Universität Leipzig, Fakultät für Physik und Geowissenschaften

## Charakterisierung des Aerosols mit einem Dual-Polar Sonnenphotometer in Guangzhou/China 2011/12

Masterarbeit von Michael Bauditz

## Erstellt am Leibniz-Institut für Troposphärenforschung, TROPOS Leipzig

#### zur Erlangung des akademischen Grades Master of Science im Fachbereich Meteorologie

| Betreuer und Zweitgutachter: | Dr. Dietrich Althausen,                           |
|------------------------------|---|
|                              | Leibniz-Institut für Troposphärenforschung TROPOS |
| Erstgutachter:               | Prof. Dr. Manfred Wendisch,                       |
|                              | Leipziger Institut für Meteorologie LIM           |

Leipzig, 19. Februar 2013

## Inhaltsverzeichnis

| 1                                | Einle                           | eitung                                     |                |                  |            |                  |                   |                  |                |                   |                   |                   |                   |                    |                     |                   |            |                     |                  |         |           |           |            |            |           |         |          |         |          |           |           |           |    | 1                        |
|----------------------------------|---------------------------------|--|----------------|------------------|------------|------------------|-------------------|------------------|----------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|--------------------|---------------------|-------------------|------------|---------------------|------------------|---------|-----------|-----------|------------|------------|-----------|---------|----------|---------|----------|-----------|-----------|-----------|----|--------------------------|
| 2                                | <b>The</b> 2.1 2.2 2.3          | <b>orie</b><br>Von Sc<br>Bestim<br>Polaris | on<br>nn<br>sa | nne<br>nu<br>tic | enj<br>ing | ph<br>; d<br>szı | iot<br>les<br>usf | on<br>li:<br>tar | ne<br>ne<br>nd | ete<br>ear<br>l u | ern<br>ren<br>int | nes<br>n F<br>ter | ssu<br>Pol<br>: R | ıng<br>lari<br>tay | gen<br>isat<br>leig | ak<br>tio:<br>ghk | oge<br>nsg | elei<br>gra<br>ling | tet<br>ds<br>gui | e<br>ng | Gr<br>en  | öß        | len        | •••        | •         |         |          |         | •        |           | •         |           |    | <b>5</b><br>5<br>8<br>12 |
| 3 Messinstrumente und Auswertung |                                 |  |                |                  |            |                  |                   |                  |                |                   |                   |                   |                   |                    | 15                  |                   |            |                     |                  |         |           |           |            |            |           |         |          |         |          |           |           |           |    |                          |
|                                  | 3.1                             | Messpr                                     | orii           | nz               | ip         | de               | es                | Ci               | im             | ıel               | l C               | CE                | 31                | 18-                | DP                  | •                 |            | •                   |                  |         |           |           |            |            |           |         |          |         |          |           |           | •         |    | 15                       |
|                                  | 3.2                             | Messpr                                     | oro            | gr               | ar         | nn               | ne                | •                |                |                   | •                 |                   |                   | •                  |                     |                   |            | •                   |                  |         |           |           | •          |            |           |         | •        |         | •        | •         |           | •         |    | 17                       |
|                                  | 3.3                             | Messfe                                     | ehl            | leı              | с.         | •                |                   |                  | •              | •                 | •                 |                   |                   |                    |                     |                   |            | •                   | •                |         |           | •         | •          |            |           |         | •        |         | •        | •         |           | •         | •  | 18                       |
|                                  | 3.4                             | Dateny                                     | ve             | ra               | rb         | ei               | tu                | ng               | ; u            | inc               | d -               | -au               | usv               | ver                | tur                 | ıg                |            | •                   | •                |         | •         | •         | •          |            | •         | •       | •        | •       | •        | •         | •         | •         | •  | 19                       |
|                                  | 3.5                             | Transp                                     | po             | rt               | m          | эd               | .ell              | .e               | •              | •                 | •                 | •••               | •••               | •                  |                     | •                 | • •        | •                   | ·                |         | •         | •         | •          |            | •         | •       | •        | •       | •        | •         | •         | •         | •  | 20                       |
|                                  | 3.6                             | Ergebn                                     | nis            | 5S6              | эv         | 'OI              | : d               | er               | N              | /le               | ga                | ıcit              | tie               | s-k                | Kan                 | np                | ag         | ne                  | •                |         | •         | •         | •          |            | •         | •       | •        | •       | •        | •         | •         | •         | •  | 22                       |
| 4                                | Mol                             | ekülstre                                   | eu             | ıu               | ng         | ( a              | ım                | B                | 3ei            | isr               | pie               | el i              | in                | Lit                | tan                 | g                 |            |                     |                  |         |           |           |            |            |           |         |          |         |          |           |           |           |    | 25                       |
