

# 4 Untersuchung der Atmosphäre

Das Ziel des Teramobile-Projekts war und ist die Entwicklung neuartiger Methoden zur Fernerkundung von Substanzen und Materialien, insbesondere von gasförmigen, flüssigen und festen Stoffen, die für die Chemie und Physik der Erdatmosphäre von Bedeutung sind. Die Aktivitäten des Projekts haben damit einen direkten Bezug zur Umweltphysik (in der Deutschen Physikalischen Gesellschaft existiert seit 1998 der Fachverband Umweltphysik). Da es sich bei den zu messenden Substanzen hauptsächlich um Stoffe handelt, die direkt oder indirekt Umweltschäden verursachen oder als Indikatoren für diese dienen, steht speziell die Atmosphärenphysik in enger Beziehung zu Begriffen wie Luftverschmutzung, Zerstörung der Ozonschicht, Klimaveränderung etc.

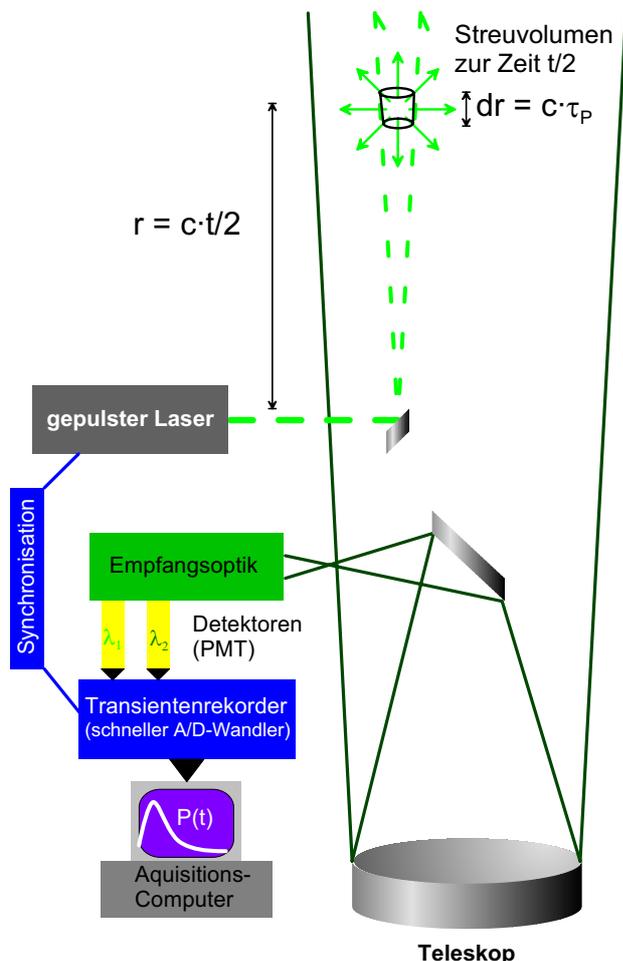
Das Neuartige am Einsatz von hochintensiven Laserpulsen in der Atmosphärenforschung ist, dass die Luft nicht mehr nur das Objekt der Untersuchung darstellt, sondern gleichzeitig auch zu einem Bestandteil der Messmethoden wird. Denn in der nichtlinearen Wechselwirkung zwischen Luft und Licht liegen die Grundlagen der neuen Methoden, die wir zum Beispiel Femtosekunden-Lidar oder (Femtosekunden-)Weißlicht-Lidar nennen. Dies erklärt, warum es unverzichtbar war und ist, sich eingehend mit den relevanten Bereichen der nichtlinearen Optik zu befassen. So sind einige grundlegende Erkenntnisse gesammelt worden, die zum Teil schon bei den Messkampagnen berücksichtigt wurden, vor allem aber in Zukunft für Experimente in der Atmosphäre genutzt werden können. Teilweise aber sind Messergebnisse aus sich selbst heraus vollständig auswertbar, ohne dass man alle physikalischen Prozesse, die ihnen zugrunde liegen, gänzlich verstehen muss. Dazu gehören Absorptionsspektren, um die es in diesem Kapitel hauptsächlich geht.

Zunächst werden in Abschnitt 4.1 in kurzer Form die Grundlagen und die wichtigsten Arten der Lidar-Methode beschrieben, um dann zur Idee überzuleiten, wie der Einsatz von Terawattpulsen eine neue Dimension des Lidar eröffnet. Konkretisiert wird dies in Abschnitt 4.2 „Absorption durch Gase – fs-Weißlicht-Lidar“ anhand von Ergebnissen der Teramobile-Messkampagnen. Der Schluss des Kapitels ist einigen Aspekten der Wechselwirkung von intensiven bzw. weißen Lichtpulsen mit Aerosolen gewidmet. Für die Erforschung der Luftpartikel besteht ein wachsendes Interesse, da ihre Rolle in der Atmosphärenphysik und -chemie zunehmend als bedeutend eingeschätzt wird, aber noch nicht ausreichend verstanden ist.

## 4.1 Die Messtechnik Lidar

Schon kurz nach der Erfindung des Lasers entwickelten Fiocco und Smullin [1963] eine Methode, um nach dem Prinzip des Radar die Atmosphäre mit Laserpulsen zu untersuchen. Man nutzt die Tatsache, dass die optische Strahlung von der Luft, d.h. Molekülen und Aerosolen, gestreut wird. Die empfangene Rückstreuung wird als transientes Signal erfasst. Durch Multiplikation der Zeitskala mit der Lichtgeschwindigkeit erhält man die Leistung des Streulichts als Funktion der Entfernung. Diese Methode wurde zunächst Laser-Radar, später Lidar (*Light Detection and Ranging*) genannt. Eine ausführliche Abhandlung zu Lidar findet sich in [Measures, 1984].

Der besondere Vorteil der Lidar-Technik gegenüber anderen (optischen) Methoden zur Luftanalyse ist, dass man einen Laserstrahl in beliebiger Richtung an unzugängliche Orte senden kann, ohne einen Empfänger oder Reflektor am anderen Ende der Messstrecke zu



**Bild 4-1.** Schematische Darstellung eines typischen Lidar-Systems. Es besteht aus einem gepulsten Laser, üblicherweise mit einer Pulslänge von einigen Nanosekunden und einer Repetitionsrate zwischen 10 Hz und 1 kHz, einem Teleskop, einem oder mehreren schnellen Detektoren (Photomultiplier oder -dioden) und einem Analog-Digitalwandler, der mit Auslese-raten im Bereich von  $10^7$  bis  $10^8$  Hz arbeitet (entspricht wenigen Metern Lichtweg).

benötigen. Techniken mit Empfänger oder Reflektor liefern zudem nur integrierte Informationen über die gesamte Strecke. Gemeinsam mit anderen optischen Methoden hat Lidar die positive Eigenschaft, dass die Messung des atmosphärischen Parameters in der natürlichen Umgebung und zu einem konkreten Zeitpunkt stattfindet. So können dynamische Prozesse erfasst werden und es besteht nicht die Gefahr der chemischen oder physikalischen Veränderung einer Luftprobe auf dem Transport zur Messung oder bei dieser selbst.

Da die Durchführung und Auswertung von Lidar-Messungen bis heute das umfangreiche Wissen von auf diesem Gebiet tätigen Forschern erfordert – abgesehen von einfachsten Systemen z.B. zur Bestimmung des Bewölkungszustandes –, sind Routinemessungen zur Luftüberwachung durch Behörden oder private Einrichtungen noch die Ausnahme. Leicht bedienbare, zuverlässige Lidar-Systeme sind erst seit kurzem kommerziell erhältlich ([www.elight.de](http://www.elight.de)). In der Wissenschaft dagegen konnte Lidar erfolgreich eingesetzt werden und lieferte entscheidende Beiträge zum Verständnis der Mechanismen bedeutender atmosphärischer Phänomene, z.B. der Zerstörung der stratosphärischen Ozonschicht (ca. 20 km Höhe) [Stein et al., 1999] oder verschiedener Smog-Szenarien [Weidauer et al., 1997]. Die Verbesserung und Weiterentwicklung von Lidar-Techniken war stets eng mit den Fortschritten in der Laserphysik verbunden.

### 4.1.1 Grundlagen

In Bild 4-1 ist das Grundprinzip einer Lidar-Messung dargestellt. Laserpulse mit der Wellenlänge  $\lambda$  und der Pulsdauer  $\tau_p$  werden parallel zur Sichtachse des Empfangsteleskops ausgesendet. Kontinuierlich streut die Luft einen Teil der Pulsenergie  $P_L \cdot t_p$  auf den Teleskopspiegel der Fläche  $A$ . Eine mit dem Laser synchronisierte Detektion, die eine bestimmte Effizienz  $D(\lambda)$  besitzt, liefert das Signal der empfangenen Leistung

$$P(r, \lambda) = P_L D(\lambda) \frac{C(r)A}{r^2} \frac{c t_p}{2} \beta(r, \lambda) \tau^2(r, \lambda) \quad (4-1)$$

in Abhängigkeit der Entfernung  $r = ct/2$  des Luftvolumens, das auf dem Streckenintervall  $dr = ct_p/2$  Licht zur Zeit  $t$  zurückstretet. Diese Gleichung wird **Lidar-Gleichung** genannt.  $C(r)$  ist eine einheitslose Funktion  $\leq 1$ , die die effektive Teleskopfläche beschreibt (Verdeckungen des Sichtfelds und Grad der Überlappung mit dem Laserstrahl). Sie wird geometrische Kompression genannt und soll normalerweise schnell gegen eins gehen. Da die Rückstreuung im Raumwinkelsegment  $d\Omega \leq A/r^2$  als isotrop angesehen werden kann, nimmt das Signal mit  $1/r^2$  ab. Dies schränkt die Reichweite von Lidar-Messungen – neben anderen Verlusten – vor allem ein und verlangt eine hohe Dynamik von der Detektion.

Die Größe  $\beta(r, \lambda) = N(r)[d\sigma(\lambda)/d\Omega]_{|\theta=\pi}$  in Gleichung 4-1 hat die Einheit  $(\text{m sr})^{-1}$  und heißt Rückstreukoeffizient, wobei  $N$  und  $\sigma$  hier für die Anzahldichte bzw. den Streuquerschnitt aller streuenden Teilchen stehen. Für die Transmission von Licht durch die Atmosphäre bis zur Entfernung  $r$  gilt

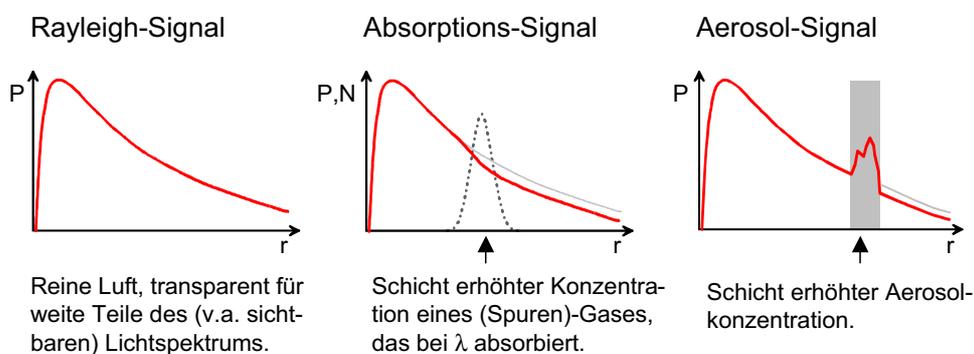
$$\tau(r, \lambda) = \exp\left[-\int_0^r \alpha(r', \lambda) dr'\right]. \quad (4-2)$$

Diese Gleichung entspricht dem Lambert-Beer-Gesetz der Absorption, wobei hier  $\alpha(r, \lambda)$  für sämtliche Verluste durch Streuung und Absorption steht und Extinktionskoeffizient genannt wird. Wegen der doppelten Transmission des Lichts auf Hin- und Rückweg zwischen dem Lidar-System und dem Ort  $r$  steht  $\tau$  in Gleichung 4-1 zum Quadrat.

Für  $\alpha$  und  $\beta$  gilt gleichermaßen, dass sie sich aus den Anteilen der Moleküle (Gase) und Aerosole zusammensetzen. Die Aufschlüsselung in der Form

$$\begin{aligned} \alpha(r, \lambda) &= \alpha_{\text{mol}}^{(s)}(\lambda) \frac{N_{\text{mol}}(r)}{N_s} + \sum_{\text{Gase}} \sigma_i(\lambda) N_i(r) + \alpha_{\text{aer}}(r, \lambda) \quad \text{und} \\ \beta(r, \lambda) &= \beta_{\text{mol}}^{(s)}(\lambda) \frac{N_{\text{mol}}(r)}{N_s} + \beta_{\text{aer}}(r, \lambda) \end{aligned} \quad (4-3)$$

zeigt den Satz von Parametern, der bei einer Lidar-Messung mit vereinfachter Behandlung der Aerosole und dem Schwerpunkt bei der Absorption durch Spurengase verwendet wird. Der Index  $s$  steht für die reine gasförmige Luft bei Standardwerten von Druck und Temperatur (die Moleküldichte  $N_s$  folgt aus der idealen Gasgleichung). Der mittlere Term in der oberen Gleichung enthält die Absorptionsquerschnitte  $\sigma(\lambda)$  aller (Spuren-)Gase, die im Wellenlängenbereich der Laserstrahlung absorbieren.  $\alpha_{\text{mol}}$  enthält somit nur die Extinktion



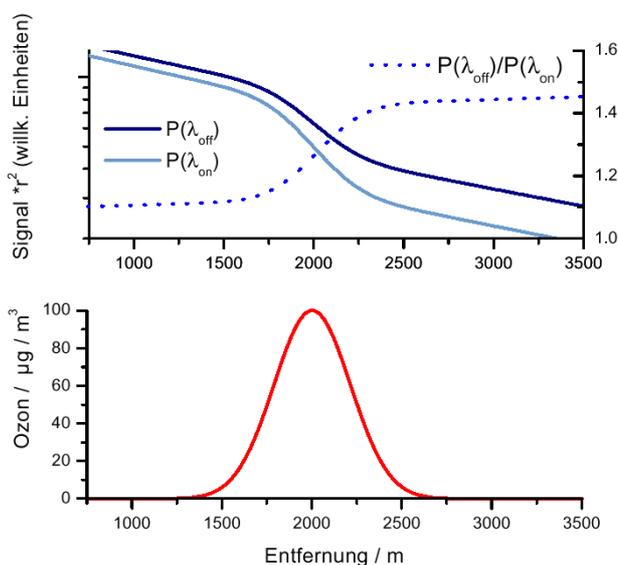
**Bild 4-2.** Typische Lidar-Signale. Der Anstieg der Signale zeigt den Einfluss der geometr. Kompression  $C(r)$ . Die Abnahme des Rayleigh-Signals enthält die Rayleigh-Extinktion, wird aber durch  $1/r^2$  dominiert.

durch Rayleigh-Streuung. Die ersten Terme in beiden Gleichungen 4-3 werden auch Rayleigh-Extinktion bzw. Rayleigh-Rückstreuung genannt. Die letzten Terme werden als Mie-Extinktion und Mie-Rückstreuung bezeichnet, da die Wirkung der Aerosole in (je nach Art unterschiedlich) guter Näherung mit der Mie-Theorie für sphärische Partikel in der Größenordnung der Lichtwellenlänge [Mie, 1908] beschrieben werden kann.

