Heterogene Eisbildung über Südostasien

Der Fakultät für Physik und Geowissenschaften der Universität Leipzig eingereichte

 $B \hspace{0.1cm} \mathrm{A} \hspace{0.1cm} \mathrm{C} \hspace{0.1cm} \mathrm{H} \hspace{0.1cm} \mathrm{E} \hspace{0.1cm} \mathrm{L} \hspace{0.1cm} \mathrm{O} \hspace{0.1cm} \mathrm{R} \hspace{0.1cm} \mathrm{A} \hspace{0.1cm} \mathrm{R} \hspace{0.1cm} \mathrm{B} \hspace{0.1cm} \mathrm{E} \hspace{0.1cm} \mathrm{I} \hspace{0.1cm} \mathrm{T}$

vorgelegt von Stephanie Bohlmann Matrikel 2863513

Erstgutachter: Prof. Dr. A. Macke Zweitgutachter: Dr. habil. A. Ansmann

Leipzig, 30 Juli 2014

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung			
2	2 Grundlagen			
	2.1	Eisbildung	6	
		2.1.1 Homogene Eisbildung	6	
		2.1.2 Heterogene Eisbildung	8	
	2.2	Fernerkundung der Eisbildung mittels Lidar	10	
		2.2.1 Lidarprinzip	10	
		2.2.2 Entfernungkorrigierte Signal	11	
		2.2.3 Volumendepolarisationsverhältnis	11	
		2.2.4 Rückstreu- und Extinktionskoeffizient	13	
		2.2.5 Polly ^{XT}	14	
	2.3	Messstandort	15	
		2.3.1 Meteorologische Bedingungen des Standorts	15	
3 Methodik		thodik	19	
	3.1	Geometrische Wolkeneigenschaften	19	
	3.2	Meteorologische Parameter	21	
	3.3	Klassifizierung der Wolkenphase	21	
4	Bisherige Studien 22			
5	Erg	ebnisse	28	
	5.1^{-1}	Fallstudie: Vergleich staubbelasteter – staubfreier Tag	28	
	5.2	Eisbildung als Funktion der Wolkenhöhe	32	
	5.3	Eisbildung als Funktion der Temperatur	34	
6	Zusammenfassung und Schlussfolgerungen			
Literaturverzeichnis 44				
Abkürzungsverzeichnis 4				

1

Kapitel 1

Einleitung

Wolken haben großen Einfluss auf das Klimasystem der Erde. Neben ihrer wichtigen Rolle im Wasserkreislauf beeinflussen sie auch den Strahlungshaushalt. So wird ein Anteil der einfallenden solaren Strahlung von Wolken absorbiert sowie von Wolken reflektiert und in den Weltraum zurückgeworfen. Des Weiteren ist auch die Reflexion an Wolken für die langwellige Gegenstrahlung von Bedeutung [Kiehl und Trenberth, 1997]. Gleichzeitig bestimmen Wolken das Wetter, indem solare Einstrahlung, Temperatur und Niederschlagsbildung beeinflusst werden.

Die genaue Kenntnis von Wolkeneigenschaften und den mit ihnen verbundenen physikalischen Prozessen ist daher unerlässlich, um Aussagen über deren Einfluss auf das globale Klimasystem treffen zu können. Laut dem aktuellen Sachstandsbericht des Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) [*IPCC*, 2013] wurde die Darstellung von Wolken in atmosphärischen Modellen zwar schon verbessert, unterliegt aber immer noch großen Unsicherheiten. Grund ist unter anderem das mangelhafte Verständnis der grundlegenden mikrophysikalischen Wolkenprozesse und der komplexen Wechselwirkungen von Wolken mit in der Luft enthaltenen Partikeln, sogenannten Aerosolen.

Aerosole weisen in ihrer horizontalen und vertikalen Verteilung starke regionale Unterschiede auf, außerdem unterscheiden sich je nach Art der Partikel deren chemische Zusammensetzung und physikalische Eigenschaften. Sie beeinflussen den Strahlungshaushalt des Klimasystems der Erde sowohl auf direkte als auch auf indirekte Weise. Der direkte Aerosoleffekt beschreibt den Einfluss der Aerosole auf Reflexion und Absorption von einkommender solarer und ausgehender terrestrischer Strahlung in der Atmosphäre. Als indirekten Aerosoleffekt bezeichnet man den Einfluss von Aerosolen auf die mikrophysikalischen Wolkeneigenschaften, welche wiederum den Transfer von solarer und terrestrischer Strahlung in der Atmosphäre beeinflussen. In geeigneter Form vorhanden, wirken Aerosole als Kondensationskeim (CCN, engl. cloud condensation nuclei) für Wolkentropfen. In Flüssigwasserwolken führt deshalb eine Erhöhung der Anzahl an Aerosolpartikeln unter ansonsten gleichen Umgebungsbedingungen zur Bildung von einer größeren Anzahl kleinerer Tropfen. Dadurch wird einerseits die Reflektivität der Wolke erhöht (Twomey-Effekt) [*Twomey*, 1977] und außerdem die Niederschlagsbildung der Wolke verringert. Gleichzeitig verlängert sich dabei die Lebensdauer der Wolken [*Albrecht*, 1989]. Der Einfluss der Aerosole auf die Eigenschaften von Flüssigwasserwolken ist daher nicht zu unterschätzen und wird in zahlreichen Studien wie beispielsweise in *Schmidt et al.* [2014] oder *Haywood und Boucher* [2000] diskutiert.

In Form von Eiskeimen (IN, engl. ice nuclei) beeinflussen Aerosolpartikel zudem maßgeblich die Bildung von Eiskristallen [*Murray et al.*, 2012]. Je nach chemischer Zusammensetzung und Form weisen Aerosolpartikel stark unterschiedliche Eisbildungseffizienzen auf [*Diehl et al.*, 2006], sodass Änderungen in der Aerosolzusammensetzung die Menge an unter bestimmten atmosphärischen Bedingungen gebildeten Eiskristallen beeinflussen. Den Prozess der von Aerosolpartikeln beeinflussten Eisentstehung bezeichnet man als heterogene Eisbildung.

Eiskristalle haben in der Atmosphäre einen bedeutenden Einfluss auf die mikrophysikalischen und optischen Eigenschaften der Wolken und somit auch auf den Strahlungshaushalt [Yoshida und Asano, 2005] und die Niederschlagsbildung. Doch gerade für Eiswolken und für die Erfassung der Aerosol-Wolken-Wechselwirkungen ist das bisherige Verständnis der grundlegenden mikrophysikalischen Prozesse nicht ausreichend [Cantrell und Heymsfield, 2005; IPCC, 2013]. Der Einfluss von Aerosolpartikeln auf die heterogene Eisbildung wird daher schon seit vielen Jahren sowohl in Feldstudien als auch unter bestimmten Bedingungen in Laborexperimenten untersucht [Hartmann et al., 2011; Hoose und Möhler, 2012; Murray et al., 2012]. Um das Wissen über die für Eisbildung notwendigen Aerosoleigenschaften und die Wechselwirkungen zwischen Aerosolen und Eiswolken weiter zu verbessern und quantitative Informationen über die Eisbildung unter bestimmten Aerosolbedingungen zu erhalten, sind weitere Studien nötig.

Vom Leibniz-Institut für Troposphärenforschung (TROPOS) ausgehend, wurden seit 1997 durchgeführte Lidarmessungen an den verschiedensten Standorten der Erde bezüglich der heterogenen Eisbildung ausgewertet und verglichen. Die bei Messkampagnen in Leipzig, Deutschland (51.35°N, 12.43°O, 113 m ü.NN), Praia, Kapverden (15°N, 23.5°W, 95 m ü.NN), Stellenbosch, Südafrika (34°S, 19°O, 114 m ü.NN), Punta Arenas, Chile (53°S, 71°W, 37 m ü.NN), Manaus, Brasilien (2.59°S, 60.04°W, 92 m ü.NN) und entlang der Route des Forschungsschiffes Polarstern gesammelten und ausgewerteten Informationen lassen auf regionale Unterschiede der Eisbildungseffektivität schließen [Kanitz et al., 2011]. Insbesondere ergaben die Untersuchungen Hinweise darauf, dass heterogene Eisbildung in den nördlichen mittleren Breiten wesentlich effizienter abläuft, als in den Tropen und den mittleren Breiten der Südhemisphäre.

So enthalten über Leipzig rund 70% aller beobachteten Wolken mit einer Oberkantentemperatur zwischen -15 °C und -20 °C Eis, über Stellenbosch hingegen sind es nur 35% und über Punta Arena sogar unter 20%. Bisher können allerdings nur die Messungen in Leipzig als repräsentativ für die Eisbildung auf der Nordhalbkugel angesehen werden, da die Kapverdischen Inseln trotz ihrer Lage nördlich des Äquators in eisbildungsrelevanten Höhen dem Einfluss südwestlicher Luftmassen vom Atlantik unterliegen und damit nicht zwangsläufig die Aerosolkonzentration der Nordhalbkugel widerspiegeln.

Ziel dieser Arbeit ist es, die lidarbasierten Eisbildungsstatistiken des TROPOS um einen Ort auf der Nordhalbkugel zu erweitern. Dafür sollen die von November 2011 bis Juni 2012

im Rahmen der Messkampagne "Aerosol and health mapping over megacities", kurz Megacities, stattgefundenen Lidarmessungen über Guangzhou, China (23°08'N, 113°16'0, ca. 23.5 m ü. NN) ausgewertet werden. Ziel der Kampagne war die Messung der Verteilung und der optischen sowie mikrophysikalischen Eigenschaften des Aerosols. Eine Charakterisierung des Aerosols wurde bereits in *Bauditz* [2013] vorgenommen. In der vorliegenden Arbeit soll der gewonnene Datensatz bezüglich der heterogenen Eisbildung ausgewertet werden.

Guangzhou ist die Hauptstadt der Provinz Guangdong im Südosten Chinas. Direkt am Pearl River gelegen, stellt sie einen bedeutenden Industrie- und Handelsstandort dar. Entsprechend sind die Aerosolbedingungen in der Pearl River Delta- Region (PRD), in der sich noch weitere Millionenstädte wie zum Beispiel Hongkong, Shenzhen und Dongguan befinden, von starker anthropogener Verschmutzung geprägt. Rußpartikel, welche durch Verbrennung fossiler Brennstoffe in Industrie und Verkehr, Waldbrände oder anderer Biomasseverbrennung in die Atmosphäre gelangen [*Wu et al.*, 2005] sowie herangetragener Wüstenstaub aus Nordafrika oder Zentralasien bestimmen die Aerosolbedingungen Südostasiens [*Bauditz*, 2013].

Zunächst werden in Kapitel 2 die Prozesse der Eisbildung und die Grundlagen der Fernerkundung mittels Lidar erläutert. Außerdem wird der Messstandort und dessen meteorologische Bedingungen vorgestellt. Die Vorgehensweise bei der Datenauswertung sowie die Bestimmung der Wolken und deren Klassifizierung aus den gegebenen Lidarmessungen wird in Kapitel 3 beschrieben. Das vierte Kapitel liefert eine Zusammenfassung der bisher durchgeführten Studien. Anschließend werden die Ergebnisse der Datenanalyse in Kapitel 5 vorgestellt. Dabei wird zunächst der Einfluss von staubbelasteten und staubfreien Luftmassen auf die Eisbildung anhand eines Fallbeispiels verdeutlicht und die Eisbildung als Funktion der Höhe betrachtet. Danach wird die Eisbildung als Funktion der Temperatur vorgestellt und es werden mögliche Korrekturen diskutiert. In Kapitel 6 folgt schließlich eine kurze Zusammenfassung der Ergebnisse.

Kapitel 2

Grundlagen

In diesem Kapitel soll zunächst auf die Prozesse der Eisbildung eingegangen werden. Im Anschluss werden die Grundlagen der optischen Fernerkundung mittels Lidar erläutert und der Messort und dessen meteorologische Bedingungen vorgestellt.

2.1 Eisbildung

Grundsätzlich unterteilt man Wolken bezüglich des Phasenzustandes des in ihnen enthaltenden Wassers in Flüssigwasserwolken und Eis enthaltende Wolken. Eis enthaltende Wolken schließen dabei sowohl pure Eiswolken als auch Mischphasenwolken ein. Eis kann auf zwei unterschiedliche Arten entstehen. Bei der homogenen Eisbildung gefrieren unterkühlte Wassertropfen bei hoher Übersättigung, ohne dass Eiskeime nötig sind. Die Voraussetzungen dafür sind jedoch erst ab einer Temperatur von -38 °C gegeben [*Cantrell und Heymsfield*, 2005]. Dennoch existieren auch Eis enthaltende Wolken bei höheren Temperaturen. Diese entstehen durch heterogene Eisbildung bei Anwesenheit von Partikeln, welche als Eiskeime fungieren.

In den folgenden Abschnitten sollen beide Wege der Eisbildung vorgestellt werden.

2.1.1 Homogene Eisbildung

Ab einer Temperatur von 0 °C ist der Phasenübergang von Wasser zu Eis möglich, jedoch sind bis zu -40 °C noch unterkühlte Wassertropfen anzutreffen. In Wasser entstehen und zerfallen aufgrund der zufälligen Molekülbewegungen Cluster, Anhäufungen von Wassermolekülen, durch die Addition beziehungsweise Subtraktion von Wassermolekülen.

$$H_2O + (H_2O)_{n-1} \Leftrightarrow (H_2O)_n \tag{2.1}$$

Diese Anhäufungen von Wassermolekülen bezeichnet man auch als Eiskristall-Embryonen. Da die Clusterbildung bei Temperaturen unter 0 °C ein thermodynamisch ungünstiger Prozess ist, zerfallen die Cluster schnell wieder, es sei denn die Temperatur ist niedrig genug, dass die Cluster in einen stabilen Zustand übergehen können. Diese Temperatur ist abhängig von der Größe der Cluster. Je tiefer die Temperatur, desto geringer die benötigte Größe des Eisclusters. Ist also bei einer bestimmten Temperatur der kritische Radius der Cluster erreicht, kann Eisbildung in diesem unterkühlten Tropfen auftreten, da die Addition von neuen Wassermolekülen durch die Abgabe von Erstarrungswärme nun ein exothermer Prozess ist und keine Energiezufuhr aus der Umgebung nötig ist.

