

2 Laser-Fernerkundung

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

2.1 Streuung von Licht in der Atmosphäre

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

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

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

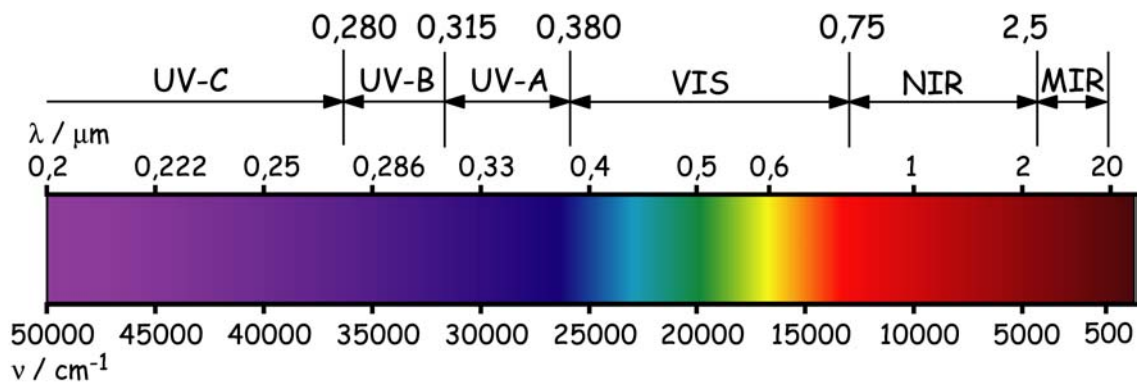


Abb. 2-1 Lichtspektrum mit Wellenzahl- und Wellenlängen-Achse.

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

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

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

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

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

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

2.1.1 Streuung an Luftmolekülen

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

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

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

2.1.1.1 Der Rayleigh-Streuquerschnitt

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

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

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

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

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

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

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

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

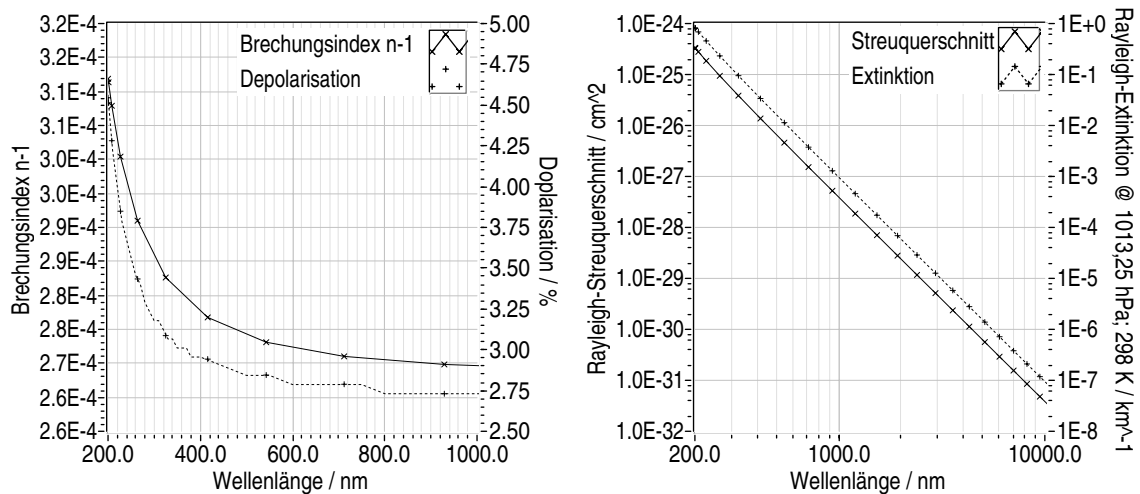


Abb. 2-2 Links ist die Dispersion des Brechungsindex und der Depolarisation der Luft dargestellt [Buchholz, 1995]. Rechts ist der Rayleigh-Streuquerschnitt nach Gleichung 2-3 gegen die Wellenlänge aufgetragen. Der totale Volumenstreuoeffizient, auch Rayleigh-Extinktion genannt, unterscheidet sich um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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

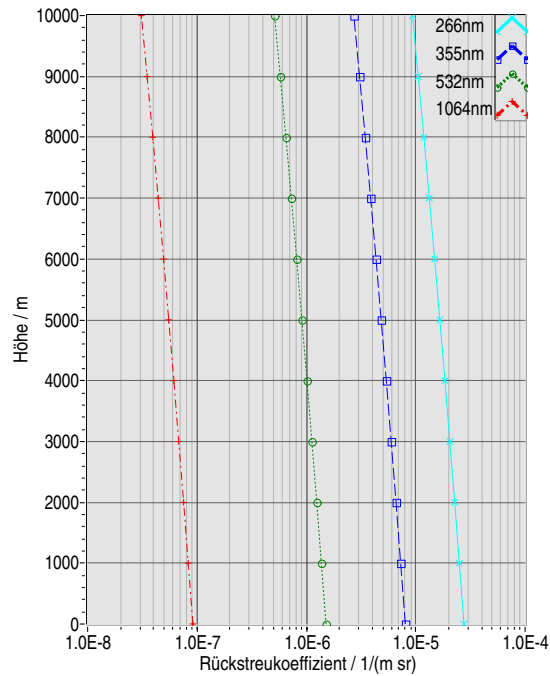


Abb. 2-3 Rückstreukoeffizienten für die Grundwellenlänge des Nd:Yag-Lasers (1064 nm) und ihrer Vielfachen bis zur vierten Ordnung (532 nm, 355 nm, 266 nm).

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

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

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

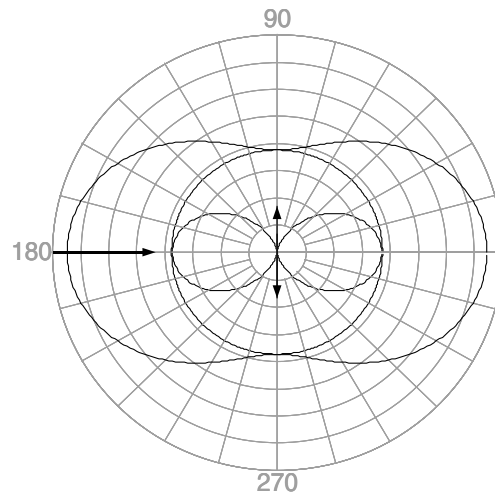


Abb. 2-4 Polardiagramm der Phasenfunktion der Rayleigh-Streuung. Das Molekül befindet sich im Zentrum und wird von links beleuchtet. Liegt die Polarisation des E-Feldes in der Papierebene, entsteht die für einen Dipol typische 8-förmige anisotrope Phasenfunktion. Auf einem Kreis in der Äquatorebene senkrecht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

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

2.1.1.2 Absorption

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

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

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

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

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

1. National Institute of Standards and Technology

2. Institut für Umweltphysik

1. High-Resolution Transmission Molecular Absorption Database

2. Air Force Cambridge Research Laboratories

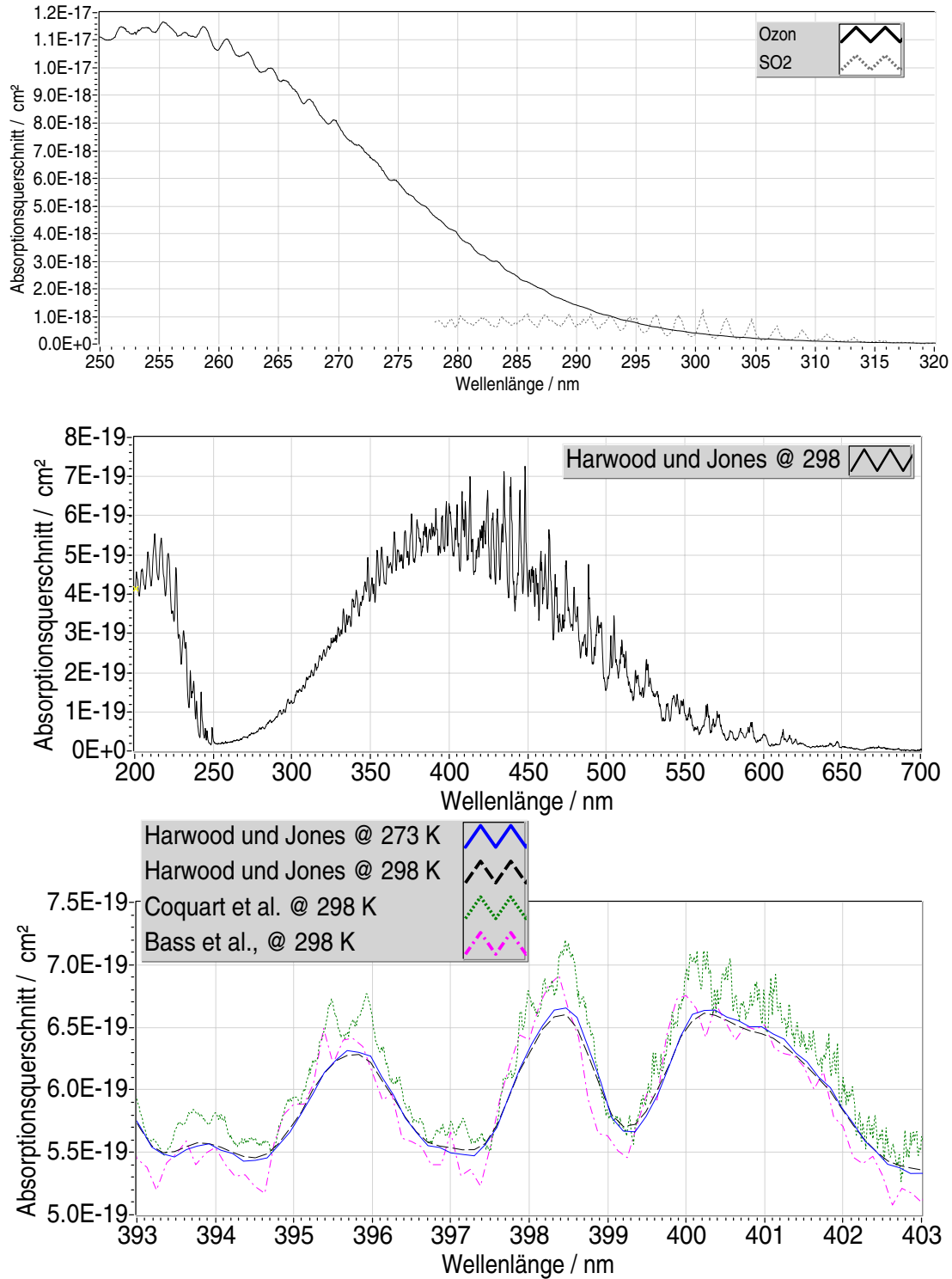


Abb. 2-5 Oben: UV-Spektren von Ozon [Bass und Paur, 1984] und SO₂ [Vandaele et al., 1994]. Mitte und unten: Stickstoffdioxid absorbiert sowohl im UV- als auch im sichtbaren Bereich [Harwood und Jones, 1994]. Die Querschnitte im Bereich zwischen 250 und 320 nm sind sehr klein, so dass keine Querempfindlichkeiten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