Bild 4-2 zeigt Beispiele für Signale  $P(r)$ , die sich mit der Lidar-Gleichung 4-1 beschreiben lassen, für drei idealisierte Fälle: 1.) rein molekulare Luft ohne Aerosole und ohne Absorption bei der Laserwellenlänge (Rayleigh-Lidar), 2.) ein Gas mit einem auf einen bestimmten Entfernungsbereich beschränkten Konzentrationsprofil, das bei  $\lambda$  absorbiert (Absorptions-Lidar), und 3.) eine auf eine bestimmte Schicht (z.B. Wolke) begrenzte Aerosolkonzentration (Aerosol-Lidar).

#### 4.1.2 Differentielles Absorptions-Lidar (DIAL)

Um das Konzentrationsprofil  $N(r)$  eines Absorbergases aus einem Signalverlauf wie in Bild 4-2 (mitte) bestimmen zu können, benötigt man vor allem den Absorptionsquerschnitt  $\sigma_{\text{gas}}(\lambda)$ , muss aber auch die übrigen Parameter der Gleichungen 4-3 kennen. Die Rayleigh-Streukoeffizienten  $\alpha^{(s)}$  und  $\beta^{(s)}$  sind recht genau bekannt. Druck- und Temperaturprofile der Atmosphäre – und damit  $N_{\text{mol}}(r)$  – können durch Extrapolation der Bodenwerte oder mit Hilfe von Wettersondendaten relativ genau abgeschätzt werden. Die Laserwellenlänge sollte wenn möglich so gewählt werden, dass sie keine Absorptionsbanden anderer Gase berührt. Jedoch macht die Unkenntnis über die Wirkung der Aerosole (Streuquerschnitte und Konzentrationen) die Bestimmung der Gaskonzentration zunächst unmöglich.



**Bild 4-3.** Prinzip der DIAL-Methode zur Bestimmung der Konzentration eines Spurengases. Aus Logarithmierung und Differenzierung des Quotienten zweier Signale bei leicht verschiedenen Wellenlängen (···) erhält man das Konzentrationsprofil unten.

Die DIAL-Methode löst dieses Problem, indem man statt einer Laserwellenlänge zwei aussendet (abwechselnd oder mit Signaltrennung in der Detektion), die so weit auseinanderliegen, dass bei der einen das Gas stark absorbiert ( $\lambda_{\text{on}}$ ), bei der anderen nicht oder wesentlich schwächer ( $\lambda_{\text{off}}$ ). Andererseits sollen sie so nah beieinander liegen, dass die übrigen atmosphärischen Parameter und Koeffizienten für beide annähernd gleich sind. Bei guter Justage der Strahlen ( $C(r)$  gleich) folgt dann aus den Gleichungen 4-1 bis 4-3

$$\ln \frac{P(r, \lambda_{\text{off}})}{P(r, \lambda_{\text{on}})} = \ln \frac{P_L^{\text{off}} D(\lambda_{\text{off}})}{P_L^{\text{on}} D(\lambda_{\text{on}})} + 2 \int_0^r N_{\text{gas}}(r') [\sigma_{\text{gas}}(\lambda_{\text{on}}) - \sigma_{\text{gas}}(\lambda_{\text{off}})] dr' \quad (4-4)$$

und daraus die DIAL-Gleichung

$$N_{\text{gas}}(r) = \frac{1}{2\Delta\sigma_{\text{gas}}} \frac{d}{dr} \left[ \ln \frac{P(r, \lambda_{\text{off}})}{P(r, \lambda_{\text{on}})} \right] \quad \text{mit} \quad \Delta\sigma_{\text{gas}} \equiv \sigma_{\text{gas}}(\lambda_{\text{on}}) - \sigma_{\text{gas}}(\lambda_{\text{off}}) . \quad (4-5)$$

Bild 4-3 zeigt dieses Verfahren anhand eines stilisierten Beispiels der Absorption durch Ozon, in dessen breiter Absorptionsbande (siehe Bild 4-10)  $\sigma_{\text{gas}}(\lambda_{\text{off}})$  kleiner, aber nicht Null ist. DIAL ist größtenteils im nahen UV eingesetzt worden, um Luftschadstoffe, vor allem Ozon sowie  $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}$ ,  $\text{NO}_2$  und wenige aromatische Kohlenwasserstoffe (z.B. Toluol), zu messen. Im IR sind die Absorptionslinien sehr schmal, wodurch eine kleine Ungenauigkeit der Wellenlänge einen großen, schwer kontrollierbaren Fehler verursacht. Als durchstimmbare Laserquellen für  $\lambda_{\text{on}}$  und  $\lambda_{\text{off}}$  hat man Farbstofflaser, Ti:Sa-ns-Laser (Auswahl aus der breiten Emissionsbande über die Länge der Laserkavität und Frequenzverdreifung) [Stein et al., 1997], Festkörperlaser mit Raman-Zellen [Schoulepnikoff et al., 1997] und optisch parametrischen Oszillatoren (OPO) [Fix et al. 2002] verwendet.

Die DIAL-Technik wurde und wird erfolgreich eingesetzt und ist die Lidar-Technik, die – jeweils optimiert für ein einzelnes Spurengas – bisher am besten für zuverlässige Routine-messungen geeignet ist. Sie birgt aber auch spezifische Fehlerquellen bei der Auswertung der Signale. Die Annahme, dass sich die Wirkung der Aerosole bei beiden Wellenlängen nicht unterscheidet, ist in der Realität nie ganz richtig, vor allem wenn wegen der Form der Absorptionsbanden im UV  $\lambda_{\text{on}}$  und  $\lambda_{\text{off}}$  einen gewissen Mindestabstand haben müssen. Man versucht dieses Problem durch verbesserte Auswertalgorithmen zu vermindern [Immler, 2003]. Beim DIAL-Inversionsverfahren (Gleichung 4-5) wirken sich Signalschwankungen und Rauschen besonders stark aus. Auch diesem Problem, v.a. der deswegen beschränkten Reichweite, versucht man mit ausgefeilten numerischen Methoden zu begegnen [Stelmaszczyk et al., 2000].

### 4.1.3 Terawatt-Femtosekunden-Lidar – eine neue Dimension

Ein Terawatt-Femtosekundenlaser liefert einen weißen Laserstrahl. Mit dem Teramobile steht nun ein solcher Laser als mobile Einheit zur Verfügung. Bisher ging bei Lidar und verwandten Techniken der Trend zu immer schmalbandigeren Laserquellen, um die Messgenauigkeit zu erhöhen. Zur Zeit versucht man vor allem den Mangel an geeigneten Laserquellen für einige gewünschte Spektralbereiche (v.a. im IR) zu beheben. Mit dem Weißlicht-Laser ist nun ein großer Schritt in eine neue Richtung getan worden.

Die DOAS-Methode (*Differential Optical Absorption Spectroscopy*) [Platt, 1994] verwendet schon seit einiger Zeit weißes Licht für die Messung von Spurengasen. Dabei setzt man konventionelle Lichtquellen und Empfänger oder Reflektoren ein und analysiert das transmittierte Licht mit Spektrometern. Zuweilen besteht das DOAS-Gerät nur aus dem Empfangsteil, z.B. auf Forschungssatelliten, wenn das Sonnen- oder Mondlicht genutzt wird.

Die Idee des **Femtosekunden-Weißlicht-Lidar** (Abschnitt 4.2) ist es, die Vorteile von DOAS und Lidar zu kombinieren, das heißt breite Absorptionsspektren mit beliebig hoher spektraler Auflösung als Rückstreuung von Orten zu messen, die (bis zur jeweiligen Reichweite) frei wählbar sind. (Einen ähnlichen Ansatz verfolgten Povey et al. [1998], etwa zeitgleich mit den ersten fs-Lidar-Experimenten, mit breitbandigen (ca. 10 nm bis 20 nm) Farbstofflasern im UV und sichtbaren Bereich.) Im Vergleich zu DIAL ergeben sich einige mögliche Verbesserungen. Durch den bloßen Übergang von zwei zu vielen Wellenlängen, z.B. bei Messung mit niedriger Auflösung im UV, kann man den Fehler durch den Aerosoleffekt verringern und gleichzeitig Informationen über die Aerosolverteilung erhalten. Im IR wird aus dem Nachteil der schmalen Absorptionslinien (Fehler durch Schwankung von  $\lambda_{\text{on}}$  und  $\lambda_{\text{off}}$ ) ein Vorteil, da das gemessene Spektrum bei hoher Auflösung gewissermaßen selbstkalibrierend ist und man viele Linien gleichzeitig messen kann. Auch Überlagerungen von Banden verschiedener Gase stellen somit kein Problem mehr dar. Während DIAL-Systeme auf eine oder wenige Substanzen ausgerichtet sind, steckt im fs-Weißlicht-Lidar das Potential zur **gleichzeitigen Erfassung vieler Spurengase**. Dies kann für die Erforschung dynamischer Prozesse in der Atmosphäre von großem Wert sein.

Yu et al. [2001] haben gezeigt, dass die Rückstreuung aus einem Filament deutlich höher ist als bei normaler Rayleigh-Mie-Streuung. Die Deutung dieses Phänomens schließt nicht aus, dass auch der Weißlichtpuls nach dem Ende der Filamente, der weiterhin sehr kurz ist und starke Intensitätsgradienten aufweist, eine erhöhte Rückstreuung erfährt. Dies könnte teilweise die geringere spektrale Pulsenergie des Weißlichts gegenüber monochromatischen Lasern kompensieren.

Etwas vollkommen Neues ist die Idee des **nichtlinearen Aerosol-Lidar** (Abschnitt 4.3.2). Hierbei nutzt man die nichtlineare Wechselwirkung des Lichts mit der Luft nicht nur indirekt, sondern man misst direkt die Emission aus der Wechselwirkung mit Aerosolen, also der in Luft suspendierten flüssigen oder festen Materie. Wie in Laborexperimenten, aber auch schon in ersten Feldversuchen gesehen wurde, trägt diese Strahlung in ihrem Spektrum und in charakteristischen Emissionswinkeln Informationen über die Partikel.

Die Idee SCG für Lidar zu nutzen wurde schon in [Alfano, 1989] formuliert. Zur Zeit existiert aber neben den Publikationen des Teramobile-Projekts – eingeschlossen die Vorarbeiten [Wöste et al., 1997; Rairoux et al., 2000] – nur eine Veröffentlichung einer japanisch-philippinischen Kooperation zu Femtosekunden-Lidar-Messungen [Galvez et al., 2002] (Dreiwellenlängen-Aerosol-Lidar mit Weißlicht aus einer Kryptonzelle). Aber auch in anderen Ländern, v.a. Russland und USA, sind Projekte zur Nutzung von Femtosekundenlasern für atmosphärische Fernerkundung geplant oder bereits begonnen worden.

## 4.2 Absorption durch Gase – fs-Weißlicht-Lidar

Wie in Abschnitt 4.1.3 angekündigt beschäftigt sich dieser Abschnitt mit Lidar-Messungen, bei denen die klassische Laserfernerkundung durch das breite spektrale Kontinuum des Weißlichts von Terawattpulsen erweitert ist. Es werden Auswertemethoden und Ergebnisse zur Absorption durch Atmosphäregase vorgestellt. Eine grundlegende Annahme ist dabei, dass sich das Spektrum des Laserlichts ab einer bestimmten Höhe (im Folgenden SCG-Höhe genannt) nicht weiter durch nichtlineare Effekte verändert, sondern von dort bis zur Messhöhe und auf dem Rückweg zur Detektion nur durch die klassischen Wechselwirkungen mit dem Medium Luft beeinflusst wird. Wegen des gesammelten Wissens über die nichtlineare Ausbreitung der Pulse kann die SCG-Höhe jeweils abgeschätzt werden.

Die Aufteilung in die Abschnitte 4.2.1 und 4.2.2 begründet sich aus den physikalischen und daraus folgenden methodischen Unterschieden zwischen der molekularen Absorption im IR bzw. im UV (beide Arten reichen auch in den sichtbaren Bereich hinein). Bei Messungen im IR ist eine hohe spektrale Auflösung nötig, im UV ist eine niedrigere Auflösung zumeist sinnvoll. Der experimentelle Aufbau des fs-Weißlicht-Lidar entspricht dem des herkömmlichen Lidar (Bild 4-1), nur dass in die Detektion ein Spektrometer und gegebenenfalls ein Vielkanaldetektor integriert ist (siehe auch die Beschreibung des Teramobile-Detektionssystems in Abschnitt 1.3 bzw. Bild 1-9).

### 4.2.1 Hochaufgelöstes Absorptions-Lidar

In diesem Abschnitt werden Rotations-Schwingungsübergänge von Molekülgasen im IR behandelt. Jedem Übergang entspricht eine Absorptionslinie, die im Spektrum der Luft einzeln oder in Überlagerung mit anderen Linien sichtbar ist. Das jeweilige Gas  $g$  besitzt in der Luft eine bestimmte relative Teilchendichte  $\tilde{N}_g := N_g/N_{\text{ges}}$ , auch Volumenmischungsverhältnis (VMR) genannt. Der wellenlängenabhängige Absorptionsquerschnitt eines Gases ist die Summe aller Übergänge  $\sigma(\lambda) = \sum \sigma_i(\lambda)$ . Die Funktionen  $\sigma_i(\lambda)$  hängen aber von äußeren Parametern ab und müssen berechnet werden. Dazu benötigt man eine Reihe von festen Koeffizienten zu jedem Übergang  $i$ . Für die 38 wichtigsten Atmosphärgase findet man die entsprechenden Werte in der HITRAN-Datenbank [Rothman et al., 2003], die über 100.000 Linien enthält. Die Rechnungen erfolgen in Wellenzahlen  $\nu = 1/\lambda$ .

Die wichtigste Größe eines Übergangs ist die Linienstärke, die in der Form  $S = B_{12} h\nu/c$  vom Einsteinkoeffizienten der Absorption und der Übergangsenergie abhängt. Sie ist gleichzeitig das Integral des Absorptionsquerschnitts, also die Fläche der Absorptionslinie

$$S = \int_0^{\infty} \sigma(\nu) d\nu . \quad (4-6)$$

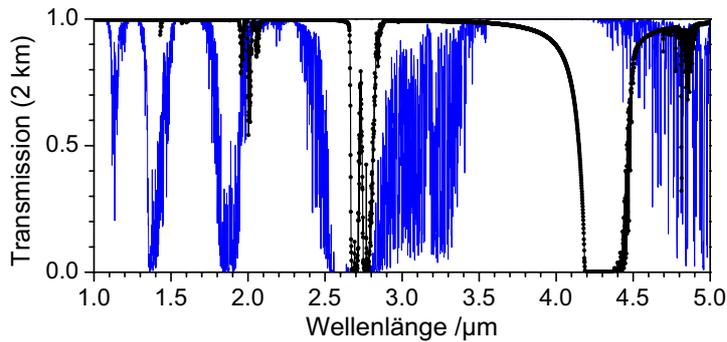
Bezieht man die Größen auf das Ensemble angeregter Moleküle, so hängt  $S$  von der Energie  $E''$  des unteren Übergangszustandes und der Temperatur ab. Es gilt [Ehret et al., 1993]

$$S = S_0 \left( \frac{T_0}{T} \right)^{1,5} \exp \left[ \frac{E'' hc}{k} \left( \frac{1}{T_0} - \frac{1}{T} \right) \right] \quad (4-7)$$

mit  $T_0 = 296$ , der Planck-Konstanten  $h$ , der Boltzmann-Konstanten  $k$  und  $E''$  in  $\text{cm}^{-1}$ . Um aus  $S$  die Funktion  $\sigma(\nu)$  bestimmen zu können, braucht man weitere Annahmen. Wegen der Unschärferelation hat die Funktion mindestens die natürliche Linienbreite. In der Atmosphäre ist diese aber gegenüber der Doppler- und der Druckverbreiterung (auch Stoßverbreiterung genannt) vernachlässigbar klein. Wegen dieser beiden Effekte ist die Linienform ein Voigt-Profil, das heißt eine Faltung aus einer Gauß- (Doppler) und einer Lorentz-Funktion (Stöße). Bei Drücken über 100 hPa – solche herrschen in den unteren 15 km der Atmosphäre – kann auch die Doppler-Verbreiterung vernachlässigt werden. Dies erspart bei dem im Folgenden beschriebenen Auswertelgorithmen erhebliche Rechenzeit.

