

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit Methoden der Laser-Fernerkundung und deren Besonderheiten bei Untersuchungen der planetaren Grenzschicht. Das Ziel ist die Untersuchung der zeitlichen Entwicklung der räumlichen Struktur der Atmosphäre anhand verschiedener Messgrößen. Der Ausgangspunkt ist die Suche nach Fehlerquellen bei Spurengaskonzentrations-, Aerosol- und Temperaturmessungen und nach Wegen, um sie zu vermeiden. Entstanden ist die Fragestellung beim Aufbau und Einsatz von Lidar-Geräten, und bei der Auswertung der Ergebnisse verschiedener Messkampagnen: der Arktis-Expedition „ARCTOC“ zur Erforschung plötzlichen Ozonschwunds in Bodennähe, der meridionalen Atlantikquerung „ALBATROS“ zur Erforschung des Einflusses stark bevölkerter Gebiete auf die Zusammensetzung der maritimen Luft [Frey, 1997] und des „BERLIOZ“-Experiments zur Erforschung der Chemie der Ozonbildung am Beispiel Berlins [Frey et al., 2001]. Während der daraufhin organisierten Kampagne „OLAK“ in Berlin wurden vier sehr ähnliche DIAL-Instrumente mit unabhängigen Messungen eines Flugzeugs und eines Fesselballons verglichen. Das Ziel war, den Einfluss der Aerosol-Streuung auf Ozonmessungen zu untersuchen. Da sich die Luftbestandteile im Messvolumen nicht künstlich trennen lassen, müssen die im Rückstreuungssignal überlagerten Wechselwirkungsprozesse durch spektroskopische Methoden wieder getrennt werden. Ein sehr wichtiger Aspekt für die Auswahl einer Methode ist die Anwendbarkeit und Umsetzbarkeit in ein feldtaugliches und robustes Messgerät.

Ausgehend von diesen Erfahrungen wurde das ebenfalls in dieser Arbeit beschriebene Raman-DIAL-Instrument entworfen und gebaut. Mit diesem Gerät kann die Ozonkonzentration in der planetaren Grenzschicht ohne den durch Aerosol-Schichten verursachten Fehler gemessen werden. Gleichzeitig misst es die Wasserdampfkonzentration und die

optischen Eigenschaften des Aerosols im ultravioletten, sichtbaren und infraroten Spektralbereich. Durch die Nutzung eines modernen diodengepumpten Festkörperlasers mit einer Puls wiederholrate von 1 kHz und die Entwicklung einer entsprechend schnellen Empfangseinheit können nun auch kleinskalige Prozesse, wie z. B. die Turbulenz in Bodennähe, untersucht werden und Messungen langsam veränderlicher Größen lassen sich wesentlich verbessern. Zur Konzentrationsbestimmung anderer Spurengase neben Ozon und Wasserdampf wurde ein wellenlängenabstimmbarer Ultraviolettlaser auf der Basis des Colquiriite-Kristalls Ce:LiCaF gebaut, der es erlaubt, mit der Pulsfolgefrequenz von 1 kHz zwischen den benötigten Farben umzuschalten. Alternativ kann dieser Laser in den Strahlengang des Nd:Yag-Lasers eingesetzt werden, um differentielle Absorptionsmessungen durchzuführen.