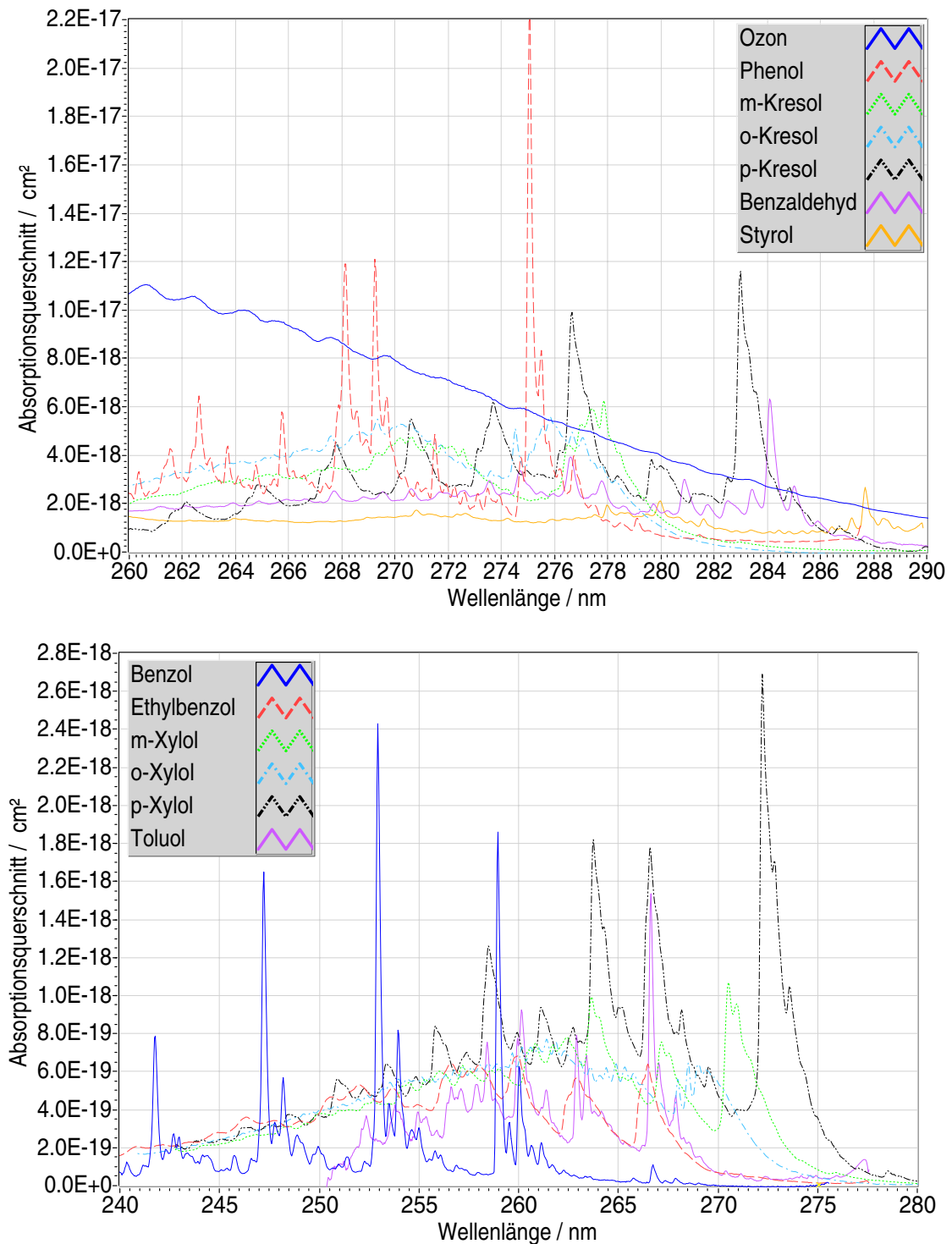


Abb. 2-6 Absorptionsspektren flüchtiger Kohlenwasserstoffe [Etzkorn et al., 1999, Trost et al., 1997]. Die obere Grafik zeigt VOC-Spektren, bei denen Querempfindlichkeiten mit Ozon [Bass und Paur, 1984] zu befürchten sind. In der unteren Grafik sind Spektren schwächer absorbierender VOC im Bereich der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

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

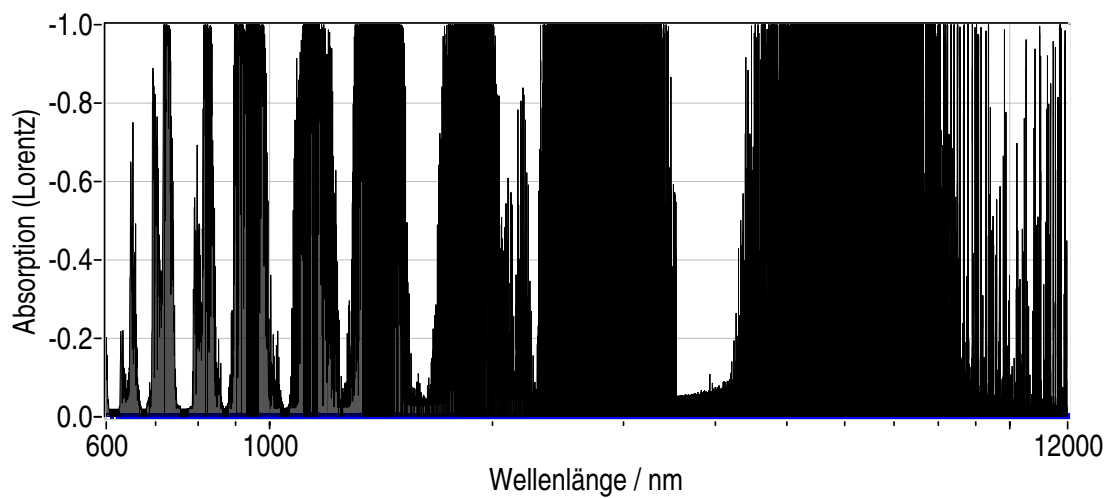


Abb. 2-7 Wasserdampf-Absorption über eine Strecke von 1 km bei 60 % Luftfeuchtigkeit unter Standard-Bedingungen. Die Parameter für die Lorentz-Linien sind der HITRAN-Datenbank entnommen. (Achtung! Logarithmische x-Achse.) Große Bereiche sind vollkommen undurchsichtig. 8 kleine Fenster öffnen sich unterhalb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

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

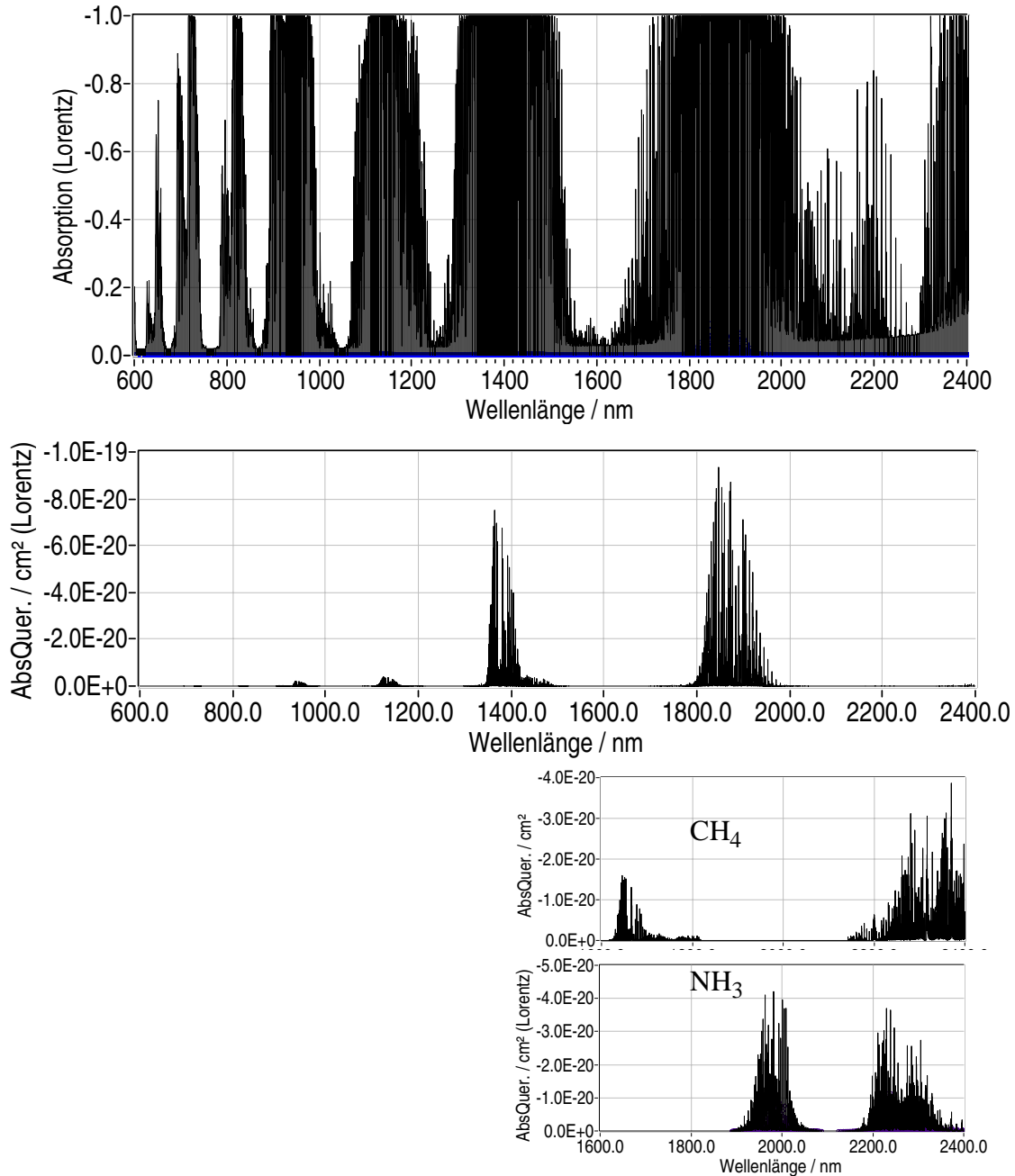


Abb. 2-8 Schema der Liniensuche im IR-Bereich am Beispiel von CH₄ und NH₃. Oben ist die pure Wasserdampf-Absorption über eine Strecke von 1 km bei 60 % Luftfeuchtigkeit unter Standard-Bedingungen dargestellt. Darunter sind die Absorptionsspektren von H₂O, CH₄ und NH₃ abgebildet. Die linke Bande des CH₄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