| 4.1 Kalibrierung                 |                                 |  |                |                  |            |                  |                   |                  |                |                   |                   |                   |                   |                    |                     |                   | 25         |                     |                  |         |           |           |            |            |           |         |          |         |          |           |           |           |    |                          |
|                                  | 4.2                             | Verglei                                    | eicl           | h :              | mi         | t .              | M                 | эd               | ell            | lre               | ech               | hnı               | un                | ger                | ı.                  |                   |            | •                   | •                |         | •         | •         |            |            |           |         |          |         | •        |           |           | •         | •  | 27                       |
| 5                                | Mes                             | skampa                                     | ag             | n،               | e l        | M                | eg                | ac               | citi           | ie                | s                 |                   |                   |                    |                     |                   |            |                     |                  |         |           |           |            |            |           |         |          |         |          |           |           |           |    | 35                       |
|                                  | 5.1 Meteorologische Bedingungen |  |                |                  |            |                  |                   |                  |                |                   |                   |                   |                   | 36                 |                     |                   |            |                     |                  |         |           |           |            |            |           |         |          |         |          |           |           |           |    |                          |
|                                  | 5.2                             | 2 Statistik über die Messreihe             |                |                  |            |                  |                   |                  |                |                   |                   |                   |                   | 39                 |                     |                   |            |                     |                  |         |           |           |            |            |           |         |          |         |          |           |           |           |    |                          |
|                                  | 5.3                             | 3 Messbeispiele                            |                |                  |            |                  |                   |                  |                |                   |                   |                   | •                 |                    | 43                  |                   |            |                     |                  |         |           |           |            |            |           |         |          |         |          |           |           |           |    |                          |
|                                  |                                 | $5.3.1 \\ 5.3.2$                           | V<br>A         | Ni<br>Ae         | üst<br>ro  | ter<br>so        | nst<br>1 a        | au<br>us         | ıb<br>s E      | ) u<br>Bic        | inc<br>om         | d u<br>1as        | urb<br>sse        | )an<br>ver         | les<br>bre          | Ae<br>eni         | ero<br>nui | sol<br>1g           | ar<br>un         | n<br>d  | 02.<br>Wi | . u<br>üs | inc<br>tei | ł (<br>nst | 3.<br>Jau | D<br>ıb | ez<br>aı | er<br>m | nt<br>2ţ | bei<br>5. | 2 1<br>ur | 201<br>1d | 11 | 43                       |
|                                  |                                 |  | 2              | 26.              | Ν          | 4ä               | rz                | 20               | )1:            | 2                 | •                 |                   |                   |                    |                     |                   | • •        | •                   | •                |         | •         | •         | •          |            | •         | •       |          | •       | •        |           | •         | •         | •  | 52                       |
| 6                                | Zusa                            | amment                                     | ıfa            | ISS              | sur        | ۱g               |                   |                  |                |                   |                   |                   |                   |                    |                     |                   |            |                     |                  |         |           |           |            |            |           |         |          |         |          |           |           |           |    | 61                       |
| Abkürzungsverzeichnis            |                                 |  |                |                  |            |                  |                   |                  |                |                   |                   | 63                |                   |                    |                     |                   |            |                     |                  |         |           |           |            |            |           |         |          |         |          |           |           |           |    |                          |
| Symbolverzeichnis                |                                 |  |                |                  |            |                  |                   |                  |                |                   |                   | 64                |                   |                    |                     |                   |            |                     |                  |         |           |           |            |            |           |         |          |         |          |           |           |           |    |                          |
| Lit                              | eratı                           | urverzei                                   | eicl           | hr               | nis        |                  |                   |                  |                |                   |                   |                   |                   |                    |                     |                   |            |                     |                  |         |           |           |            |            |           |         |          |         |          |           |           |           |    | 66                       |
| Erklärung                        |                                 |  |                |                  |            |                  |                   |                  |                |                   |                   |                   |                   |                    |                     |                   |            |                     |                  |         |           |           |            |            |           |         |          |         |          |           |           |           |    | 71                       |