Die Linienform ist also ein Lorentz-Profil um  $\nu_0$  mit dem Integral  $S$ :

$$\sigma(\nu) = \frac{S}{\pi(\nu - \nu_0)^2 + \gamma^2} \quad \text{mit} \quad \gamma = \gamma_0 \frac{p}{p_0} \left( \frac{T_0}{T} \right)^n \quad (4-8)$$



**Bild 4-4.** Die atmosphärischen „Fenster“. Transmission durch 2km Wasserdampf (—) und CO<sub>2</sub> (—•) in Standardatmosphäre. Aus HITRAN-Daten berechnet. Auflösung 0,5 nm.

und  $p_0 = 1013$  hPa. Der Exponent  $n$  der Temperaturabhängigkeit der halben Halbwertsbreite  $\gamma_0$  ist eine empirische Größe zwischen 0,5 und 1 [Ehret et al., 1993]. Bei  $\gamma_0$  unterscheidet HITRAN zwischen dem Wert für ein von Luft umgebenes Molekül ( $\gamma_{\text{air}}$ ) und das reine Gas ( $\gamma_{\text{self}}$ ). Es kann hier grundsätzlich mit  $\gamma_{\text{air}}$  gearbeitet werden, da entweder Spurengase mit geringem VMR gemessen werden oder – im Fall von Sauerstoff –  $\gamma_{\text{air}}$  und  $\gamma_{\text{self}}$  sich unwesentlich unterscheiden.

HITRAN enthält für jeden einzelnen Übergang den Parametersatz aus  $\nu_0$ ,  $S_0$ ,  $\gamma_{\text{air}}$ ,  $E''$  und  $n$  (der Index  $i$  wurde in den obigen Gleichungen weggelassen, gemeint ist aber immer nur ein einzelner Übergang, d.h. eine einzelne Absorptionslinie). Mit diesen Größen kann nun aus den Gleichungen 4-7 und 4-8 der Absorptionsquerschnitt  $\sigma_i(\nu)$  bzw.  $\sigma_i(\lambda)$  berechnet werden, den jedes Gas bei einer bestimmten Temperatur und einem bestimmten Luftdruck hat. Aus der idealen Gasgleichung errechnet sich die gesamte Teilchendichte  $N_{\text{ges}} = p/kT$ . Mit dem Lambert-Beer-Gesetz (Gleichung 4-2) erhält man nun die Transmission durch die Luft bis zu einer Entfernung  $r$  als

$$\tau(r, \lambda) = \exp\left[-\int_0^r \sum_g \kappa_g(r', \lambda) dr'\right] \quad (4-9)$$

mit den Absorptionskoeffizienten

$$\kappa_g(r, \lambda) = \tilde{N}_g(r) \frac{p(r)}{kT(r)} \sum_i \sigma_{g,i}(\lambda, r), \quad (4-10)$$

wobei der Index  $g$  für die einzelnen Gase steht (die im untersuchten Spektralbereich Absorptionslinien besitzen) und  $i$  für deren einzelne Absorptionslinien. Die Linienspektren  $\sigma_{g,i}$  hängen vom Ort  $r$  ab, da sie Funktionen des Drucks und der Temperatur sind. Wäre dies nicht der Fall, könnte man in Gleichung 4-9 eine gemittelte absolute Teilchendichte  $N_g$  verwenden und das Integral durch das Produkt  $[\sum N_g \sigma_g(\lambda)] \cdot r$  ersetzen. Bild 4-4 zeigt Spektren von Wasserdampf ( $\tilde{N} = 0,5\%$ ) und CO<sub>2</sub> ( $\tilde{N} = 3,4 \cdot 10^{-4} = 340$  ppm), die auf diese Weise

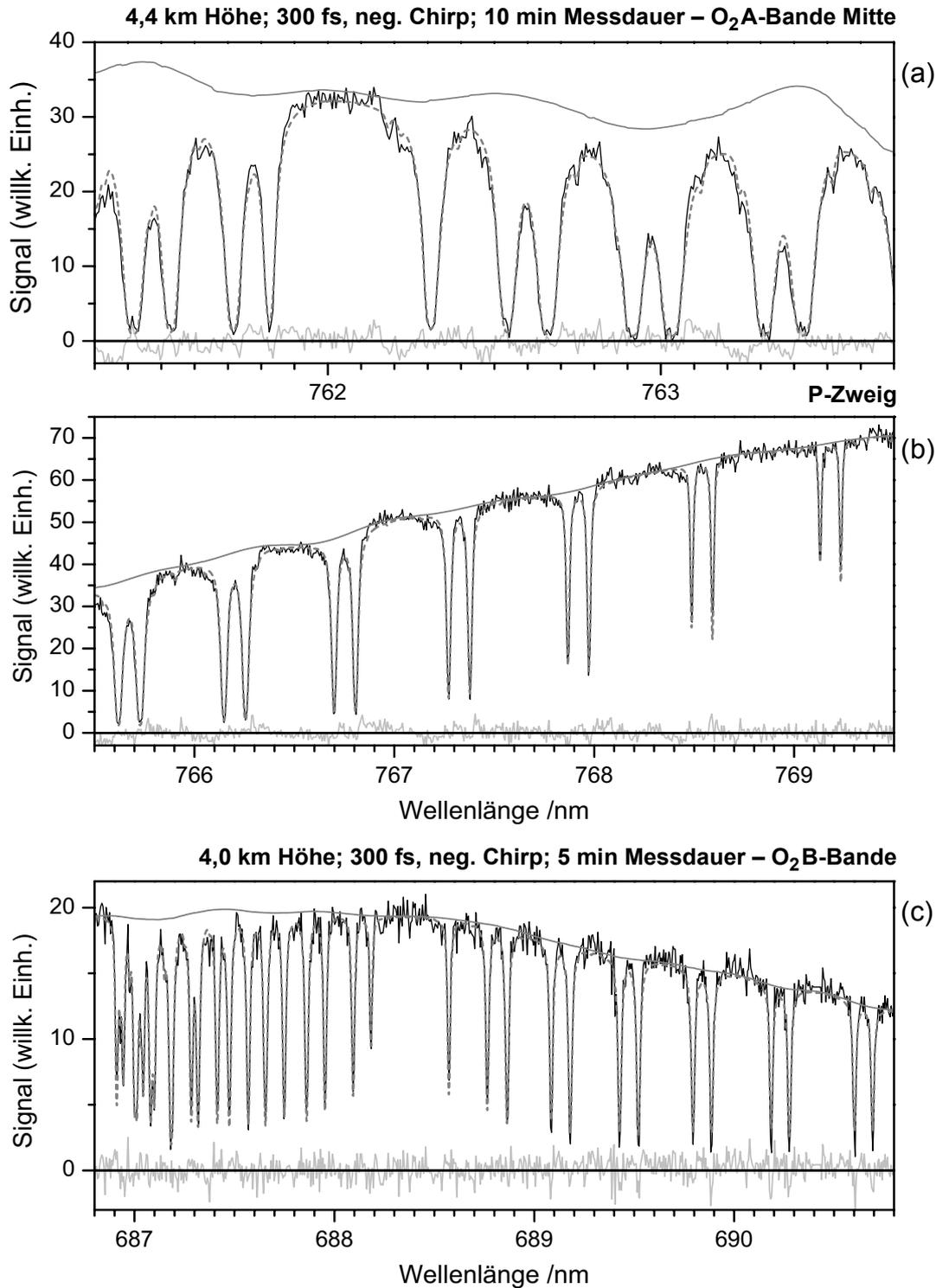
für 2 km Atmosphäre bei Standardwerten für Temperatur und Druck (STP: 15°C, 1013 hPa) gerechnet sind. Im dargestellten Bereich des IR enthält die Datenbank 27.300 Wasserdampflinien.

Bei Lidar-Messungen in mehreren Kilometern Höhe ist die Verwendung von gemittelten Druck- und Temperaturwerten auf keinen Fall möglich, da die ungenauen Linienbreiten und Besetzungsverteilungen der Rotations-Schwingungszustände zu große Fehler in den berechneten Transmissionsspektren erzeugen. Daher wurde bei den im Folgenden beschriebenen Auswertungen die Atmosphäre in 100 m hohe Schichten eingeteilt, denen jeweils mittlere Druck- und Temperaturwerte zugeordnet wurden. (Näheres hierzu und weitere Details zur Auswertung der Absorptionsspektren siehe in Anhang B).

Hat man bei einer Lidar-Messung Spektren aus Höhen in gleichmäßigen Abständen von beispielsweise 50 m oder 100 m aufgenommen, kann man sukzessive die Konzentration der Gase in jeder Schicht differentiell bestimmen, ähnlich wie bei DIAL (Gleichung 4-5 in diskretisierter Form  $\Delta[\dots]/\Delta r$ ). Bei den **Messungen an der Thüringer Landessternwarte** (TLS) wurden aber nur Spektren aus einzelnen Höhen über 4 km gemessen (Abschnitt 2.1.4). In einem solchen Fall muss beim Fit der Spektren eine Verteilung des zu messenden Gases auf die Höhenschichten angenommen werden. Außerdem kürzen sich die wellenlängenabhängigen Funktionen der Lidar-Gleichung 4-1 nicht heraus, wenn man die gesamte Transmission bis zu einer Entfernung  $r$  untersucht. Berechnet wird zunächst die Transmission  $\tau(\lambda)$ , gemessen wurde aber in einem Ausschnitt  $\Lambda$  des Spektrums das Signal

$$P_{\Lambda}(\lambda) = P_L(\lambda)D(\Lambda, \lambda)\xi(\Lambda)\tau(\lambda) , \quad (4-11)$$

wobei  $P_L(\lambda)$  für das Weißlicht am Beginn der Absorptionsstrecke steht. Die Funktion  $\xi$  umfasst alle Streueffekte der Moleküle und Aerosole, bei denen man – vor allem im IR – davon ausgehen kann, dass sie im kleinskaligen Bereich nicht von der Wellenlänge abhängen. Die Detektoreffizienz  $D$  des Echelle-Spektrometers hat in jeder Ordnung eine Bogenform, die aber glatt verläuft (siehe Bild 2-12). Die Form des Weißlichts kann dagegen sehr wohl wellig sein (Abschnitt 3.4.2).  $P_L(\lambda)$  und  $D$  müssen daher beim Fitten bestimmt werden, wofür hier ein spezielles Verfahren entwickelt wurde (siehe Anhang B). Falls  $\xi$  doch im gemessenen Spektrum kleinskalig variieren sollte, ist dies nicht von  $P_L(\lambda)$  trennbar, es hat aber keine Wirkung auf den Fit, d.h. die Konzentrationsbestimmung der Absorbergase. Diese variable Funktion  $P_L D$ , die allgemeiner als  $\tau=1$ -Linie bezeichnet werden kann, gibt hier eine Vorstellung von der spektralen Struktur des summierten Weißlichts von 3000 bzw. 6000 Terawattpulsen (siehe Bilder 4-5 und 4-7). (Bei DOAS wird die Funktion zusammen mit breitbandigen Anteilen von  $\sigma(\lambda)$  durch Filtern eliminiert.)



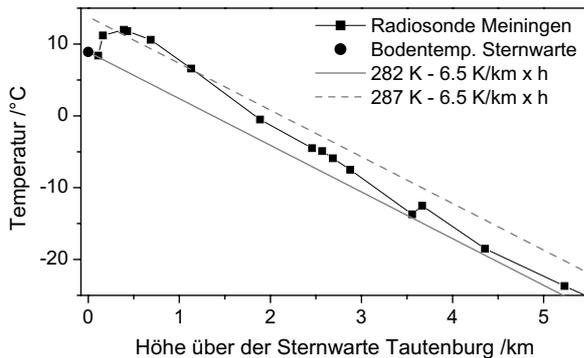
**Bild 4-5.** Sauerstoffabsorption auf dem Lichtweg bis in 4,4 km bzw. 4,0 km Höhe und zurück, abzüglich der SCG-Höhe. Energie der Laserpulse: 260 mJ (ca. 1 TW Anfangsleistung). (a) und (b) aus der selben Messung im IR-Kanal. (c) Messung im VIS-Kanal. Übergänge:  $b^1\Sigma_g^+ \leftarrow X^3\Sigma_g^-$  (magn. Dipolübergang, elektr. dipolverboten), O<sub>2</sub>A: vib.  $0 \leftarrow 0$ , O<sub>2</sub>B: vib.  $1 \leftarrow 0$ , Doppellinienstruktur wegen Auswahlregeln, keine Q-Zweige. Schwarze Linie: Messung, gestrichelte graue Linie: berechnete Transmission  $\times \tau=1$ -Linie (grau), hellgrau um Nulllinie: Residuum. Im jeweiligen Ausschnitt wurde ein Untergrund beim Fitten abgezogen. In (c) ist der dargestellte Fit nur für am R-Zweig (links) durchgeführt worden (Untergrund nicht konstant).

Die Konzentration (VMR) von **Sauerstoff** liegt in jeder Höhe konstant bei 20,9%. Die Auswertung seiner Absorption kann daher zur Bestimmung anderer Parameter bzw. zur Überprüfung von Annahmen dienen. Für den Temperaturverlauf mit der Höhe gilt in der Standardatmosphäre  $dT/h = -6,5 \text{ K/km}$ , ausgehend vom Bodenwert  $T_b$  bei  $h = 0$ . Die Druckverteilung hängt im Wesentlichen nur vom Wert am Boden ab und zusätzlich leicht von der Temperatur in jeder Höhe (siehe Anhang B). Der Druck ist auf diese Weise genau bekannt, der oben genannte Temperaturverlauf ist aber nur eine grobe Näherung, da vor allem in der unteren Atmosphäre wärmere oder kältere Schichten auftreten können. Daher wurde bei den Fits der Sauerstoffspektren  $T_b$  als Variable behandelt.

Bild 4-5 zeigt Fitbeispiele aus zwei Messungen von Rückstreuenspektren aus 4,0 km bzw. 4,4 km Höhe. In diesen Ausschnitten treten nur Linien des Sauerstoffs auf (verbotene Übergänge mit  $\sigma_{\max} = 5 \cdot 10^{-23} \text{ cm}^2$ , siehe nähere Angaben in der Bildunterschrift). Erkennbare kleine Linien neben den Hauptlinien gehören zu den selteneren Isotopen  $^{16}\text{O}^{18}\text{O}$  und  $^{17}\text{O}^{18}\text{O}$ , wobei deren Mischungsverhältnis (0,4% bzw. 0,07%) bei HITRAN im Wert der Linienstärke enthalten ist. Die gemessenen Spektren haben eine sehr hohe Auflösung, eine geringe Geräteverbreiterung muss jedoch in die Rechnung eingehen. Die Verbreiterung ist mit ca. 10 pm (volle HWB) nur etwa gleich groß wie die Druckverbreiterung der Linien, trotzdem stellt sie eine kritische Fitgröße dar (Anhang B).