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

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

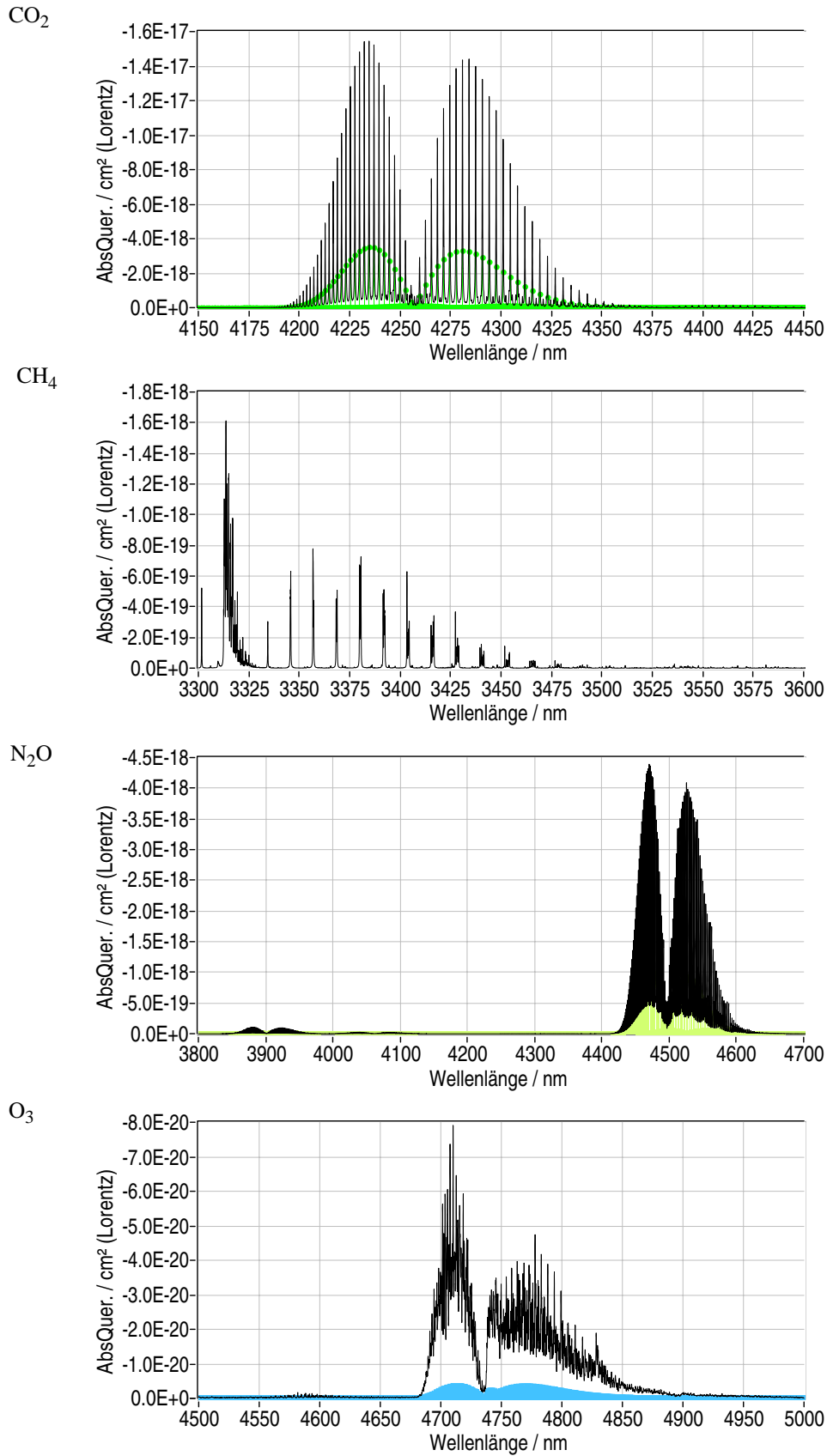
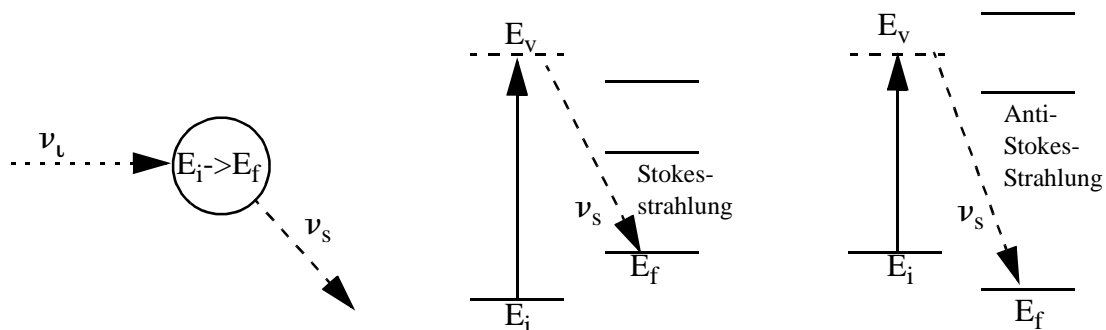


Abb. 2-9 Spektren der kräftigsten Absorber im 4- μ m-Fenster der Wasserabsorption

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

2.1.1.3 Raman-Streuung

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



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

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

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

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

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

und zum anderen die Anisotropie:

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

B wird als Rotationskonstante bezeichnet.

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

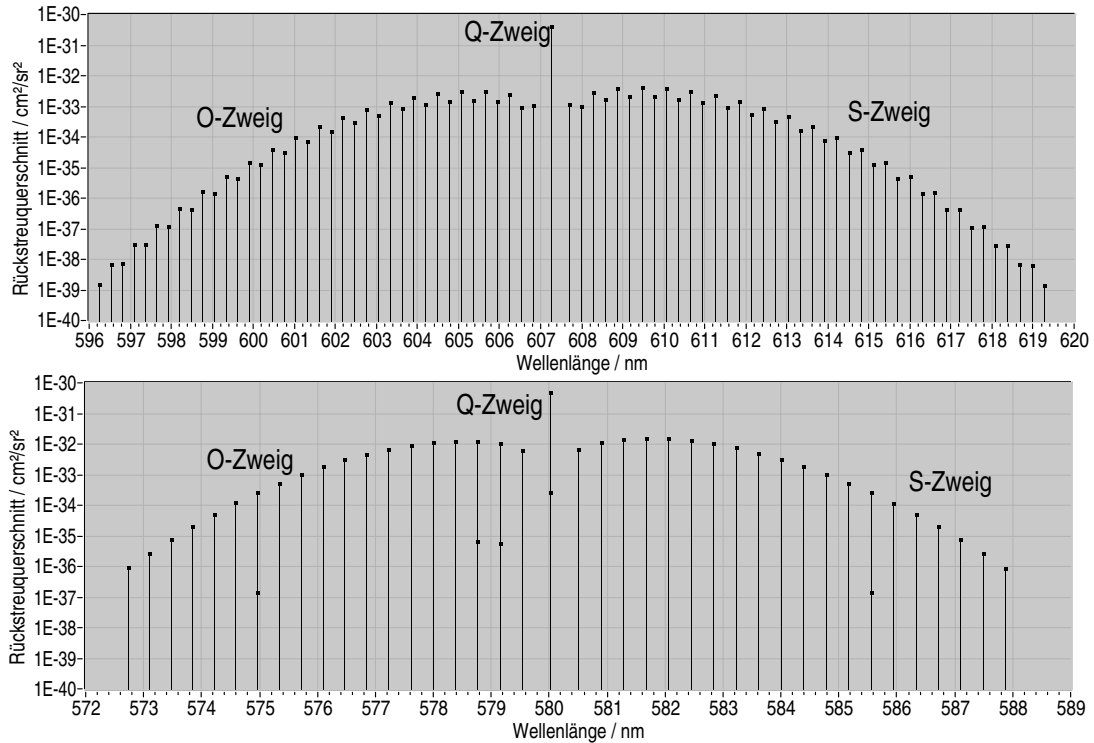


Abb. 2-10 Stokes-Vibrations-Rotations-Linien von Stickstoff und Sauerstoff bei 0 °C und 532 nm.

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

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

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

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

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

- totaler Vibrations-Rotations-Raman-Rückstreiquerschnitt (Summe der reinen vibrationellen und aller Rotations-Vibrations-Übergänge):

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

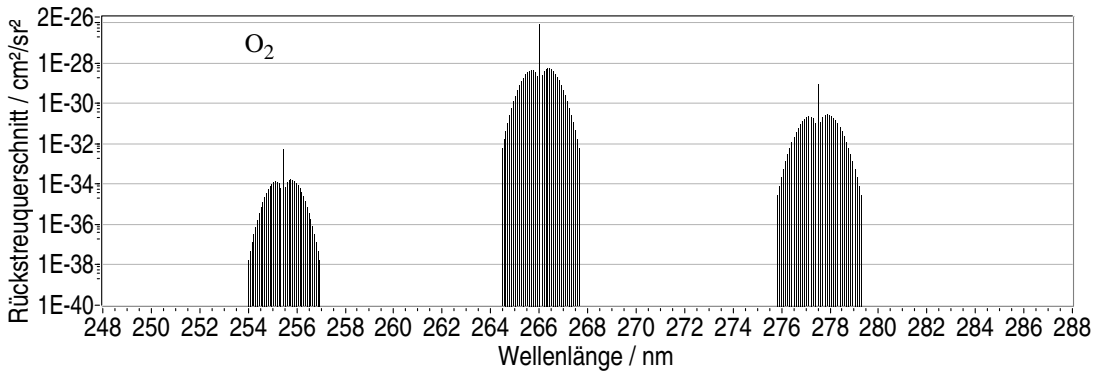
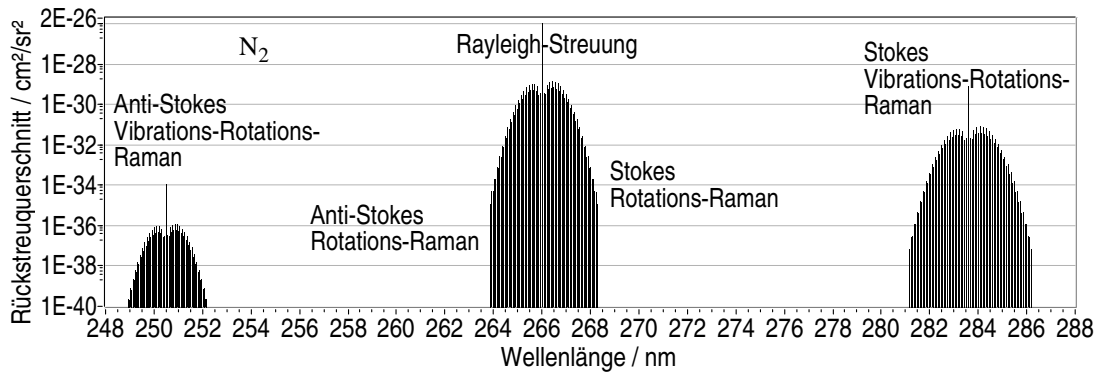
Tab. 2-10 Neu bestimmte molekulare Rückstreuquerschnitte und Depolarisation für Stickstoff und Sauerstoff für die Wellenlängen der SHG, THG und FHG des Nd:Yag-Lasers.