Des Weiteren wurde ein Verfahren zur Temperaturmessung entwickelt und erprobt, mit dem bereits vorhandene Aerosol-Lidar ohne großen Aufwand erweitert werden können. Die Messung beruht auf der Temperaturabhängigkeit der Besetzungszahl von Rotations-Raman-Niveaus in Stickstoff- und Sauerstoffmolekülen. Durch Variation der Temperatur wird ein simuliertes Spektrum an das gemessene Stokes- und Anti-Stokes-Spektrum zu beiden Seiten der Laserlinie angepasst. Entscheidend für die Güte der Anpassung ist die Verwendung einer experimentell bestimmten Linienform anstatt einer analytischen Funktion zur Faltung mit den simulierten Spektrallinien, da wegen der Linienbreite eines normalen Nd:Yag-Lasers die einzelnen Rotations-Raman-Linien nicht aufgelöst werden können. Ein neu entwickelter Auswertungsalgorithmus macht es möglich, Temperaturmessungen mit einer Genauigkeit von 1 bis 5 °C durchzuführen, wobei der Fehler vor allem von der Trennung des Raman-Spektrums vom elastischen Streulicht bestimmt wird. Das gelingt besser, wenn nur senkrecht zur Laserstrahlung polarisiertes Licht detektiert wird. Die Methode ist, im Unterschied zu sonst üblichen Messungen in zwei Teilbereichen des Spektrums, unabhängig von Kalibrationen. Am Sender sind für die Nachrüstung des Temperatursensors keine Veränderungen notwendig. Die Empfangseinheit besteht aus einem handelsüblichen Spektrometer mit geringem Auflösungsvermögen und einer schnell schaltbaren Kamera.

Für das Design von Laser-Fernerkundungsgeräten und die Auswertung der mit ihnen gewonnenen Messdaten ist es notwendig, die Streueigenschaften der Atmosphäre möglichst genau berechnen zu können. Deshalb wurden im Rahmen dieser Arbeit die Streuspektren

Messgröße	Methode	Eingabeparamter	Vor-und Nachteile
Schichtstruktur, Wolkenhöhe	elastisches Rückstreu-Lidar	keine	+ einfachster Aufbau + Entfernung ist die einzige quantitative Messgröße
Mischungsschichthöhe	Gradientenmethode oder Wavelet-Analyse	keine	• Messung ist von der Aerosol-Streuung abhängig!
Aerosol-rückstreu-koeffizient und Depolarisation	elastisches Rückstreu-Lidar ohne molekulare Absorption	Entfernungsprofil der • Dichte und • des Lidar-Verhältnisses • Rückstreuverhältnis für ein Intervall des Signals (z. B. freie Troposphäre)	+ experimentell einfach + Inversionsalgorithmus gut untersucht und numerisch stabil (nur Integrale) - abhängig von der Kalibration mit dem Rückstreuverhältnis der freien Troposphäre - falsches Lidar-Verhältnis kann zu Fehlern führen
	HSRL (High Spectral Resolution Lidar)		+ kalibrationsfreie Messung - aufwendiges Experiment, da schmalbandiger Laser und Filter erforderlich sind
Aerosol-Extinktion	Raman-Lidar ohne molekulare Absorption	• Entfernungsprofil der Dichte • Ängström-Koeffizient	+ robuste, gute Laser vorhanden - das im Vergleich zu elastischen Messungen um 3 bis 5 Größenordnungen schwächere Signal erfordert eine bessere Detektionsoptik und -elektronik - Tageslichtmessungen nur bedingt möglich - Berechnung der Konzentration ist sehr empfindlich auf numerischen Algorithmus, insbesondere die Glättung (da differenziert werden muss)
Spurengase (Ozon, H ₂ O, SO ₂ , NO ₂ , Toluol, ...)	DIAL	• Entfernungsprofil der Dichte • Absorptionsquerschnitte • optische Aerosol-Eigenschaften	• Laser mit guten Strahleigenschaften und 2 Farben im Absorptionsbereich des Gases erforderlich + Konzentration aller Gase messbar - Berechnung der Konzentration ist sehr empfindlich auf numerischen Algorithmus, insbesondere die notwendige Glättung (wegen Ableitung) - ohne zusätzliche Aerosol-Messungen kann es zu nicht korrigierbaren Fehlern durch Rückstreuterm und Extinktion kommen
Ozon	Raman-DIAL	• Entfernungsprofil der Dichte • Ängström-Koeffizient	+ nur eine Laserwellenlänge erforderlich (z. B. FHG des Nd:Yag) + kein Einfluss der Aerosol-Streuung + gleichzeitige Messung der Aerosol-Extinktion

Tab. 4-1 Untersuchte und angewendete Verfahren zur Laser-Fernerkundung der planetaren Grenzschicht.