Wegen der Pulslänge von 300 fs mit negativem Chirp bei den in Bild 4-5 dargestellten Messungen wurde bei den Fits zunächst eine SCG-Höhe von 500 m angenommen. Dies lieferte bei allen die Bodentemperatur  $T_b = (287 \pm 1) \text{ K}$ . Gleichzeitige Fits beider Parameter in den Ausschnitten (a) und (b) liefern tatsächlich eine SCG-Höhe von  $(550 \pm 200) \text{ m}$  und die genannte Temperatur. Beim Fit der  $\text{O}_2\text{B}$ -Bande streuen die Werte stärker, vor allem im P-Zweig (rechts). Im Bild ist das Ergebnis des Fits des R-Zweigs dargestellt. Er liefert ebenfalls 287 K bei ca. 400 m SCG-Höhe. Benutzt man die gesamte Bande ist der Fehler groß, obwohl ein großer Fitbereich grundsätzlich eine bessere Statistik liefern sollte. Hier spielt allerdings der Untergrund (Detektoreffekte, Streulicht im Spektrometer) eine Rolle. Er wurde zwar an der TLS routinemäßig abgezogen, allerdings mit ungenügender Genauigkeit. Bei den Fits wurde jeweils der verbleibende Untergrund als konstanter Wert im jeweiligen Fitausschnitt abgezogen. Da dies aber für die gesamte Bande nicht korrekt ist (siehe Anteil der Linien im Residuum von Bild 4-5 c), wird ein sehr breitbandiger Fit fehlerhaft.

Das Ergebnis von  $T_b$  ist nicht die tatsächliche Temperatur am Boden, sondern eine Referenz für die Berechnung der Absorption. Die Außentemperatur lag zu Messzeit bei  $9^\circ\text{C}$  (282 K). Die Abweichung des ermittelten Werts 287 K kann man sich erklären, wenn man die Ballonsondendaten von 24:00 MEZ in der Messnacht aus Meiningen (ca. 100 km süd-



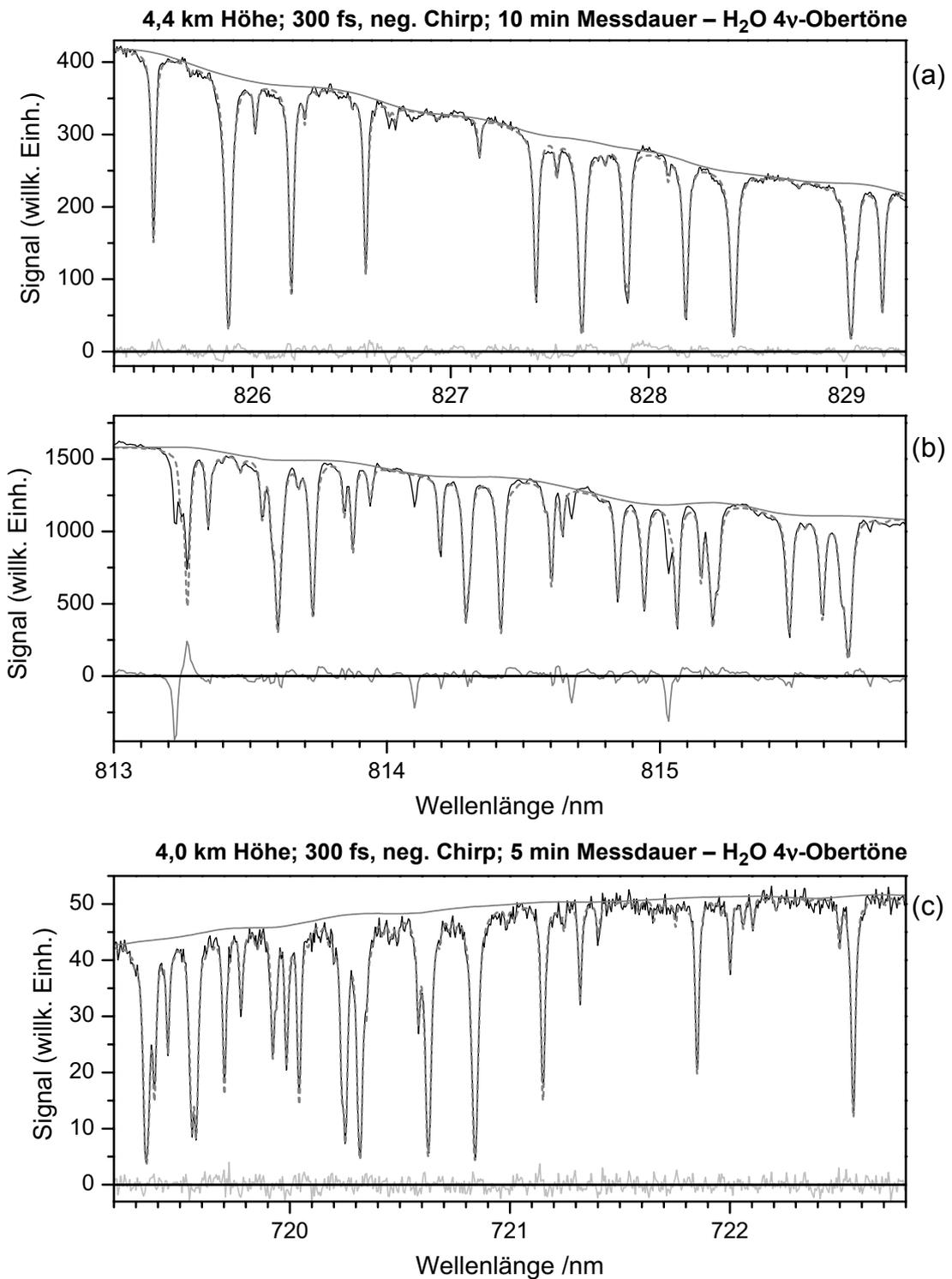
**Bild 4-6.** Vergleich der Wettersondendaten aus Meiningen (12.03.2002, 24:00 MEZ) mit dem Standardtemperaturverlauf ausgehend von der Außentemperatur während des Experiments (282 K) bzw. der Fitttemperatur 287 K. Die Höhenwerte aus Meiningen (450 m ü. NN.) sind auf die Höhe über der TLS (341 m ü. NN.) umgerechnet.

westlich von Tautenburg) heranzieht (Zeitraum des Experiments 22:00 bis 02:00, der Messungen in Bild 4-5 (a,b) 23:00, (c) 22:15). Der Vergleich in Bild 4-6 soll nur zeigen, dass die ermittelte Temperatur als Referenzwert für einen Standardverlauf realistisch ist, da in der Region während der Messnacht eine Warmluftschicht auftrat (man beachte, dass die unteren 2,5 km der Atmosphäre knapp 70% der Luftmasse der unteren 5 km beinhalten).

Zusammenfassend kann man  $T_b = (287 \pm 1)$  K und  $h_{SCG} = (550 \pm 100)$  m als Referenzwerte festhalten. Der Höhenwert ist hier – ähnlich wie  $T_b$  – ein „technischer Wert“ des Fits und hat als solcher einen geringeren Fehler als der oben genannte. Zur sicheren und genauen Bestimmung der „realen“ SCG-Höhe ist diese Auswertung nicht geeignet, da die Länge des abzuziehenden ersten Stücks des Absorptionswegs von den Annahmen bei den Atmosphären- und Fitparametern abhängt.

Zum Vergleich wurde eine Messung von 01:00 Uhr, bei der die Pulsparameter mit 600 fs und positivem Chirp sehr verschieden waren, entsprechend wie in Bild 4-5 (a,b) ausgewertet. Das Licht wurde bei dieser Messung aus 5,4 km Höhe zurückgestreut. Die Außentemperatur war zwischenzeitlich auf 8°C gesunken.  $T_b = 287$  K liefert hier eine SCG-Höhe von  $(100 \pm 100)$  m, bei  $T_b = 286$  K erhält man  $(250 \pm 100)$  m. Allerdings sind dies nicht Ergebnisse eines absoluten Fits beider Parameter. Versucht man einen solchen, so erhält man wegen verschiedener Fehlerquellen (schwankender Untergrund, schlechteres Signal-zu-Rauschverhältnis als bei den Messungen in Bild 4-5) je nach spektralem Ausschnitt SCG-Höhen zwischen 0 m und 1000 m, wobei die Temperatur aber zum Teil unrealistische Werte annimmt. Eine SCG-Höhe von 100 m bis 200 m bei verlängerten Pulsen mit positivem Chirp ist nach den Ergebnissen aus Abschnitt 3.3.3 sinnvoll.

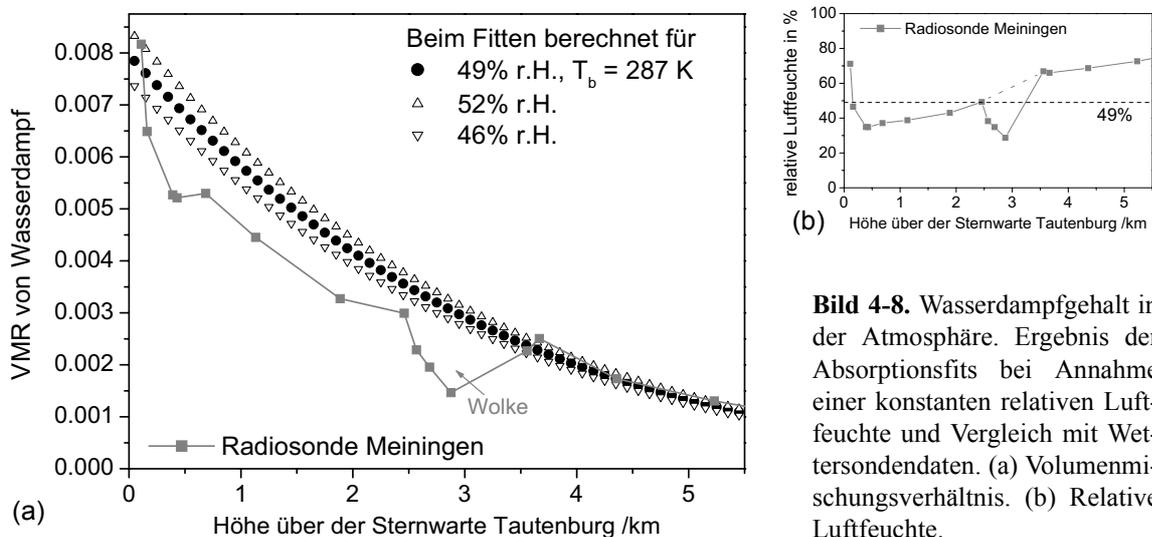
Bei der Auswertung der **Absorption durch Wasserdampf** wurden nun die Referenzwerte für Temperatur und SCG-Höhe aus der Sauerstoffauswertung verwendet, und zwar jeweils die zur selben Messung gehörenden. In Bild 4-7 sind Beispiele von Fits in verschiedenen



**Bild 4-7.** Wasserdampfabsorption auf dem Lichtweg bis in 4,4 km bzw. 4,0 km Höhe und zurück, abzüglich der SCG-Höhe. Messungen (a,b) bzw. (c) und Auswertung jeweils analog zu Bild 4-5. Ausschnitte aus größeren Absorptionsbereichen (siehe Übersicht in Bild 2-13). (a,b) Überlagerung der Banden verschiedener Schwingungsanregungen, hauptsächlich  $(211)\leftarrow(000)$ . (c) Schwingungsanregung  $(301)\leftarrow(000)$ . Ursache des Unterschieds von ca. 100 nm ist die etwa halb so große Energie der Grundschwingung  $\nu_2$  (Biegung) des H<sub>2</sub>O-Moleküls im Vergleich zu den anderen beiden (Streckung der O-H-Bindungen).

spektralen Ausschnitten gezeigt. Die zwei dargestellten Messungen (a, b) und (c) sind dieselben wie in Bild 4-5 ( $O_2A$  und  $H_2O$ -(211) im IR-Kanal bzw.  $O_2B$  und  $H_2O$ -(301) im VIS-Kanal). Bei der Variation der Konzentration (VMR) des Wasserdampfs muss ähnlich wie bei Druck und Temperatur eine Vorannahme gemacht werden. Wegen der mit der Höhe abfallenden Temperatur nimmt auch  $\tilde{N}_{H_2O}$  stark ab (nicht nur der absolute Partialdruck  $p_{H_2O} = p\tilde{N}_{H_2O} = N_{H_2O}kT$ ). Am ehesten konstant ist die relative Luftfeuchtigkeit (r.H.). Daher wurde sie als Fitvariable verwendet, wobei jeweils für alle 100 m hohen Atmosphärenschichten das VMR aus Druck, Temperatur und der Dampfdruckkurve von Wasser berechnet wurde (Anhang B).

Für die SCG-Höhe 550 m und  $T_b = 287$  K liefern die Fits in Bild 4-7 die relative Luftfeuchte ( $49 \pm 3$  %). Der Fehler kommt aus zwei unabhängigen Quellen: der Auswertung in verschiedenen spektralen Ausschnitten der beiden Messungen und der Unsicherheit von  $h_{SCG}$  ( $\pm 100$  m entspricht ca.  $\pm 1,2$  % r.H.). Die Variation der Temperatur um  $\pm 1$  K führt beim Fit zu  $\pm 3,3$  % r.H. Da sich diese beiden Abweichungen bei der Umrechnung in VMR genau kompensieren, kann man die Temperatur bei der Fehlerabschätzung der VMR (in Bild 4-8 durch  $\Delta$  und  $\nabla$  gekennzeichnet) ausklammern. Das berechnete VMR von Wasserdampf liegt im Mittel etwas über den Wettersondendaten aus Meiningen – dies gilt in gleicher Weise für den absoluten Wasserdampfgehalt, da die Luftdichte (v.a. der Druck) in beiden Fällen annähernd gleich ist. (In 3 km Höhe lag vermutlich eine Wolkenschicht über Meiningen. In Wolken messen Radiosonden häufig fehlerhafte Taupunktwerte.) Bei der relativen Feuchte stimmt das Ergebnis von 49% eher mit dem Mittelwert der Sonde bis ca. 4 km überein (Bild 4-8 b). Dies kann so verstanden werden, dass die r.H. in der Region



**Bild 4-8.** Wasserdampfgehalt in der Atmosphäre. Ergebnis der Absorptionsfits bei Annahme einer konstanten relativen Luftfeuchte und Vergleich mit Wettersondendaten. (a) Volumenmischungsverhältnis. (b) Relative Luftfeuchte.