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

2.1.2 Aerosol-Streuung

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

Anregungswellenlänge: 266 nm



Anregungswellenlänge: 532 nm

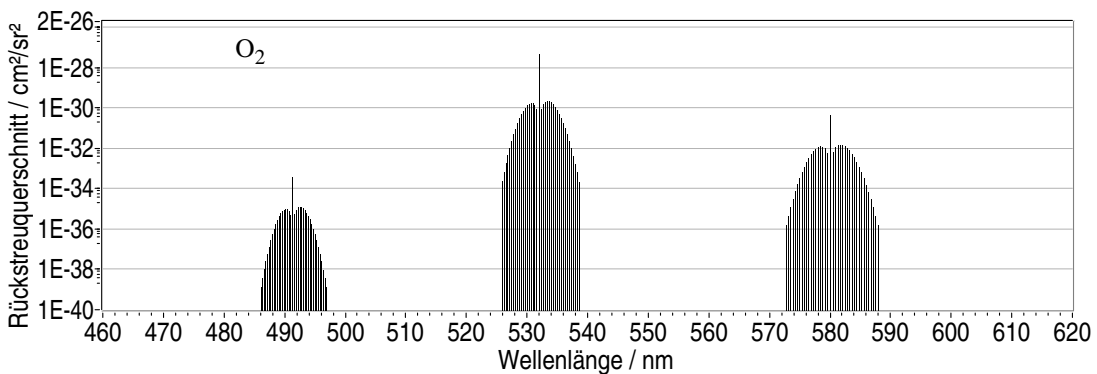
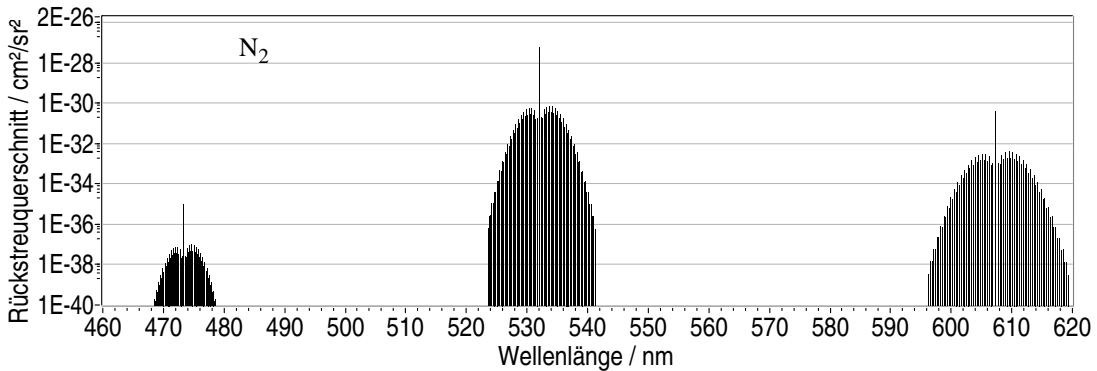


Abb. 2-11 Raman-Spektren nullter und erster Ordnung mit jeweils 40 Rotations-Raman-Linien für Stickstoff und Sauerstoff bei 15 °C für Anregungen durch die FHG (266 nm) und SHG (532 nm) des Nd:Yag-Lasers.

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

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

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

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

2.1.2.1 Mie-Theorie

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

Die Streukoeffizienten sind als Funktion des Größenparameters x :

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

und der relativen Brechzahl m vollständig bestimmt.

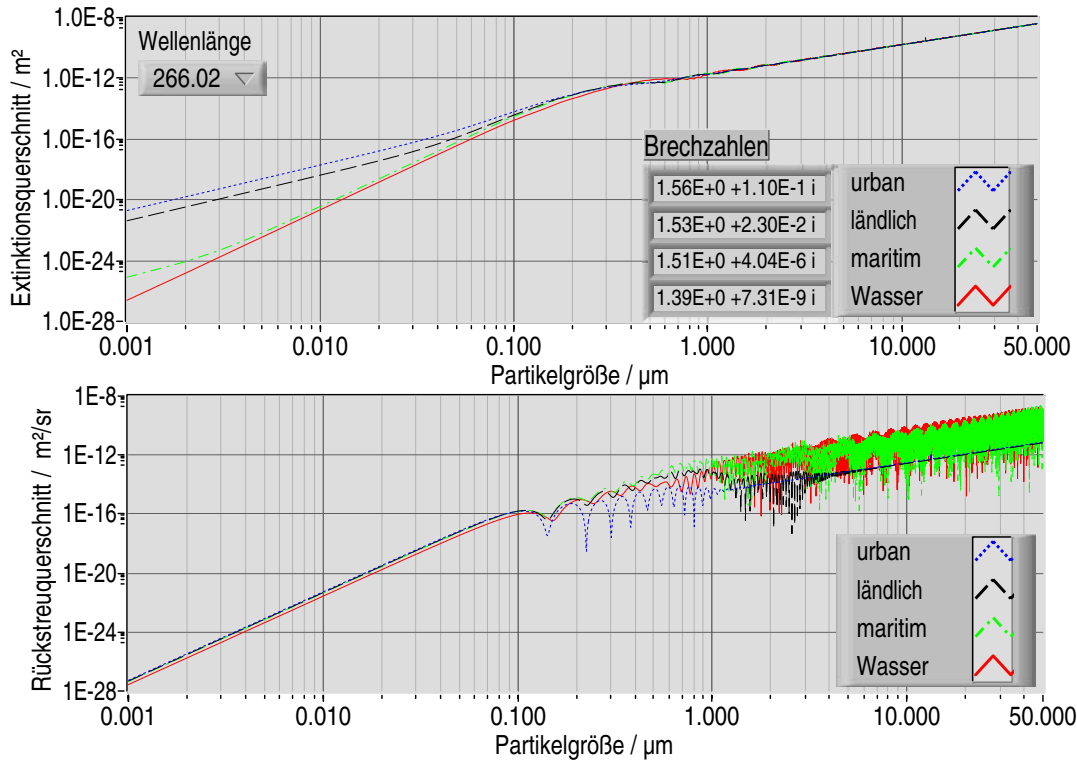


Abb. 2-12 Abhängigkeit des Extinktions- bzw. Rückstreuquerschnitts vom Partikeldurchmesser und der Brechzahl (siehe Abbildung 2-14) bei einer Wellenlänge von 266 nm.

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

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

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

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

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

als auch der Rückstreuquerschnitt:

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

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

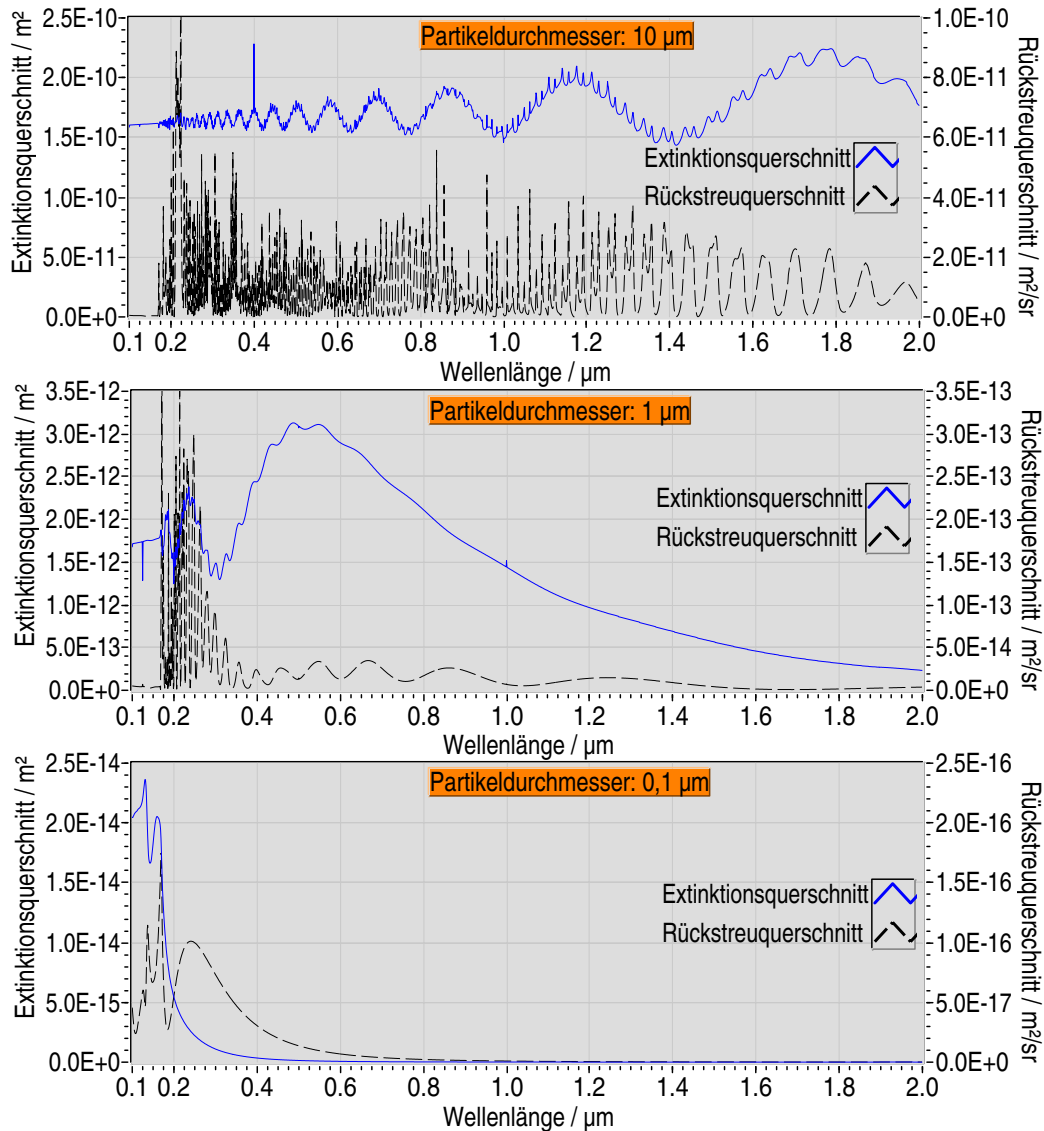
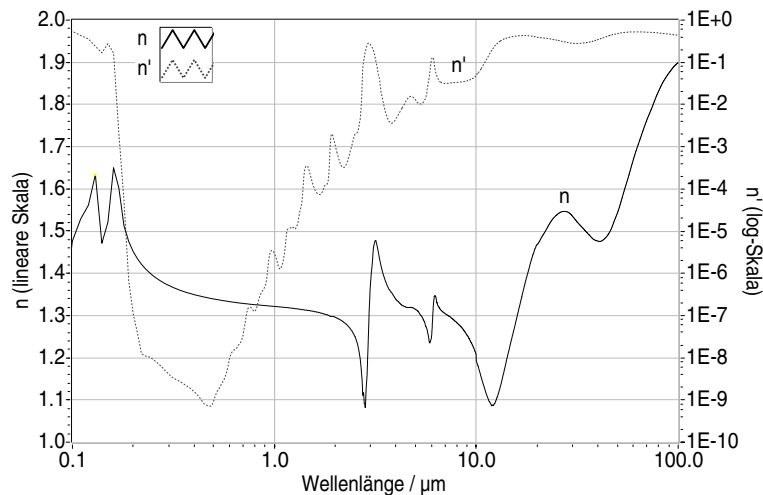


Abb. 2-13 Extinktions- und Rückstreuquerschnitt sphärischer Partikel als Funktion der Wellenlänge.

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

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

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



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

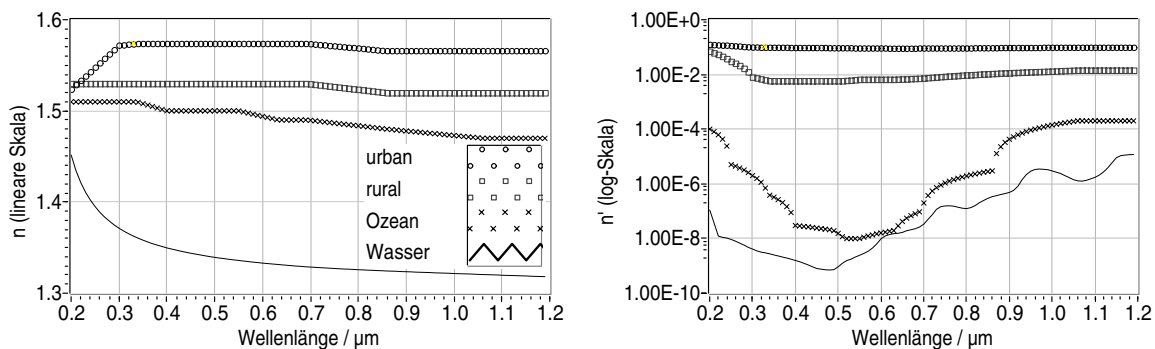


Abb. 2-14 Brechzahl von Wasser, urbanem, ländlichem und maritimem Aerosol [Wiscombe, 2001, Rothman et al., 1998].