Messgröße	Methode	Eingabeparamter	Vor-und Nachteile
Wasserdampf	Wasserdampf-Raman	<ul style="list-style-type: none"> Entfernungsprofil der Dichte Kalibrationskonstante Verhältnis der Raman-Rückstreuquerschnitte für Stickstoff und Wasserdampf Aerosolextinktion Ängström-Koeffizient 	<ul style="list-style-type: none"> da die Signalstärke direkt von der Dampfkonzentration abhängt, ist keine Messung in trockenen Gegenden möglich + Wasserdampfmessung mit vergleichsweise geringem experimentellem Aufwand - Kalibration notwendig - Tageslichtmessungen nur eingeschränkt möglich, mit Ausnahme von Messungen im UVB
Temperatur	Sauerstoff -DIAL	s. o. unter DIAL	s. o. unter DIAL
	Rotations-Raman-Intensitätsverhältnis in zwei Bereichen	<ul style="list-style-type: none"> Kalibrationskonstante 	<ul style="list-style-type: none"> + Temperaturprofile in hoher zeitlicher Auflösung - Kalibration notwendig
	Rotations-Raman - Auswertung des kompletten Spektrums		<ul style="list-style-type: none"> + kalibrationsfrei + einfach in vorhandenen Aerosol-Lidar nachzurüsten - die Messung muss nacheinander für mehrere Höhenbereiche durchgeführt werden, zeitliche Auflösung geringer

Tab. 4-1 Untersuchte und angewendete Verfahren zur Laser-Fernerkundung der planetaren Grenzschicht.

für Stickstoff- und Sauerstoffmoleküle sowie verschiedene Aerosol-Typen neu berechnet. Für alle erforderlichen Simulationen wurden Module in der Programmiersprache Labview erstellt, die direkt in Design- und Auswertungsroutinen benutzt werden.

In Tabelle 2-10 sind die berechneten Werte für die Streuquerschnitte und die Depolarisation und in Tabelle 2-15 die Streukoeffizienten für normale Luft jeweils für Stickstoff und Sauerstoff und die in dieser Arbeit verwendeten Wellenlängen des Nd:Yag-Lasers und der entsprechenden Raman-Linien aufgelistet.

Das verwendete Aerosol-Streumodell beruht auf der Mie-Theorie. In einem separaten, weil zeitaufwändigen, Schritt müssen die Streuquerschnitte für die zu erwartenden Partikelgrößen und gewünschten Wellenlängen berechnet werden. Als Eingangsparameter braucht man das Spektrum der mittleren Brechzahl des gefragten Aerosol-Mischungstyps. Ist die Datenbasis der Streuquerschnitte erstellt, können die Streukoeffizienten für beliebige Größenverteilungen ohne Probleme und schnell berechnet werden. Somit kann das Aerosol-Streumodell an die Messbedingungen angepasst werden, da die für die Auswertung benötigten Lidar- und Rückstreuverhältnisse stärker von der Größenverteilung als vom Brechzahlspektrum abhängig sind. Die Tabellen 2-11, 2-12 und 2-13 enthalten berechnete

Lidar- und Rückstreuverhältnisse sowie Ångström-Koeffizienten für vier Mischungstypen, sieben Größenverteilungen und alle für die Arbeit mit dem Nd:Yag-Laser relevanten Wellenlängen. Bei der Berechnung der Streukoeffizienten konvergiert das Integral für alle Größenverteilungen bei Partikeldurchmessern kleiner als 50 μm (außer bei Wüsten-Aerosol). Das Lidarverhältnis wird vor allem von der Form der Verteilungsfunktion beeinflusst, während das Rückstreuverhältnis von der Aerosol-Konzentration direkt abhängt.

