

# Kapitel 9

## Zusammenfassung und Ausblick

### 9.1 Die Motivation

Die photochemische Bildung von Ozon in der unteren Troposphäre ist das Ergebnis eines komplexen Zusammenspiels von dynamischen und chemischen Prozessen in der planetaren Grenzschicht, das mit Messungen am Boden nicht ausreichend erfaßt werden kann. Das Ziel dieser Arbeit war daher, auf der Grundlage der Lidar-Technik ein Meßverfahren zu entwickeln und anzuwenden, mit dessen Hilfe zeitlich und räumlich hoch aufgelöste Messungen von Ozon und Aerosolen simultan in der gesamten Grenzschicht möglich sind. Die Messung von Aerosolen gibt Aufschluß über die Struktur und Entwicklung der Grenzschicht und ermöglicht so einen Einblick in dynamische Prozesse. Darüber hinaus sollte der Einfluß der atmosphärischen Partikel - natürlichen und anthropogenen Ursprungs - auf die solare Einstrahlung am Boden evaluiert werden.

### 9.2 Die Methoden

Auf dem Dach der Charité in Berlin-Mitte wurde eine Meßstation eingerichtet, in der zwei getrennte Lidar-Systeme Fernerkundungen von Ozon und Aerosolen in der urbanen Atmo-

sphäre durchführen können. Das DIAL<sup>7</sup>-System auf der Basis eines blitzlampengepumpten Titan:Saphir-Lasers mit Frequenzverdreifung und Doppelszillator ermöglicht die Erstellung von Vertikalprofilen der Ozonkonzentration von 100 m bis ca. 3 km Höhe. Dazu werden mit Hilfe eines Umlenkspiegels Sondierungen mit verschiedenen Zenith-Winkeln durchgeführt, so daß auch der untere Teil der Grenzschicht erfaßt werden kann.

Zur Messung des Aerosols wurde ein Lidar entwickelt, das mit Hilfe eines Nd:YAG-Lasers die atmosphärische Rückstreuung im Bereich von 200 m bis 10 km Höhe bei 355 nm, 532 nm und 1064 nm mißt (Tropospheric Aerosol Detektor, TAD). Zusätzlich wurde die von der dritten Harmonischen des Lasers angeregte, vibrationelle Raman-Streuung der Stickstoff-Moleküle in der Atmosphäre bei 387 nm nachgewiesen. Der Einbau einer polarisationsabhängigen Detektion ermöglicht die Akquisition weiterer Daten über das atmosphärische Aerosol, die zu seiner Charakterisierung genutzt werden können. Dank der hohen Reichweite dieses Systems kann auch die Aerosolextinktion in der freien Troposphäre bestimmt werden. Das TAD-System wurde mit dem DIAL synchronisiert, so daß gleichzeitige Messungen von Ozon und Aerosol durchgeführt werden können.

Zur Bestimmung der Ozonkonzentration aus den DIAL-Signalen nutzt man die unterschiedliche Absorption der Laserstrahlen bei zwei verschiedenen Wellenlängen (282.9 nm und 286.4 nm) entlang der Hartley-Bande. Bei der Bestimmung der differentiellen Absorption aus den Lidarsignalen tritt bei der konventionellen Methode ein systematischer Fehler auf, der vom atmosphärischen Aerosol verursacht wird. Daher wurde ein neues Verfahren, die "DIAL-Klett-Methode", zur Berechnung der Ozonkonzentration aus DIAL-Signalen entwickelt, die diesen Fehler beseitigt. Die Methode beruht darauf, daß der Anteil der Aerosolstreuung aus den DIAL-Signalen direkt berechnet und separiert wird. Der Fehler, den diese Streuung über den Rückstreuterm bei der Bestimmung der Ozon-Konzentration nach der Standardmethode hinterläßt, wird so von vorne herein vermieden.