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

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

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

Die Streuamplituden S_1 und S_2 werden folgendermaßen bestimmt:

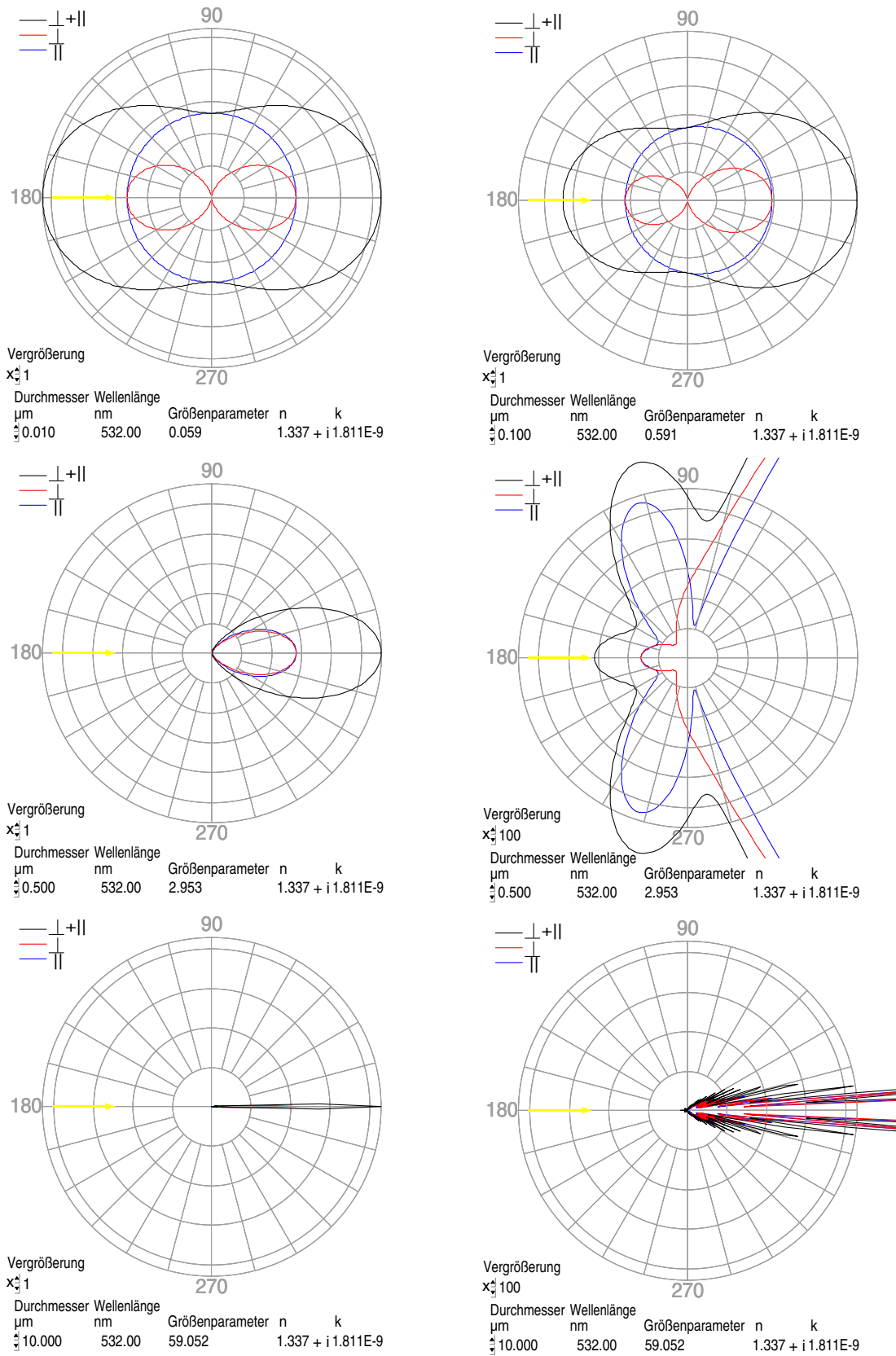


Abb. 2-15 Phasenfunktionen für die Streuung von Licht mit einer Wellenlänge von 532 nm an einzelnen Kugeln aus Wasser mit unterschiedlichen Durchmessern (typische Durchmesser für atmosphärisches Aerosol). Die Polarisation ist relativ zur Papierebene angegeben.

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

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

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

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

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

2.1.2.2 Modell der Aerosol-Streuung

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

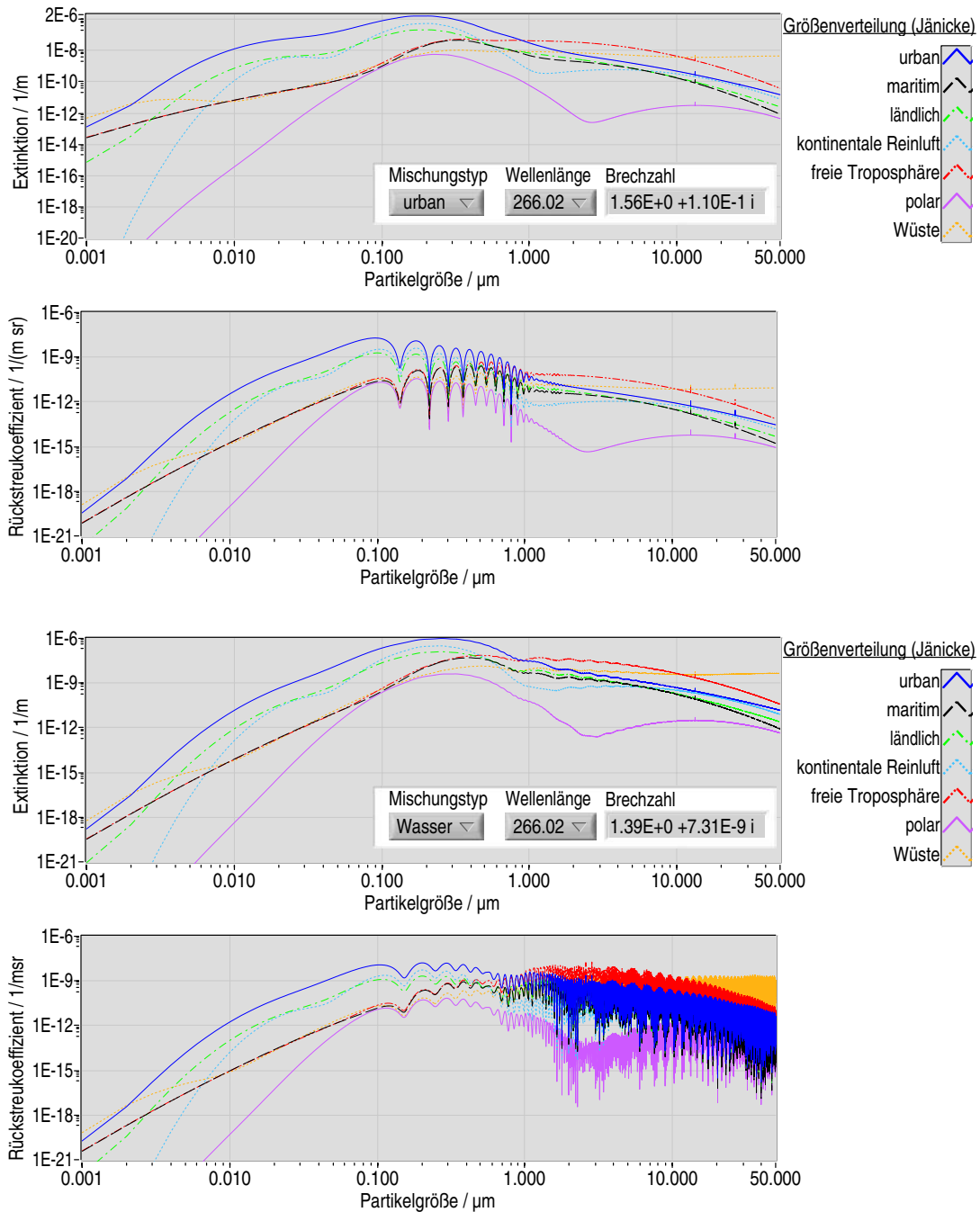


Abb. 2-16 Extinktions- und Rückstreukoeffizienten für die Mischungstypen „urban“ und „Wasser“ für 7 verschiedene Größenverteilungen bei 266 nm.

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

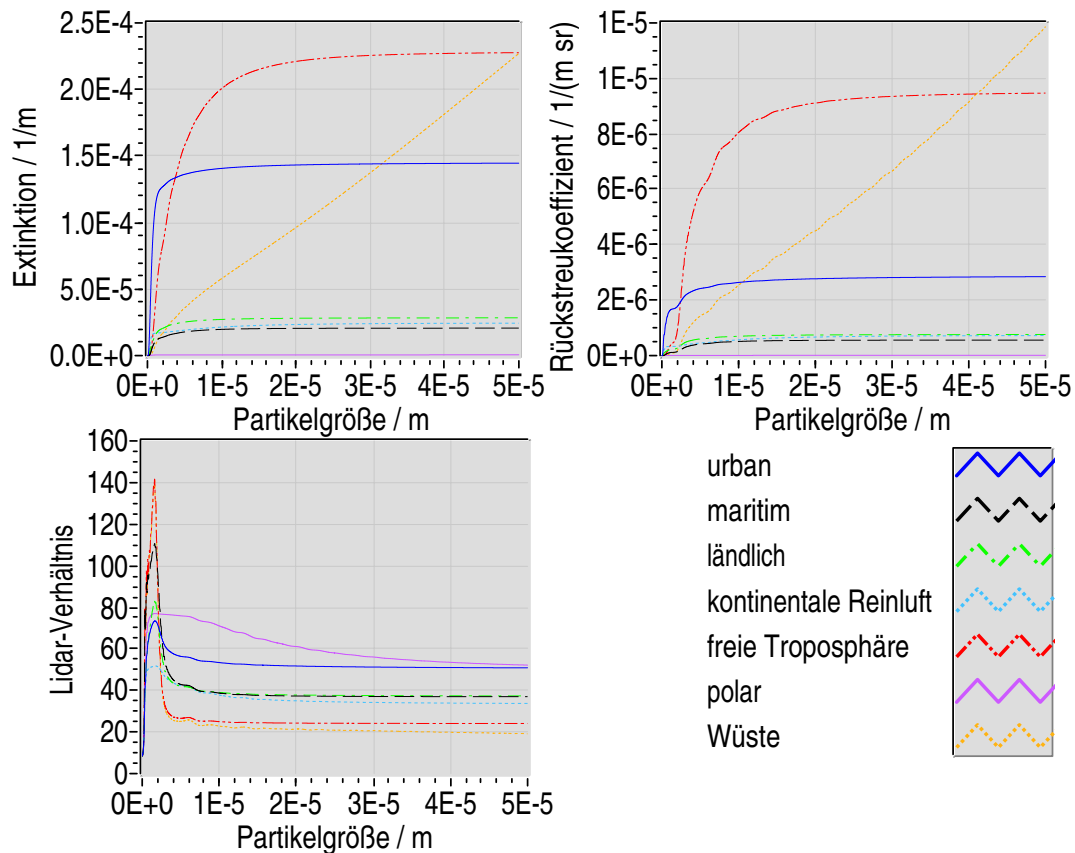


Abb. 2-17 Konvergenz der Extinktion, des Rückstreukoeffizienten und des Lidar-Verhältnisses bei der Integration über verschiedenen Größenverteilungen.