## 1 Einleitung

Die physikalischen Prozesse in der Atmosphäre werden u.a. durch flüssige und feste Partikel in der Luft, sogenanntem Aerosol, beeinflusst. Die Aerosole haben neben den Auswirkungen auf die Gesundheit des Menschen verschiedene Einflüsse auf den Strahlungshaushalt der Erde, und sowohl auf das lokale Wetter als auch auf das globale Klima (Lee et al., 2007). Aerosol ist in seiner chemischen Zusammensetzung, Konzentration und in seinen physikalischen Eigenschaften sehr variabel und tritt in der gesamten Troposphäre und Stratosphäre auf. Die Auswirkungen der Aerosole auf den Strahlungshaushalt lassen sich allgemein in einen direkten und einen indirekten Aerosoleffekt unterteilen. Der direkte Aerosoleffekt gibt die Wechselwirkung aufgrund von Streuung und Absorption der einfallenden solaren Strahlung und terrestrischer Strahlung mit den in der Atmosphäre vorhandenen Partikeln wieder. Die Klimawirkung des indirekten Effekts beschreibt den Einfluss der Partikel auf die Wolkenbildung und der damit verbunden Anzahl- und Größenverteilungen der Wolkentropfen. Durch eine erhöhte Anzahl an Partikeln kann auch die Anzahldichte der Wolkentropfen steigen, wodurch sich die Mehrfachstreuung der einfallenden solaren Strahlung verstärkt und die optische Dicke erhöht wird (Twomey-Effekt, Twomey, 1977). Ohne Veränderung des Flüssigkeitsgehalts der Wolke ist dann die Größe der Wolkentröpfchen kleiner. Dieser Effekt kann zu weniger Niederschlag führen, woraus eine Veränderung der Lebensdauer und Ausdehnung der Wolke resultiert (Albrecht, 1989). Die sich daraus verändernden Strahlungseigenschaften der Wolken können aufgrund der Komplexität wissenschaftlich noch nicht vollständig beschrieben werden und stellen große Unsicherheiten bei der Modellierung der Klimabeeinflussung dar (Penner et al., 2001, Forster et al., 2007). Daher ist es wichtig, die Verteilung von Aerosolen und deren Transport innerhalb der Atmosphäre weltweit zu bestimmen.

Um Informationen über die Eigenschaften des atmosphärischen Aerosols zu erhalten, können Fernerkundungsmessungen sowohl passiv als auch aktiv erfolgen. Bei der aktiven optischen LIDAR-Methode (englisch: Light Detection and Ranging) werden Laserpulse in die Atmosphäre ausgesandt. Mit Hilfe von Detektoren wird das von den Partikeln und Luftmolekülen zurückgestreute Laserlicht zeitaufgelöst gemessen. Daraus können vertikal aufgelöste Extinktions- und Depolarisationsprofile der Partikel in der Atmosphäre bestimmt werden. Eine passive Methode der Fernerkundung ist die Sonnenphotometrie bei der die direkte Sonnenstrahlung nach Transmission durch die Atmosphäre gemessen wird. Daraus folgt die Berechnung der aerosoloptischen Dicke (AOD) und deren spektraler Änderung der Ångström-Exponent. Die AOD ist ein wichtiger Parameter zur Bestimmung des Einflusses der Partikel auf das Klima und des Strahlungsantriebs. Neben diesen Größen lassen sich aus den Messungen der diffusen Himmelsstrahlung Radianzen, Streuphasenfunktionen, Einfachstreualbedos sowie Partikelgrößenverteilungen ableiten. Bei der neuesten Generation der Sonnenphotometer (CE 318 Dual-Polar) werden auch winkelabhängige Polarisationszustandsmessungen der diffusen Himmelsstrahlung durchgeführt. Dadurch ist es möglich, den linearen Polarisationsgrad (DOLP) zu bestimmen und zusätzliche Informationen über die mikrophysikalischen Partikeleigenschaften abzuleiten (Li et al., 2006).

Im Laufe der letzten Jahrzehnte wurden verschiedene Netzwerke zur Datenauswertung und Überwachung der Datenqualität der Sonnenphotometer aufgebaut. Seit 1993 werden im Rahmen vom "Aerosol RObotic NETwork" (AERONET) der "National Aeronautics and Space Administration" (NASA) in den USA Inversionsalgorithmen entwickelt und Kalibrierungen durchgeführt (Holben et al., 1998; Aeronet-Webseite, 2012). AERONET ist das größte weltweit agierende Sonnenphotometernetzwerk, welches nur Sonnenphotometer der Firma "Cimel electronique" betreibt. Zu den weltweiten AERONET-Aktivitäten wurde seit 1993 als europäisches Unternetzwerk "PHOtométrie pour le Traitement Opérationnel de Normalisation Satellitaire" (PHOTONS) des "Laboratoire d'Optique Atmosphèrique" (LOA aus Lille, Frankreich) etabliert. PHOTONS ist überwiegend für die Kalibrierung von europäischen Sonnenphotometern und die Auswertung der Polarisationszustandsmessungen zuständig.