Die Nachweise von Spurengasen und Aerosol durch Laser-Fernerkundung lassen sich methodisch nicht getrennt behandeln. Das hat für die Untersuchung der planetaren Grenzschicht große Auswirkungen, da hier die Konzentration des Aerosols besonders hoch und die Verteilung inhomogen ist. Bei Absorptionmessungen mit elastisch rückgestreutem Licht (DIAL) überlagern sich die Streuprozesse von Molekülen und Aerosol sowohl durch den Rückstreuprozess, der als Signalquelle im Messvolumen fungiert, als auch bei der Schwächung des Lichts auf dem Weg durch die Atmosphäre. An der Grenze zwischen Schichten, die Aerosol mit unterschiedlichen Streueigenschaften enthalten, kann es zu Messfehlern kommen, die unter ungünstigen Umständen größer als die zu erwartenden Gaskonzentrationen sind. Die Aerosol-Extinktion führt ebenfalls zu einem scheinbaren Beitrag zur Spurengaskonzentration, der jedoch gering gegenüber den bei der numerischen Auswertung entstehenden statistischen Fehlern ist. Diese Probleme werden bei Ozonmessungen mit dem neu entwickelten Raman-DIAL völlig vermieden.

Mit der Entwicklung eines schnellen Signalwandlers zur Aufnahme von Einzelschüssen bis zu einer Pulsfolgefrequenz von 1 kHz kann nun auch der Fehler vermieden werden, der durch Mittlung von Rückstreusignalen bei stark veränderlichen Streubedingungen entsteht. Das ist eine entscheidende Verbesserung für Untersuchungen der planetaren Grenzschicht, da sich an ihrer Obergrenze häufig kleine Wolken bilden. Vor allem für DIAL-Messungen von Spurengasen müssen oft viele Signale gemittelt werden, um das Signal-zu-Rauschverhältnis zu reduzieren. Die Auswirkung weniger Laserschüsse, die auf eine Wolke treffen, verändern das gemittelte Signal visuell kaum, erzeugen aber einen bedeutenden Fehler bei der Konzentrationsberechnung. Signale der Einzelschüsse sind zwar nicht geeignet, um Konzentrationen zu berechnen, ein eventueller Wolkentreffer lässt sich aber klar erkennen. Zur Auswertung werden dann nur Signale ohne Wolken verwendet. Die Auswertung der Einzelschüsse erlaubt darüber hinaus bisher schwer zugängliche Vorgänge, wie z. B. die Turbulenz, zu untersuchen.

Das Gesamtsystem aus zwei Lidar-Geräten auf dem Charité-Hochhaus erfüllt alle Anforderungen, um qualitativ hochwertige Aerosol- und Spurengasmessungen in der planetaren Grenzschicht durchzuführen. Um dieses Ziel zu erreichen, waren zahlreiche Veränderungen und Umbauten notwendig. Der wellenlängenabstimmbare Titan:Saphir-Laser wurde an die Aufgabe angepasst, Ozonkonzentrationen über längere Zeiträume mit gleich bleibender Qualität zu messen. Dafür wurde der Zweiwellenlängenoszillator einem Redesign unterzogen, eine Überwachung der Laserstrahleigenschaften ergänzt und zahlreiche Umbauten an der Stromversorgung und Strahlführung verwirklicht. Wegen der Empfangsoptik konnte ursprünglich erst ab 2 km Entfernung gemessen werden, weshalb diese ebenfalls verändert wurde. Das Stratosphären-Aerosol-Lidar wurde um ein Teleskop für Grenzschicht- und Troposphärenmessungen erweitert. Jetzt können die optischen Aerosol-Eigenschaften im ultravioletten, sichtbaren und infraroten Spektralbereich gleichzeitig mit den Spurengaskonzentrationen gemessen werden. Neben der wertvollen direkten Information über das Aerosol dienen die Daten zur Korrektur der Spurengaskonzentrationsmesswerte. Das Konzept, mit einem zweiten Lidar Aerosol-Eigenschaften zu messen, um Spurengaskonzentrationsmessungen zu korrigieren, ist theoretisch sinnvoll und auch praktisch durchführbar. Wegen des komplexen Aufbaus ergeben sich jedoch insbesondere bei Spurengaskonzentrationsmessungen zahlreiche Möglichkeiten für Fehlbedienungen. Für die meisten Messstandorte ist es auch nicht möglich, eine so umfangreiche Ausrüstung zu installieren und zu betreiben. Insofern ist das neu entwickelte Raman-DIAL-Ozon-Wasserdampf-Aerosol-Instrument eine bedeutende Vereinfachung und damit ein wichtiger Schritt auf dem Weg der Verbreitung der Messmethode, da es nur einen einzigen, wellenlängenstabilen Industrielaser und eine Empfangseinheit zur Bestimmung vieler Größen benötigt und gleichzeitig die methodischen Fehler von vornherein ausgeschlossen werden.