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

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

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

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

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

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

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

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

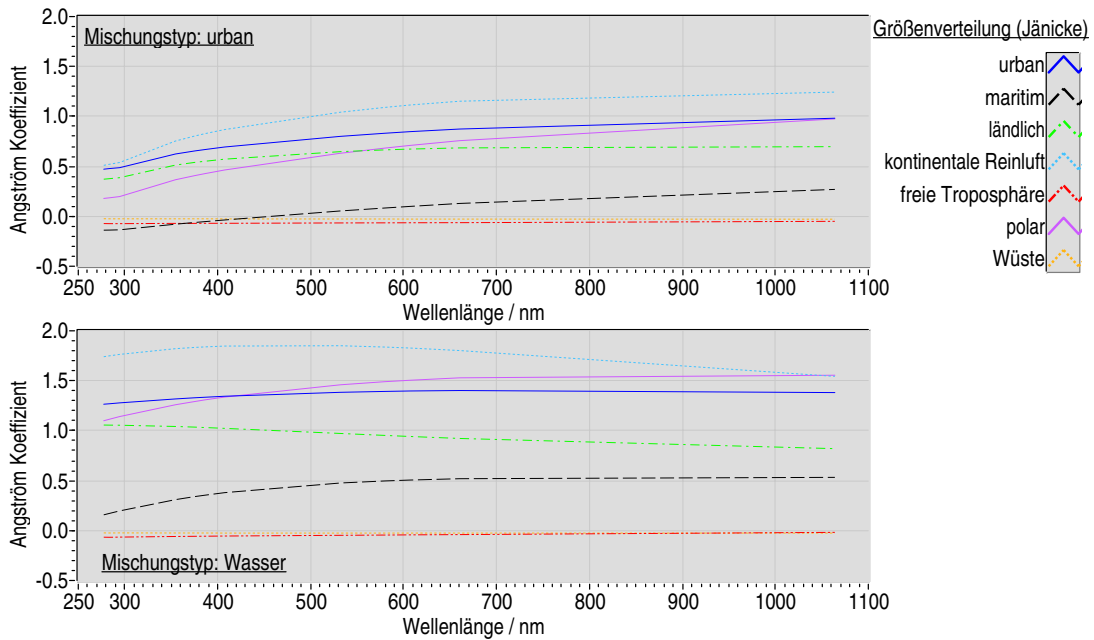


Abb. 2-18 Ångström-Koeffizient bezüglich 266 nm für verschiedene Aerosol-Größenverteilungen [Jänicke, 1993] und die Mischungstypen „urban“ und „Wasser“.

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

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

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

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

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

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

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

2.1.3 Lichttransmission durch die turbulente planetare Grenzschicht

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

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

1. Enhanced Backscatter

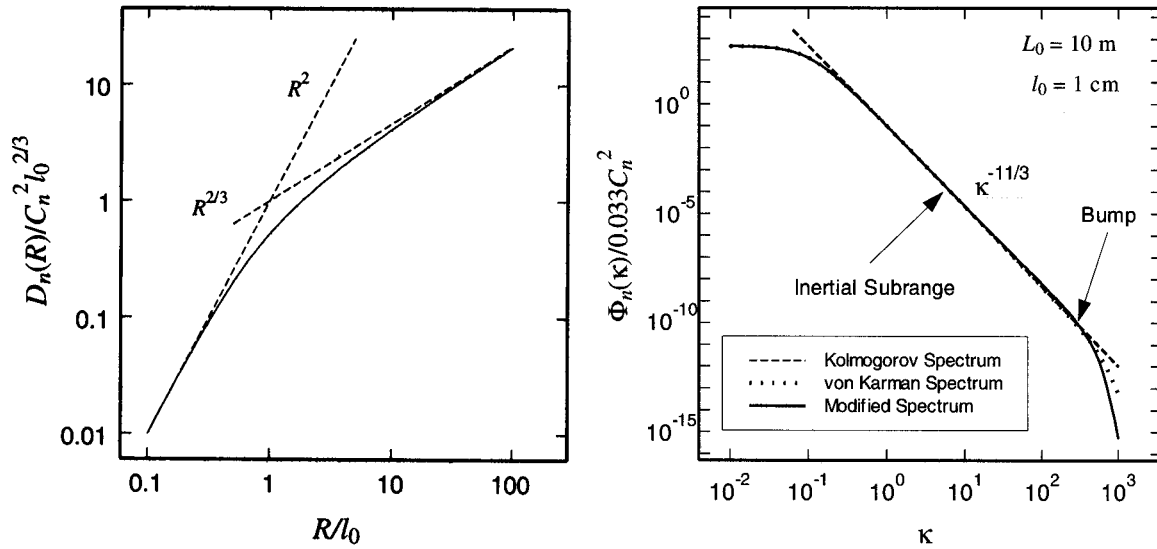


Abb. 2-19 Strukturfunktion $D_n(R)$ entsprechend der Kolmogorov-Theorie und verschiedene Leistungsdichtespektren zur Beschreibung der optischen Turbulenz [Andrews et al., 2001].

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

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

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

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

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

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

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

2.2 Laser-Fernerkundungsmethoden

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

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

2.2.1 Numerischer Umgang mit Rückstreusignalen

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

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

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

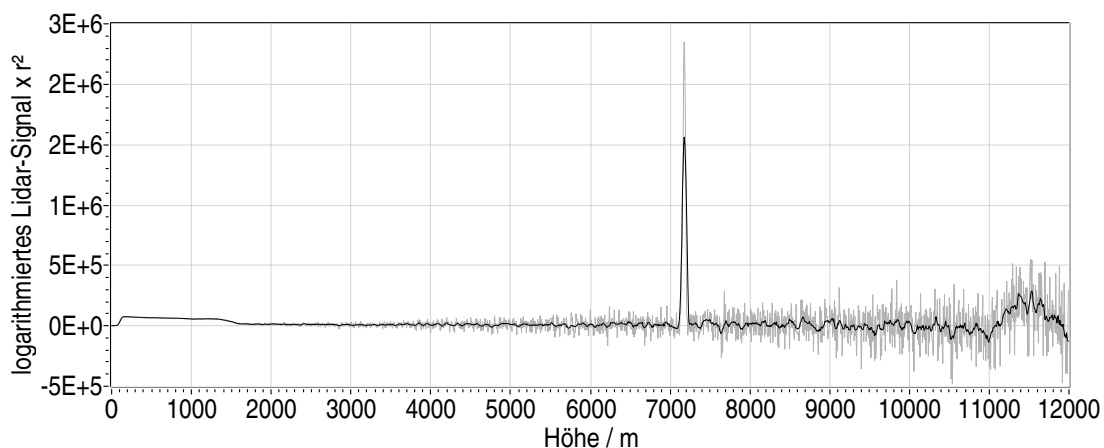


Abb. 2-20 Rückstreusignal bei 532 nm am 25. 8. 1999 um 17:40 Uhr. Das Original ist grau. Die Glättung des schwarzen Signals wurde erreicht, indem alle Messpunkte, die sich um mehr als ein Zehntel der Standardabweichung des Mittelwerts der sie umgebenden 4 Punkte unterscheiden, auf den Mittelwert gesetzt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

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

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

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

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

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

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

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

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

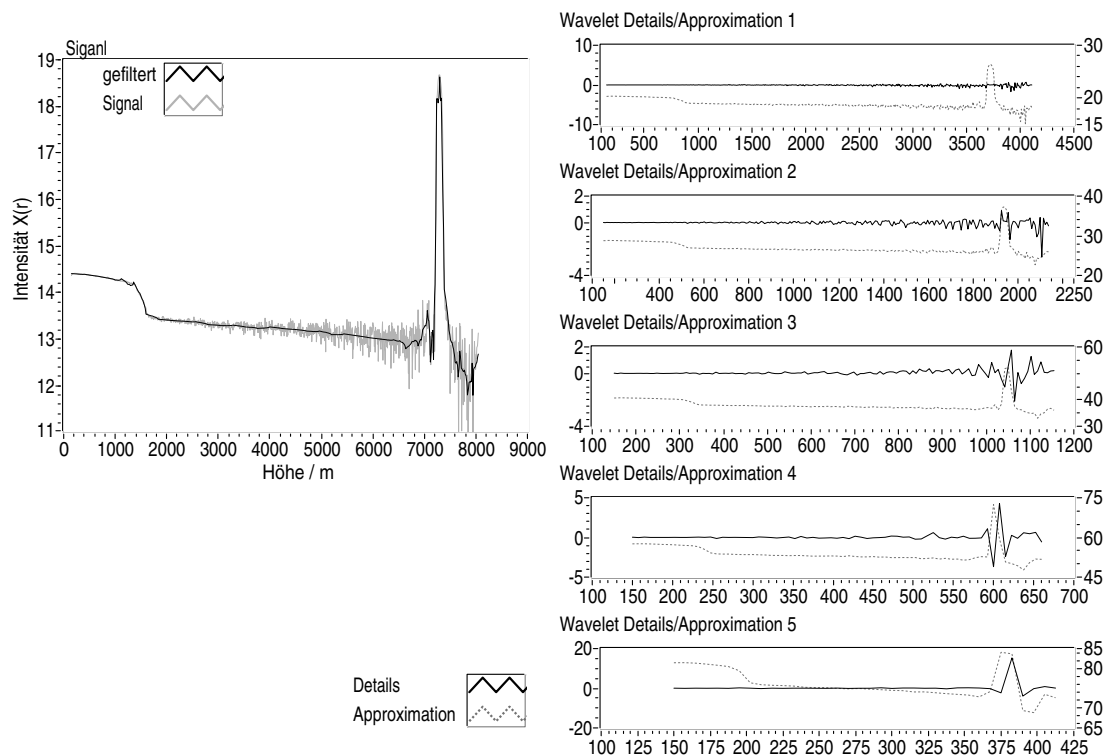


Abb. 2-21 Fünfstufiger Wavelet-Filter am Beispiel eines Rückstreusignals @ 532 nm.