Dieses Verfahren bietet den zusätzlichen Vorteil, daß die Aerosol-Rückstreuung nun auch bei den DIAL-Wellenlängen, weit im UV, gemessen werden kann. Zusammen mit den Rückstreukoeffizienten, die nach einem hier beschriebenen Verfahren aus den TAD-Signalen gewonnen werden, können die Aerosol-Rückstreukoeffizienten in der Grenzschicht vom mittleren Ultraviolett bis ins nahe Infrarot gemessen werden. Der Nachweis der Raman-Streuung bei 387 nm ermöglicht zusätzlich die direkte Bestimmung der Aerosolextinktion bei dieser Wellenlänge.

Die Interpretation dieser Daten erfolgt auf der Grundlagen eines speziell hierfür entwickelten troposphärischen Aerosol-Modells mit monomodaler lognormalverteilter Größenverteilung (LASD-Verfahren). Damit läßt sich der effektive optische Modenradius sowie Information über die Zusammensetzung des Aerosols gewinnen. Insbesondere der Rußgehalt des Aerosols läßt sich aufgrund seines großen Einflusses auf den komplexen Brechungsindex des Aerosols aus den Lidardaten extrahieren.

Mit Hilfe dieses Modells können weitere optische Parameter der atmosphärischen Partikel berechnet werden, wie z.B. das Lidarverhältnis (= Extinktionskoeff. / Rückstreukoeff.), das im Rahmen eines iterativen Auswerteverfahrens in die Inversion der Lidarsignale zurückfließt. Die systematischen Fehlerquellen der Lidarsignal-Invertierung, die in der Unbestimmtheit der Lidar-Gleichung begründet liegen, lassen sich so minimieren.

---

<sup>7</sup> Differential Absorption Lidar

### 9.3 Die Resultate

Die eben beschriebenen Meßverfahren wurden unter anderem in der BERLIOZ-Feldmeßkampagne eingesetzt, die eine genaue Analyse der chemischen und dynamischen Vorgänge zum Ziel hatte, die bei der Bildung und Verbreitung von photochemischen Smog eine Rolle spielen. Während der BERLIOZ-Meßphase konnte mehrmals die Ausbildung von Sommersmog beobachtet werden. Mit dem Ozonlidar wurden in dichter zeitlicher Folge Vertikalprofile gemessen, die die Bildung von Ozon und seine Ausbreitung innerhalb der Grenzschicht dokumentieren. Die Struktur dieser Grenzschicht, ihre Höhe und der Grad ihrer Durchmischung konnte mit den zeitgleich stattfindenden TAD-Messungen nachgewiesen werden. Dabei wird deutlich, daß die, im Sommer typischerweise 1500 m bis 2000 m hohe Grenzschicht in der Regel einen festen "Reaktionskessel" für die Photochemie bei Sommersmogeisoden darstellt. An einem Beispiel konnte aber auch gezeigt werden, wie dieser Kessel aufbricht und sich die Luftmasse der Grenzschicht bis in 3 km Höhe ausbreitet.

Mit Hilfe des LASD-Verfahrens wurde das Aerosol in der Grenzschicht anhand der mit dem Lidar gemessenen optischen Eigenschaften charakterisiert. Dabei zeigt sich aufgrund des Rußgehaltes, daß die Partikel trotz des zentralen Meßorts in der Mitte Berlins in der Regel einen ruralen Ursprung haben und nur in verhältnismäßig geringem Maße urbanen Einflüssen ausgesetzt sind. Gelegentlich setzt sich aber ein Aerosol durch, das einen deutlich urbanen Charakter aufweist. Diese Ereignisse gehen oftmals mit einem Rückgang der Ozonkonzentration einher. Das läßt den Schluß zu, daß urbane Luftmassen einen kurzfristigen Ozonabbau mit sich bringen, an dem auch heterogene Reaktionen an den Oberflächen von Rußpartikeln eine Rolle spielen können.