Die Energie, die aufgebracht werden muss um Eiskristallembryonen in unterkühltem Wasser zu bilden, bezeichnet man als freie Gibbs-Energie ΔG_{Cl} . Diese setzt sich zusammen aus der Energie ΔG_S , die nötig ist um die Grenzschicht zwischen den kristallisiertem Volumen und der Flüssigwasserschicht stabil zu halten und der Energie ΔG_V , die notwendig ist um das Flüssigwasser in die Eisphase übergehen zu lassen:

$$\Delta G_{Cl} = \Delta G_S + \Delta G_V \tag{2.2}$$

Für sphärische Eiscluster mit dem Radius r_i , kann gezeigt werden, dass:

$$\Delta G_{cl} = 4\pi r_i^2 \gamma + \frac{4\pi r_i^3}{3\nu} kT \ln S \tag{2.3}$$

wobei γ die Oberflächenspannung, k die Bolzmann-Konstante, T die Temperatur und ν das molekulare Volumen ist. S ist das Sättigungsverhältnis und kann bei der Eisbildung aus dem Verhältnis von Dampfdruck über Flüssigwasser p_l und über Eis p_{ice} ($S = \frac{p_l}{p_{ice}}$) bestimmt werden [Mullin, 2001]. Ist das Sättigungsverhältnis S>1, so ist ΔG_V negativ.

Wie man Gleichung 2.3 entnehmen kann, ist die Gibbs-Enerie zur Bildung der Grenzschicht nicht von der Temperatur und Übersättigung abhängig, jedoch die Gibbs-Energie zur Phasenumwandlung ΔG_V .

Aus dem Maximum der Kurve der freien Gibbs-Energie (Gleichung 2.3) erhält man den kritischen Clusterradius $r_{crit} = \frac{-2\gamma\nu}{kT\ln S}$ und schließlich einen Ausdruck für die Energie, die nötig ist um den kritischen Clusterradius und somit den Phasenübergang von flüssig zu fest zu erreichen:

$$\Delta G^* = \frac{16\pi\gamma^3\nu^2}{3(kT\ln S)^2}$$
(2.4)

Die Nukleationsrate J (Anzahl der Eisbildungereignisse pro cm^{-3} pro Sekunde) bringt die Temperaturabhängigkeit zum Ausdruck.

$$J = A \exp\left(-\frac{\Delta G^*}{kT}\right) \tag{2.5}$$

Mit der kritischen Energiemenge (Gleichung 2.4) ergibt sich:

$$J = A \exp\left(-\frac{16\pi\gamma^{3}\nu^{2}}{3k^{3}T^{3}(\ln S)^{2}}\right).$$
 (2.6)

Temperatur T, Übersättigung S und Grenzflächenspannung γ bestimmen die Nukleationsrate. Besonders deutlich ist die Abhängigkeit von der Temperatur, welche in dritter Potenz im Nenner des Exponentialterms vorkommt. Mit zunehmender Unterkühlung nimmt die Nukleationsrate stark zu, doch erst bei Temperaturen unter -38 °C ist die homogene Eisbildung effizient.

2.1.2 Heterogene Eisbildung

Dennoch ist auch bei Temperaturen über -38 °C Eisbildung möglich. Jedoch findet diese nicht wie bei der homogenen Eisbildung innerhalb eines unterkühlten Tropfens, sondern an einem Eiskeim, engl. ice nuclei (IN), statt. Die Oberfläche des unlöslichen Eiskeims, welche mit dem unterkühlten Wasser in Berührung kommt, kann durch die Beeinflussung der Oberflächenspannung γ (siehe Gleichung 2.6) die Energiebarriere für die Nukleation senken und somit die Eisbildung in Gang setzen [Murray et al., 2012]. Die Präsenz von Partikeln, welche als IN dienen können, ist daher die Voraussetzung für die Eisbildung bei Temperaturen größer als -38 °C. Gleichung 2.5 für die homogene Eisbildung kann wie folgt auf die heterogene Eisbildung angewendet werden.

$$J_{het}(T) = A_{het} \exp\left(-\frac{\Delta G^* \varphi}{kT}\right)$$
(2.7)

$$\varphi = \frac{(2+m)(1-m)^2}{4} \tag{2.8}$$

 A_{het} ist dabei ein Faktor mit der Einheit $cm^{-2}s^{-1}$ oder $cm^{-3}s^{-1}$, je nachdem ob die Eisbildungrate auf die Oberfläche der IN oder auf deren Volumen bezogen ist. φ ist der Faktor, welcher die Verringerung der Energiebarriere relativ zur homogenen Eisbildung angibt. Gleichung 2.8 gibt einen häufig verwendeten Ausdruck dieses Faktors wieder. Der Parameter m ist dabei mit $\cos \Theta$ gleichzusetzen, Θ entspricht dem Kontaktwinkel zwischen einem sphärischen IN und einer ebenen Oberfläche. Ein perfekter Eiskeim hätte demnach einen Eisnukleations-Effektivitätsparameter m = 1 ($\Theta = 0^{\circ}$), bei $\Theta = 180^{\circ}$ (m = -1) würde der Eiskeim keine Nukleation hervorrufen. Bei diesem Konzept wird von sphärischen Eiskristall-Embryonen ausgegangen, daher ist dessen Aussagekraft kritisch zu betrachten.

Im Wesentlichen kann auf vier verschiedenen Wegen Eis entstehen. Je nachdem welche Temperatur und Übersättigung bezüglich Eis und Flüssigwasser herrscht und welche Art von IN vorhanden ist, können Depositions-, Kondensations-, Immersions- oder Kontaktgefrieren zur Eisbildung führen [*Hoose und Möhler*, 2012; *Murray et al.*, 2012]. Die Mechanismen der heterogenen Eisbildung sowie ihre Abhänigkeit von der Übersättigung in Bezug auf Eis und Wasser sind in Abbildung 2.1 veranschaulicht.

Bei jedem der vier Eisbildungsprozesse ist eine Übersättigung bezüglich Eis notwendig, das heißt $RH_{Eis} > 100\%$. Sobald diese Bedingung erfüllt ist, kann der erste Eisbildungprozess, das Depositionsgefrieren, einsetzen. Der übersättigte Wasserdampf setzt sich an dem Eiskeim ab und geht direkt vom gasförmigen in den festen Aggregatzustand über. Ist Sättigung auch in Bezug auf Wasser erreicht $RH_{Wasser} > 100\%$, können auch die anderen Eisbildungprozesse einsetzen.

Bei dem Kondensationsgefrieren entsteht zunächst ein Flüssigwassertropfen an einem Kondensationskeim (CCN), welcher einen unlöslichen Teil beinhaltet. Im Moment der Kondensation wird der Eiskeim aktiviert und Eisbildung findet statt.

Das Immersionsgefrieren setzt voraus, dass ein Aerosolpartikel in einem unterkühlten Tropfen eingeschlossen ist. Jedoch ist die Temperatur für ein Gefrieren des unterkühlten Tropfens



Abbildung 2.1: Überblick der 4 heterogenen Eisbildungsmechanismen, beschrieben im Text, Abbildung adaptiert aus *Seifert* [2010].

noch nicht gegeben. Der Tropfen kühlt sich daher weiter ab bis schließlich das Aerosolpartikel als IN fungiert und ein Gefrieren des unterkühlten Tropfens verursacht.

Das Gefrieren eines unterkühlten Tropfens kann auch von außen verursacht werden. Bei dem Kontaktgefrieren kollidiert ein unterkühlter Tropfen mit einem trockenen IN. Dieser Prozess ist vor allem effektiv, wenn der unterkühlte Tropfen nur einen löslichen Kondensationskeim enthält oder ein unlöslicher Kondensationskeim kein geeigneter Eiskeim ist, sodass dieser kein Gefrieren auslösen konnte. Zudem hängt Kontaktgefrieren stark von der Kollisionseffizienz ab, daher findet Kontaktgefrieren vor allem in Anwesenheit von großen IN statt [*Diehl et al.*, 2006].

Wie effizient die einzelnen Gefrierprozesse bei bestimmten Temperaturen und Feuchten ablaufen, hängt maßgeblich vom Typ der verfügbaren Aerosolpartikel ab. *Hoose und Möhler* [2012] liefern eine Zusammenfassung des aktuellen Wissensstands zur Eisbildungswirksamkeit verschiedener Aerosoltypen unter Laborbedinungen. Bei hohen Temperaturen von über -10 °C sind insbesondere biogene Partikel an der Eisbildung beteiligt. Bei Temperaturen ab -10 °C und tiefer wird auch Mineralstaub zunehmend aktiv. Auch schwarzer Kohlenstoff (Ruß) wurde bei Temperaturen ab -10 °C und tiefer als für Kondensations- und Depositionsgefrieren effektiver Eiskeim identifiziert. Untersuchungen von Eiskristall-Residuen haben zudem gezeigt, dass metallische Partikel einen hohen Anteil an der gesamten IN-Population haben [*Richardson et al.*, 2007]. Obwohl sie in dem Umgebungsaerosol mit einer Häufigkeit von unter 1% auftreten, beträgt ihr Anteil in Eiskristallen bis zu 30%. Atmosphärenregionen mit einer hohen Partikelbelastung, insbesondere aus anthropogenen Quellen und Wüstenregionen, sind somit dem aktuellen Wissensstand zufolge von effektiverer Eisbildung betroffen als partikelarme Regionen.

2.2 Fernerkundung der Eisbildung mittels Lidar

2.2.1 Lidarprinzip

Zur berührungslosen Erkundung der Eisbildung in Wolken eignet sich die optische Fernmessung mittels Lidar, da Vertikalprofile vom Boden bis in über 100 km Höhe in hoher zeitlicher und räumlicher Auflösung aufgenommen werden können. Außerdem ist neben der Ermittlung atmosphärischer Zustandsgrößen wie Feuchte und Temperatur [*Behrendt*, 2005] und der Detektion von Aerosol und Spurengasen auch die Unterscheidung zwischen Flüssigwassertropfen und Eiskristallen möglich (siehe Kapitel 3).

Schon aus dem Begriff LIDAR kann die Funktion dieses Messinstrumentes ausgemacht werden. LIDAR steht für "Light Detection And Ranging" und bedeutet so viel wie: mit Hilfe von Licht detektieren und die Entfernung messen. Vom Lidar werden Laserpulse ausgesendet, in der Atmosphäre gestreut und das zurückgestreute Signal vom Teleskop des Lidars empfangen. Das rückgestreute Signal dient zur Bestimmung der Eigenschaften der rückstreuenden Objekte, da die Rückstreuung abhängig von Größe, Form, Konzentration und Brechungsindex der Partikel ist [Müller et al., 1999]. Aus der Laufzeit des Signals wird die Entfernung der detektierten Objekte ermittelt. Werden Lidarsysteme mit mehreren Wellenlängen verwendet, können außerdem Aussagen über Partikelgrößenverteilungen und die Art der Objekte getroffen werden, da die Rückstreuung ebenso abhängig von der ausgesendeten Wellenlänge ist [Müller et al., 1999]. In der Lidargleichung (Gleichung 2.9) wird diese Abhängigkeit deutlich. Es wird ein Signal der Leistung P_0 und der Wellenlänge λ ausgesendet, dieses trifft in der Entfernung R auf Luftmoleküle (mol) und Partikel (par) und wird zurückgestreut. Am Messgerät wird die zurückgestreute Leistung $P(R, \lambda)$ in Abhängigkeit von der Entfernung und der Wellenlänge gemessen. Außerdem hängt die empfangene Leistung von zwei unbekannten Parametern, dem Extinktionskoeffizient α_{par} und dem Rückstreukoeffizient β_{par} der Partikel ab. Je nach Lidarsystem gibt es verschiedene Ansätze für einen der beiden Parameter eine Lösung zu finden und so von der empfangenen Leistung auf das Rückstreu- oder Extinktionsvermögen der beobachteten Partikel schließen zu können (siehe Abschnitt 2.2.4). Zusätzlich werden gerätetypische Komponenten wie die Systemeffizienz, Teleskopfläche und Pulslänge durch die Lidarkonstante $C(\lambda)$ sowie die Überlappung von Laserstrahl und Sichtfeld des Empfängers anhand der Überlappungsfunktion O(R) in der Lidargleichung berücksichtigt. Befindet sich der Laserstrahl nahe des Lasers noch nicht im Sichtfeld des Teleskops, so ist O(R) = 0. Bei vollständiger Überlappung ist O(R) = 1. Die Höhe der vollständigen Überlappung ist vom jeweiligen Gerät abhängig [Wandinger, 2005].

$$P(R,\lambda) = P_0(\lambda)C(\lambda)\frac{O(R)}{R^2} \left[\beta_{par}^{\lambda}(R,\lambda) + \beta_{mol}^{\lambda}(R,\lambda)\right] \exp\left\{-2\int_0^R \left[\alpha_{par}^{\lambda}(r,\lambda) + \alpha_{mol}^{\lambda}(r,\lambda)\right] dr\right\}$$
(2.9)

2.2.2 Entfernungkorrigierte Signal

Anhand der einfachen physikalischen Beziehung s = vt ist es möglich mit der Lichtgeschwindigkeit c und der Zeit t zwischen Aussenden und Empfangen des Signals die Entfernung des rückstreuenden Objektes zum Messgerät zu berechnen. Die Zeit t schließt sowohl den Weg zum Partikel als auch den Weg zurück ein, daher ergibt sich :

$$R = \frac{1}{2}ct \tag{2.10}$$

Da die Entfernung R aufgrund der gemessenen Laufzeit t bekannt ist, kann die gemessene Leistung des Signals $P(R, \lambda)$ mit der Entfernung R korrigiert werden. Aus der Lidargleichung (2.9) folgt damit das entfernungskorrigierte Signal PR^2 .

$$P(\lambda)R^{2} = P_{0}(\lambda)C(\lambda)O(R)\left[\beta_{par}^{\lambda}(R,\lambda) + \beta_{mol}^{\lambda}(R,\lambda)\right]\exp\left\{-2\int_{0}^{R}\left[\alpha_{par}^{\lambda}(r,\lambda) + \alpha_{mol}^{\lambda}(r,\lambda)\right]dr\right\}$$

$$(2.11)$$

Allerdings wird der Laserstrahl von dem in PRD verwendeten Messgerät Polly^{XT} nicht exakt senkrecht zum Erdboden ausgesendet. Er tritt mit einer Neigung von 5° in die Atmosphäre, um spiegelnde Reflektionen an horizontal ausgerichteten Eiskristallen zu vermeiden [*Thomas et al.*, 1990; *Westbrook et al.*, 2009; *Seifert*, 2010]. Diese Neigung muss bei der Berechnung der echten Entfernung H von Wolken-und Aerosolschichten beachtet werden. Das Verhältnis von Höhe über dem Lidar zu gemessener Entfernung ist rund 0.996.

$$\frac{H}{R} = \cos\left(5^\circ\right) \approx 0.996$$

2.2.3 Volumendepolarisationsverhältnis

Ein wichtiger Vorteil der Erkundung von Eisbildung mit Lidar ist die Möglichkeit den thermodynamischen Phasenzustand der in den Wolken befindlichen Partikel zu bestimmen. Mit Hilfe des Polarisationszustandes des empfangenen Lichtes ist es möglich, festzustellen, welche Form die Partikel haben und damit zu unterscheiden, ob es sich um sphärische Flüssigwassertropfen oder nicht-sphärische Eiskristalle handelt [Sassen, 2005; Ansmann et al., 2005]. Im folgenden Abschnitt soll das Depolarisationsverhältnis näher vorgestellt werden.