2.2.2 Elastische Rückstreusignale

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

1. Differential Absorption Lidar
2. Differentielle Absorption

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

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

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

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

2.2.2.1 Aerosol

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

1. High Spectral Resolution Lidar

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

2.2.2.2 Depolarisation

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

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

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

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

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

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

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

2.2.2.3 Spurengase

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

2.2.3 Raman-Rückstreusignale

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

2.2.3.1 Aerosol

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

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

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

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

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

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

2.2.3.2 Spurengase

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

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

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

Gl. 2-80

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

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

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

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

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

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

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

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

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

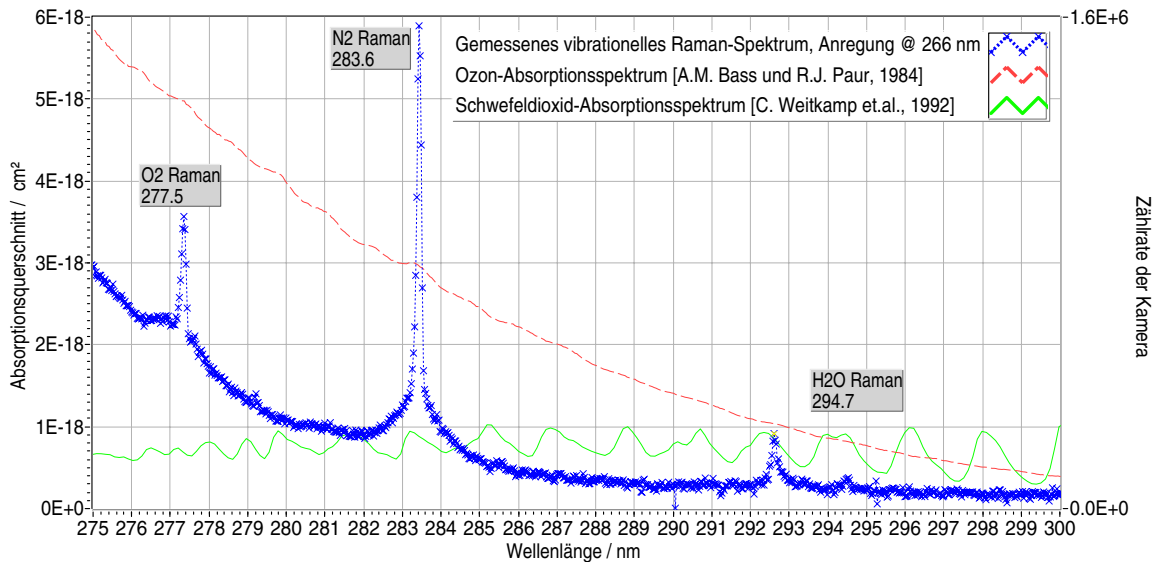


Abb. 2-22 UV-Vibrations-Raman-Spektrum der Atmosphäre, angeregt durch die FHG des Nd:Yag-Lasers, Ozon- und Schwefeldioxid-Absorptionsspektrum [Bass und Paur, 1984, Weitkamp et al., 1992].

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

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

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

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

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

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

Gl. 2-82

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

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

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

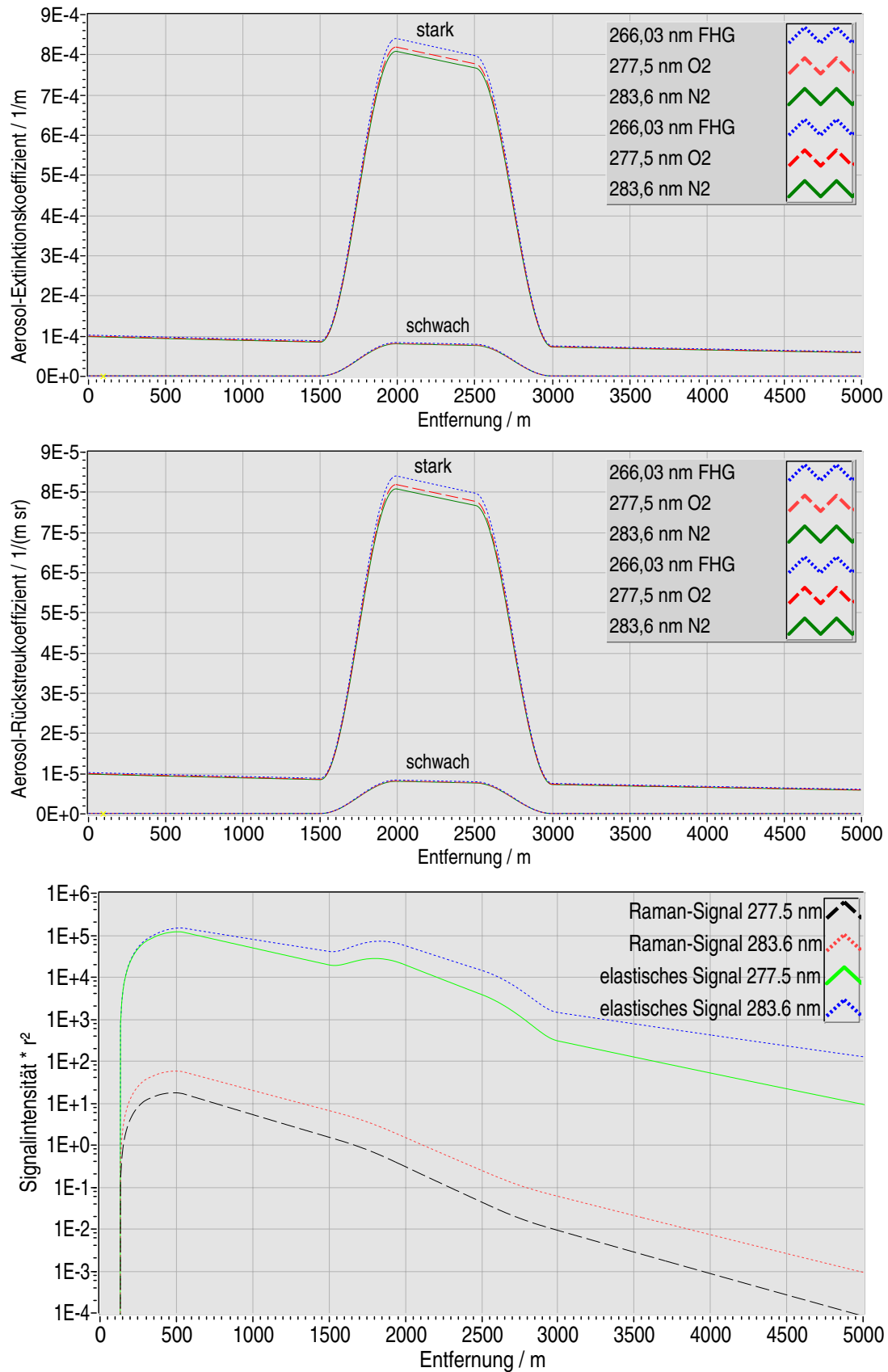


Abb. 2-23 Aerosolextinktions- und Rückstreukoeffizient für die Anregungswellenlänge des Lasers und die beiden Raman-Signale, jeweils für eine schwach und eine stark streuende Aerosolschicht. Unten sind die resultierenden elastischen und die Raman-Signale für die starke Schicht dargestellt.

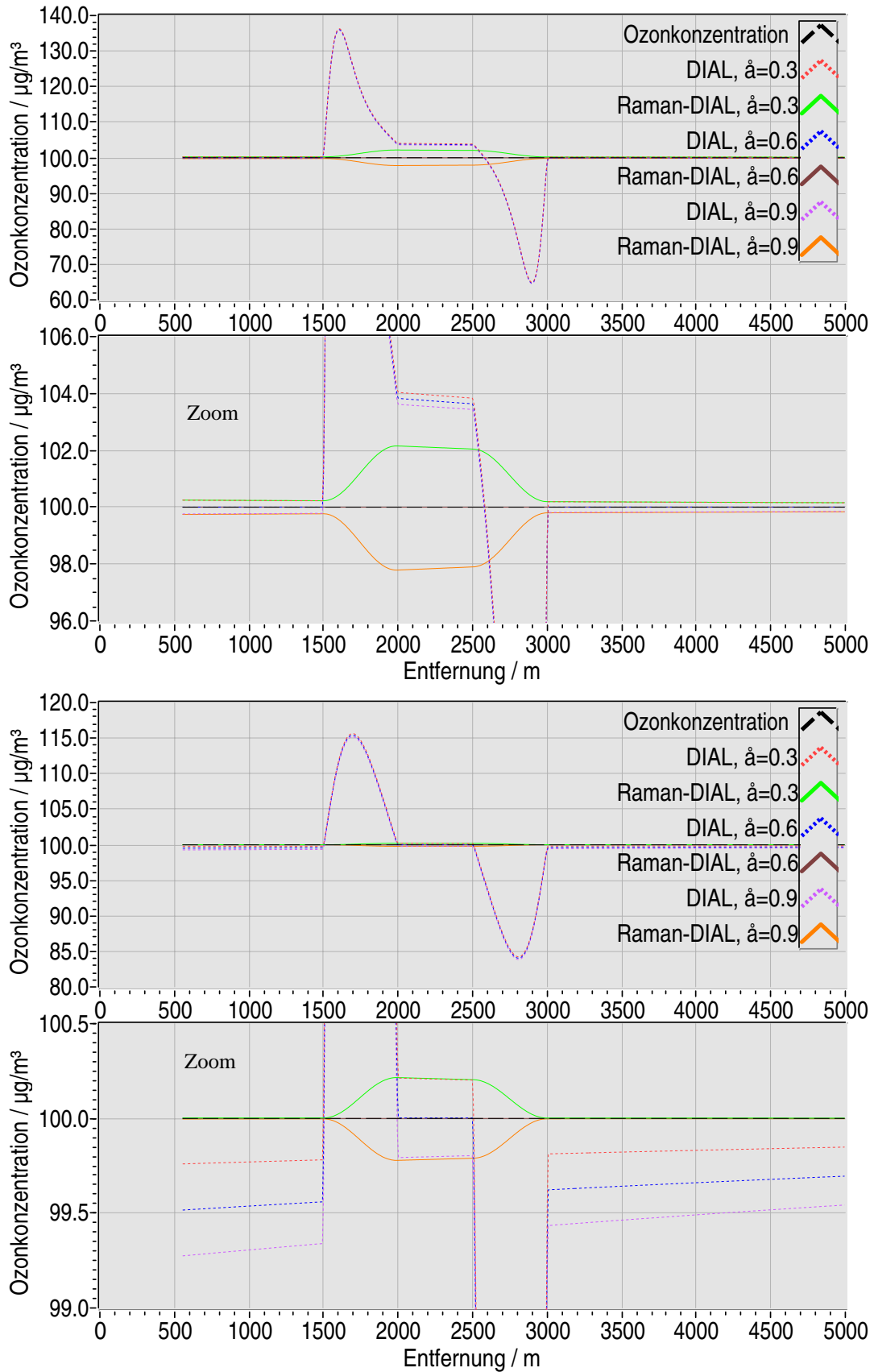


Abb. 2-24 Berechnung einer vorgegebenen Ozonkonzentration von $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ aus simulierten Raman- und elastischen Rückstreusignalen, die eine Aerosolschicht entsprechend Abbildung 2-23 enthalten. Die beiden oberen Abbildungen entsprechen dem Fall der schwach und die unteren dem der stark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