Um die Simulationsrechnungen des Chemie- und Ausbreitungsmodells „CALGRID“ direkt mit Messwerten der Laser-Fernerkundung vergleichen zu können, wurde ein Lese- und Auswertungsprogramm für die im „GrADS-Format“ vorliegenden Ergebnisse erstellt. Damit können die Modell-Daten in Zukunft sofort durch Messdaten evaluiert werden, um so die Prognosegenauigkeit zu verbessern. Sowohl die für Berechnungen sehr wichtige Mischungsschichthöhe als auch die resultierenden Ozonkonzentrationen stimmten an den wenigen Vergleichstagen nicht gut mit den Messwerten überein. Die leider im Moment

unmögliche Neuberechnung mit den durch Messwerte verbesserten Parametern, bleibt ein wichtiges Projekt für die Zukunft.

Natürlich bleiben bei der Weiterentwicklung und Anwendung der Laser-Fernerkundung für Untersuchungen der planetaren Grenzschicht noch viele Aufgaben zu lösen. Um die Atmosphäre besser zu verstehen, fehlt der Zugang zu vielen weiteren, heute noch nicht erschließbaren, Messgrößen. Die vorgestellte Arbeit beschäftigt sich nur mit einigen ausgewählten Methoden. Insbesondere sind das spektral hochauflösende Lidar (HSRL), das Doppler-Lidar und Methoden der Heterodyn-Detektion sehr gut für Untersuchungen der planetaren Grenzschicht geeignet. Leider ergab sich bisher für mich nicht die Möglichkeit, mit ihnen zu experimentieren.

Atmosphärisches Aerosol beeinflusst das Leben der Menschen in vielerlei Hinsicht. Der Einfluss troposphärischen Aerosols, welches sich größtenteils in der planetaren Grenzschicht befindet, auf den Strahlungshaushalt der Erde ist derzeit der größte Unsicherheitsfaktor bei der Vorhersage der drohenden Klimaveränderung [IPCC, 2001]. Viele offene Fragen gibt es auch in Bezug auf die Chemie des Aerosols und seinen Einfluss auf die Gesundheit von Menschen, Tieren und Pflanzen. Für ein besseres Verständnis ist ein dichtes Messnetz auf allen Kontinenten erforderlich, da die Eigenschaften des Aerosols wegen der kurzen Lebensdauer regional geprägt und sehr unterschiedlich sind. Weil Aerosol auch vertikal sehr inhomogen verteilt ist, werden räumlich aufgelöste Messungen benötigt, wie sie die Laser-Fernerkundung liefert. In Europa wurde Ende 2000 das Lidar-Netzwerk „EARLINET“ gegründet, um Eigenschaften, Transport, Quellen, Senken, regionale Dynamik und besondere, noch unbekannte, Ereignisse zu erforschen. Mit unserer Messstation im Berliner Stadtzentrum haben wir im Oktober 2001 mit einer Langzeitmessreihe begonnen, um neben den beobachteten Kurzepisoden von wenigen Tagen auch statistisch relevante Aussagen über jahreszeitliche und hoffentlich auch längere Perioden zu erhalten. Für den afrikanischen Kontinent haben wir gemeinsam mit 18 Partnern aus Europa und Afrika ein Projekt bei der Europäischen Union eingereicht, um ein Aerosol-Lidar-Messnetzwerk zu gründen. In Lateinamerika ist ebenfalls ein Antrag in Vorbereitung. Von den Erfahrungen werden auch für die Zukunft geplante Satellitenmissionen profitieren. Die Auswertung der aus dem Weltraum gemessenen Daten ist eine größere Herausforderung, da die Instrumente einfach aufgebaut sein müssen und jedes Signal aus einer anderen Region stammt. Es ist nicht mög-