Vom Lidar wird linear polarisiertes Licht P_0 ausgesendet, das heißt die Auslenkung der Schwingung geschieht nur in einer Ebene senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des Lichts. In der Atmosphäre wird dieses Licht von nicht-sphärischen Partikeln wie zum Beispiel von Eiskristallen oder Staubpartikeln depolarisiert. Das zuvor linear polarisierte Licht erhält dadurch eine senkrecht polarisierte Komponente $P_{\lambda 0}^{\perp}$, welche neben der parallel-polarisierten Strahlung $P_{\lambda_0}^{\parallel}$ am Teleskop empfangen wird.

$$P_{\lambda_0}^{\perp}(z) = P_0 C_s(\lambda_0)^{\perp} \frac{O(z)}{z^2} \beta_{\lambda_0}^{\perp}(z) \exp\left\{-2\int_0^z \alpha_{\lambda_0}^{\perp}(r) dr\right\}$$
(2.12)

$$P_{\lambda_0}^{\parallel}(z) = P_0 C_s(\lambda_0)^{\parallel} \frac{O(z)}{z^2} \beta_{\lambda_0}^{\parallel}(z) \exp\left\{-2\int_0^z \alpha_{\lambda_0}^{\parallel}(r) \, dr\right\}$$
(2.13)

Die empfangenen Signalkomponenten $P_{\lambda_0}^{\parallel}(z)$ und $P_{\lambda_0}^{\perp}(z)$ bei der ausgesendeten Wellenlänge λ_0 sind abhängig vom jeweiligen Rückstreukoeffizienten $\beta_{\lambda_0}^{\parallel,\perp}$ und der Systemeffizienz $C_s^{\parallel,\perp}$. Die ausgesendete Laserleistung P_0 ist für beide empfangenen Komponenten identisch und auch die Überlappung und Extinktion wird für beide Polarisationsrichtungen als gleich angenommen [*Baars*, 2012].

Das Volumendepolarisationsverhältnis ist definiert als das Verhältnis von senkrecht zu parallel polarisierter empfangener Strahlung, relativ zur Ebene der ausgesendeten Strahlung. Unter der Annahme, dass Extinktion, Überlappung und Systemeffizienz für beide Polarisationsrichtungen identisch sind, gilt nach Sassen [2005]:

$$\delta_{\lambda}^{vol}\left(z\right) = \frac{P_{\lambda_{0}}^{\perp}\left(z\right)}{P_{\lambda_{0}}^{\parallel}\left(z\right)} = \frac{\beta_{\lambda}^{\perp}\left(z\right)}{\beta_{\lambda}^{\parallel}\left(z\right)} = \frac{\beta_{\lambda,mol}^{\perp}\left(z\right) + \beta_{\lambda,par}^{\perp}\left(z\right)}{\beta_{\lambda,mol}^{\parallel}\left(z\right) + \beta_{\lambda,par}^{\parallel}\left(z\right)}$$
(2.14)

Analog wird das Partikel- bzw. Moleküldepolarisationsverhältnis wie folgt definiert:

$$\delta_{\lambda}^{par}\left(z\right) = \frac{\beta_{\lambda,par}^{\perp}\left(z\right)}{\beta_{\lambda,par}^{\parallel}\left(z\right)} \tag{2.15}$$

$$\delta_{\lambda}^{mol}\left(z\right) = \frac{\beta_{\lambda,mol}^{\perp}\left(z\right)}{\beta_{\lambda,mol}^{\parallel}\left(z\right)} \tag{2.16}$$

Parallel und senkrecht polarisierte Signalkomponenten werden dabei meistens mit zwei getrennten Detektoren empfangen. Wenn beide Detektoren als ideal angenommen werden, beeinflusst die jeweils andere Signalkomponente das detektierte Signal nicht [Seifert, 2010]. In der Praxis ist das jedoch nicht der Fall. Gleichung 2.14 kann daher nur zur Berechnung des Depolarisationsverhältnisses unter Idealbedingungen angewendet werden.

Mit Polly^{XT} werden die Signale der unpolarisierten rückgestreuten Strahlung $P_{\lambda}(z)$ und der senkrecht polarisierten rückgestreuten Strahlung $P_{\lambda}^{\perp}(z)$ gemessen und genutzt, um das Volumendepolarisationsverhältnis folgendermaßen zu berechnen:

$$\delta_{\lambda}^{vol}\left(z\right) = \frac{C_{\lambda}^{\delta} - \frac{P_{\lambda}^{\perp}(z)}{P_{\lambda}(z)}}{D_{\lambda}\frac{P_{\lambda}^{\perp}(z)}{P_{\lambda}(z)} - D_{\lambda}^{\perp}C_{\lambda}^{\delta}}$$
(2.17)

 C_{λ}^{δ} ist dabei eine Kalibrierkonstante, welche in partikelfreien Bereichen der Atmosphäre bestimmt wird, wo das Depolarisationsverhältnis von Luftmolekülen bekannt ist. D_{λ} und

 D_{λ}^{\perp} sind die zu den rückgestreuten Signalen gehörenden Transmissionsverhältnisse, welche das Verhältnis der experimentell bestimmbaren Transmissionseffizienz von senkrecht und parallel polarisierten Licht für jeden Detektionskanal angeben [*Mattis et al.*, 2009].

Genauere Erläuterungen zur Bestimmung von C_{λ}^{δ} und D_{λ} bzw. D_{λ}^{\perp} liefern *Baars* [2012] und *Mattis et al.* [2009].

Enthalten die rückstreuenden Schichten überwiegend sphärische Partikel, wie zum Beispiel Flüssigwassertropfen, so wird das linear polarisierte Licht des Lasers unter einem Winkel von 180° zurückgestreut. Es findet so gut wie keine Depolarisation der gestreuten Strahlung statt, der senkrecht polarisierte Anteil ist daher sehr gering ($\delta^{vol} \approx 0$). Je mehr die Form der Partikel von der sphärischen Gestalt abweicht, desto mehr Reflexionen finden im Inneren und an den Kanten der Partikel statt, das gestreute Licht wird dabei depolarisiert und die senkrecht polarisierte Komponente wird größer und damit $\delta^{vol} > 0$. Anhand des Volumendepolarisationsverhältnisses ist es somit möglich zwischen sphärischen und nicht-sphärischen Partikel zu unterscheiden.

2.2.4 Rückstreu- und Extinktionskoeffizient

Der Rückstreukoeffizient β gibt die Menge des Lichtes an, das im Winkel von 180° zurückgestreut und vom Empfänger registriert wurde. Es wird dabei zwischen der Rückstreuung an Partikeln β_{par} und Molekülen β_{mol} unterschieden. Der Anteil des Lichtes, das auf dem Weg durch die Atmosphäre durch Absorption oder Streuung verloren geht und nicht zurück zum Messgerät gelangt, wird durch den Extinktionskoeffizienten α berücksichtigt. Auch hier unterscheidet man zwischen der Extinktion durch Partikel α_{par} und Moleküle α_{mol} .

Die molekulare Rückstreuung und Extinktion kann für bekannte Temperatur- und Druckprofile berechnet werden [Bucholtz, 1995].

Die Bestimmung von Rückstreu- und Extinktionskoeffizient an Partikeln ist anhand zwei verschiedener Ansätze möglich. Bei der ersten Näherung, der Klett-Fernald-Methode, wird von einem Verhältnis von Rückstreuung und Extinktion, dem Lidarverhältnis S_{par} , ausgegangen. Durch die Einführung von $S_{par} = \frac{\alpha_{par}}{\beta_{par}}$ beinhaltet die Lidargleichung nur noch eine Unbekannte: entweder α_{par} oder β_{par} . Allerdings muss dabei das Lidarverhältnis angenommen werden, für bestimmte Partikeltypen ist S_{par} jedoch bekannt (siehe *Müller et al.* [2007]).

Die zweite Methode ist die Messung eines zusätzlichen Signals, dem von Stickstoffmolekülen erzeugten Ramansignal. Dadurch ist es möglich die Partikelextinktion direkt zu bestimmen und die Rückstreuung zu berechnen. Da die Intensität des rückgestreuten Ramansignals viel geringer ist als die Streuung des Tageslichtes an Molekülen, ist diese Methode nur bei Nacht möglich. Die Bestimmung von Partikelrückstreu- und Extinktionskoeffizient wird in Ansmann und Müller [2005] und Kanitz [2012] detailliert beschrieben.

2.2.5 Messinstrument – Polly^{XT}

Für die Messungen in Guangzhou wurde das am TROPOS entwickelte Raman–Polarisations– Lidar Polly^{XT}, verwendet. Polly^{XT} ist ein portables Lidarsystem, welches durch Aussenden von Laserpulsen bei 355, 532 und 1064 nm Wellenlänge neben Rückstreu- und Extinktionskoeffizienten auch das Depolarisationsverhältnis bei 532 nm messen kann.

Der Aufbau von Polly^{XT} ist in Abbildung 2.2 dargestellt und wird im Folgenden kurz erläutert. Eine genauere Beschreibung befindet sich in *Althausen et al.* [2009].

Die gesamte optische Ebene des Messgeräts ist um einen Winkel von 5° geneigt, um Spiegelungen des Laserlichtes an horizontal ausgerichteten Eiskristallen zu vermeiden (siehe Abschnitt 2.2.2). Vom Laser werden Lichtpulse bei den drei genannten Wellenlängen zeitgleich ausgesendet. Durch zwei Prismen E1 wird der Laserstrahl in Richtung Atmosphäre gelenkt und von einem achromatischen Strahlweiter E2 vor Verlassen des Messgeräts auf einen größeren Durchmesser gebracht. Das Licht bei 355 nm ist dabei linear polarisiert, so ist nach Messung der senkrecht polarisierten Signalkomponente bei dieser Wellenlänge später die Bestimmung des Depolarisationsverhältnisses möglich. Die zurückgestreuten Photonen werden von einem Spiegel R1 empfangen und zu einem zweiten Spiegel R2 reflektiert, welcher diese wiederum durch eine Blende R3 und eine Linse R4 leitet. Schließlich wird das Licht durch mehrere Strahlteiler gelenkt und in die 3 ausgesendeten Wellenlängen (355, 532, 1064 nm), die senkrecht polarisierte Komponente des Signals bei 355 nm und das Raman-gestreute Licht bei 387 nm und 607 nm zerlegt. Durch Filter und plankonkave Linsen wird das Licht der einzelnen Wellenlängen schließlich auf Photomultiplier geleitet, welche mit den datenverarbeitenden Computern verbunden sind.



Abbildung 2.2: Aufbau des Raman-Polarisations-Lidars Polly^{XT}, adaptiert von [*Althausen et al.*, 2009], Beschreibung im Text.



Abbildung 2.3: Lidarstandort und GDAS–Gitterpunkt im Stadtgebiet von Guangzhou, Quelle: Google Earth.

2.3 Messstandort

Guangzhou liegt im Pearl River Delta (PRD), circa 120 km nordwestlich der Mündung des Pearl Rivers in das Südchinesische Meer. Ziel der Messkampagne "Megacities" war die Untersuchung der anthropogenen Partikelbelastung. Aus diesem Grund wurden die Messungen mitten im Stadtgebiet von Guangzhou (23°04'08"N 113°22'52"0, 23.5 m über NN) auf dem Dach eines Gebäudes der Sun Yat-sen Universität durchgeführt. Die Zeitverschiebung gegenüber UTC beträgt +8h. In Abbildung 2.3 ist sowohl der Standort der Messungen, als auch der Gitterpunkt der GDAS-Daten (siehe Abschnitt 3.2) markiert.

2.3.1 Meteorologische Bedingungen des Standorts

Guangzhou (23.13°N, 113.27°O) befindet sich knapp südlich des nördlichen Wendekreises. Es herrscht daher feucht-subtropisches bis tropisches Klima. Beeinflusst durch die Monsunzirkulation findet ein jährlicher Wechsel von Regen- und Trockenzeit statt. Durch die Verlagerung der Innertropischen Konvergenzzone nach Norden im Sommer und nach Süden im Winter, weht der Wind entweder aus südlichen oder nordöstlichen Richtungen. Dadurch werden in den Sommermonaten (April bis September) feuchte Luftmassen vom Südchinesischen Meer über den Kontinent geführt, welche zu starken Regenfällen mit bis zu 300 mm Durchschnittsniederschlag im Monat führen können. Im Winter bringt der Nordostpassat trockene Luft vom Inneren des Kontinentes nach Guangzhou, was zu einer wesentlich trockeneren Periode von Oktober bis März führt. Die Jahresmitteltemperatur liegt bei 22.6 °C, die Durchschnittstemperatur im Sommer beträgt 28.6 °C (Juli) und auch im Winter bleibt es mit durchschnittlich 13.6 °C (Januar) mild.

Während des Messzeitraumes kam es zu für die Trockenzeit untypischen Regenfällen von Januar bis März. Verursacht wurden diese Regenfälle durch ein schwächer als üblich ausge-

prägtes Kontinentalhoch, wodurch die Luftmassen in der Trockenzeit nicht wie sonst vom Kontinent, sondern teilweise vom Südchinesischen Meer herangetragen wurden, außerdem ist die erhöhte Niederschlagsaktivität auf ein La Niña-Ereignis zurückzuführen [Bauditz, 2013]. Profile der monatlich gemittelten Windrichtung, Windgeschwindigkeit, relativen Feuchte und Temperatur für den Messzeitraum sind in Abbildung 2.4 gegeben. Die Profile wurden aus GDAS-Daten zusammengestellt (siehe Abschnitt 3.2).