Um eine gute Datenqualität zu gewährleisten, müssen Sonnenphotometer regelmäßig kalibriert werden. Die Kalibrierung der direkten Sonnenstrahlungsmessung erfolgt mit der Langley-Methode. Bei dieser Methode sind partikelarme Luftmassen und konstante atmosphärische Bedingungen erforderlich, weshalb die Kalibrierung über der Grenzschicht erfolgt. Die Kalibrierung des Sonnenphotometers vom Leibniz Institut für Troposphärenforschung (TROPOS) wurde im Rahmen eines Experiments im Oktober 2011 in Litang in der Provinz Sichuan, V.R. China in 3950 m Höhe durchgeführt. Im Labor des LOA wurde im Sommer 2011 die Kalibrierung für die diffuse Himmelsstrahlung und die Polarisation durchgeführt.

Im Rahmen dieser Masterarbeit werden Ergebnisse von kombinierten Lidar- und Sonnenphotometermessungen vorgestellt. Die Grundlage dafür ist die Messkampagne "Megacities" mit einer Messreihe vom 27. Oktober 2011 bis 09. Juli 2012 in Guangzhou im Pearl River Delta (PRD) in der südchinesischen Provinz Guangdong. Die Messungen wurden mit einem Dual-Polar Sonnenphotometer (CE 318-DP) und einem Raman-Lidar Polly<sup>XT</sup> durchgeführt. Diese lieferten einen umfangreichen Datensatz der Aerosolbedingungen mit dessen Hilfe eine Bestimmung der optischen und mikrophysikalischen Eigenschaften vorgenommen wurde.

Südostasien zählt momentan zu der Region der Erde mit der stärksten wirtschaftlichen Entwicklung. Besonders in China haben sich in den letzten Jahrzehnten große Ballungsgebiete entwickelt. Diese kürzlich vorangetriebene Industrialisierung wirkt sich deutlich auf die Umwelt und insbesondere auf die Luftqualität aus. Der Ausstoß von Treibhausgasen, Partikeln und Schadstoffen wird überwiegend ungefiltert in die Atmosphäre geleitet, woraus hohe Konzentrationen von Partikeln in der Luft resultieren (Wang et al., 2003). Neben diesem lokal produzierten, anthropogenen Aerosol aus Industrie und Verkehr werden außerdem durch die Verbrennung von Biomasse in der Landwirtschaft entstehende Russpartikel herantransportiert. Eine natürliche Quelle von Aerosol ist das Aufwirbeln von Staub in ariden bzw. semiariden Gebieten der Wüsten Gobi und Taklamakan im Nordwesten Chinas (Seinfeld et al., 2004). Ein weiterer natürlicher Aerosoltyp ist maritimes Aerosol, welches durch Verdunstung im Gischtbereich der Ozeane entsteht.

In Kapitel 2 wird die Theorie des Sonnenphotometers und der Polarisation beschrieben. Anschließend wird in Kapitel 3 die Datenauswertung, das Messgerät anhand von Messprinzipien und -programmen sowie der resultierenden Messfehler erläutert. Außerdem erfolgt ein Einblick in den Stand der aktuellen Forschung. In Kapitel 4 werden neben der Kalibrierung des Sonnenphotometers in Litang außerdem die Polarisationseigenschaften von Molekülen verdeutlicht. Dies erfolgt anhand von Vergleichen der Messwerte mit theoretisch berechneten Werten der Rayleigh-Theorie, als auch mit Modelldaten. Im 5. Kapitel wird ein Überblick über die Messergebnisse für den gesamten Messzeitraum gegeben. Dabei werden auch die klimatischen Bedingungen im PRD erläutert. Im Detail wird mit Hilfe eines Messbeispiels vom 2./3. Dezember 2011 ein Tag mit einem Aerosolgemisch von Wüstenstaub und urbanen Partikeln vorgestellt. Am Beispiel des 25./26. März 2012 werden die optischen und mikrophysikalischen Partikeleigenschaften anhand von Aerosol aus der Biomasseverbrennung verdeutlicht. Am Ende der Arbeit erfolgt in Kapitel 6 eine Zusammenfassung.