lich, Zeitreihen zu messen, und ohne kontinentale Netzwerke werden keine Erfahrungswerte zur Datenauswertung existieren.

Ähnliches Interesse besteht an Konzentrationsmessungen vieler Gase. Vor allem die Nachstellung und Vorhersage von Konzentrationen und Prozessen durch dreidimensionale Modelle sind nur durchführbar und überprüfbar, wenn neben Bodenmessungen für möglichst viele Gitterpunkte im Zeitraster der Rechnung gemessene Werte vorliegen. Ozon kann in der planetaren Grenzschicht aus Vorläuferstoffen gebildet werden, die anthropogenen Ursprungs sind. Erhöhte Konzentrationen haben erhebliche Auswirkungen auf Lebewesen und Klima. Genaue Messungen bodennahen Ozons durch Satelliten sind wegen der hohen Konzentrationen in der Stratosphäre bisher unmöglich. Die Modellierung ist wegen der Vielfalt an den Reaktionen beteiligter Beimengungen, der wechselhaften Bestrahlungsstärke und der komplizierten Dynamik der planetaren Grenzschicht ein schwieriges Unterfangen. Für die Behandlung dieser Probleme sind Zeitreihen der räumlichen Verteilung von Aerosol, Ozon und anderen Stoffen erforderlich.

Neben der Überführung der Laser-Fernerkundungsmessverfahren in den Routinebetrieb interessieren mich besonders Untersuchungen physikalischer und chemischer Prozesse in der realen Atmosphäre anhand dreidimensionaler Datensätze. Die hohe zeitliche Auflösung des neu entwickelten Lidar ermöglicht z. B. die Erforschung von turbulenten Strömungen, des Lichttransfers durch inhomogene Medien und der Aerosol-Bildung. Durch die Messung der optischen Turbulenz mit dem Kilohertz-Lidar, ließen sich beispielsweise adaptive Optiken an die atmosphärischen Veränderungen anpassen. Besonderen Reiz hat auch eine Kombination aus klassischen Lidar-Messungen mit denen des neuen mobilen Femtosekunden-Lidar „Terramobil“ [Langlotz, 1998]. Das ausgesandte Licht mit einer Zentralwellenlänge von 800 nm und einer Linienbreite von ca. 10 nm erzeugt durch Wechselwirkungsprozesse mit der Atmosphäre ein breites, kontinuierliches Spektrum, auch Weißlicht genannt, ohne das der Laserstrahl seine Richtung und Bündelung verliert. Da die Lichtquelle gepulst ist, steht damit eine einzigartige ortsauflösende, multispektrale Messmethode zur Verfügung. Die Nutzung, aber auch die Erforschung der Weißlichtentstehung bergen noch viele ungelöste Fragestellungen. Noch für dieses Jahr sind Messungen zum direkten Vergleich des „konventionellen“ und des Femtosekunden-Lidar und Untersuchungen der Vorgänge im Weißlichtstrahl durch Probemessungen geplant.