Das gemittelte Temperaturprofil zeigt in den einzelnen Monaten des Messzeitraums kaum Veränderungen. In der Trockenzeit (November-März) nahm die Temperatur Bodenwerte von 15 °C bis 20 °C an, in der Regenzeit (April–Juni) war sie etwas höher mit rund 25 °C bis 30 °C. Bis zur Tropopause in circa 16.5 km Höhe nimmt die Temperatur im Mittel um 6 K km⁻¹ ab. In dieser Höhe erreicht sie ihr Minimum von rund -75 °C, in der Stratosphäre steigt sie wieder an. Die Nullgradgrenze wird in allen Monaten bei circa 4.5 km erreicht. Ab dieser Höhe ist bei Anwesenheit von geeigneten Eiskeimen Eisbildung möglich. Oberhalb von 11 km Höhe sinkt die Temperatur auf unter -40 °C, ab da sind nur noch reine Eiswolken (Zirren) zu erwarten. Das Profil der relativen Feuchte zeigt in allen Monaten ein lokales Maximum in 1–2 km Höhe, bevor sie auf ein Minimum bei 5–10 km absinkt. Die Ausprägung dieses trockenen Bereiches der Atmosphäre unterscheidet sich in Trocken- und Regenzeit. In der Trockenzeit, von November bis März, sind die Bereiche mit geringer relativer Feuchte vertikal viel ausgedehnter und trockener. In 5–10 km Höhe sinkt die relative Feuchte auf unter 20%. Von April bis Juni fällt das Minimum nicht so stark aus, allerdings beträgt die relative Feuchte zwischen 5–10 km immer noch nur rund 60%. Auch bei dem lokalen Maximum in 1-2 km Höhe sind Unterschiede zwischen Regen- und Trockenzeit erkennbar. In der Regenzeit und den ungewöhnlich feuchten Monaten Januar bis Juni erreichte die relative Feuchte Werte von rund 90%, sonst wurden nur 60–70% erreicht. In der Stratosphäre waren keine GDAS–Daten zur relativen Feuchte mehr verfügbar.

Der Wind weht in der Höhe hauptsächlich aus Westen. Es werden somit Luftmassen vom Kontinent in Richtung Guangzhou getragen. Luftmassen mariner Quellregionen wie zum Beispiel dem Südchinesischen Meer sind in den studienrelevanten Höhen nicht zu erwarten. Im Mai und Juni ist jedoch eine Drehung des Windes in der Höhe nach Osten erkennbar. Auch in Bodennähe zeigt sich eine Drehung des Windes. In den trockenen Monaten weht der Wind aus nördlichen Richtungen, in der Regenzeit aus Südosten. In beiden Fällen dreht er mit der Höhe im Uhrzeigersinn, bis er in circa 2.5 km Höhe seine endgültig westliche Richtung erreicht hat. In den studienrelevanten Höhen von 4 bis 11 km herrschen daher stets westliche bis südwestliche Winde vor.

Die Windgeschwindigkeit zeigt vor allem von November bis April eine starke Höhenabhängigkeit. In Bodennähe noch gering mit unter 5 m s^{-1} nimmt sie bis in circa 12 km Höhe zu und erreicht dort Werte von über 30 m s⁻¹, danach nimmt sie wieder ab. Von November bis Februar ist außerdem ein lokales Minimum in 1–3 km Höhe zu erkennen. Hier nimmt die Windgeschwindigkeit noch einmal bis auf 1 m s^{-1} ab, bevor sie wieder ansteigt. In der Regenzeit hingegen ist die maximale Windgeschwindigkeit geringer (<15 m s⁻¹) und zeigt kein deutliches Maximum.



Abbildung 2.4: Auf GDAS–Daten basierende monatliche Mittelwerte der Profile von Temperatur (schwarz), relativer Feuchte (rot), Windrichtung (blau) und Windgeschwindigkeit (grün) für Guangzhou und den Zeitraum 11/2011 bis 06/2012.

Die über Guangzhou vorherrschenden Strömungsbedingungen müssen jedoch nicht zwangsläufig auf das Quellgebiet der Luftmassen hinweisen. Anhand von mit dem HYSPLIT (Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Modell berechneten Rückwärtstrajektorien



Abbildung 2.5: HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien für in 2 km (rot), 5 km (blau) und 8 km (grün) am 25. April 2012, 00 UTC über Guangzhou (23.04°N, 113.22°O) eintreffende Luftmassen.

kann der Transport von Luftmassen vor ihrer Ankunft über Guangzhou verdeutlicht werden. Für den 25. April 2012, einem beliebigen Datum des Messzeitraumes, sind dafür in Abb. 2.5 die Rückwärtstrajektorien für drei unterschiedliche Ankunftshöhen dargestellt. Durch die farbig gekennzeichneten Linien kann rekonstruiert werden, wo sich ein Luftpaket in 8 km (grün), 5 km (blau) und 2 km (rot) Höhe zum jeweiligen Zeitpunkt befunden hat. Die bei 5 km und 8 km ankommenden Luftpakete wurden demnach aus Westen herangetragen und befanden sich vor 10 Tagen noch über der Sahara. Das Luftpaket bei 2 km wurde stattdessen aus Südwesten herangeführt. In Höhen oberhalb 5 km sind daher vor allem Wüstenstaubpartikel und andere herangetragene kontinentale Aerosole zu erwarten, während in niedrigeren Höhen vor allem lokales anthropogenes Aerosol vorhanden ist.

Kapitel 3

Methodik

Um Aussagen über die heterogene Eisbildung über Südostasien (PRD) treffen zu können, musste der bei der Messkampagne gewonnene Datensatz bezüglich des Auftretens von Eis enthaltenden Wolken untersucht werden. Das Vorgehen bei der Auswertung des Datensatzes entspricht der Vorgehensweise von *Seifert* [2010], *Kanitz* [2012] und *Kunz* [2014] welche die Eisbildung über Leipzig, Stellenbosch, Punta Arenas und Manaus ausgewertet haben. In dieser Arbeit wird die Methode auf das Fallbeispiel Guangzhou/PRD angewendet und durch Fallstudien erweitert. Dem zeitlichen und räumlichen Verlauf des entfernungskorrigierten Signals der Polly^{XT}–Messungen wurde zunächst die Auftrittszeit der Wolken und deren Ober- und Unterkantenhöhe entnommen. Durch Modelldaten des Global Data Assimilation Systems (GDAS) konnten den detektierten Wolken eine Wolkenober- und Wolkenunterkantentemperatur zugeordnet werden. Durch gemeinsames Betrachten von rückgestreutem Signal, Depolarisationsverhältnis und Wolkenoberkantentemperatur ist es möglich, die Phase der detektierten Wolken zu bestimmen. Die Klassifizierung der Wolken ist die Voraussetzung der Analyse der Eisbildung über PRD. In diesem Kapitel soll die Methodik der Wolken- und Phasenbestimmung anhand eines Beispiels beschrieben werden.

3.1 Geometrische Wolkeneigenschaften

Die mit Polly^{XT} erlangten Profile des entfernungskorrigierten Signals bei einer Wellenlänge von 1064 nm wurden für den gesamten Zeitraum auf erhöhte Rückstreusignale untersucht. Die Bereiche starker Rückstreuung grenzen dabei die Höhe und den Auftrittszeitraum der Wolken ein. Abbildung 3.1 zeigt ein Beispiel des zeitlichen und räumlichen Verlaufs des entfernungskorrigierten Signals.

Ein Wolkenfall wurde als einzelnes Ereignis betrachtet, sobald ein vertikaler Abstand von 500 m und ein zeitlicher Abstand von 5 min zu einer benachbarten Wolke gegeben war. Andernfalls wurden die Wolkenfälle zu einem zusammengefasst. Die Trennung nach Wolkenfällen, und nicht nach beispielsweise der Auftrittszeit von Eiskristallen, ist sinnvoll, da aufgrund des Zusammenwirkens des Bergeron-Findeisen-Prozesses und der Wolkendynamik mit hoher Wahrscheinlichkeit davon ausgegangen werden kann, dass sich die Eisphase, sobald initialisiert, während der gesamten Wolkenauftrittszeit hält.

Wolkenober- und Unterkante können durch das Vertikalprofil des entfernungskorrigierten Signals (Abb. 3.1 rechts) bestimmt werden. Ein Ansteigen des Signals mit der Höhe kennzeichnet dabei die Wolkenunterkante, erreicht das Signal in der Höhe wieder den Wert der Unterkante, markiert dies die Oberkante. Häufig ist das rückgestreute Signal aufgrund der starken Abschwächung des Signals bei hohen und dicken Wolken sehr schwach, sodass die Wolkenoberkante in Wirklichkeit höher liegt, als durch das entfernungskorrigierte Signal festgestellt. In diesen Fällen sinkt das Verhältnis des Signals zwischen festgestellter Oberkante und der festgestellten Oberkante+500 m zu dem Hintergrundsignal unter den Wert von 1.03. Diese Wolken werden dann als Wolken ohne Oberkante klassifiziert [Seifert, 2010].

In Abbildung 3.1 (links) ist der zeitliche und räumliche Verlauf des entfernungskorrigierten 1064 nm-Signals für den 22.11.2011 dargestellt. Eine vertikal ausgedehnte Wolkenschicht zwischen 5.7 und 10 km, sowie mehrere kleinere mittelhohe Wolkenfälle bei circa 5 km sind zu erkennen. Die farbigen Rahmen markieren die Zeiträume, welche zum Erstellen des Vertikalprofils, das in Abb. 3.1 (rechts) dargestellt ist, genutzt wurden. Aus dem Vertikalprofil erkennt man die Zunahme des Signals an der Wolkenunterkante und die Abnahme an der Oberkante der unteren Wolkenschicht. Bei der höher gelegenen Wolkenschicht ist die Oberkante aufgrund des Mittlungszeitraums und der Skalierung des Profils weniger gut erkennbar.

An diesem Beispiel ist auch der Effekt zu sehen, den tiefe Wolken auf das Signal darüber befindlicher Wolken haben. Das Laserlicht wird so stark abgeschwächt, dass der Laserstrahl die darüberliegenden Wolken nicht mehr erreicht. Dadurch scheint es fälschlicherweise so, als würden sich in diesen Bereichen keine Wolken befinden und es sich um einzelne, zeitlich getrennte Wolkenfälle handeln.



Abbildung 3.1: Demonstration der Bestimmung von Wolkenauftrittszeit und Wolkenauftrittshöhe anhand des entfernungskorrigierten Signals. Links: zeitlicher Verlauf des entfernungskorrigierten Signals bei 1064 nm für den 22.11.2011, 19:41–23:58 UTC, Rechts: Profil des entfernungskorrigierten Signals. Die farbigen Rahmen markieren den Zeitraum über den das Profil gemittelt wurde.

3.2 Meteorologische Parameter

Um den Zusammenhang von Eisbildung und Temperatur betrachten zu können, ist es notwendig den detektierten Wolken eine Temperatur zuzuordnen. Durch GDAS-Modelldaten (https://ready.arl.noaa.gov/gdas1.php), bereitgestellt vom Wetterdienst der Vereinigten Staaten, dem Nationalen Zentrum für Umweltvorhersage (NCEP), ist es möglich den Wolken neben Wolkenoberkanten- und Unterkantentemperatur auch andere meteorologische Parameter wie relative Feuchte, Windrichtung und Windgeschwindigkeit zuzuweisen. Das GDAS-Modell (Global Data Assimilation System) dient der Initialisierung von Vorhersagemodellläufen und speichert aus Bodenbeobachtungen, Radiosondenaufstiegen und Satellitenmessungen assimilierte Daten für jeden Gitterpunkt der Erde mit einer räumlichen Auflösung von 1° x 1°. In 23 Höhenstufen von 1000 bis 20 hPa Höhe werden mit einer zeitlichen Auflösung von 3 Stunden Daten archiviert. Für den Standort PRD wurde der am nächsten liegende Gitterpunkt 23°N, 113°O (siehe Abb. 2.3) verwendet.

Wie in Kapitel 2.1 diskutiert, ist die Temperatur ein wichtiger Einflussparameter für die Eisbildungseffizienz. Da die Temperatur an der Wolkenoberkante am tiefsten ist, wurde diese stellvertretend für die gesamte Wolke betrachtet. Lagen die detektierten Wolken zwischen den Höhenstufen, so wurde linear interpoliert. Die für die in Abb. 3.1 vorgestellte Fallstudie bestimmten Oberkantentemperaturen betragen -8 °C für die untere und -39 °C für die obere Wolkenschicht.

3.3 Klassifizierung der Wolkenphase

Die Bestimmung des Phasenzustandes der Wolke ist zum Erstellen einer Statistik der Eisbildung unerlässlich. Mit Hilfe des Volumendepolarisationsverhältnisses ist es möglich die Wolken zu klassifizieren. Wie schon in Abschnitt 2.2.3 beschrieben, kann aus dem Volumendepolarisationsverhältnis auf die Gestalt der Partikel geschlossen werden. Je mehr die Gestalt der Partikel von der sphärischen Form abweicht, desto größer wird das Verhältnis von senkrecht zu parallel polarisierter rückgestreuter Strahlung. Flüssigwassertropfen haben im Gegensatz zu Eiskristallen eine annähernd sphärische Form, das Depolarisationsverhältnis ist daher rund null. In Eiskristallen wird das Licht aufgrund der nicht-sphärischen Form mehrfach im Inneren oder an den Kanten reflektiert, dadurch erhält das Licht einen Anteil, der nicht parallel zu den ausgesendeten Strahlen polarisiert ist. Diese senkrecht polarisierte Komponente führt zu einem höheren Depolarisationsverhältnis. Aus der Verlaufsdarstellung des Volumendepolarisationsverhältnisses, wie in Abbildung 3.2, kann somit der Phasenzustand jeder einzelnen detektierten Wolke bestimmt werden.