## 2 Theorie

# 2.1 Von Sonnenphotometermessungen abgeleitete Größen

Bei der Sonnenphotometrie werden Messungen der spektralen direkten Sonnenstrahlung, Aureolen- und diffusen Himmelsstrahlung durchgeführt. Die einfallende Strahlung wird auf dem Weg durch die Atmosphäre abgeschwächt. Dieser Weg wird als optische Luftmasse bezeichnet und ist abhängig vom Zenitwinkel der Sonne. Die Abschwächung ist proportional zur Konzentration an Molekülen und Partikeln in der Atmosphäre. Die Streuung der Strahlung an Luftmolekülen wird durch die Rayleigh-Theorie beschrieben, d.h. Strahlung trifft auf Teilchen, die sehr viel kleiner als die Wellenlänge der einfallenden Strahlung sind (Rayleigh, 1918). Der Einfluss der Partikelstreuung auf die optische Dicke ist zunächst unbekannt und wird nach einer Kalibrierung des Geräts über die direkte Sonnenstrahlung bestimmt und anhand der AOD charakterisiert. Die Messungen der diffusen Himmelsstrahlung werden genutzt, um über Inversionsalgorithmen mikrophysikalische Aerosoleigenschaften zu bestimmen. Die Messungen erfolgen unter verschiedenen Azimutwinkeln, um einen möglichst großen Bereich an Streuwinkeln zu erhalten. Mittels dieser Messsequenz wird auch der Polarisationszustand der diffusen Himmelsstrahlung bestimmt. Die theoretischen Grundlagen der Streuung werden in diesem Kapitel näher erläutert.

Die vollständige Beschreibung der Wechselwirkung von solarer Strahlung mit Materie ist nur mit Hilfe des Welle-Teilchen-Dualismus des Lichts möglich (Bakan, 1985, Quenzel, 1985). Dies lässt sich aus der dualen Eigenschaft der elektromagnetischen Strahlung ableiten, da sich ein Teil der Wechselwirkungen nur wellenmechanisch (z.B. Streuprozesse) und ein anderer nur quantenmechanisch (z.B. Absorptions- und Emissionsprozesse) erklären lassen. Wenn in der Atmosphäre die solare Strahlung mit Materie wechselwirkt, wird ein Teil der Photonenenergie an Moleküle, Wolkentröpfchen und Partikel oder den Erdboden übertragen und dem Strahlungsfeld entzogen (Absorption). Dabei können sich die Rotations- bzw. Schwingungszustände der Moleküle und Partikel ändern.

Bei einem elastischen Streuvorgang geht das angeregte Molekül bzw. Atom wieder in den Ausgangszustand zurück und sendet ein Photon aus. Das ausgesandte Photon unterscheidet sich von dem ursprünglich aufgenommenen nur in der Bewegungsrichtung und nicht in der Frequenz bzw. Photonenenergie. Wird beim Stoß eines angeregten Moleküls mit einem anderen Molekül Energie übertragen und somit das angeregte Molekül in einen energetisch niedrigeren Zustand versetzt, so wird die von dem anderen Molekül aufgenommene Energie in kinetische Energie (Vibrations-, Rotations- oder Translationsenergie) umgewandelt. Die Schwächung der Strahlung durch Absorption und Streuung wird als Extinktion bezeichnet.

Streuvorgänge an atmosphärischen Partikeln sind abhängig von der Größenverteilung, den geometrischen Formen und den Brechungsindizes der Partikel. Die Theorie zur Beschreibung der Streuvorgänge an sphärischen Partikeln wurde von Mie (1908) erarbeitet. Ein Spezialfall dieser Theorie ist die Beschreibung der Streuung an, im Verhältnis zur Wellenlänge, kleinen Streuern, wie z.B. die Streuung von solarer Strahlung an Luftmolekülen (Rayleigh, 1918). Aus der Rayleigh-Theorie folgt, dass bei partikelfreier Luft der Streueffizienzfaktor  $\sigma$  invers proportional zur vierten Potenz der Wellenlänge ist:  $\sigma \sim \lambda^{-4}$ . Als Streuwinkel  $\Theta$  wird der Winkel zwischen der Richtung des einfallenden Photons und des gestreuten Photons bezeichnet. Die Streurichtung des einfallenden Lichts definiert die Streuebene.

Nach Streuung der Photonen an Partikeln ergibt sich eine Intensitätsverteilung der gestreuten Photonen in Abhängigkeit vom Streuwinkel  $\Theta$  und der Wellenlänge  $\lambda$ . Diese wird mit der Streuphasenfunktion p beschrieben (Seinfeld und Pandis, 1998):

$$p(\cos(\Theta), \lambda) = \frac{I(\cos(\Theta), \lambda)}{\int_0^{\pi} I(\cos(\Theta), \lambda) \sin(\Theta) \cdot d\Theta} \quad .$$
(2.1)

Die Streuphasenfunktion kann auch als die Wahrscheinlichkeit verstanden werden, mit der ein Photon in eine bestimmte Richtung gestreut wird. Das Verhältnis von Partikelradius r zur Wellenlänge  $\lambda$  wird als Größenparameter x bezeichnet:

$$x = \frac{2\pi \cdot r}{\lambda} \quad . \tag{2.2}$$

Für kleine Größenparameter ( $x \ll 1$ ) entspricht die Rayleigh-Theorie dem Streuverhalten der Moleküle. Für größere Partikel nimmt der Anteil der Vorwärtsstreuung ( $\Theta = 0^{\circ} - 90^{\circ}$ ) der Strahlung gegenüber dem der Rückwärtsstreuung ( $\Theta = 90^{\circ} - 180^{\circ}$ ) zu (Mie-Streuung).