Eine Rückkopplung der Aerosollast auf den Ozonhaushalt über die Strahlung kann hingegen ausgeschlossen werden. Entgegen den Erwartungen findet man zu keinem Zeitpunkt der Meßperiode einen deutlichen Einfluß der Aerosole in der Grenzschicht auf den aktinischen Fluß und damit auf die Photolyseraten. Dies zeigen Messungen, die während BERLIOZ vom Max-Planck-Institut für Chemie (Mainz) durchgeführt wurden. Ebenso wenig konnte ein Einfluß des troposphärischen Aerosols auf die solare Einstrahlung im Bereich des UV-C nachgewiesen werden, das mit einem Spektralradiometer des Alfred-Wegener-Instituts zur gleichen Zeit gemessen wurde. Da diese Ergebnisse nicht mit den Resultaten von Strahlungstransferrechnungen in Einklang stehen, die anhand der - mit den Lidarmessungen bestimmten - Aerosolverteilungen von Barbara Früh (Universität Mainz) durchgeführt wurden, bleiben hier noch offene Fragen.

### 9.4 Der Ausblick

In Fragen der Wechselwirkung troposphärischer Aerosole mit der solaren Strahlung besteht offensichtlich noch Forschungsbedarf. Es wurde bereits darauf hingewiesen, daß die hier in diesem Zusammenhang dargestellten Ergebnisse noch nicht endgültig sind und an den Daten und ihrer Modellierung noch gearbeitet wird. Auf die Resultate, die die beteiligten Kooperationspartner zu einem späteren Zeitpunkt hierzu veröffentlichen werden sei deshalb nochmals verwiesen.

Im Rahmen eines, von der Deutschen Bundesstiftung Umwelt (DBU) geförderten Projektes, werden die Aerosol- und Ozonmessungen mit dem Lidar, sowie die Bestimmung der UV-B-Strahlung mit dem Spektralradiometer von AWI/Isitec auf der Charité fortgesetzt, so daß bald eine breitere Datenbasis zu diesem Thema zur Verfügung stehen wird. In einer vor kurzem in Berlin durchgeführten BERLIOZ-Nachfolge-Kampagne (OLAK) wurde unter Beteiligung der Station Charité speziell Fragen der Lidarmessungen von Ozon und Aerosolen und den Fehlern, die dabei entstehen können, mit Hilfe von ballon- und flugzeuggetragenen Vergleichsmessungen nachgegangen.

Insgesamt sind daher zu dem Problemkreis "Aerosole, Ozon, Strahlung" in nächster Zeit noch einige interessante Ergebnisse zu erwarten, für die die vorliegende Arbeit einen Beitrag geleistet hat.

In der AG Wüste werden die Arbeiten im Bereich der Atmosphärenforschung fortgesetzt und insbesondere in methodischer Hinsicht weiterentwickelt. Derzeit wird unter Förderung der DBU eine neue Laserquelle für das DIAL-System auf der Basis eines Nd:YAG gepumpten optisch-parametrischen Oszillators (OPO) entwickelt. Die höhere Pulsenergie und Repetitionsrate dieser Lichtquelle können die Möglichkeiten des bestehenden Systems, insbesondere im Hinblick auf statistische Meßfehler und Meßdauer, deutlich verbessern.

In weiteren Forschungsprojekten werden atmosphärisch relevante Mikropartikel in Levitation gebracht und ihre mikrophysikalischen und chemischen Eigenschaften studiert. Hier von sind in nächster Zeit zum Beispiel zu den, in dieser Arbeit aufgeworfenen Fragen der chemischen Reaktionen von Ruß mit Ozon interessante Untersuchungsergebnisse zu erwarten.

In einem deutsch-französischen Gemeinschaftsprojekt wird derzeit an der Entwicklung eines Weißlicht-Lidars auf der Grundlage ultrakurzer Hochleistungslaser gearbeitet. Mit einer solchen Lichtquelle wird es möglich sein, die Vorzüge der DIAL-Technik, insb. die hohe räumlichen Auflösung, mit denen des DOAS zu verknüpfen und simultan verschiedene Spurengase zu erfassen.