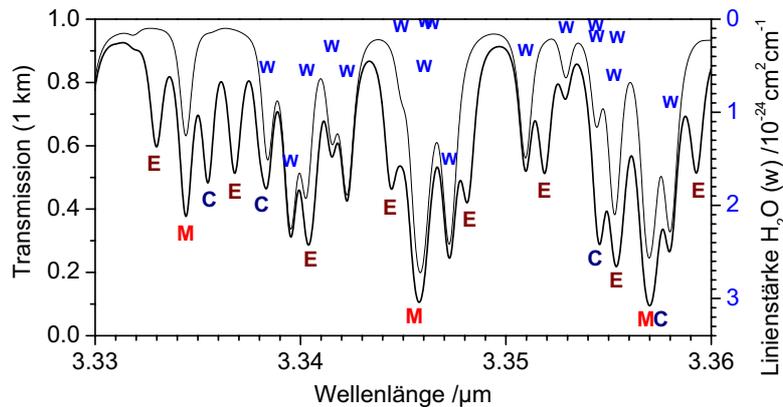
während der Nacht etwa konstant war, die Temperaturen über der Sternwarte aber etwas höher waren als beim Sondenaufstieg in Meiningen (vergleiche Bild 4-6). Dies hat eine größere absolute Feuchte (VMR) zur Folge.

Die 5,4km-Messung (positiver Chirp) liefert im Mittel 50% r.H. Die Tendenz zu etwas höheren Werten als bei Messungen bis 4 km oder 4,4 km passt zu den Sondendaten (Bild 4-8 b). Im Prinzip kann die **lokale Konzentration** zwischen 4,4 km und 5,4 km differentiell bestimmt werden, der Unterschied, der im Bereich des Fehlers liegt, ist aber zu gering. Das Ergebnis bestätigt daher lediglich die Gültigkeit der Annahmen auch für den oberen Kilometer.

Wenn ein reines Wasserabsorptionsspektrum ein geringes Rauschen hat und geringe Auswertefehler auftreten (z.B. Vermeidung des Verbreiterungsfehlers durch sehr hohe Auflösung) kann man im Prinzip auch die Temperatur gleichzeitig mit  $N_{\text{H}_2\text{O}}$  fitten, da sie einen Einfluss auf  $\sigma(\lambda)$  hat. In der Praxis wird dies aber selten mit großer Genauigkeit möglich sein, da wie gesehen Korrelationen zwischen den Fitparametern auftreten. In der Möglichkeit ein **Referenzgas** (Sauerstoff) mit **bekannter Konzentration** messen zu können liegt also ein großer Vorteil des Weißlicht-Lidar.

Obwohl ein absolut exakter Fit nicht möglich ist, zeigt sich in Bild 4-7 eine bemerkenswerte Übereinstimmung von Messung und Rechnung. Die Spitzen im Residuum bei Fit (b) sind eindeutig Signaturen von Linien. Diese fehlen in HITRAN (bzw. in einem Fall ist die Linienstärke in der Datenbank zu groß). Weitere Linien dieser Art wurden aber im gesamten Messbereich nicht gefunden. Die Linie bei 814,1 nm hat einen maximalen Absorptionsquerschnitt von  $4 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ . In der Messung sind aber Linien mit  $\sigma \approx 2 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$  noch deutlich sichtbar. Man bedenke, dass 9 km für Wasserdampf, der nicht in hoher Konzentration präpariert werden kann, eine sehr lange Absorptionsstrecke darstellen. Eine vergleichbare Strecke ist im Labor nur mit viel Aufwand zu realisieren (Mehrfachreflexion).

**Wasserdampf spielt in der Atmosphäre** eine entscheidende Rolle für das Wetter, den Strahlungshaushalt der Erde (Treibhauseffekt, Klima), aber auch in physikalischen und chemischen Prozessen. An der präzisen Fernerkundung seiner Konzentration besteht durchaus Interesse [Ehret et al., 1993; Wulfmeyer und Bösenberg, 1998]. Bei der Messung mit DIAL gibt es aber neben dem angesprochenen Problem der schmalen Absorptionslinien bei Verwendung monochromatischer Laser eine weitere Schwierigkeit. Eine einzelne Absorptionslinie ist hinsichtlich ihrer Stärke nur für einen bestimmten Mengenbereich des Absorbergases (abhängig von VMR, Luftdruck, d.h. Höhe, und Absorptionsstrecke) geeignet, da sie sich außerhalb davon entweder zu wenig vom Rauschen abhebt



**Bild 4-9.** Simulierte Weißlicht-Lidar-Messung mit (erhöhtem) Auftreten von Ethan (E, 0,5 ppm), Methan (M, 5 ppm) und Chlorwasserstoff (C, 1 ppm) auf einer Strecke bis  $r = 500$  m. Dünne Linie: „saubere“ Luft, 0,3% H<sub>2</sub>O (w: Lage und Stärke der Linien  $> 2 \cdot 10^{-26} \text{ cm}^2 \text{ cm}^{-1}$ ) und 1,7 ppm CH<sub>4</sub>. Auflösung 0,5 nm.

oder in Sättigung befindet. Solche Probleme treten beim fs-Weißlicht-Lidar nicht auf. Die Messung muss noch nicht einmal spektral genau kalibriert sein.

Im Laborversuch (Abschnitt 2.4.1) konnte ein weiteres wichtiges Atmosphärgas, Methan (CH<sub>4</sub>) bei etwa 1,6 μm gemessen werden. Es ist im Wesentlichen eine technische Herausforderung auf Seiten der Detektion, diese Messung unter realen Bedingungen in der Atmosphäre zu wiederholen. Zur Zeit besteht noch ein Mangel an schnellen Mehrkanal-detektoren für IR-Licht. In naher Zukunft ist aber mit Fortschritten auf diesem Gebiet zu rechnen.

Aus den hier präsentierten Auswertungen kann man folgern, dass es kein Problem darstellt im IR **mehrere Gase gleichzeitig** zu messen, auch wenn ihre Banden überlappen. Unter Umständen ist die Überlappung sogar förderlich, indem sie die Messung vereinfacht und die Genauigkeit erhöht. In Bild 4-9 ist eine simulierte Weißlicht-Lidar-Messung für ein Schadstoffszenario auf einer Strecke bis zu einem 500 m entfernten Punkt dargestellt. Der spektrale Ausschnitt befindet sich am Rand eines der so genannten atmosphärischen Fenster (siehe Bild 4-4). Für das Vergleichsspektrum (dünne Linie), das gewissermaßen die Standardatmosphäre wiedergibt, wurde die bekannte Hintergrundkonzentration von Methan ( $1,7 \cdot 10^{-6} = 1,7 \text{ ppm}$ ), das in der Rangliste der Treibhausgase gleich nach CO<sub>2</sub> kommt, und 0,3% (VMR) Wasserdampf eingestellt. Beide Spektren beinhalten eine Geräteverbreiterung von 0,5 nm, um die Auflösung eines typischen IR-Spektrometers zu simulieren. Die erhöhte Konzentration der Kohlenwasserstoffe im Fall der Luftverschmutzung könnte eine unsaubere Verbrennung von Treibstoff als Ursache haben, bei der Ethan (C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>) typischerweise mit einem Sechstel der CH<sub>4</sub>-Menge auftritt [Measures, 1984]. Ethan

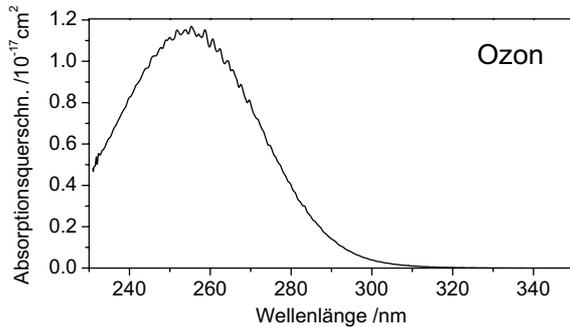
hat im Gegensatz zu Methan keine biologischen Quellen. Es wird daher bei der Förderung fossiler Brennstoffe als Indikator optisch gemessen (Quelle: shell-me.com). Zusätzlich tritt Chlorwasserstoff (HCl) – ein Gas, dem Atmosphärenforscher viel Aufmerksamkeit schenken – mit 1 ppm auf (typisch in einer verschmutzten Atmosphäre [Measures, 1984]). HCl kann in Reaktionsabläufen mit flüchtigen Kohlenwasserstoffen (VOC) wie Ethan eine Rolle spielen [Rudic et al., 2002]. An der Messung der VOC besteht großes Interesse, da sie Mitverursacher der sommerlichen Ozonbelastung sind. Seit einiger Zeit wird versucht sie mit durchstimmbaren Lasern im IR zu detektieren [Gardiner et al., 1997].

In diesem Abschnitt wurde demonstriert, dass mit dem Weißlicht-Lidar die Konzentration von Wasserdampf bzw. die mittlere relative Luftfeuchtigkeit (im Rahmen des verwendeten Atmosphärenmodells) mit einem Fehler von ungefähr 6% bestimmt werden konnte. Solch ein Grad der Genauigkeit ist bei Sauerstoff und Wasserdampf sinnvoll und wünschenswert. Wenn es aber darum geht Schadstoffe zu detektieren, d.h. zunächst ihr Vorhandensein (in erhöhter Konzentration), ist auch ein weit größerer Fehler akzeptabel. Grundsätzlich verschlechtern sich die Messbedingungen je weiter man ins IR vordringt, nicht nur aus den genannten technischen Gründen, sondern natürlich auch wegen der abnehmenden Weißlichtintensität und des geringeren Rückstreuoeffizienten  $\beta$  der Luft (gilt für Moleküle, weniger für Aerosol). Daher ist es für die Zukunft eine außerordentlich interessante Aufgabe die **erhöhte Rückstreuung** [Yu et al., 2001] von **weit entfernten Filamenten** nachzuweisen und für Lidar zu nutzen.

#### 4.2.2 Breitbandabsorptions-Lidar

Bei Absorptionsbanden im UV zeigen die Spektren weder einzelne Linien noch liegen Absorptionsdaten in Form einzelner Linien vor. Wie hier im Fall von **Ozon** verwendet man zur Auswertung Absorptionsquerschnittsdaten aus präzisen Labormessungen (Bild 4-10). Die Temperaturabhängigkeit von  $\sigma(\lambda)$  ist bei den Bedingungen und der Genauigkeit der Messungen, um die es hier geht, absolut vernachlässigbar. Somit lassen sich aus den dargestellten Daten direkt der Absorptionskoeffizient und die Absorption nach den Gleichungen 4-10 und 4-9 berechnen.

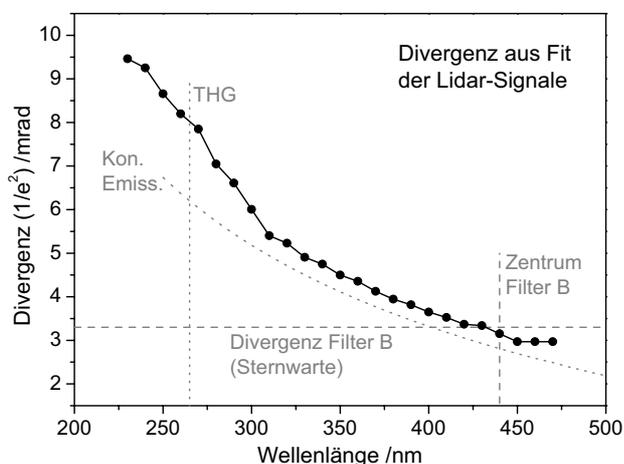
Bei den UV-Lidar-Messungen in Lyon (Abschnitt 2.2) wurde schon beim Betrachten der einzelnen Signale vermutet, dass eine **wellenlängenabhängige Divergenz** des Strahls vorlag (siehe Bild 2-16). Dies ist auch nach den Erkenntnissen aus Abschnitt 3.3.4 zu erwarten, speziell für den Fall, dass man den Strahl zum Zweck einer effizienten Erzeugung von UV-Licht fokussiert (in Lyon  $f = 18$  m). Da hierbei die Strahldivergenz die Größenord-



**Bild 4-10.** Absorptionsquerschnitt von Ozon im UV bei 293 K. Daten aus [Burrows et al., 1999].

nung des Sichtfelds (FOV) des Lidar-Teleskops von  $1,7 \times 8,3$  mrad erreicht oder sogar übersteigt und man die Lidar-Signale in geringen Höhen auswerten möchte (die Reichweite ist wegen der starken Absorption und Extinktion ohnehin nicht groß), muss die geometrische Kompression in die Auswertung einbezogen werden.

Ein Fit der geometrischen Kompression der Lidar-Signale auf den unteren 300 m – unter der Annahme von Gauß-Profilen bei jeder Wellenlänge – liefert die in Bild 4-11 dargestellte Divergenzkurve. Die Bodenkonzentration von Ozon wurde hierbei berücksichtigt, hat aber keinen großen Einfluss auf den Fit. Der Strahl ist dabei um 0,8 mrad zur Teleskopachse geneigt (bei dem Abstand zwischen Laser und Teleskop von 80 cm entspricht dies einer Kreuzung der Achsen in 1 km Höhe). An der Wellenlänge, die dem Zentrum der B-Filterbande entspricht, stimmt die Kurve sehr gut mit dem Ergebnis aus Abschnitt 3.3.4 überein (Wert für  $f=18$  m in Bild 3-34). Zwischen 300 nm und 450 nm ist ein konstanter Abstand zur Winkelkurve der konischen Emission gegeben, der durch Faltung des Einzel-filamentprofils mit der Divergenz des Filamentbündels bei Fokussierung entsteht (siehe Bilder 3-19 und 3-20). Die Abweichung von diesem Verhalten zwischen 240 nm und

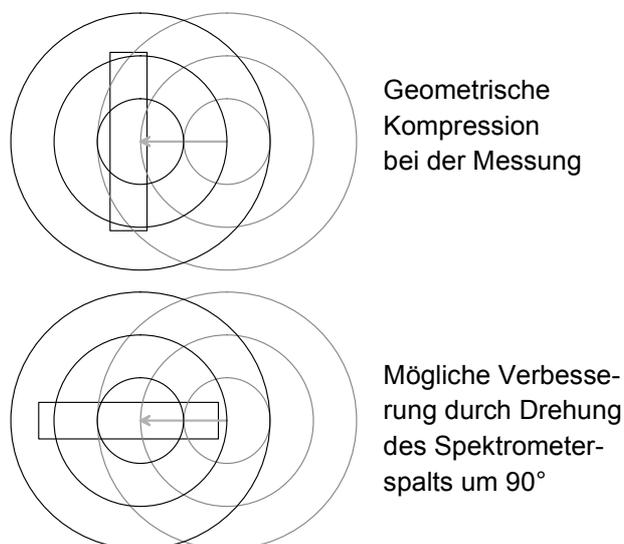


**Bild 4-11.** Wellenlängenabhängige Divergenz des fokussierten Strahls ( $f=18$  m) bestimmt durch Fit der geometrischen Kompression. Zum Vergleich sind der entsprechende Wert aus Bild 3-18 (3,3 mrad) für Filter B (390–480 nm), die CE-Kurve aus Bild 3-34 und die THG-Wellenlänge eingezeichnet.