Eine weitere Charakterisierung der Richtungsabhängigkeit der gestreuten Strahlung ermöglicht der Asymmetrieparameter g (Seinfeld und Pandis, 1998):

$$g = \frac{1}{2} \int_0^{\pi} p(\cos(\Theta)) \cos(\Theta) \sin(\Theta) \cdot d\Theta \quad .$$
 (2.3)

Dieser weist aufgrund des mittleren Kosinus des Streuwinkels Werte von -1 bis 1 auf. Bei positiven Werten überwiegt die Vorwärtsstreuung, d.h. für g = 1 wird die Strahlung vollständig in Vorwärtsrichtung gestreut. Dagegen lassen negative Werte auf eine größere Rückwärtsstreuung schließen. Wenn g = 0 ist, wird die Strahlung an den Partikeln isotrop gestreut.

Die Weglänge der direkten Strahlung durch die Atmosphäre in Abhängigkeit von verschiedenen Zenitwinkeln der Sonne  $\Theta_z$  wird über die optische Luftmasse *m* erfasst. Für eine planparallele homogene Atmosphäre gilt die folgende Gleichung (Meißner, 2009):

$$m = \frac{1}{\cos\Theta_z} \quad . \tag{2.4}$$

Der kürzeste mögliche Weg ist in Zenitrichtung mit  $\cos(\Theta_z = 0^\circ) = 1$  und stellt damit den kleinsten Wert der optischen Luftmasse dar. Da die Atmosphäre gekrümmt und nicht homogen ist, kommt es zur Refraktion der direkten Sonnenstrahlung infolge vertikaler Dichtegradienten. Bei niedrig stehender Sonne werden große optische Luftmassen erreicht und es sind erhöhte Fehler bei den Sonnenphotometermessungen zu erwarten. Mit Berücksichtigung der optischen Luftmasse lässt sich mit Glg. 2.4 die optische Dicke  $\tau$  aus der Messung der direkten Sonnenstrahlung mit dem Sonnenphotometer bestimmen (Gesetz von Lambert-Beer-Bouguer):

$$\tau(\lambda) = -\frac{\ln\left(\frac{I(\lambda)}{I_0(\lambda) \cdot f_{es}}\right)}{m},$$
(2.5)

wobei mit  $I(\lambda)$  die gemessene Strahldichte,  $I_0(\lambda)$  die Strahldichte des Instruments am Oberrand der Atmosphäre und  $f_{es}$  der Korrekturfaktor für die Distanz von der Sonne bis zur Erde bezeichnet werden.

Die optische Dicke setzt sich aus der Summe, der an der Extinktion der solaren Strahlung beteiligten atmosphärischen Bestandteile zusammen (Meißner, 2009):

$$\tau(\lambda) = \tau_{m,s}(\lambda) + \tau_{p,s}(\lambda) + \tau_{m,a}(\lambda) + \tau_{p,a}(\lambda), \qquad (2.6)$$

wobei  $\tau_{m,s}(\lambda)$  die moleküloptische Dicke,  $\tau_{p,s}(\lambda)$  die AOD,  $\tau_{m,a}(\lambda)$  die optische Dicke aufgrund von Gasabsorption und  $\tau_{p,a}(\lambda)$  die optische Dicke aufgrund von Partikelabsorption bezeichnen.

Die AOD kann wellenlängenabhängig sein, welches sich auf die Partikelstreueffizienzen sowie Absorptionseigenschaften der atmosphärischen Bestandteile zurückführen lässt. Für die Extinktion wurde der Ångström-Exponent  $\alpha$  eingeführt, der die spektrale Abhängigkeit der AOD beschreibt (Ångström, 1929):

$$\alpha = \frac{dln\tau(\lambda)}{dln\lambda} = \frac{ln\left[\tau(\lambda_1)/\tau(\lambda_1)\right]}{ln\left(\lambda_1/\lambda_2\right)} \quad . \tag{2.7}$$

Wenn der Absorptionsanteil der Partikelextinktion wellenlängenunabhängig ist, dann ist der Ångström-Exponent ein Maß für die Größe der Partikel. Bei großen Partikeln ist die AOD häufig wellenlängenunabhängig ( $\alpha = 0$ ). Wenn der Partikelradius abnimmt, wird  $\alpha$  größer.