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

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

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

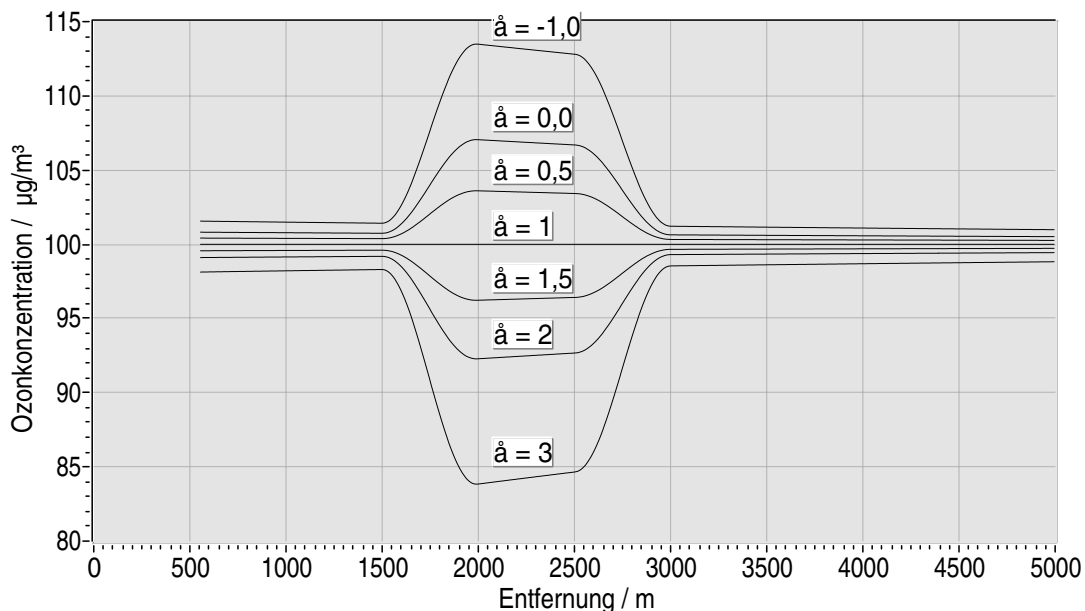


Abb. 2-25 Fehler bei der Konzentrationsberechnung aus Raman-DIAL-Signalen wegen falsch angesetzter Ångström-Koeffizienten. Selbst wenn die Streueigenschaften des Aerosols völlig falsch eingeschätzt werden, bleibt der Fehler unter $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

2.2.3.3 Temperatur

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

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

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

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

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

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

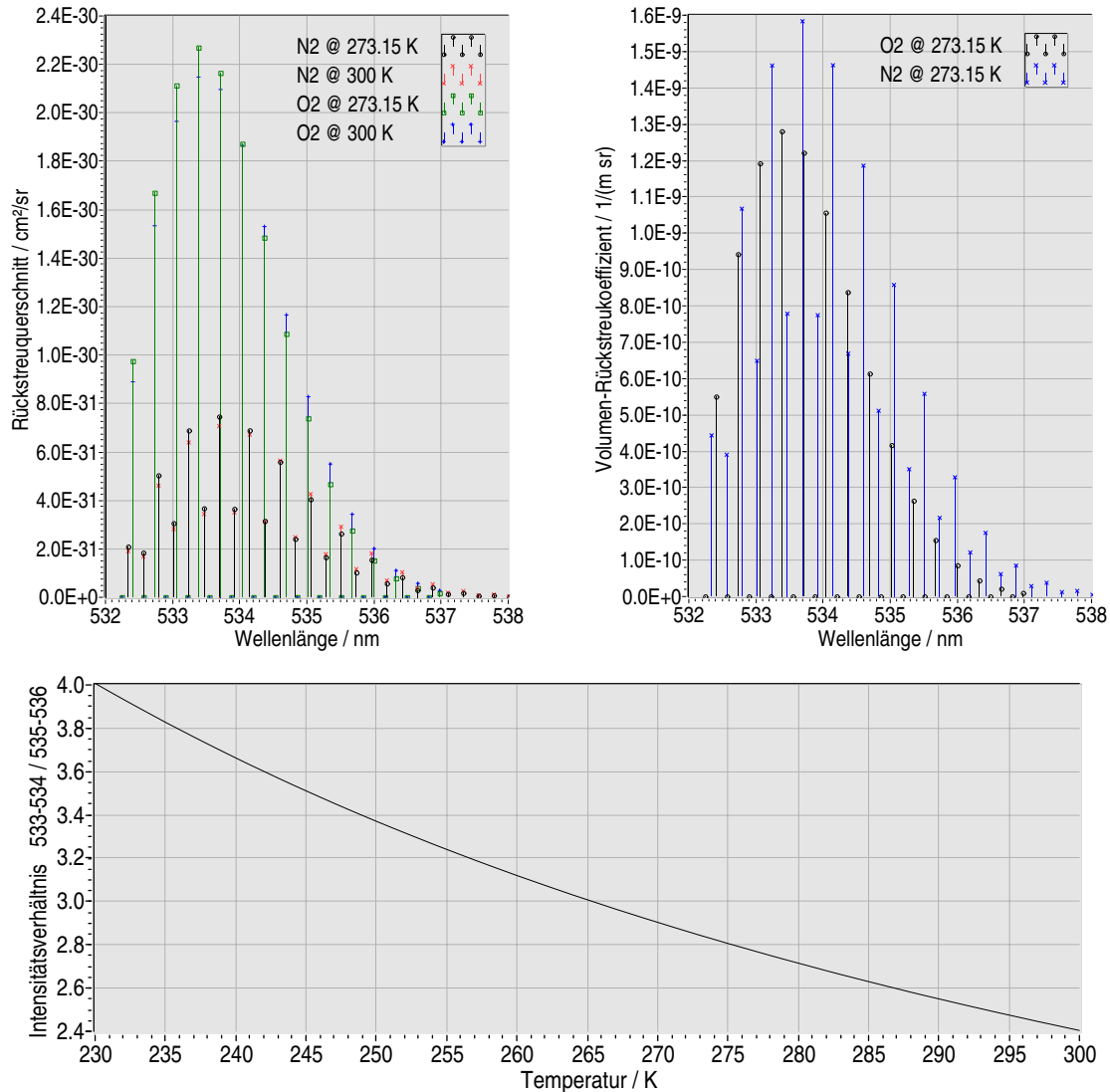


Abb. 2-26 oben links: Rotations-Raman-Rückstreuquerschnitte für N₂ und O₂ bei zwei Temperaturen. oben rechts: Volumenrückstreukoeffizient der Stokes-Rotations-Raman-Linien für Luft bei 0 °C unten: Verhältnis der starken Linien zwischen 533 und 534 nm zu den schwachen zwischen 535 und 536 nm für Temperaturen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

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

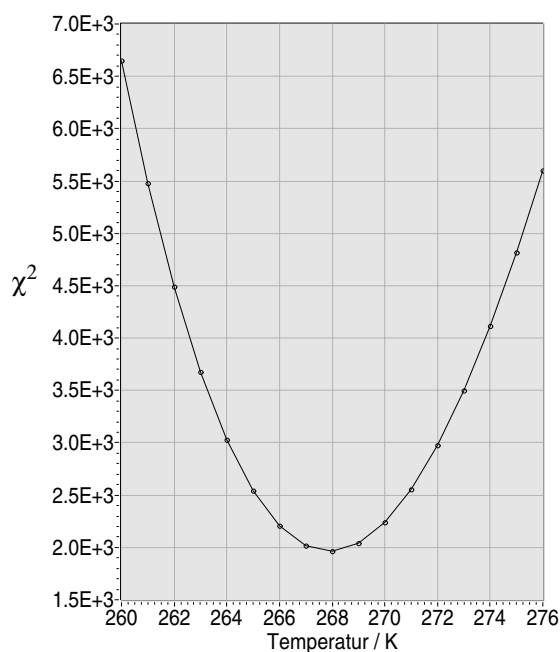
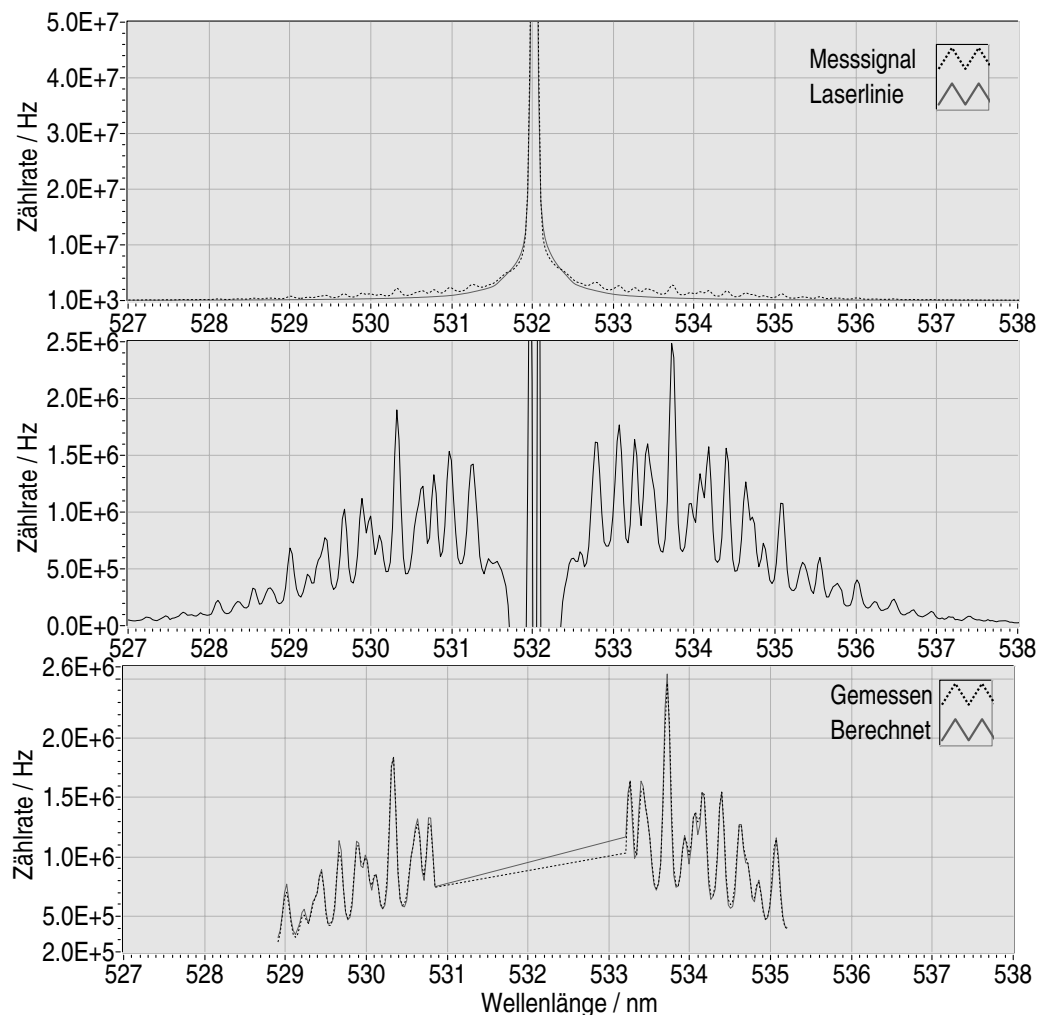
entstehen können, werden nicht bemerkt und können zu systematischen Fehlern führen. Der Vorteil ist jedoch, dass ein entfernungsabhängiges Temperaturprofil mit hoher zeitlicher und räumlicher Auflösung mit einer relativ einfachen Technik gemessen werden kann.

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

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

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

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



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

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

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

2.2.4 Das Doppler-Lidar

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

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

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

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

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

1. Radiowave Detection and Ranging

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

2.3 Berechnung sekundärer Größen

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

2.3.1 Die Mischungsschichthöhe

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

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

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

2.3.2 Die Sichtweite

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

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

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

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

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

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

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

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

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

2.3.3 Aerosol-Größenverteilung und Brechzahl

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

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

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

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

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

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

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

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