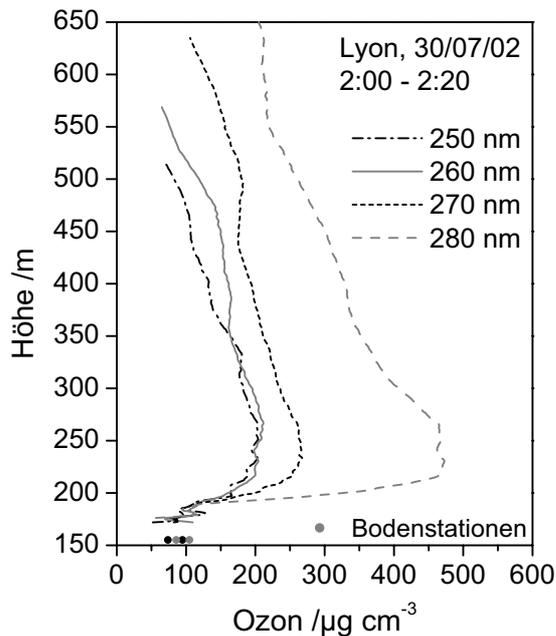
300 nm könnte ein Anzeichen für die Erzeugung einer rein konischen dritten Harmonischen sein, die in Abschnitt 3.5.2 gezeigt worden ist. Diese würde in der Summe mit dem Weißlicht in diesem Spektralbereich eine Überhöhung der scheinbaren (gaußschen) Divergenz bewirken. Wie realistisch die mit der Annahme gaußförmiger Profile bestimmte spektrale Strahlform ist, bleibt schwer zu beurteilen. Sie muss hier aber in die Auswertung einbezogen werden. Am sinnvollsten wäre es, bei zukünftigen Messungen ihren Einfluss auf die geometrische Kompression und damit die Signale zu reduzieren.

In Bild 4-12 (oben) ist die Situation der geometrischen Kompression bei der UV-Lidar-Messung angedeutet. (Man beachte, dass die relative Bewegung des Strahlprofils, die eine Folge des Neigungswinkels und vor allem der Divergenz selbst ist, sich in dieser Ansicht mit zunehmender Höhe stark verringert. Die schwarzen Ringe entsprechen 600 m, bei 1000 m liegen sie konzentrisch mit dem Spalt.) Man erkennt, dass diese Lage des FOV ungünstig ist, auch wenn die Größe der Ringe etwas täuschen kann (die größte Lichtmenge befindet sich in der Mitte, z.B. entspricht der innere Ring der vollen HWB bei einer Divergenz von 3,4 mrad, also etwa dem Wert für 400 nm). Durch bloßes Drehen des Spektrometers, dessen Spalt in der Fokalebene des Teleskops lag, hätte man die wellenlängenabhängige Variation der geometrischen Kompression und damit die Unsicherheit deutlich verringern können (Bild 4-12 unten). Außerdem wären alle Wellenlängen schneller in das FOV eingetreten.

Die Größe der Divergenz des Strahls – besonders des UV-Anteils –, die geometrische Kompression und die Unsicherheit über die genaue spektrale Verteilung im Strahl verursachen erhebliche Probleme für die Auswertung. Im Prinzip wären die Messungen aus



**Bild 4-12.** Maßstabsgenauer Vergleich des Strahlprofils (Ringe bei 2, 4 und 6 mrad Halbwinkel) mit dem FOV des Teleskops ( $1,7 \times 8,3$  mrad, gegeben durch den  $2 \times 10$  mm großen Spektrometerspalt). Übergang von ca. 150 m zu 600 m Höhe (Strahl 0,8 mrad zum Teleskop geneigt, konzentrische Lage der Ringe mit rechteckigem FOV bei 1000 m).



**Bild 4-13.** Auswertung der Ozonkonzentration aus Lidar-Signalen bei verschiedenen Wellenlängen ohne Aerosolkorrektur. Die jeweilige Reichweite hängt vom Signal-zu-Rauschverhältnis der Lidar-Signale ab (vgl. Bild 2-16). Die Bodenwerte (schwarze und graue Punkte) stammen von zwei Messstationen (COPARLY), die niedrigeren von 2:00 Uhr, die höheren von 3:00 Uhr.

Abschnitt 2.2 durch einen Multi-Fit der Ozonkonzentration (unter Verwendung der bekannten Rayleigh-Größen) aus den Lidar-Signalen aller Wellenlängen auszuwerten, indem die Aerosolparameter gleichzeitig angepasst würden. Dabei wären zuerst Anfangsbedingungen der Aerosolrückstreuung  $\beta_{\text{aer}}(h)$  und -extinktion  $\alpha_{\text{aer}}(h)$  aus Signalen zu bestimmen, deren Wellenlänge außerhalb der Ozonbande liegt. Der Multi-Fit würde also eine vollständige Berechnung der Transmission bei jeder Wellenlänge beinhalten. Die absolute Intensität der Signale in Relation zueinander spielt dabei keine Rolle. Das heißt, dass spektrale und zeitliche Veränderungen der Laserleistung oder der Detektionseffizienz sich nicht auswirken. (Alternativ könnte eine Multi-DIAL-Auswertung mit mehreren Wellenlängenpaaren durchgeführt werden, wobei gegenüber einer normalen DIAL-Messung die Aerosolkorrektur verbessert werden könnte.) Ein Multi-Fit unter Einbeziehung der Aerosole hat sich hier aber wegen der geschilderten Probleme als bisher nicht durchführbar erwiesen. Daher wird hier eine exemplarische Auswertung einzelner Signale aus der 2:00 Uhr-Messung, die auch für die Darstellungen in Abschnitt 2.2 verwendet wurde, ohne Berücksichtigung des Aerosols gezeigt. Bei den Wellenlängen mit der stärksten Ozonabsorption ist der Fehler aus der Vernachlässigung von  $\alpha_{\text{aer}}$  klein, dafür ist die Reichweite gering. In den unteren 600 m ist außerdem nicht mit einer großen Variation von  $\beta_{\text{aer}}$  zu rechnen, die die Auswertung der Absorption verfälschen würde.

Bild 4-13 zeigt das Ergebnis für vier Wellenlängen bis etwa 600 m. Bei 270 nm kommt möglicherweise die besondere Problematik der geometrischen Kompression in Verbindung

mit der THG zum tragen. Ein Herauslaufen der dritten Harmonischen aus dem FOV (vergleiche Bild 4-12 oben) würde zu einer Überschätzung der Ozonabsorption führen. Bei größeren Wellenlängen erscheint die Ozonkonzentration überhöht, da wegen des kleineren Absorptionsquerschnitts von Ozon die Aerosolextinktion das Ergebnis zunehmend verfälscht. Am ehesten kann man also den Konzentrationsprofilen aus den Signalen bei 250 nm und 260 nm vertrauen, allerdings weiterhin unter dem Vorbehalt eines möglichen Fehlers in der verwendeten geometrischen Kompression.

In der niedrigsten Auswertehöhe stimmen die Ergebnisse gut mit den Werten zweier nahegelegener Stationen des Lyoner Messnetzes COPARLY überein. Die Bodenkonzentration des Ozon war nach einem abendlichen Absinken auf Werte unter  $10 \mu\text{g}/\text{cm}^3$  in der Nacht wieder bis fast auf die Spitzenwerte vom Mittag ( $100$  bis  $140 \mu\text{g}/\text{cm}^3$ ) angestiegen. Es ist bekannt, dass ohne Sonneneinstrahlung die Stickoxide aus den Autoabgasen das Ozon – im umgekehrten Prozess zu seiner Erzeugung – wieder abbauen. Das am Tag produzierte Ozon kann aber in höheren Luftschichten gespeichert bleiben. Das Messergebnis in Bild 4-13 deutet darauf hin. Durch Absinken der Luftmassen könnte dann die für nachts in einem Stadtgebiet sehr hohe Konzentration eingetreten sein.

Die Qualität der hier vorgestellten UV-Lidar-Messung ist nicht befriedigend und die Auswertbarkeit entspricht nicht dem Potential des Femtosekunden-Weißlicht-Lidar. Jedoch konnten wertvolle Erfahrungen gesammelt werden, speziell zu den Besonderheiten, die aus der nichtlinearen Ausbreitung der Laserpulse folgen. Es ist klar, dass der Strahl im Sinne einer guten UV-Lichtausbeute fokussiert werden muss. Eine entsprechende Anpassung des Teleskopsichtfelds würde ein deutlich besseres Ergebnis liefern. Schon ein Drehen des Spektrometers hätte eine Verbesserung bedeutet (Bild 4-12 unten). Das FOV sollte jedoch noch weiter vergrößert werden. Dies wäre leicht zu bewerkstelligen, indem man den Spektrometerspalt nicht direkt in die Fokalebene stellt, sondern eine größere Fläche um den Fokus unter Anpassung der f-Zahl auf einen für die spektrale Auflösung ausreichend schmalen Spalt abbildet. Auf diese Weise könnten Weißlicht-Lidar-Signale nicht nur die genaue Ozonkonzentration, sondern gleichzeitig Informationen über die Aerosolverteilung liefern.

### 4.3 Aerosole

Es existieren zwei Definitionen des Begriffs „Aerosol“. Oft versteht man darunter ein Gemisch aus Gasen und darin suspendierten Partikeln, z.B. Rauch oder Sprays. Hier werden, wie in der Atmosphärenforschung üblich, die Partikel selbst Aerosole genannt. Seitdem man im 19. Jahrhundert erkannt hat, dass Wasserdampf in Luft nur bei starker Übersättigung oder bei Vorhandensein von Partikeln (Kondensationskeimen) kondensiert, kennt man die Bedeutung der Aerosole für die Wolkenbildung und den Niederschlag. Das zunehmend starke Interesse der Atmosphärenforscher an den Aerosolen begründet sich einerseits aus der Erkenntnis, dass diese in vielfacher Weise auf die Strahlungsbilanz und die chemischen Prozesse der Atmosphäre einwirken, andererseits aus dem immer noch lückenhaften Wissen über die Rolle der Aerosole. Nicht zu vergessen ist auch die Bedeutung von Aerosolen als Träger gesundheitsschädlicher Stoffe, die über die Atmung aufgenommen werden.

Eine Schwierigkeit liegt in der Vielfalt der Aerosolarten, ihrer Quellen und Senken. Global sind die wichtigsten festen Aerosolarten aus natürlichen Quellen Seesalz, Mineralstaub, Vulkanasche, Ruß aus Bränden und biogenes Material. Eine um etwa eine Größenordnung geringere Gesamtmenge ( $\sim 1$  Tg/Jahr) an Staub und Ruß emittieren die Menschen. Eine ähnliche Menge an Aerosolen entsteht jeweils aus Gasen anthropogener und natürlicher Quellen durch homogene Nukleation. Dabei handelt es sich vor allem um Sulfat und Nitrat. Während ihres Aufenthalts in der Atmosphäre – z.B. bis zur Sedimentation – mischen sich die Aerosole in der Regel mit Wasser oder werden darin gelöst (z.B. entstehen Schwefel- und Salpetersäuretröpfchen, die in der Stratosphäre eine wichtige Rolle spielen). Eine ausführliche Abhandlung zu Aerosolen in der Atmosphäre findet sich in [Immler, 1999].

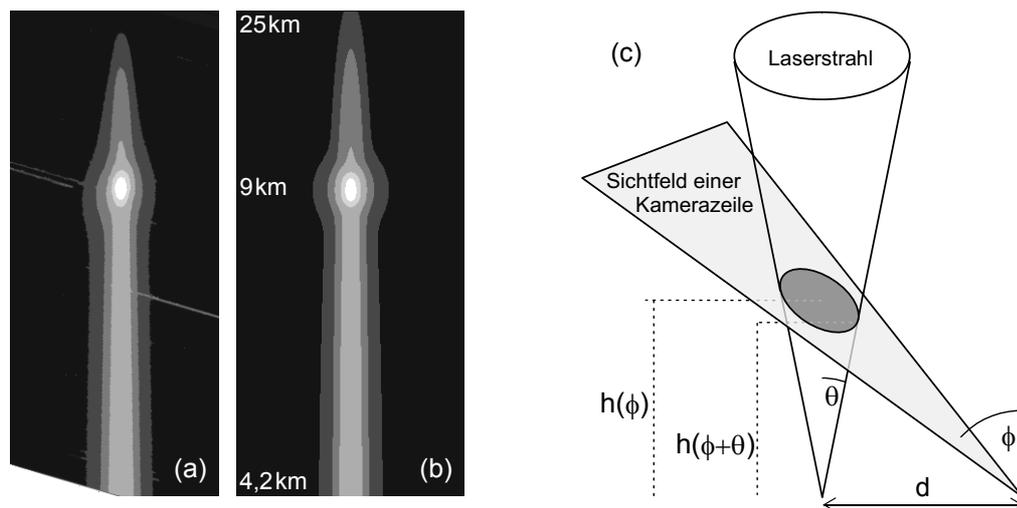
Da das feuchte Aerosol – außer im Fall von gefrorenen Partikeln – in Form von Tröpfchen vorliegt, wird allgemein bei Lidar ein Streuverhalten gemäß der Mie-Theorie für sphärische Partikel (siehe z.B. in [Bohren und Huffman, 1998]) angenommen. Für sehr kleine Tröpfchen konvergiert die Mie-Streuung gegen die Rayleigh-Streuung. Teilchen mit einigen Mikrometern Radius zeigen eine stark ausgeprägte Winkelabhängigkeit ihrer Streuung, deren genaue Form mit dem Radius, dem Brechungsindex und der Wellenlänge des Lichts variiert. Mit Mehrwellenlängen-Lidar kann man zum Teil Informationen über den Brechungsindex und die Größenverteilung der Aerosole erhalten [Stein et al. 1999]. Über die Depolarisation kann man außerdem flüssige (sphärische) von gefrorenen (kristallisierten) Teilchen unterscheiden. Üblicherweise müssen bei Lidar-Messungen aber Modellannahmen über die Eigenschaften der Aerosole gemacht werden.

Die optischen Eigenschaften der Aerosole sind von entscheidender Bedeutung für den Strahlungshaushalt der Erde. Bei Wasser spielt vor allem die Größenverteilung eine große Rolle. Das heißt, dass nicht nur die Gesamtmenge an kondensiertem  $H_2O$  zählt, sondern auch die Größe der Tröpfchen. Da dies in komplexer Wechselbeziehung zur Wärme der Atmosphäre steht, existieren noch viele offene Fragen zur Rolle der Aerosole (einschließlich aller Arten von Wolken) bei der Klimaveränderung.

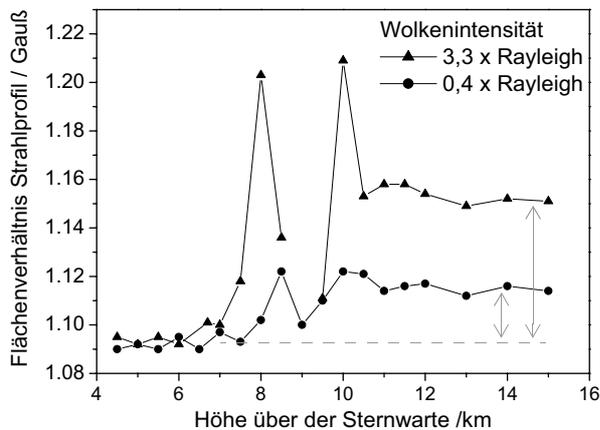
Im folgenden Abschnitt werden Aspekte der Eigenschaften von Wolken bzw. Hochnebel-schichten, d.h. Streuverhalten und Tröpfchengröße, untersucht, über die aus den Abbildungen des Teramobile-Laserstrahls (Abschnitt 2.1.3) Informationen zu gewinnen sind. Abschnitt 4.3.2 behandelt in kurzer Form erste Ansätze zur Bestimmung der Aerosolsubstanz aus der nichtlinearen Wechselwirkung mit Femtosekundenpulsen.