Eine weitere Bestimmung des relativen Anteils an feinen ( $\mathbf{r} = 0.1 - 1\mu\mathbf{m}$ ) und groben ( $\mathbf{r} \ge 1\mu\mathbf{m}$ ) Partikeln ist über den differentiellen Ångström-Exponenten  $\alpha'(\Delta\lambda)$  möglich (O'Neill et al., 2001 und Schuster et al., 2006). Ein Ångström-Exponent, welcher aus der AOD bei Wellenlängen des ultravioletten bis sichtbaren Strahlung berechnet wird, liefert Informationen über den relativen Einfluss von feinen Partikeln an den Streuprozessen. Der Ångström-Exponent aus den Wellenlängen der sichtbaren bis nahen Infrarotstrahlung zeigt einen größeren Einfluss bei groben Partikeln. In Kapitel 5.3 wird der differentielle Ångström-Exponent nach folgender Gleichung berechnet:

$$\alpha'(380 \text{ nm} - 870 \text{ nm}) = \alpha(380 \text{ nm} - 500 \text{ nm}) - \alpha(500 \text{ nm} - 870 \text{ nm})$$
(2.8)

Ist  $\alpha'(\Delta \lambda)$  deutlich kleiner 0, resultiert dies aus einer monomodalen Größenverteilung in der feine Partikel den Wert des Ångström-Exponenten bestimmen. Bei einem  $\alpha'(\Delta \lambda)$ von ca. 0 liegt keine Veränderung des Ångström-Exponenten mit der Wellenlänge vor und Glg. 2.7 beschreibt unter diesen Bedingungen den Datensatz detaillierter. Wenn  $\alpha'(\Delta\lambda)$  deutlich über 0 liegt, bestimmt eine bimodale Größenverteilung den spektralen Verlauf des Ångström-Exponenten.

Zur Beschreibung der mikrophysikalischen Partikeleigenschaften wird die Partikelanzahlkonzentration genutzt. Das Partikelgrößenspektrum wird über die differentielle Anzahlgrößenverteilung beschrieben:

$$n(r) = \frac{dN}{dlnr},\tag{2.9}$$

wobei N die absolute Partikelanzahlkonzentration bezeichnet. Diese Größenverteilung wird durch eine logarithmische Normalverteilung verschiedener Größenordnungen angenähert (Davies, 1974):

$$\frac{dN}{dlnr} = \sum_{i=1}^{n} \frac{N_i}{\sqrt{2\pi} ln\sigma_{g,i}} \left[ -\frac{(ln(r) - ln(r_{gN,i}))^2}{2(ln\sigma_{g,i})^2} \right],$$
(2.10)

wobei  $r_{gN}$  den geometrisch gemittelten Radius und  $\sigma_{g,i}$  die geometrische Standardabweichung bezeichnen. Mit Hilfe der differentiellen Anzahlgrößenverteilung lässt sich die Partikelvolumenkonzentration dV/dlnr, die z.B. ein Standardprodukt des AERONET ist, bestimmen. Für kugelförmige Partikel lässt sich die Volumengrößenverteilung mit Hilfe der Partikelanzahlkonzentration berechnen (Dubovik und King, 2000):

$$\frac{dV(r)}{dln(r)} = V(r)\frac{dN(r)}{dln(r)} = \frac{4}{3}\pi r^3 \frac{dN(r)}{dln(r)} \quad .$$
(2.11)

Die Darstellung der Volumengrößenverteilung erfolgt häufig auf einer logarithmischen Skala, da die Partikel mehrere Größenbereiche umfassen. Durch eine logarithmische Skala werden der feine (r = 0.1 - 1 $\mu$ m) und der grobe (r  $\geq 1 \mu$ m) Modus leichter differenzierbar.

#### 2.2 Bestimmung des linearen Polarisationsgrads

Die elektromagnetische Strahlung ist eine transversale Welle, bei welcher die elektrischen  $\vec{E}$ - und magnetischen  $\vec{H}$ -Felder senkrecht zur Ausbreitungsrichtung und senkrecht zueinander schwingen. Die Erzeugung der elektrischen und magnetischen Feldvektoren durch Ladungsverschiebungen und die Veränderung mit der Zeit lassen sich mit Hilfe der Maxwellgleichungen im Vakuum und unter der Annahme von Quellenfreiheit, d.h. Betrachtung für Ausbreitung bei Abwesenheit von Quellen und Senken, wie folgt beschreiben (Wendisch und Yang, 2012):

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 0, \tag{2.12}$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = \epsilon \frac{\partial \vec{E}}{\partial t},\tag{2.13}$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{H} = 0, \tag{2.14}$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\kappa \frac{\partial \vec{H}}{\partial t},\tag{2.15}$$

wobei $\epsilon$  die Dielektrizitätskonstante und  $\kappa$  die magnetische Permeabilität des Vakuums bezeichnen.