Am 22.11.2011 war von 21 bis 0 UTC eine Eis enthaltende Wolke in einer Höhe von 6–10 km vorhanden. Das Depolarisationsverhältnis lag hier deutlich über Null, was sowohl farblich in der Verlaufsdarstellung gekennzeichnet als auch in dem Profil rechts zu erkennen ist. Die Wolken in 5 km Höhe konnten als reine Flüssigwasserwolken klassifiziert werden, obwohl das Depolarisationsverhältnis ungleich Null ist. Auffällig ist die Zunahme der Depolarisation hin



Abbildung 3.2: Demonstration der Bestimmung des Phasenzustandes der Wolken anhand des Volumendepolarisationsverhältnisses. Links: zeitlicher Verlauf des Volumendepolarisationsverhältnisses bei 532 nm für den 22.11.2011, 19:41–23:58 UTC, Rechts: Profil des Volumendepolarisationsverhältnisses, die farbigen Rahmen markieren den Zeitraum über den das Profil gemittelt wurde.

zur Wolkenoberkante. Dieser Effekt wird durch Mehrfachstreuung verursacht und ist charakteristisch für Flüssigwasserwolken. Bei der Anwendung der Lidargleichung zur Berechnung der Signalkomponenten der rückgestreuten Strahlung wird davon ausgegangen, dass die ausgesendeten Photonen nur einmal gestreut werden und anschließend in einem Winkel von 180° zurück zum Teleskop gelenkt werden oder durch Extinktion verloren gehen. Bei Flüssigwasserwolken mit einer hohen Tropfenkonzentration ist jedoch die Wahrscheinlichkeit groß, dass Photonen vorwärts gestreut werden [*Liou und Schotland*, 1971]. Verbleiben diese dabei im Sichtfeld des Empfängers, können die Photonen auch nach mehrmaligen Streuprozessen vom Empfänger registriert werden. Das empfangene Signal ist dann jedoch aufgrund der zahlreichen Streuereignisse bei Winkeln $\neq 180^{\circ}$ nicht mehr parallel zum ausgesendeten Licht polarisiert und das Depolarisationsverhältnis dadurch größer Null. Ist das Volumendepolarisationsverhältnis also an der Wolkenunterkante rund Null und nimmt bis zur Oberkante linear zu, kann von Mehrfachstreuung an Flüssigwassertropfen ausgegangen werden. Der entsprechende Wolkenfall wird dann trotz $\delta^{vol} \neq 0$ als Flüssigwasserwolke klassifiziert.

Durch die Betrachtung des Volumendepolarisationsverhältnisses jeder einzelnen beobachteten Wolke ist es somit möglich diese als reine Flüssigwasserwolke oder Eis enthaltend zu klassifizieren. Konnten Wolkenfälle aufgrund von qualitativ schlechten Depolarisationsmessungen nicht eindeutig klassifiziert werden, wurden diese als "uneindeutig" markiert, außerdem wurden Wolken mit nicht eindeutig bestimmter Oberkante gesondert betrachtet. Zur Erstellung der Statistiken wurden jedoch nur Wolkenfälle mit eindeutig definierter Wolkenoberkante und Phasenzustand verwendet. In den folgenden Kapiteln werden diese als "eindeutig bestimmt" bezeichnet.

Kapitel 4

Bisherige Studien

Das Ziel dieser Arbeit ist es, den bisherigen Studien zur heterogenen Eisbildung einen weiteren Ort hinzuzufügen und so die Statistik zu erweitern. Da die Anzahl der bisherigen Studien bis zum jetzigen Zeitpunkt stetig gewachsen ist, sollen in diesem Kapitel die einzelnen Kampagnen, denen die Statistiken zugrunde liegen, noch einmal vorgestellt werden.

Bisher wurden Daten von zwei Kampagnen auf der Nordhalbkugel und drei weiteren auf der Südhalbkugel in unterschiedlichen geographischen Breiten hinsichtlich heterogener Eisbildung ausgewertet. Leipzig und Punta Arenas (Chile) lieferten Messwerte aus den nördlichen bzw. südlichen gemäßigten Breiten. Messkampagnen in Manaus (Amazonasgebiet) und den Kapverden (nahe afrikanischer Westküste) verschaffen Einblicke in die Eisbildung über den Tropen. Schließlich ergänzt Stellenbosch (Südafrika) die Statistik mit einem Standort in den südlichen Subtropen. Ein Überblick der Standorte der bisherigen Messkampagnen ist in Abbildung 4.1 gegeben. Zusätzlich wurden drei weitere Messreihen auf dem Forschungsschiff Polarstern aufgenommen, welche entlang der Strecke von Bremerhaven bis Punta Arenas (und zurück) und von Bremerhaven bis nach Stellenbosch sowohl auf der Nord- wie auch Südhalbkugel gesammelt wurden. Die entsprechende Statistik ist zusätzlich in Abb. 4.2 dargestellt und wird in *Kanitz et al.* [2011] diskutiert. Aufgrund der Vergleichbarkeit mit den Ergebnissen der ortsfesten Messkampagnen wurde die Statistik des Forschungsschiffs Polarstern in dieser Zusammenstellung vernachlässigt.

Für alle bisherigen Messstandorte ist der Anteil Eis enthaltender Wolken in Abhängigkeit von der Wolkenoberkantentemperatur, in dem für heterogene Eisbildung relevanten Temperaturbereich von 0 °C bis -40 °C, in Abbildung 4.2 dargestellt. Zur Erstellung der Statistiken wurden nur eindeutige Wolkenfälle verwendet und diese als Funktion der Wolkenoberkantentemperatur in Intervalle von 5 K eingeteilt.

Leipzig, Deutschland

Im Rahmen der DRIFT–Studie (Dust–related Ice Formation in the Troposphere) wurde ein 11 Jahre umfassender Datensatz der am TROPOS in Leipzig, Deutschland (51.35°N, 12.43°O) stattfindenden EARLINET–Messungen hinsichtlich der heterogenen Eisbildung ausgewertet



Abbildung 4.1: Überblick der bisherigen Messkampagnen, einschließlich des in dieser Arbeit vorgestellten Standorts Pearl River Delta (PRD), Quelle: Google Earth.

[Seifert et al., 2010; Seifert, 2010]. Zwischen April 1997 und Juni 2008 wurden 1899 als eindeutig bestimmte Wolkenfälle beobachtet. Von diesen 1899 Wolkenfällen wurden 790 als Flüssigwasserwolken identifiziert, 1109 Wolken enthielten Eis.

Der Anteil Eis enthaltender Wolken in den jeweiligen Temperaturintervallen zwischen 0°C und -40°C ist für Leipzig in Abbildung 4.2 rot gekennzeichnet. Im Bereich zwischen -5°C und -25°C ist eine starke Zunahme des Anteils Eis enthaltender Wolken zu beobachten. Insgesamt ist die heterogene Eisbildung über Leipzig viel effektiver als bei den anderen betrachteten Standorten und beginnt bei höheren Temperaturen. *Seifert* [2010] schlussfolgert aus der Studie, dass der hohe Anteil an anthropogener Verschmutzung, Wüstenstaub aus der Sahara, Waldbrandaerosol und biogenen Partikeln in der gesamten Troposphäre über Leipzig geeignete Eiskeime liefert und zur heterogenen Eisbildung bei relativ hohen Temperaturen führt.

Manaus, Brasilien

Von Januar bis November 2008 wurden in Manaus, Brasilien (2.59°S, 60.04°W, 92 m ü. NN) im Rahmen des EUCAARI (European Integrated Project on Aerosol, Cloud, Climate, Air Quality Interactions) Projektes mitten im tropischen Regenwald Polly^{XT}–Messungen durchgeführt. In der Regenzeit, von Januar bis Mai, wurden 1019 Wolkenfälle registriert. 505 Wolken waren reine Wasserwolken, 132 enthielten Eis. In Abb. 4.2 ist der Eisanteil lila dargestellt.



Abbildung 4.2: Anteil Eis enthaltender Wolken in Abhängigkeit von der Wolkenoberkantentemperatur für die bisher durchgeführten Messkampagnen, einschließlich der Statistik für das Forschungsschiff Polarstern, dargestellt in 5 K Temperaturintervallen, die Zahlen oberhalb der Kurven geben die Anzahl aller eindeutig bestimmten Wolkenfälle in dem jeweiligen Temperaturintervall an.

Die Messungen über Manaus zeigen im Vergleich zu den anderen Standorten eine effektive Eisbildung bis zu einer Temperatur von -10 °C, die in etwa einer Höhe von 6 km entspricht. Bei Temperaturen unter -10 °C ist der Anteil der Eis enthaltenden Wolken dagegen deutlich geringer als bei anderen Standorten. Tatsächlich sind eiswirksame Aerosole wie Saharastaub und Biomasseverbrennungsaerosol in der Regenzeit im Amazonasgebiet nur in den untersten 6 km vorhanden, da durch starke Niederschläge eine vertikale Vermischung unterdrückt wird. In größeren Höhen sorgt die vom Atlantik herangetriebene saubere marine Luft für eine geringe Anzahl an eiswirksamen Aerosolen und damit für eine weniger effektive Eisbildung. Kunz [2014] schließt daraus, dass über Manaus der Einfluss von organischen Aerosolen oder Aerosolpartikeln anderer bodennaher Quellen auf Wolken bis 6 km Höhe wahrscheinlich ist.

Praia, Kapverden

Eine weitere Kampagne wurde in Praia, Kapverden (15°N, 23.5°W, 95 m ü.NN), einem Inselstaat 500 km westlich der afrikanischen Atlantikküste, im Rahmen des SAMUM (Saharan Mineral Dust Experiment) Projektes durchgeführt. Die Kampagne lief von Dezember 2010 bis April 2011 während der Trockenzeit in Zentralafrika. Dabei wurden zwischen -40 °C und 0 °C 227 eindeutig klassifizierte Wolkenfälle beobachtet, die meisten waren reine Wasserwolken. In Abb. 4.2 ist der Anteil an Eis enthaltenden Wolken blau dargestellt.

Effektive heterogene Eisbildung begann über den Kapverden, trotz der Nähe zur Sahara und damit zu einer großen Quelle für Wüstenstaub, erst ab -20 °C. Grund dafür ist die Beschränkung des Saharastaubs auf die untersten 4–5 km der Atmosphäre [Seifert, 2010; Knippertz et al., 2011]. In diesen Höhen ist es zu warm für Eisbildung. Die Luftmassen in größeren Höhen werden aus Westen vom Atlantik herangetragen und sind weitgehend frei von eiswirksamen Aerosolen. Der bei der DRIFT-Kampagne verwendete Grenzwert zur Unterscheidung von staubbelasteten und staubfreien Wolken wurde über den Kapverden in den Höhen der heterogenen Eisbildung laut der herangezogenen Modelldaten nie erreicht. Folglich sind in den unteren Kilometern der Troposphäre aufgrund der zu hohen Temperatur und in der Höhe aufgrund der geringen Konzentration von eiswirksamen Aerosol weniger Eis enthaltende Wolken anzutreffen als bei den anderen Messstandorten [Ansmann et al., 2009].

Punta Arenas, Chile

Während Lidarmessungen in Punta Arenas, Chile (53°S, 71°W, 37 m ü. NN) von Dezember 2009 bis April 2010 wurden 1448 eindeutige Wolkenfälle identifiziert. Davon bestanden 1062 Wolken aus Flüssigwasser, nur 386 enthielten Eis. Der Anteil an Eis enthaltenden Wolken ist insgesamt geringer als an anderen Standorten, wie auch an der schwarzen Kurve in Abb. 4.2 erkennbar ist. Die Eisbildung beginnt erst bei Temperaturen unter -10 °C und ist vor allem bei niedrigeren Temperaturen weniger effektiv. Trotz der vergleichbaren geographischen Breite mit Leipzig in den nördlichen mittleren Breiten ist die Eisbildung hier viel weniger effektiv, da auf der Südhalbkugel mutmaßlich allgemein weniger anthropogene Aerosolquellen vorhanden sind und so weniger IN für die Eisbildung zur Verfügung stehen. Außerdem befindet sich Punta Arenas im Einflussgebiet sauberer polarer Luftmassen. Seesalz stellt keinen sehr effizienten Eiskeim dar und begünstigt daher nicht die heterogene Eisbildung [Kanitz, 2012].

Stellenbosch, Südafrika

Die Messkampagne in Stellenbosch, Südafrika (34°S, 19°O, 114 m ü. NN) liefert den dritten Standort auf der Südhalbkugel und die gelbe Kurve in der Statistik des Anteils Eis enthaltender Wolken (Abb. 4.2).

Von Dezember 2010 bis April 2011 wurden 389 eindeutig bestimmte Wolken beobachtet, 253 wurden als Flüssigwasserwolken klassifiziert, 136 als Eis enthaltende Wolken.

Durch die Nähe zu regionalen kontinentalen Aerosolquellen und dem Langstreckentransport von Staub und anthropogenen Verschmutzungen aus Südamerika zeigt sich ein im Vergleich zu anderen Messstandorten der Südhalbkugel hoher Anteil an Eis enthaltenden Wolken [Kanitz, 2012].

Der Vergleich der Eisbildungseffektivität an unterschiedlichen Standorten auf Nord- und Südhalbkugel liefert einen Einblick in die mögliche Abhängigkeit der Eisbildung von der Aerosolkonzentation. Standorte auf der Nordhalbkugel sind durch den größeren Anteil an Kontinentalfläche und der intensiveren industriellen Nutzung stärker mit eiswirksamen Aerosolen wie Wüstenstaub, Ruß, Verbrennungsaerosolen und biogenen Aerosolen belastet. Die heterogene Eisbildung kann daher schon bei höheren Temperaturen beginnen und ist effektiver als in Gebieten mit wenig Aerosol. In vielen Gebieten der Südhalbkugel herrschen saubere marine Bedingungen vor. Seesalze stellen aufgrund ihrer Löslichkeit keinen guten Eiskeim dar und begünstigen daher die Eisbildung nicht.

In Abb. 4.2 ist dieser Unterschied zwischen Nord-und Südhalbkugel erkennbar. Die Orte auf der Südhalbkugel (Punta Arenas, Manaus, Stellenbosch) haben einen deutlich geringeren Anteil an Eis enthaltenden Wolken als Standorte auf der Nordhalbkugel bei gleicher Temperatur. Eine Ausnahme stellen die Kapverden dar, hier wird in den für Eisbildung relevanten Höhen tropische marine Luft aus Westen herangetragen. Dieser Standort ist daher nicht charakteristisch für die Aerosolbedingungen der Nordhalbkugel [Kanitz et al., 2011].

Kapitel 5

Ergebnisse

In diesem Kapitel sollen die Ergebnisse der Analyse der Messdaten über PRD vorgestellt werden. Zunächst wird an einem Fallbeispiel der Einfluss von Aerosolpartikeln auf die Eisbildung verdeutlicht und die Eisbildung als Funktion der Höhe betrachtet. Anschließend soll der Zusammenhang von Temperatur und Eisbildung dargelegt und mit den Ergebnissen der bisherigen Studien verglichen werden.