### 4.3.1 Multispektrale Messung von Mehrfachstreuung

Bei Lidar geht man – zumindest im Fall überwiegender Rayleigh-Streuung – davon aus, dass ein Photon, das die Detektion erreicht, nur einmal in der Luft gestreut worden ist. Denn wegen der relativ großen mittleren freien Weglänge ist die Wahrscheinlichkeit des Umwegs über ein zweites Streuzentrum innerhalb des Sichtfelds des Teleskops sehr gering (es sei denn, der Winkel der ersten Ablenkung ist sehr klein, was gewissermaßen nicht regi-



**Bild 4-14.** Simulation eines Streubildes. (a) Abbildung des Laserstrahls in der I-Filterbande von 4,2 bis 25 km (200 fs, 60 s Belichtung). (b) Berechnetes Bild unter Verwendung der Standardatmosphärendichte und einer homogenen Wolkenschicht in 8,6 bis 9,4 km Höhe mit angepasster Rückstreuintensität (relative Graustufenwerte bei beiden gleich). (c) Prinzip der Berechnung: Verwendung der Beziehung zwischen Blickwinkel  $\phi$  (entspricht Bildachse) und Höhe. Die Lichtmenge auf jedem Bildpunkt folgt aus einer Integration über ein großes Höhenintervall.  $\phi$  und  $\theta$  sind grundsätzlich kleine Winkel, daher ist  $h = d/(\phi + \theta)$ .

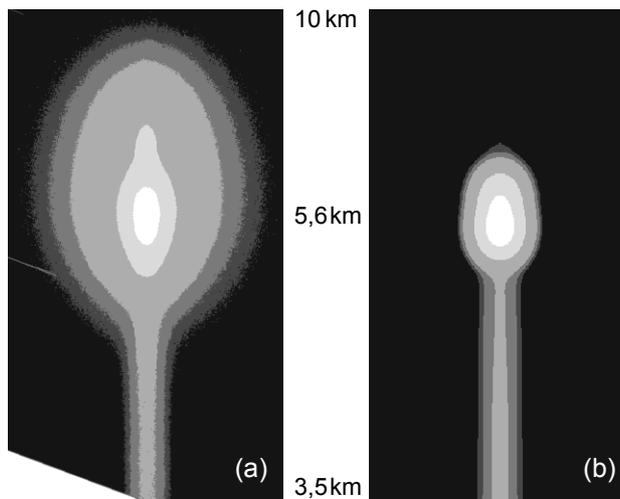


**Bild 4-15.** Veränderung des Strahlprofils durch Mehrfachstreuung beim Passieren einer Zirruswolke. Zwei Fälle: optisch dickere Wolke (Auswertung von Bild 4-14 (a), Wert am Maximum fehlt wegen Sättigung) und optisch dünnere (gleiche Laserparameter). Dargestellt ist das Verhältnis der Profilfläche zur Fläche einer angepassten Gauß-Kurve. In Nähe der Wolke verfälscht die Überlagerung durch das 2D-Wolkenbild das Ergebnis.

striert wird). In Nebel und Wolken spielt Mehrfachstreuung (MS) aber eine Rolle. Nachweisen kann man diesen Effekt mit *multiple-field-of-view lidar* (MFOV) [Bissonnette und Hutt, 1995; Eloranta, 1998]. Noch besser lässt er sich aber messen, wenn man den Laserstrahl auf einer hochauflösenden Kamera abbildet.

Ein erster Ansatz, um die Abbildungen aus Abschnitt 2.1.3 auf besondere Streueffekte hin zu untersuchen, ist sie zu verstehen, das heißt zu simulieren. Bild 4-14 zeigt am Beispiel einer Messung in der Filterbande um die Laserwellenlänge, mit welcher Genauigkeit man das Strahlbild nachbilden kann, wenn man den Vorgang der Bildaufnahme geometrisch exakt berechnet (Bild 4-14 c). Dabei wurden Standardannahmen über Streuung und Extinktion der Atmosphäre gemacht (ohne Extinktion und Abnahme der Luftdichte wäre die Bildintensität aus geometrischen Gründen über alle Blickwinkel konstant, siehe Anhang A) und die Aerosolschicht (hier **Zirruswolke**) in ihrer Ausdehnung und Streuintensität gefittet. Der leichte Unterschied beim Abklingen der Intensität in großen Höhen liegt vermutlich daran, dass beim Experiment der Strahl nach zwischenzeitlicher Benutzung des fokussierenden Sendeteleskops nicht wieder exakt auf Vertikalität justiert wurde, was einen Höhenfehler erzeugt. (Alle in den vorigen Abschnitten verwendeten Bilder von unfokussierten Strahlen stammten aus Messungen, bei denen nach der Justage nur die Kompressoreinstellung verändert wurde.) Aufgrund der Ähnlichkeit von realem und ohne MS gerechnetem Bild kann man hier nicht eindeutig auf MS der Wolke schließen. Nur direkt über der Wolke scheint das Strahlprofil der Messung etwas breitere Schultern zu haben.

Um dies genauer zu beleuchten, wurden die Strahlprofile in verschiedenen Höhen mit einer Gauß-Kurve verglichen, die mit fester Winkelbreite (Strahldivergenz) jeweils auf das Maximum normiert wurde (siehe als Beispiel Bild 3-16 rechts). Das Verhältnis der Kur-



**Bild 4-16.** Simulation (wie in Bild 4-14) eines Strahls, der in einer Wolke (in (b) homogen zwischen 5,3 und 6 km) weitgehend ausgelöscht wird. (a) Messung mit RG-Filter (840–940nm). Das Anfangsprofil ist eine reine Gaußkurve. Die Graustufenübergänge sind 50%, 10%, 0,8%, 0,4% und 0,2% des Streumaximums.

venflächen ist in Bild 4-15 dargestellt, zum einen für die Abbildung 4-14 (a) (mit einem Rückstreuverhältnis  $[\beta_{\text{aer}} + \beta_{\text{mol}}]/\beta_{\text{mol}}$  von 4,3), zum anderen für eine Messung mit einer dünneren Wolke (Rückstreuverhältnis 1,4), die wenige Minuten zuvor bei gleichen Parametern durchgeführt wurde. Da das Flächenverhältnis am Anfang schon deutlich größer als eins ist, muss der Strahl schon eine Wolken- oder Nebelschicht unterhalb von 4 km passiert haben. (Die Schultern des Anfangsprofils wurden bei der Bildsimulation durch Addition einer zweiten breiteren Gaußkurve angepasst.) Der eindeutige Vorher-Nachhereffekt in Bild 4-15 ist ein Nachweis für eine Veränderung des Strahlprofils durch MS im Zirrus.

Betrachtet man nun den Fall einer **Wolke bei 5 km bis 6 km** mit einer viel größeren optischen Dicke (maximales Rückstreuverhältnis von ca. 90), ergibt sich ein völlig anderes Bild. Der Vergleich der Messung mit der Simulation zeigt starke MS im Rückstreuverhalten der Wolke (Bild 4-16). Dieses Ergebnis ist eindeutig, obwohl kein großer Aufwand bei der Nachbildung der vertikalen Ausdehnung und der Struktur der Wolkenschicht betrieben wurde. Entscheidend ist die gleichzeitige Anpassung des Anfangsprofils – hier in guter Näherung eine Gauß-Kurve, was zeigt, dass das Anfangsprofil im obigen Fall wirklich auf Streuung zurückzuführen ist – und des transversalen Halbwerts der Wolkenstreuintensität (Rand der weißen Fläche).

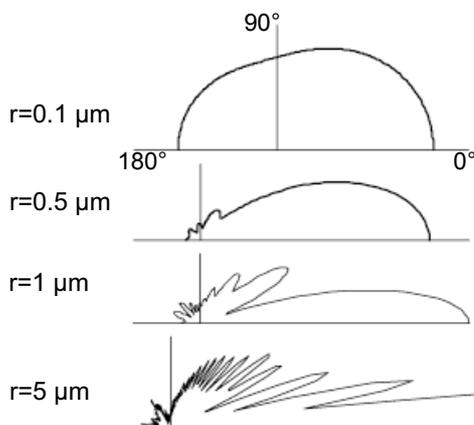
Die Betrachtung der Bilder zeigt deutlich die Spuren der MS, jedoch nur qualitativ. Eine quantitative Analyse wurde in Form des Vorher-Nachhereffekts präsentiert. Diese würde – bei Auswertung mehrerer Winkelintervalle – im Prinzip der bekannten MFOV-Lidar-Methode ähneln. Allerdings ist die Aufnahme von Bildern und deren spätere Auswertung sicherer als die Einteilung des Empfangsteleskops in wenige (z.B. drei bis fünf) Sektoren.

Um nun die Bilder bzw. die aus ihnen gewonnenen Strahlprofile genauer auswerten zu können, muss die Mehrfachstreuung der Wolkentröpfchen simuliert werden. Die hier verwendeten Messungen stammen vom 6. Februar 2002, an dem es mit  $12^{\circ}\text{C}$  recht warm war. Zur nächtlichen Messzeit lagen die Temperaturen noch bei über  $5^{\circ}\text{C}$ . Daher kann man davon ausgehen, dass die Wolken in 5 km bis 6 km Höhe größtenteils flüssig waren. (Radiosondendaten bestätigen, dass die Temperaturen in der Wolkenhöhe etwa bei  $-20^{\circ}\text{C}$  bis  $-25^{\circ}\text{C}$  lagen; der ungefähre Grenzwert für reine Eiswolken liegt bei  $-35^{\circ}\text{C}$ .) Nach der Mie-Theorie zeigt der **winkelabhängige Streuquerschnitt von sphärischen Partikeln**, die etwas größer als die Wellenlänge des Lichts sind, ausgeprägte Strukturen, die vom Verhältnis aus Wellenlänge und Radius sowie dem Brechungsindex abhängen. Ein Algorithmus zur Berechnung der Mie-Streuung findet sich in [Toon und Ackerman, 1981]. Bild 4-17 zeigt Beispiele für das berechnete Streuverhalten von 633nm-Licht an Wassertropfen. Bei sehr kleinem Radius ähnelt das Bild noch der Rayleigh-Streuung. Bei steigendem Größenparameter  $x = 2\pi r/\lambda$  dominiert die Vorwärtsstreuung und die Zahl der Maxima und Minima des Streuquerschnitts nehmen zu.

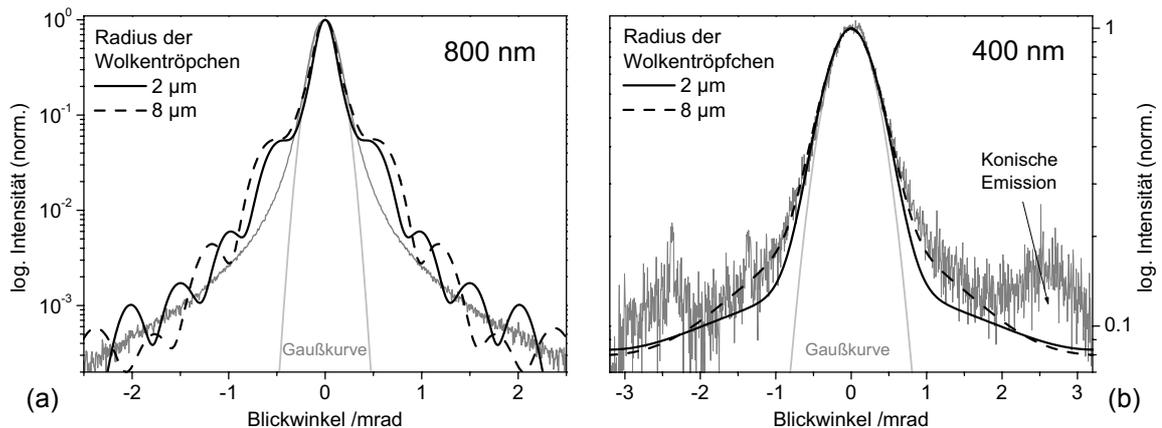
Unter Verwendung der mittleren freien Weglänge

$$L_{\text{mfw}} = 1/(2\pi N_{\text{aer}} r^2 Q_s) , \quad (4-12)$$

wobei  $N_{\text{aer}}$  die Anzahldichte der Wolkentröpfchen ist,  $r$  der Tröpfchenradius und  $Q_s$  die Streueffizienz ( $\sigma/\pi r^2$ ) aus der Mie-Theorie, als konstanter Strecke zwischen den einzelnen Streuvorgängen wurde die Winkelverteilung der **Rückstreuung nter Ordnung** berechnet.  $L_{\text{mfw}}$  lag je nach Größe der Parameter etwa im Bereich zwischen 10 m und 100 m. Die Begrenzung der Wolkenschicht, die in der untersuchten Messreihe (aus der Bild 4-16 (a) stammt) eine Dicke von etwa 600 m bis 800 m hatte (bekannt aus den begleitenden Lidar-Messungen), wurde vernachlässigt. Wegen des hohen Rücktreuverhältnisses der Wolken



**Bild 4-17.** Differentieller Streuquerschnitt  $d\sigma/d\Omega$  (Mie-Streuung) von Wassertropfen ( $n = 1,334$ ) bei der Wellenlänge 633 nm. Die bestimmende Größe ist der so genannte Größenparameter  $x = 2\pi r/\lambda$ .



**Bild 4-18.** Simulierte Mehrfachstreuung für zwei Wolkenparameterpaare –  $r = 2 \mu\text{m}$  und  $N = 7,6 \cdot 10^8 \text{ m}^{-3}$  sowie  $r = 8 \mu\text{m}$  und  $N = 2,2 \cdot 10^7 \text{ m}^{-3}$  – und Vergleich mit Schnitten durch Wolkenbilder in der I- ( $\sim 800 \text{ nm}$ ) bzw. B-Filterbände ( $\sim 400 \text{ nm}$ ). Hellgrau: Fits der gaußschen Strahlform unterhalb der Wolke. Die Simulationen in (a) und (b) unterscheiden sich in der Wellenlänge und der wellenlängenspezifischen Breite (Divergenz) des Strahls vor der Streuung in der Wolke. Die Schnitte wurden radial-senkrecht zum Strahl (Anhang A) durch die Streumaxima gelegt, einen Pixel breit bei (a), neun bei (b). Die entsprechenden Höhen sind 5,74 km bei (a) und 5,89 km bei (b). (Die Strahlbilder stammen aus derselben Messreihe wie Bild 4-16 a.)

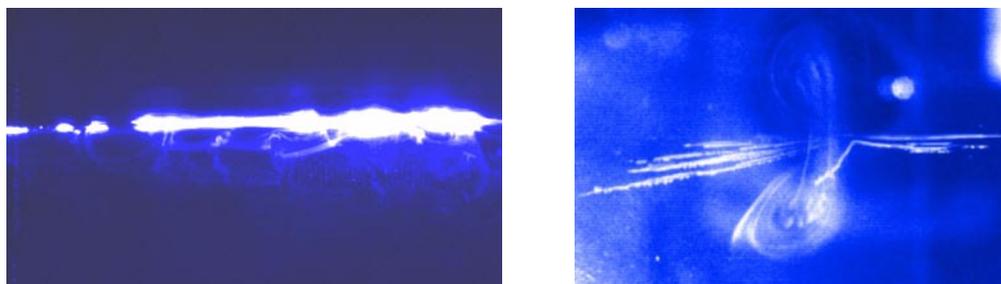
musste auch die Rayleigh-Streuung nicht berücksichtigt werden. Es hat sich gezeigt, dass eine Berechnung von jeweils mehr als vier Streuereignissen das Ergebnis nur noch unwesentlich beeinflusst, daher wurde die MS in vierter Ordnung simuliert. Andererseits erwies sich die Einbeziehung nur des ersten Streumaximums in Vor- und Rückrichtung, wie z.B. von Bissonnette [1996] vorgeschlagen, als unzureichend, da ein nicht unbedeutender Anteil seitlich gestreut wird.

