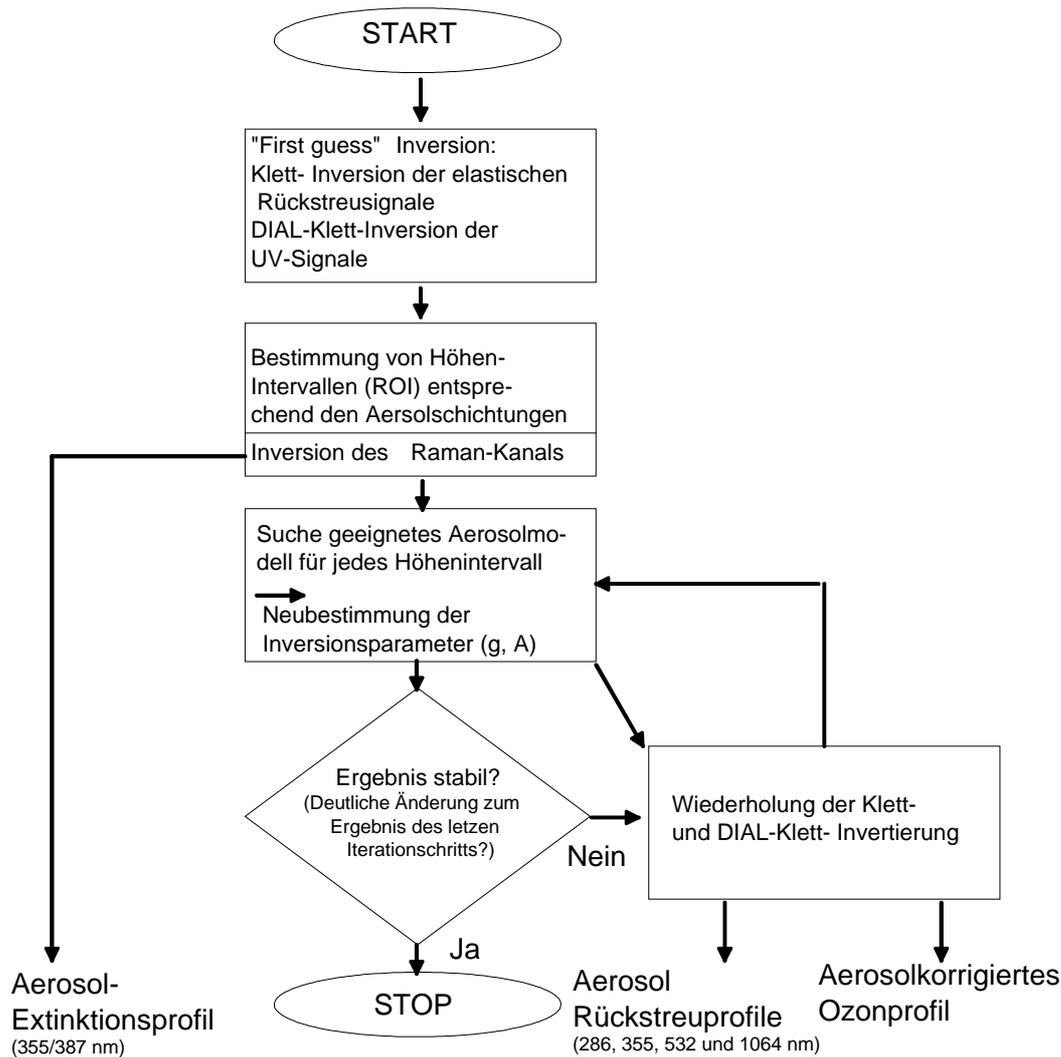


Abbildung 6.7 Schematische Darstellung einer iterativen Auswertestrategie zur Minimierung von Fehlern durch Fehlannahmen über das Lidarverhältnis  $g$ , das für die Inversion aller elastischen Rückstreusignale, inklusive der DIAL-Signale benötigt wird, sowie des Angströmoeffizienten  $A$ , der für die Aerosol-Extinktionskorrektur der Ozonmessung gebraucht wird.

Gleiches gilt für die Auswertung der DIAL-Signale. Auch hier geht bei dem in dieser Arbeit vorgeschlagenen Auswerteargorithmus eine Annahme über  $g$  und dem Angströmoeffizienten ein.

Aus diesen Gründen wurde ein iteratives Verfahren entwickelt, das in Abbildung 6.7 schematisch dargestellt wird. Die simultane Messung von Ozon und Aerosol bringt einen synergetischen Effekt: Die Aerosol-Messung verbessert die Aerosol-Korrektur der DIAL-Messung. Diese liefert dank des DIAL-Klett-Verfahrens ein zusätzliches Rückstreusignal bei  $\lambda_{\text{off}}$ , das der Bestimmung des Aerosols zugute kommt, was wiederum der DIAL-Auswertung dient.