Alle von November 2011 bis Juni 2012 detektierten Wolken wurden, wie in Kapitel 3 beschrieben, als Flüssigwasserwolken oder Eis enthaltende Wolken klassifiziert oder als unklassifiziert markiert. Konnte die Wolkenoberkante nicht genau bestimmt werden, wurde sie als Wolke ohne Oberkante eingeordnet. Insgesamt wurden von November 2011 bis Juni 2012 über Guangzhou 1647 Wolken beobachtet. Davon wurden 907 als reine Flüssigwasserwolken klassifiziert, 158 enthielten Eis, keine Wolke blieb unklassifiziert. 582 Wolken konnte keine eindeutige Wolkenoberkante zugeordnet werden.

5.1 Fallstudie: Vergleich staubbelasteter – staubfreier Tag

In diesem Abschnitt soll zunächst der Einfluss der Luftmasse auf die Eisbildung anhand von zwei Fallbeispielen betrachtet werden. Dazu wurden zwei Tage mit unterschiedlichen Aerosolbedingungen ausgewählt. Zum einen ein Tag mit Einfluss von Wüstenstaub in großer Höhe, zum anderen ein sehr sauberer Tag, mit vom Ozean herangetragenen Luftmassen. Die Herkunft der Luftmassen in drei verschiedenen Ankunftshöhen ist durch die in Abb. 5.1 gegebenen HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien veranschaulicht.

Im ersten Beispiel (30. November 2011, 18–00 UTC) zogen die Luftmassen, die PRD oberhalb 5 km Höhe erreichten, in den letzten 10 Tagen überwiegend über Kontinentalflächen, unter anderem auch über die Sahara. In dem zeitlichen Verlauf des entfernungskorrigiertem Signals bei 1064 nm, Abb. 5.2 (B), ist deutlich eine Aerosolschicht zwischen 4 km und 7 km Höhe zu erkennen. In Panel D ist das dazugehörige Volumendepolarisationsverhältnis bei 532 nm abgebildet. Außerdem ist in Panel A das aus GDAS-Daten ermittelte Temperaturprofil für 21 UTC und die abgeschätzte Eiskeimkonzentration (INC) gegeben. In Panel C sind darüber hinaus das Profil des Volumen- und Partikeldepolarisationsverhältnisses dargestellt. Zur Er-



Abbildung 5.1: HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien der beiden Fallbeispiele für Guangzhou (23.04°N, 113.22°O) für 3 verschiedene Ankunftshöhen.

mittlung des Volumen- und Partikeldepolarisationsverhältnisses sowie der IN-Konzentration wurde eine Klettauswertung vorgenommen und über die durch schwarze horizontale Linien gekennzeichneten Bereiche gemittelt.

Die INC wird von der Extinktion abgeleitet, indem man annimmt, dass ein Partikelextinktionskoeffizient von $1 \,\mathrm{Mm}^{-1}$ einer INC von $0.006 \,\mathrm{cm}^{-3}$ entspricht. Dies entspricht einem Verhältnis der Aerosolpartikelkonzentration (APC) von großen Aerosolen(\emptyset > 500 nm) zur INC von 100 und steht für reinen Wüstenstaub [Ansmann et al., 2008]. Purer Wüstenstaub weist ein Partikeldepolarisationsverhältnis (δ_{par}) von 33% auf [Freudenthaler et al., 2009]. Wie Abb. 5.2 (C) zu entnehmen ist, beträgt δ_{par} in 5 km bis 7 km Höhe jedoch nur rund 25%. In der Aerosolschicht war demnach neben Wüstenstaub auch ein Anteil anderer Partikel enthalten und somit wird die INC wahrscheinlich überschätzt. In der bodennahen Schicht wurde das Profil der INC auf den letzten gültigen Wert gesetzt, da durch Überlappungseffekte keine gültigen Werte gemessen werden konnten. Nun befindet sich in der Aerosolschicht in circa 5 km Höhe eine Wolke, welche aufgrund des erhöhten Volumendepolarisationsverhältnisses der Fallstreifen eindeutig als Eis enthaltend klassifiziert werden konnte. Den GDAS–Daten ist allerdings eine Wolkenoberkantentemperatur von nur -9.9 °C zu entnehmen. Es kommt demnach trotz relativ hoher Temperatur zur Eisbildung.

Im zweiten Beispiel (Abb. 5.3) hingegen waren in 7km Höhe noch Wasserwolken anzutreffen, obwohl die Oberkantentemperatur bereits -18.2 °C betragen hat. Die HYSPLIT-

30



Abbildung 5.2: Eis enthaltende Wolke bei 5 km Höhe am 30. November 2011 von 18–24 UTC, A: aus GDAS-Modelldaten ermitteltes Temperaturprofil für 21 UTC und IN-Konzentration, B: entfernungskorrigierte Signal bei 1064 nm, C: Partikel- und Volumendepolarisationsverhältnis, D: Volumendepolarisationsverhältnis bei 532 nm, die schwarz markierten Zeitbereiche kennzeichnen den Mittlungszeitraum für INC, δ_{vol} und δ_{par} .

Rückwärtstrajektorien (Abb. 5.1), weisen darauf hin, dass sich die Wolken oberhalb von 5 km Höhe in sauberen, staubfreien Luftschichten gebildet haben. Die Luftmassen, welche Guangzhou am 22. November 2011 um 6 UTC in 5 km bis 8 km Höhe erreichten, wurden vom Südostchinesischen Meer herangetragen und bewegten sich die letzten 10 Tage durchgängig über diesem. Die Aufnahme von bodennahen Aerosolen war daher vermutlich gering.

Das an diesem Tag gemessene Signal war so schwach, dass Profile der Volumen- und Partikeldepolarisation der Aerosolschichten nicht berechnet werden konnten. Jedoch ist selbst unter der Annahme, dass das Aerosol aus purem Wüstenstaub bestand, die daraus abgeschätzte IN-Konzentration im Bereich der Wolken viel geringer als an dem vorher vorgestellten staubbelasteten Tag.

31

Die Anwesenheit von Wüstenstaub erhöht demzufolge die Konzentration von Eiskeimen und damit die Möglichkeit der Eisbildung. Am 30. November 2011 lag die IN-Konzentration in circa 5 km Höhe bei etwa 0.005 cm⁻³, daher war Eisbildung auch schon bei einer relativ hohen Temperatur von rund -10 °C möglich. Am 22. November hingegen war die Luftmasse über Guangzhou sehr sauber, die IN-Konzentration folglich rund Null. Ohne geeignete Eiskeime wurde die heterogene Eisbildung nicht begünstigt, daher konnten reine Flüssigwasserwolken bei relativ tiefen Temperaturen um -18 °C beobachtet werden.



Abbildung 5.3: Flüssigwasserwolken am 22. November 2011, A: aus GDAS–Modelldaten ermitteltes Temperaturprofil für 21 UTC, B: entfernungskorrigiertes Signal bei 1064 nm, C: aus Extinktion berechnete IN–Konzentration, D: Volumendepolarisationsverhältnis bei 532 nm; INC, δ_{vol} und δ_{par} wurden in den schwarz markierten Zeitbereichen ermittelt.

5.2 Eisbildung als Funktion der Wolkenhöhe

Zuvor wurde festgestellt, dass über PRD bis in große Höhen Aerosolpartikel anzutreffen sind, welche die Eisbildung begünstigen. In diesem Abschnitt soll untersucht werden wieviele Eis enthaltende Wolken sich in aerosolbelasteten Höhen gebildet haben. Dazu wurde die Eisstatistik als Funktion der Höhe betrachtet und mit den bisherigen Studien verglichen. Man geht davon aus, dass die Aerosolkonzentration mit der Höhe beziehungsweise mit zunehmenden Abstand zur Quelle abnimmt und so vor allem in geringen Höhen der Einfluss von Aerosol auf die Eisbildung am größten ist.

Der Anteil der Eis enthaltenden Wolken ist in Abb. 5.4 als Funktion der Höhe dargestellt. Dabei wurden nur eindeutig bestimmte Wolkenfälle mit einer Wolkenoberkantentemperatur zwischen 0 °C und -40 °C berücksichtigt. Signifikante Eisbildung beginnt über PRD ab 4 km Höhe. Bis zu dieser Höhe ist der Anteil der Eis enthaltenden Wolken mit dem der Standorte in den gemäßigten Breiten (Punta Arenas, Leipzig) zu vergleichen. Ab 4.5 km Höhe zeigen sich jedoch große Unterschiede, der Anteil an Eis enthaltenden Wolken nimmt zwischen 4.5 km



Abbildung 5.4: Anteil der Eis enthaltenden Wolken in Abhängigkeit von der Höhe mit einer Temperatur zwischen 0 °C und -40 °C, die Zahlen rechts geben die Anzahl aller eindeutig bestimmten Wolkenfälle in dem jeweiligen Höhenintervall an.



Abbildung 5.5: mittlere Wolkenoberkantentemperatur der Eis enthaltenden Wolken im jeweiligen Höhenintervall, Zahlen rechts: Anzahl aller Eis enthaltenden Wolken im entsprechenden Höhenbereich

und 7.5 km deutlich langsamer zu als über den anderen Messorten. So beträgt der Anteil zum Beispiel in 6 km Höhe über PRD nur rund 40%, in Punta Arenas und Leipzig sind es etwa 70%. Damit liegt PRD zwischen den Werten der gemäßigten und tropischen bzw. subtropischen Breiten (Kapverden/Stellenbosch), welche in 6 km Höhe einen Anteil an Eis enthaltenden Wolken von circa 10–20% aufweisen. Im Vergleich zu den anderen Standorten ist in der Höhe immer noch ein relativ großer Anteil an Flüssigwasserwolken anzutreffen. Der geringere Anteil an Eis enthaltenden Wolken in gleicher Höhe liegt allerdings nicht an einer geringeren Eisbildungseffektivität, sondern an einer höheren Temperatur in gleicher Höhe. Die meteorologischen Voraussetzungen der einzelnen Standorte unterscheiden sich teilweise stark voneinander, sodass die Höhe nicht als Vergleichswert herangezogen werden kann.

In Abb. 5.5 ist die mittlere Wolkenoberkantentemperatur der Eis enthaltenden Wolken in den einzelnen Höhenintervallen dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, dass Eis enthaltende Wolken über PRD in allen Höhenstufen viel wärmer sind als beispielsweise über Punta Arenas oder Leipzig. Vor allem in den tieferen Bereichen übertrifft die Temperatur der Eis enthaltenden Wolken über PRD sogar andere tropische (Kapverden) und subtropische Standorte (Stellenbosch). Auf der gleichen Höhenstufe herrscht über PRD also eine höhere Temperatur als über den anderen Standorten. Da der Anteil Eis enthaltender Wolken mit sinkender Temperatur zunimmt, ist dieser daher auf gleicher Höhenstufe geringer als zum Beispiel über Leipzig oder Punta Arenas. Dennoch ist er immer noch größer als über Standorten mit vergleichbarer Temperatur (Kapverden, Stellenbosch). Hier wird der Einfluss von Aerosolen deutlich, welche an diesen Standorten nicht die eisbildungsrelevanten Höhen erreichen. Über PRD hingegen beeinflussen Aerosole, wie in der Fallstudie vom 30. November 2011 gesehen, Höhenbereiche bis mindestens 8 km. Bis in dieser Höhe befindet sich nach Abb. 5.4 (Zahlen rechts) ein Großteil der Wolken mit einer Temperatur zwischen 0 °C und -40 °C. Und auch der Großteil Eis enthaltender Wolken in diesem Temperaturbereich befindet sich unterhalb von 8 km. Demnach kann davon ausgegangen werden, dass die heterogene Eisbildung über PRD von Aerosolen beeinflusst wird.

5.3 Eisbildung als Funktion der Temperatur

Einen besseren Vergleichswert für die Eisbildungseffektivität der einzelnen Standorte stellt die Wolkenoberkantentemperatur dar. Um die Eisbildung als Funktion der Wolkenoberkantentemperatur zu betrachten, wurden alle beobachteten Wolken anhand ihrer Oberkantentemperatur in 5 K Temperaturintervalle eingeordnet. Die kälteste Wolke hatte eine Oberkantentemperatur von -80 °C, die wärmste 23 °C. In Abbildung 5.6 ist der gesamte Datensatz in einem Histogramm dargestellt. Neben der Häufigkeitsverteilung in Abhängigkeit von der Temperatur ist auch festgehalten, ob es sich um Eis enthaltende Wolken (hellblau), Wasserwolken (dunkelblau) oder um Wolken ohne eindeutige Wolkenoberkante (gelb) handelt.



Abbildung 5.6: Histogramm der Wolkenfälle: Alle beobachteten Wolken wurden nach ihrer Wolkenoberkantentemperatur in 5 K Intervalle eingeteilt, außerdem wurde festgehalten, ob es sich um Wasserwolken (dunkelblau), Eis enthaltende Wolken (hellblau) oder Wolken ohne eindeutig bestimmte Oberkante (gelb) handelte. Die Zahlen an der Oberkante des Histogramms geben die Anzahl der jeweiligen Wolkenfälle an.



Abbildung 5.7: Eisstatistik für PRD: Anteil der Eis enthaltenden Wolken in Abhängigkeit von der Temperatur, dargestellt in 5 K Temperaturintervallen im Bereich der heterogenen Eisbildung von 0 °C bis -40 °C. Schwarz ist der Anteil aller Eis enthaltenden Wolken zu allen Wolken, rot aller eindeutig bestimmten Eis enthaltenden Wolken zu allen eindeutig bestimmten Wolken dargestellt. Die Zahlen an der Oberkante geben die Anzahl aller Wolken (schwarz) und aller eindeutig bestimmten Wolken (rot) im jeweiligen Temperaturintervall an.