Bild 4-18 zeigt Schnitte durch Wolkenstreubilder, die mit dem I-Filter ( $\lambda \approx 800 \text{ nm}$ ) und dem B-Filter ( $\lambda \approx 400 \text{ nm}$ , Zeitabstand ca. 20 min) aufgenommen wurden, sowie Berechnungen der MS mit den gleichen Wertepaaren für  $r$  und  $N_{\text{aer}}$ , wobei jeweils die bestimmte Breite der gaußschen Profile (Divergenz) unterhalb der Wolke berücksichtigt wurde. Zunächst wurden die Parameter zur Anpassung an Profil (a) variiert. Die wellige Form der Simulation ist auf die Vereinfachungen zurückzuführen: die völlig einheitliche Tropfengröße, eine scharfe Wellenlänge und die feste Weglänge zwischen den Streuvorgängen. Zwei gleich gute Fits ergeben sich für  $2 \mu\text{m}$ -Tröpfchen mit einer Dichte von  $7,6 \cdot 10^8 \text{ m}^{-3}$  und  $8 \mu\text{m}$ -Tröpfchen bei  $2,2 \cdot 10^7 \text{ m}^{-3}$ . In der logarithmischen Darstellung täuscht die Höhe der Abweichung von der Messung bei 0,7 mrad etwas. Denn sie wird im Sinne einer Oszillation um die reale Kurve durch die Abweichung im oberen Bereich kompensiert. Bei der Anwendung der gleichen Wertepaare auf den Fall des breiteren Strahls bei 400 nm ist die Übereinstimmung zwischen Rechnung und Messung genauer und der Vergleich fällt ein-

deutig zugunsten des Szenarios mit dem Tröpfchenradius  $8 \mu\text{m}$  aus. (Bei der weitaus schwächer belichteten B-Filteraufnahme wurde der Abzug der Hintergrundintensität, der sich auf die Werte im Randbereich des Strahlprofils auswirkt, optimiert. Aus dem Bild, das fast völlig von MS ausgefüllt ist, kann sie nicht absolut exakt bestimmt werden.) Die gute Übereinstimmung in Bild 4-18 (b) bestätigt die frühere Vermutung, dass es sich bei dem Licht zwischen Zentralstrahl und konischer Emission um Mehrfachstreuung handelt (vergleiche Bild 3-31).

Die hier beschriebene Simulation und Auswertung der Mehrfachstreuung befindet sich noch im Erprobungsstadium. Man kann aber feststellen, dass die hochaufgelöste und mehr als 6 mrad breite Abbildung des Strahls erhebliche Vorteile gegenüber einem herkömmlichen MFOV-Lidar bietet. Vor allem aber eröffnet erst die spektrale Breite des Femtosekunden-Weißlicht-Lidar die Möglichkeit, Wolkenparameter eindeutig zu bestimmen.

Die Anzahl und Eigenschaften von Wassertröpfchen in der Atmosphäre messen zu können, wird noch interessanter, wenn man sie selbst erzeugt. In manchen Regionen der Erde ist die Luft oft stark mit Wasserdampf übersättigt, bevor Wolken und Regen entstehen. Die **freien Ladungen** im Plasma von Femtosekunden-Laserfilamenten können als **Kondensationskeime** wirken. Dies wurde im Laborversuch in einer Nebelkammer demonstriert [Wille et al., 2001] (siehe Bild 4-19). Wenn dies auch in der Atmosphäre in entsprechender Höhe gelänge, könnte man Aussagen über das Regenpotential der Luft machen und gegebenenfalls über den Einsatz von regenfördernden Maßnahmen (z.B. Silberjodid-Partikel aus Flugzeugen) entscheiden. Zu dieser Idee ist ein Patent angemeldet worden (DE 101 50 211 C 1, 17.04.2003). Die Nutzung der nichtlinearen Ausbreitung der Femtosekunden-Pulse zur Erzeugung von Luftpartikeln stellt eine Überleitung zum folgenden Abschnitt dar.

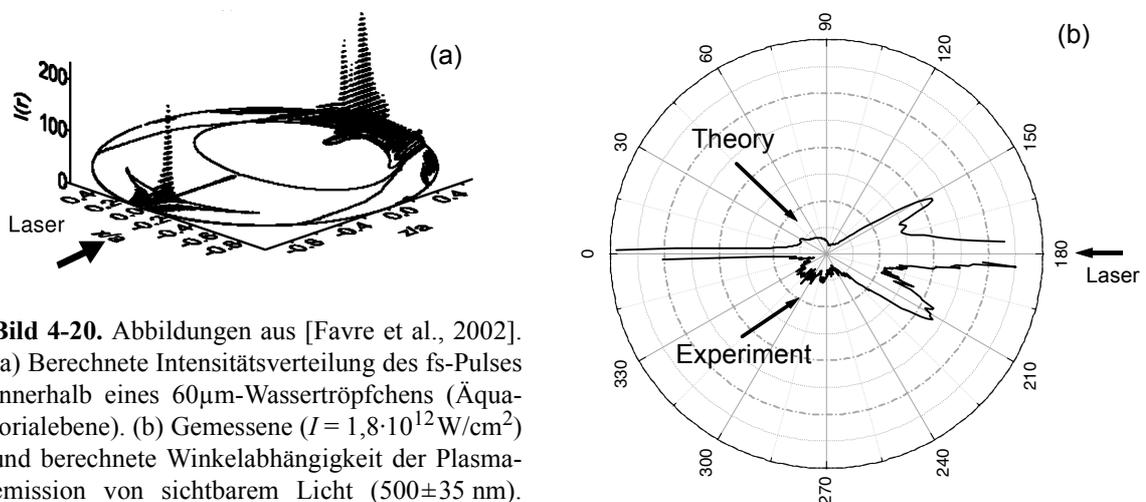


**Bild 4-19.** Kondensationsstreifen in einer Diffusionsnebelkammer erzeugt durch die Filamentierung von fs-Laserpulsen (wenige Millijoule Energie, leicht fokussiert). Rechts erkennt man mehrere Spuren aufeinanderfolgender Pulse, die durch Luftzug aufgefächert wurden, und eine Art Schockwelle. Sichtbar ist das Streulicht von einer Lampe (800 nm wurde gefiltert). Die Spuren sind viele Zentimeter lang.

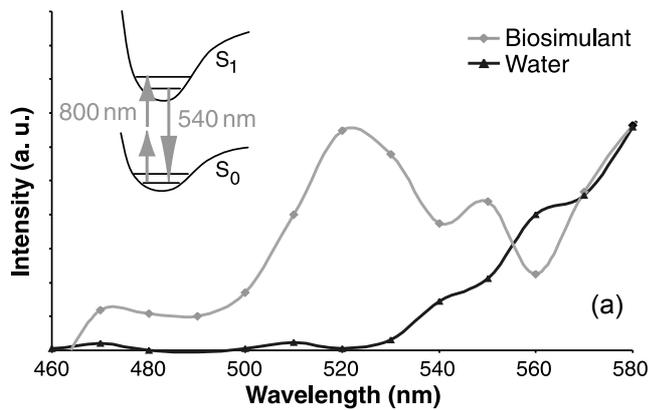
### 4.3.2 Nichtlineares Aerosol-Lidar

Die Erforschung charakteristischer Emissionseigenschaften bei der nichtlinearen Wechselwirkung von Femtosekundenpulsen mit Mikrotröpfchen eröffnet in der Laserfernerkundung neue Möglichkeiten, um weit über das bisherige Maß hinaus Informationen über die Substanz der Aerosole zu erhalten. Seit einigen Jahren werden daher in den Arbeitsgruppen von Prof. L. Wöste (Freie Universität Berlin) und Prof. J.-P. Wolf (Universität Lyon) Laborexperimente an einzelnen Tröpfchen durchgeführt [Kasparian et al., 1997; Zimmer, 2001; Favre et al., 2002; Boutou et al., 2002]. Inhalt dieser Arbeiten ist vor allem die Winkelabhängigkeit der Emission bei der Erzeugung der dritten Harmonischen (THG), der Entstehung von Weißlicht bzw. Plasmalicht (*laser induced breakdown*, LIB) und der Fluoreszenz durch Mehrphotonenanregung (MPEF). Bei diesen Experimenten werden Tröpfchen mit Durchmessern von wenigen zehn Mikrometern periodisch aus einer piezoelektrischen Spritze emittiert. Die Tropfengröße ist einstellbar und stabil und der Ausstoß exakt mit den Laserpulsen synchronisiert, so dass ein immer gleiches Aufeinandertreffen gewährleistet ist. Die verwendeten Ti:Sa-Laser liefern Pulse mit ca. 100 fs Dauer und wenigen Millijoule Energie. Die Intensität am Tropfen wird mit Fokussierlinsen reguliert.

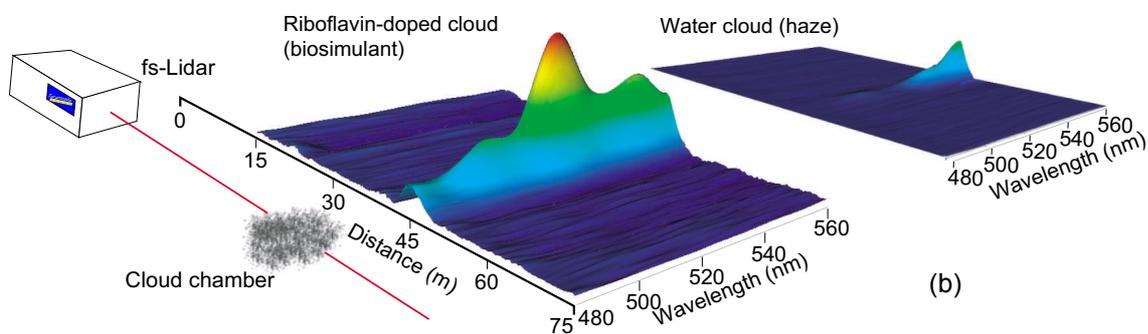
Bild 4-20 (a) zeigt die typischen scharfen Maxima der über die Zeit gemittelten Intensität innerhalb eines Tröpfchens, das mit einem gaußförmigen 100fs-Puls beschossen wird (Berechnung unter Verwendung der Mie-Theorie). Vereinfacht gesagt fokussiert der Tropfen das Licht selbst auf einen Punkt vor seinem hinteren Rand. Werden nun  $n$ -Photonenprozesse (wie LIB, MPEF und THG) angeregt, so ist die ortsabhängige Effizienz



**Bild 4-20.** Abbildungen aus [Favre et al., 2002]. (a) Berechnete Intensitätsverteilung des fs-Pulses innerhalb eines  $60\mu\text{m}$ -Wassertröpfchens (Äquatorialebene). (b) Gemessene ( $I = 1,8 \cdot 10^{12} \text{W/cm}^2$ ) und berechnete Winkelabhängigkeit der Plasmaemission von sichtbarem Licht ( $500 \pm 35 \text{nm}$ ). Neben der besonderen Struktur ist eine stark erhöhte Rückstreuung ( $180^\circ$ ) zu erkennen.



**Bild 4-21.** Nichtlineare Lidar-Messung von Bioaerosolen. (a) Gemessenes Spektrum der Zwei-Photonenfluoreszenz von Riboflavin im Vergleich zum Wassersignal [Kasparian et al., 2003]. (b) Schematische Darstellung der spektral aufgelösten Lidar-Messung künstlicher Aerosolwolken mit und ohne Riboflavin [Méjean et al., 2004]. (Teramobile-Laser, 400 mJ, 1 ps, negativer Chirp).



proportional zu  $I^n$ . Damit ergibt sich eine Struktur mit gegenüber Bild 4-20 (a) noch stark erhöhtem Kontrast und die Emission ist auf Gebiete mit Nanometergröße konzentriert. Im Fall von nicht kohärenten Prozessen mit isotroper Emission zeigt sich in der Winkelabhängigkeit der Fernfeldstrahlung, dass das Licht aufgrund der Strahlenoptik vorzugsweise den Weg nimmt, aus dem es gekommen ist. Diese starke Erhöhung der Rückstreuung – die wiederum für Lidar sehr interessant ist – wurde bei Plasmalicht (LIB, siehe Emission eines Wassertröpfchens in Bild 4-20 b) und MPEF beobachtet. Bei MPEF steigt sie mit der Photonenanzahl  $n$  des jeweiligen Prozesses und dem Brechungsindex des Tröpfchens. Bei der Plasmaemission hängt die Winkelstruktur vor allem von der Laserintensität ab. Das Maximum bei  $150^\circ$  tritt aber in den meisten Fällen auf.

Beim kohärenten Prozess der THG ist die Rückstreuung weniger stark. Dafür tritt eine charakteristische Winkelstruktur nahe der Vorwärtsrichtung auf, die – im Unterschied zu den nicht kohärenten Prozessen – deutlich vom Verhältnis des Tröpfchendurchmessers zur Wellenlänge (dem aus der Mie-Streuung bekannten Größenparameter) abhängt.

Durch Zugabe verschiedener Substanzen zur Tröpfchenflüssigkeit (üblicherweise Wasser) konnten neben den Winkelabhängigkeiten spektrale Charakteristika gemessen werden. Im Plasmalicht einer Salzlösung konnte die Natrium-D-Linie nachgewiesen werden. MPEF

wurde zum Beispiel an der Aminosäure Tryptophan, einem wichtigen Zellbaustein, mit Drei-Photonenanregung gemessen.

Bei Experimenten mit dem Teramobile am LASIM (Universität Lyon) ist es gelungen Zwei-Photonenfluoreszenz von Riboflavin (Vitamin B2) in einem künstlichen Nebel anzuregen und diese in Rückstreurichtung aus ca. 50 m Entfernung im Laborcontainer zu detektieren [Kasparian et al., 2003; Méjean et al., 2004]. Bild 4-21 zeigt Spektren und eine schematische Darstellung dieser ersten **Messung von Bioaerosolen** mit nichtlinearem Lidar. Die auf wenige Meter entlang des Strahls begrenzte Aerosolwolke bestand aus etwa 1  $\mu\text{m}$  großen Tröpfchen mit 0,02 g/l des wasserlöslichen Vitamins. Das Signal (Spektrum) konnte klar von der Weißlichtrückstreuung einer reinen Wasserwolke unterschieden werden. Frühe Filamentierung – und damit starke Weißlichterzeugung – wurde durch einen großen negativen Chirp (1 ps anfängliche Pulsdauer) verhindert. Bei dieser Anwendung kommt die aus den Labormessungen bekannte erhöhte Rückstreuung voll zum Tragen.

Ein spezieller Vorteil des MPEF-Lidar – für das die hohe Intensität kurzer Pulse benötigt wird – ist eine unter Umständen deutlich höhere **Reichweite** als bei Verwendung einer einzelnen Wellenlänge, bei der Ein-Photonenanregung stattfindet. Bei Tryptophan beispielsweise wäre eine geeignete Laserquelle für eine effektive Ein-Photonenanregung die vierte Harmonische der Nd:YAG-Emission (266 nm). Diese erfährt aber nicht nur eine deutlich höhere Rayleigh-Extinktion als Licht bei 800 nm, sondern wird auch durch das Ozon in der Luft stark absorbiert (siehe 4.2.2).