Eis enthaltende Wolken traten bei Temperaturen zwischen 0 °C und -85 °C auf, Flüssigwasserwolken waren noch bis -35 °C vertreten. Wolken ohne eindeutige Oberkante waren vor allem zwischen -10 °C und 25 °C und von -85 °C bis -45 °C anzutreffen. Im Bereich der heterogenen Eisbildung (0 °C bis -40 °C) ist der Anteil der Wolken ohne Oberkante gering. Insgesamt ist der Anteil von warmen (Wolkenoberkantentemperatur > 0 °C) Flüssigwasserwolken sehr hoch. Zwischen 0 °C und -40 °C treten sowohl Flüssigwasser- als auch Eis enthaltende Wolken auf. Die Anzahl Eis enthaltender Wolken ist dabei relativ konstant, während der Anteil an Flüssigwasserwolken jedoch stetig abnimmt, sodass dadurch der Anteil an Eis enthaltenden Wolken wächst. Diese Tendenz ist auch in der Statistik Abb. 5.7 zu erkennen. Hier wurde der Temperaturbereich von -40 °C bis 0 °C genauer betrachtet, da in diesem Bereich heterogene Eisbildung stattfindet. Dargestellt ist der Anteil der Eis enthaltenden Wolken in Prozent, wobei der Anteil der Eis enthaltenden Wolken zu allen beobachteten Wolken schwarz und der Anteil der eindeutig klassifizierten Eis enthaltenden Wolken von allen eindeutig klassifizierten Wolken rot abgebildet ist. Die abgebildeten Fehlerbalken geben in dieser sowie in allen folgenden Grafiken die statistische Signifikanz σ an, welche aus der Anzahl n der beobachten Wolkenfälle und dem Anteil der Eis enthaltenden Wolken f nach folgender Gleichung berechnet wird:

$$\sigma = \sqrt{\frac{f\left(1-f\right)}{n}} \tag{5.1}$$

Der Anteil Eis enthaltender Wolken nimmt, bis auf ein lokales Minimum bei -15 °C bis -20 °C und bei -25 °C bis -30 °C, mit sinkender Temperatur zu. Der Einbruch bei -25 °C bis -30 °C ist mit der sehr geringen Anzahl der beobachteten Wolken in diesem Temperaturintervall zu erklären. Dieses Temperaturintervall entspricht in etwa einer Höhe von 9 km, in dieser Höhe ist, wie Abschnitt 2.3.1 zu entnehmen, die relative Feuchte durchschnittlich am geringsten. Eisbildung beginnt über PRD schon bei einer Temperatur von 0 °C und ist auch bei relativ hohen Temperaturen (0 °C bis -15 °C) schon so effektiv, dass der Anteil der Eiswolken auf über 45% bei -10 °C steigt.

In Abb. 5.7 ist außerdem zu erkennen, welchen Einfluss die Wahl der betrachteten Wolken auf den Anteil der Eis enthaltenden Wolken hat. Werden alle Wolken in die Statistik einbezogen, auch die ohne eindeutige Oberkante, so ist der Anteil der Eis enthaltenden Wolken bei Temperaturen unter -15 °C höher, als wenn nur eindeutige Wolkenfälle verwendet werden. Das ist durch die in Wirklichkeit höher liegende Wolkenoberkante der Wolken ohne eindeutiger Oberkante zu erklären. Durch die Abschwächung des Lasersignals durch tiefer liegende Wolken oder vertikal stark ausgedehnte Wolken ist anhand des zurückgestreuten Signals häufig nicht die Wolkenoberkante bei hohen Wolken zu erkennen. Diese wird dann als niedriger angenommen als sie tatsächlich ist. Diese niedrigere Wolkenoberkante hat eine scheinbar höhere Oberkantentemperatur zur Folge. Der Anteil der Eis enthaltenden Wolken zu allen beobachteten Wolken, in Abb. 5.7 schwarz dargestellt, entspricht demzufolge eigentlich tieferen Temperaturen und wird überschätzt. Zwischen 0°C und -15°C wird der Anteil jedoch geringfügig unterschätzt. Hier wird ein weiterer Effekt deutlich. In diesem Temperaturbereich wurden offensichtlich mehr reine Flüssigwasserwolken als Eis enthaltende Wolken aufgrund ihrer undefinierten Oberkante aus der Betrachtung ausgeschlossen. Flüssigwasserwolken, deren Oberkante nicht erkennbar ist, sind zum Beispiel hochreichende Cumuluswolken, während Eis enthaltende Wolken in diesem Temperaturbereich vertikal nicht sehr mächtig sind. Bei Temperaturen unter -15 °C hingegen weisen mehr Eis enthaltende als Flüssigwasserwolken uneindeutige Oberkanten auf und werden aus der Statistik ausgeschlossen. Eiswolken sind bei diesen niedrigen Temperaturen häufig sehr dick, Flüssigwasserwolken hingegen nur noch als dünne Schichten, welche sich problemlos eindeutig eingrenzen lassen, anzutreffen.

Korrigiert man die Wolken ohne eindeutige Oberkante, indem man die entsprechende Wolkenoberkantentemperatur bei Eis enthaltenden Wolken um 18 K und bei Flüssigwasserwolken um 6 K verringert, ergibt sich die in Abbildung 5.8 blau abgebildete Kurve. Die Verringerung der Wolkenoberkantentemperatur entspricht unter Annahme des feuchtadiabatischen Temperaturgradienten (6 K km⁻¹) bei Eis enthaltenden Wolken etwa einer Erhöhung der Oberkante um 3 km, bei Wasserwolken um 1 km. Man sieht eine deutliche Abnahme des Anteils Eis enthaltender Wolken zwischen 0 °C und -20 °C, zwischen -25 °C und -40 °C ist der Anteil jedoch größer. Wie schon in Abb. 5.7 zu sehen war, besitzen bei höheren Temperaturen mehr Flüssigwasser- als Eiswolken keine eindeutige Oberkante. Durch die Korrektur der Oberkante sinkt deren Temperatur, der Anteil der Flüssigwasserwolken nimmt zu. Die Folge ist eine Verringerung des Anteils Eis enthaltender Wolken. Bei Temperaturen



Abbildung 5.8: Eisstatistik für PRD: schwarze Kurve: alle eindeutig bestimmten Wolkenfälle, rote Kurve: entsprechende Datensatz mit seeding–Korrektur, blaue Kurve: gesamte Datensatz der im Temperaturintervall beobachten Wolken - Wolkenfälle mit nicht eindeutiger Oberkante wurden dabei korrigiert, Zahlen an Oberkante: Anzahl aller eindeutig bestimmten Wolkenfälle.

unter -20 °C ist genau das Gegenteil der Fall. Der Anteil Eis enthaltender Wolken nimmt zu, da mehr Eis enthaltende als Flüssigwasserwolken korrigiert werden.

Weiterhin wird in Abbildung 5.8 ein Effekt betrachtet, der bei zwei vertikal übereinander liegenden Wolkenschichten auftreten kann. Enthält die höhere Wolkenschicht Eiskristalle und bildet Fallstreifen aus, so können diese in die niedrigere, wärmere, allerdings ebenfalls unterkühlte Flüssigwasserwolkenschicht fallen und dort Eisbildung verursachen. Diesen Prozess bezeichnet man als "seeder-feeder-Mechanismus" [Rutledge und Hobbs, 1983; Fleishauer et al., 2002; Ansmann et al., 2009]. Es wird dabei angenommen, dass bei zwei übereinander liegenden Eis enthaltenden Wolken die Untere nur Eis enthält, weil die Eisbildung durch die Obere verursacht wurde. Für die Statistik der Eisbildung in Abhängigkeit von der Temperatur der Wolke kann diese daher als Flüssigwasserwolke betrachtet werden. Allerdings ist dieser Prozess nur bei geringem Abstand der beiden Wolken effektiv. Für die rot dargestellte Kurve wurden daher nur Wolken, deren Oberkante höchstens 1 km unter der Unterkante der oberen Wolke lag, als Flüssigwasserwolken klassifiziert. Zu sehen ist ein geringerer Anteil an Eis enthaltenden Wolken bei fast allen Temperaturen. Nur im Bereich von -25 °C bis -30 °C ist der Anteil identisch.

Beide in Abb. 5.8 aufgeführten Korrekturen führen sicherlich in bestimmten Fällen zur Verbesserungen der Statistik, können aufgrund der Komplexität der dahinterstehenden physikalischen Prozesse jedoch auch fehlerbehaftet sein. Die korrekte Eisbildungsstatistik liegt vermutlich zwischen den vorgeführten Korrekturen. Aufgrund der Vergleichbarkeit mit anderen Studien wurden die Korrekturen jedoch vernachlässigt und in folgenden Statistiken



Abbildung 5.9: Eisstatistik aller bisherigen Standorte einschließlich PRD: Anteil der Eis enthaltenden Wolken in Abhängigkeit von der Temperatur, dargestellt in 5 K Temperaturintervallen im Bereich der heterogenen Eisbildung von 0 °C bis -40 °C, nur eindeutig klassifizierte Wolkenfälle wurden betrachtet

nur mit den eindeutig klassifizierten Wolkenfällen gearbeitet.

In Abb. 5.9 ist die Eisstatistik für PRD gemeinsam mit den bisherigen Studien abgebildet. Zu erkennen ist ein deutlich größerer Anteil Eis enthaltender Wolken bei hohen Temperaturen über PRD als über den anderen Standorten. Bei Temperaturen unter -10 °C liegt die Eisbildungeffektivität zwischen der von Leipzig und Stellenbosch. Geht man davon aus, dass das Minimum bei -25 °C bis -30 °C nur durch die geringe Anzahl der in diesem Intervall gemessenen Wolken verursacht wird und tatsächlich höher liegt, so nähert sich die Kurve für PRD bei Temperaturen unter -25 °C der Kurve von Leipzig an. Dieses Ergebnis war zu erwarten, da die Verschmutzung durch anthropogene Aerosole in der südostasiatischen Region sehr stark ist. Die Verbrennung von fossilen Energieträgern und Biomasse führen zu einer hohen Partikelkonzentration in der unteren Troposphäre. Diese Partikel stellen gute Eiskeime dar und führen zu einer effektiven Eisbildung in den unteren, wärmeren Bereichen. In größeren Höhen wirken zusätzlich die aus Westen herangetragenen Staubpartikel aus den zentralasiatischen Wüsten Gobi und Taklamakan sowie der Sahara als Eiskeime und begünstigen die Eisbildung.

Kapitel 6

Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

In dieser Arbeit wurden die von Dezember 2011 bis Juni 2012 in Guangzhou, China durchgeführten Lidarmessungen bezüglich der heterogenen Eisbildung ausgewertet. Dazu wurden alle in diesem Zeitraum beobachteten Wolken als Flüssigwasserwolken oder Eis enthaltende Wolken klassifiziert. Der Anteil an Eis enthaltenden Wolken wurde anschließend als Funktion der Höhe und Temperatur betrachtet. Außerdem wurde an zwei Fallbeispielen der Einfluss von Aerosolen auf die Eisbildung verdeutlicht.

Durch den Vergleich von zwei durch unterschiedliche Aerosolbedingungen geprägten Beispieltagen wurde verdeutlicht, dass die Anwesenheit von Wüstenstaub die Eiskeimkonzentration erhöht und somit die Eisbildung begünstigt. So ist an Tagen mit starker Aerosolbelastung bei deutlich höheren Temperaturen Eisbildung möglich, während an Tagen mit niedriger Aerosolkonzentration Eisbildung erst bei tieferen Temperaturen beginnt.

Wie an dem in Abschnitt 5.1 gezeigten Fallbeispiel für Eisbildung unter staubbelasteten Bedingungen gezeigt wurde, ist über PRD bis mindestens 8 km Höhe Aerosol anzutreffen. Eisbildung beginnt über PRD bereits bei 4.5 km und ein Großteil der Eis enthaltenden Wolken entsteht unterhalb von 8 Kilometern. Daher kann davon ausgegangen werden, dass Aerosole die Eisbildung über PRD beeinflussen, da diese eisbildungsrelevante Höhen erreichen und sich nicht wie zum Beispiel über den Kapverden nur in den unteren, für Eisbildung zu warmen Bereichen der Atmosphäre aufhalten.

Die Temperatur ist ein wichtiger Einflussparameter der Eisnukleationsrate (siehe Abschnitt 2.1.1 und stellt einen besseren Vergleichswert für die Eisbildungseffektivität der einzelnen Standorte dar. Aus diesem Grund wurde im letzten Teil der Auswertung die Eisbildung als Funktion der Temperatur betrachtet (Abschnitt 5.3). Dazu wurden die beobachteten Wolken nach ihrer Oberkantentemperatur in Temperaturintervalle von jeweils 5 K eingeordnet. Der Temperaturbereich zwischen -40 °C und 0 °C wurde anschließend genauer betrachtet, da es sich bei Eisbildung innerhalb dieses Temperaturbereichs immer um heterogene Eisbildung handelt. Zu erkennen war eine Zunahme des Anteils Eis enthaltender Wolken mit abnehmen-

der Temperatur. Die Eisbildung beginnt über PRD schon bei Temperaturen knapp unter 0 °C und ist auch bei hohen Temperaturen (-15 °C–0 °C) schon sehr effektiv.

Schließlich wurde die Statistik der Eis enthaltenden Wolken über PRD mit den Ergebnissen der bisherigen Studien verglichen. Während in Punta Arenas und den Kapverden die Eisbildung erst bei Temperaturen zwischen -15 °C und -20 °C einsetzt, ist die Eisbildung über Leipzig und PRD bei hohen Temperaturen bereits sehr effektiv. Grund dafür sind die in Punta Arenas vorherrschenden sauberen, polaren Luftmassen und der auf den unteren Bereich der Troposphäre beschränkten Wüstenstaub über den Kapverden. In beiden Fällen wird die Eisbildung nur in geringem Maße von Aerosolen beeinflusst. Über Manaus scheinen biogene Aerosole aus dem Amazonasgebiet die Eisbildung bis circa 6 km Höhe zu beeinflussen. Diese Höhe entspricht in etwa einer Temperatur von -10 °C. In Höhen mit tieferen Temperaturen sind vermutlich nur wenig effektive Eiskeime vorhanden, die Eisbildung ist gering. In Stellenbosch hingegen ist die Eisbildung durch lokale kontinentale Aerosole und die herangetragenen Wüstenstaubpartikel vor allem in größeren Höhen effektiv.

Der Anteil an Eis enthaltenden Wolken über dem in dieser Arbeit betrachteten Standort PRD liegt bis zu einer Temperatur von -10 °C deutlich über denen der bisherigen Standorte. Bereits bei -10 °C beträgt der Anteil an Eis enthaltenden Wolken rund 50%. Unterhalb von -10 °C ist die Eisbildungseffektivität mit der von Leipzig oder Stellenbosch vergleichbar.

Die sehr effiziente Eisbildung zwischen 0 °C und -20 °C lässt auf eine hohe Konzentration von eisbildungseffizienten Aerosolen in den unteren, wärmeren Bereichen der Troposphäre schließen. Tatsächlich ist nach *Bauditz* [2013] der Anteil von urbanen Aerosol über Guangzhou sehr groß. Neben der Verbrennung von fossilen Energieträgern in Industrie und Verkehr und der Verbrennung von Biomasse im nicht urbanen Raum, stellen auch herangetragene Partikel effektive Eiskeime dar und begünstigen die Eisbildung.

Unterschiedliche Aerosolbedingungen aber auch unterschiedliche meteorologische Bedingungen führen zu Unterschieden in der Eisbildung der verschiedenen Messregionen. Jedoch müssen Unterschiede in dem Anteil an Eis enthaltenden Wolken nicht zwangsläufig bedeuten, dass bei Stationen mit geringen Eisanteil, wie zum Beispiel den Kapverden, gar kein Eis entsteht. Eventuell ist die Menge an gebildeten Eiskristallen und somit die Eisnukleationsrate an diesen Standorten zu klein, um vom Lidar detektiert werden zu können. Nach *Bühl et al.* [2013] ist ein Mindesteiswassergehalt nötig, um die damit verbundene Eiskristallkonzentration mit Lidar detektieren zu können. Für das in dieser Studie verwendete Lidar Polly^{XT} wurde ein Detektionsgrenzwert des Eiswassergehaltes (IWC) von 10⁻⁶ kg m⁻³ festgestellt. Bei Messorten wie Leipzig und PRD wurde dieser Grenzwert eventuell schon in geringeren Höhen erreicht, während sich über Punta Arenas und den Kapverden bei höheren Temperaturen so wenig Eis in der Atmosphäre bildete, dass der Detektionsgrenzwert nicht erreicht wurde.

Durch die Lidarmessungen in PRD konnte der Statistik der heterogenen Eisbildung in Abhängigkeit zur Temperatur ein repräsentativer Ort für die Aerosolbedingungen der Nordhalbkugel hinzugefügt werden. Um bessere Kenntnisse über die Eisbildung in verschiedenen Regionen der Erde zu erlangen und so die Auswirkung auf das Klima abschätzen zu können, ist in Zukunft eine bessere Abschätzung der IN-Konzentrationen nötig. *Atkinson et al.* [2013] hat bereits eine Karte der globalen Verteilung der IN-Konzentration erstellt. Zukünftig sollte das Wissen über die Verteilung der IN-Konzentration und die damit verbundenen Nukleationsraten durch weitere Studien erweitert werden.

Literaturverzeichnis

- Albrecht, B. A. (1989), Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness, Science, 245, 1227–1230, doi:10.1126/science.245.4923.1227.
- Althausen, D., R. Engelmann, H. Baars, B. Heese, A. Ansmann, D. Müller und M. Komppula (2009), Portable Raman lidar Polly^{XT} for automated profiling of aerosol backscatter, extinction, and depolarization, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 26, 2366– 2378, doi:10.1175/2009JTECHA1304.1.
- Ansmann, A. und D. Müller (2005), Lidar and atmospheric aerosol particles, in Lidar: Range-Resolved Optical Remote Sensing of the Atmosphere, editiert von C. Weitkamp, Seiten 105-142, Springer.
- Ansmann, A., I. Mattis, D. Müller, U. Wandinger, M. Radlach, D. Althausen und R. Damoah (2005), Ice formation in Saharan dust over central Europe observed with temperature/humidity/aerosol Raman lidar, *Journal of Geophysical Research*, 110, D18S12, doi: 10.1029/2004JD005000.
- Ansmann, A., M. Tesche, D. Althausen, D. Müller, P. Seifert, V. Freudenthaler, B. Heese, M. Wiegner, G. Pisani, P. Knippertz und O. Dubovik (2008), Influence of Saharan dust on cloud glaciation in southern Morocco during the Saharan Mineral Dust Experiment, *Journal of Geophysical Research*, 113, D04210, doi:10.1029/2007JD008785.
- Ansmann, A., M. Tesche, P. Seifert, D. Althausen, R. Engelmann, J. Fruntke, U. Wandinger, I. Mattis und D. Müller (2009), Evolution of the ice phase in tropical altocumulus: SAMUM lidar observations over Cape Verde, *Journal of Geophysical Research*, 114, D17208, doi: 10.1029/2008JD011659.
- Atkinson, J. D., B. J. Murray, M. T. Woodhouse, T. F. Whale, K. J. Baustian, K. S. Carslaw, S. Dobbie, D. O'Sullivan und T. L. Malkin (2013), The importance of feldspar for ice nucleation by mineral dust in mixed-phase clouds, *Nature*, 498, 355-358, doi:10.1038/nature12278.
- Baars, H. (2012), Aerosol profiling with lidar in the amazon basin during the wet and dry season 2008, Dissertation, Universität Leipzig.
- Bauditz, M. (2013), Charakterisierung des Aerosols mit einem Dual-Polar Sonnenphotometer in Guangzhou/China 2011/12, Masterarbeit, Universität Leipzig.

- Behrendt, A. (2005), Temperature Measurements with Lidar, in *Lidar: Range-Resolved Opti*cal Remote Sensing of the Atmosphere, editiert von C. Weitkamp, Seiten 273–303, Springer.
- Bühl, J., A. Ansmann, P. Seifert, H. Baars und R. Engelmann (2013), Toward a quantitative characterization of heterogeneous ice formation with lidar/radar: Comparison of CA-LIPSO/CloudSat with ground-based observations, *Geophysical Research Letters*, 40(16), 4404-4408, doi:10.1002/grl.50792.
- Bucholtz, A. (1995), Rayleigh-scattering calculations for the terrestrial atmosphere, Applied Optics, 34, 2765–2773.
- Cantrell, W. und A. Heymsfield (2005), Production of ice in tropospheric clouds: A review., Bulletin of the American Meteorological Society, 86, 795-807.
- Diehl, K., M. Simmel und S. Wurzler (2006), Numerical sensitivity studies on the impact of aerosol properties and drop freezing modes on the glaciation, microphysics, and dynamics of clouds, *Journal of Geophysical Research*, 111, D07202, doi:10.1029/2005JD005884.
- Fleishauer, R. P., V. E. Larson und T. H. Vonder Haar (2002), Observed microphysical structure of midlevel, mixed-phase clouds, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 59, 1779– 1804.
- Freudenthaler, V., M. Esselborn, M. Wiegner, B. Heese, M. Tesche, A. Ansmann, D. Müller, D. Althausen, M. Wirth, A. Fix, G. Ehret, P. Knippertz, C. Toledano, J. Gasteiger, M. Garhammer und M. Seefeldner (2009), Depolarization ratio profiling at several wavelengths in pure Saharan dust during SAMUM 2006, *Tellus Series B*, 61, 165–179.
- Hartmann, S., D. Niedermeier, J. Voigtländer, T. Clauss, R. A. Shaw, H. Wex, A. Kiselev und F. Stratmann (2011), Homogeneous and heterogeneous ice nucleation at LACIS: operating principle and theoretical studies, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11 (4), 1753–1767, doi:10.5194/acp-11-1753-2011.
- Haywood, J. und O. Boucher (2000), Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: A review, *Reviews of Geophysics*, 38(4), 513–543, doi:10.1029/ 1999RG000078.
- Hoose, C. und O. Möhler (2012), Heterogeneous ice nucleation on atmospheric aerosols: a review of results from laboratory experiments, Atmospheric Chemistry and Physics, 12(20), 9817–9854, doi:10.5194/acp-12-9817-2012.
- IPCC (2013), Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, Cambridge University Press.
- Kanitz, T. (2012), Vertical distribution of aerosols above the Atlantic Ocean, Punta Arenas (Chile), and Stellenbosch (South Africa). Characterization, solar radiative effects and ice nucleating properties, Dissertation, Technische Universität Berlin.

- Kanitz, T., P. Seifert, A. Ansmann, R. Engelmann, D. Althausen, C. Casiccia und E. G. Rohwer (2011), Contrasting the impact of aerosols at northern and southern midlatitudes on heterogeneous ice formation, *Geophysical Research Letters*, 38(17), doi:10.1029/ 2011GL048532.
- Kiehl, J. T. und K. E. Trenberth (1997), Earth's annual global mean energy budget, Bull. Amer. Meteor. Soc., 78, 197–208, doi:10.1175/1520-0477(1997)078<0197:EAGMEB>2.0. CO;2.
- Knippertz, P., M. Tesche, B. Heinold, K. Kandler, C. Toledano und M. Esselborn (2011), Dust mobilization and aerosol transport from West Africa to Cape Verde - a meteorological overview of SAMUM-2, *Tellus Series B Chemical and Physical Meteorology B*, 63, 430–447, doi:10.1111/j.1600-0889.2011.00544.x.
- Kunz, C. (2014), Heterogene Eisbildung im Amazonasgebiet, Bachelorarbeit, Universität Leipzig.
- Liou, K. N. und R. M. Schotland (1971), Multiple backscattering and depolarization from water clouds for a pulsed lidar system, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 28, 772–784.
- Mattis, I., M. Tesche, M. Grein, V. Freudenthaler und D. Müller (2009), Systematic error of lidar profiles caused by a polarization-dependent receiver transmission: quantification and error correction scheme, Appl. Opt., 48(14), 2742–2751, doi:10.1364/AO.48.002742.
- Müller, D., U. Wandinger und A. Ansmann (1999), Microphysical particle parameters from extinction and backscatter lidar data by inversion with regularization: theory, Appl. Opt., 38(12), 2346–2357, doi:10.1364/AO.38.002346.
- Müller, D., A. Ansmann, I. Mattis, M. Tesche, U. Wandinger, D. Althausen und G. Pisani (2007), Aerosol-type-dependent lidar ratios observed with Raman lidar, *Journal of Geo*physical Research, 112, D16202, doi:10.1029/2006JD008292.
- Mullin, J. W. (2001), Crystallization, 4. Ed., Butterworth-Heinemann.
- Murray, B. J., D. O'Sullivan, J. D. Atkinson und M. E. Webb (2012), Ice nucleation by particles immersed in supercooled cloud droplets, *Chem. Soc. Rev.*, 41, 6519-6554, doi: 10.1039/C2CS35200A.
- Richardson, M. S., P. J. DeMott, S. M. Kreidenweis, D. J. Cziczo, E. J. Dunlea, J. L. Jimenez, D. S. Thomson, L. L. Ashbaugh, R. D. Borys, D. L. Westphal, G. S. Casuccio und T. L. Lersch (2007), Measurements of heterogeneous ice nuclei in the western United States in springtime and their relation to aerosol characteristics, *Journal of Geophysical Research*, 112, D02209, doi:10.1029/2006JD007500.
- Rutledge, S. A. und P. V. Hobbs (1983), The mesoscale and microscale structure and organization of clouds and precipitation in midlatitude cyclones. VIII: A model for the

'Seeder-Feeder' process in warm-frontal rainbands, Journal of the Atmospheric Sciences, 40, 1185–1206.

- Sassen, K. (2005), Polarization in lidar, in Lidar: Range-Resolved Optical Remote Sensing of the Atmosphere, editiert von C. Weitkamp, Seiten 19-42, Springer.
- Schmidt, J., A. Ansmann, J. Bühl, H. Baars, U. Wandinger, D. Müller und A. V. Malinka (2014), Dual-fov raman and doppler lidar studies of aerosol-cloud interactions: Simultaneous profiling of aerosols, warm-cloud properties, and vertical wind, *Journal of Geophy*sical Research: Atmospheres, 119(9), 5512–5527, doi:10.1002/2013JD020424.
- Seifert, P. (2010), Dust related ice formation in the troposphere: A statistical analysis based on 11 years of lidar observations of aerosols and clouds over Leipzig, Dissertation, Universität Leipzig.
- Seifert, P., A. Ansmann, I. Mattis, U. Wandinger, M. Tesche, R. Engelmann, D. Müller, C. PéRez und K. Haustein (2010), Saharan dust and heterogeneous ice formation: Eleven years of cloud observations at a central European EARLINET site, *Journal of Geophysical Research (Atmospheres)*, 115, D20201, doi:10.1029/2009JD013222.
- Thomas, L., J. C. Cartwright und D. P. Wareing (1990), Lidar observations of the horizontal orientation of ice crystals in cirrus clouds, *Tellus Series B*, 42, 211–216.
- Twomey, S. (1977), The Influence of Pollution on the Shortwave Albedo of Clouds, *Journal* of Atmospheric Science, 34 (7), 1149–1154.
- Wandinger, U. (2005), Introduction to lidar, in Lidar: Range-Resolved Optical Remote Sensing of the Atmosphere, editiert von C. Weitkamp, Seiten 1–18, Springer.
- Westbrook, C. D., A. J. Illingworth, E. J. O'Connor und R. J. Hogan (2009), Doppler lidar measurements of oriented planar ice crystals falling from supercooled and glaciated layer clouds, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 136, 260-276.
- Wu, D., X. Tie und X. Deng (2005), Chemical characterizations of soluble aerosols in southern China, Chemosphere, 64, 749–757.
- Yoshida, J. und S. Asano (2005), Effects of the vertical profiles of cloud droplets and ice particles on the visible and near-infrared radiative properties of mixed-phase stratocumulus clouds, *Journal of the Meteorological Society of Japan*, 83, 471–480.

Abkürzungsverzeichnis

APC	Aerosol particle number concentration
CCN	Cloud Condensation Nuclei
DRIFT	Dust-related Ice Formation in the Troposphere
Earlinet	European Aerosol Research Lidar Network
et al.	et alii (lat. für "und andere")
EUCAARI	European Integrated project on Aerosol, Cloud, Climate, Air Quality
	Interactions
GDAS	Global Data Assimilation System
HYSPLIT	Hybrid Single–Particle Lagrangian Integrated Trajectory model
IN	Ice Nucleus
INC	Ice Nuclei Concentration
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change
IWC	Ice Water Content
Lidar	Light Detection and Ranging
NCEP	National Center for Environmental Prediction
PRD	Pearl River Delta
SAMUM	Saharan Mineral Dust Experiment
TROPOS	Leibniz–Institut für Troposphärenforschung
UTC	Universal Time Coordinated

Selbstständigkeitserklärung

Erklärung

Ich versichere, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Alle Stellen, die wörtlich oder sinngemäß aus veröffentlichten oder noch nicht veröffentlichten Quellen entnommen sind, sind als solche kenntlich gemacht.

Die Zeichnungen oder Abbildungen in dieser Arbeit sind von mir selbst erstellt worden oder mit einem entsprechenden Quellennachweis versehen.

Diese Arbeit ist in gleicher oder ähnlicher Form noch bei keiner anderen Prüfungsbehörde eingereicht worden.

Leipzig, den 4. September 2014

Stephanie Bohlmann