Eine harmonische elektrische Welle lässt sich durch den komplexen elektrischen Feldvektor  $\vec{E}$  darstellen:

$$\vec{E} = \vec{E_0} \cdot exp(i \cdot k \cdot z - i \cdot w_c \cdot t), \qquad (2.16)$$

wobei  $\vec{E_0}$  den realen elektrischen Vektor, k die Wellenzahl,  $w_c$  die zirkulare Frequenz, z die Ausbreitungsrichtung der einfallenden elektromagnetischen Welle und t die Zeit definiert. Jede harmonische Welle lässt sich in eine parallele  $E_{\parallel}$  und eine senkrechte  $E_{\perp}$ Komponente unterteilen (Glg. 2.17). Die Bezugsebene stellt die Streuebene dar.

$$\vec{E} = E_{\parallel} \cdot \vec{e}_{\parallel} + E_{\perp} \cdot \vec{e}_{\perp} \tag{2.17}$$

 $\vec{e}_{\parallel}$  und  $\vec{e}_{\perp}$  sind die Basisvektoren, welche parallel und senkrecht zur Streuebene sind. Zur Beschreibung des Polarisationszustands der Strahlung wird der Stokes-Vektor  $\vec{S}$  verwendet. Die Stokes-Parameter sind als zeitliche Mittel der linearen Kombinationen des elektromagnetischen Feldvektors definiert (Chandrasekhar, 1950, Hansen und Travis, 1974). Ein allgemeines Strahlungsfeld lässt sich bezüglich seiner Polarisationseigenschaften wie folgt charakterisieren (Bohren und Clothiaux, 2006):

$$I = E_{\parallel} E_{\parallel}^{*} + E_{\perp} E_{\perp}^{*} = E_{\parallel}^{2} + E_{\perp}^{2},$$

$$Q = E_{\parallel} E_{\parallel}^{*} - E_{\perp} E_{\perp}^{*} = E_{\parallel}^{2} - E_{\perp}^{2},$$

$$U = E_{\parallel} E_{\perp}^{*} + E_{\perp} E_{\parallel}^{*} = 2E_{\parallel} E_{\perp} \cos(\Delta_{Ph}),$$

$$V = i(E_{\parallel} E_{\perp}^{*} + E_{\perp} E_{\parallel}^{*}) = 2E_{\parallel} E_{\perp} \sin(\Delta_{Ph}),$$
(2.18)

wobei  $\Delta_{Ph}$  die Phasendifferenz zwischen paralleler und senkrechter Komponente und \* eine komplex konjugierte Größe definiert.

Die Komponente des Stokes-Vektors I wird in einen unpolarisierten Anteil  $I_{unpol}$  und in einen polarisierten Anteil  $I_{pol}$  unterteilt.  $I = I_{unpol} + I_{pol}$  beschreibt dabei die gesamte Intensität, Q und U sind die Komponenten der linearen Polarisation und V ist die Komponente der zirkularen Polarisation.

$$\vec{S} = \begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} I_{unpol} \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} I_{pol} \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix}$$
(2.19)

Die Stokes-Parameter können über folgende Beziehung normiert werden:

$$I_N = \frac{I \cdot \pi}{\cos(\theta_z) F_0},\tag{2.20}$$

wobei  $F_0$  die einfallende Irradianz definiert. So ergibt sich für vollständig unpolarisierte Strahlung:

$$\vec{S} = \begin{pmatrix} 1\\0\\0\\0 \end{pmatrix}, \tag{2.21}$$

für vollständig horizontal (+) bzw. vertikal (-) polarisierte Strahlung:

$$\vec{S} = \begin{pmatrix} 1\\ \pm 1\\ 0\\ 0 \end{pmatrix}, \tag{2.22}$$

und für rechts (+) bzw. links (-) polarisierte Strahlung:

$$\vec{S} = \begin{pmatrix} 1\\0\\0\\\pm 1 \end{pmatrix}.$$
 (2.23)

Für vollständig polarisierte Strahlung gilt nach Glg. 2.18 (Boettger, 1997):

$$I^2 = Q^2 + U^2 + V^2. (2.24)$$

Als Polarisations DOP folgt daraus:

$$DOP = \frac{\sqrt{Q^2 + U^2 + V^2}}{I}.$$
 (2.25)

Wenn der elektrische Feldvektor nur in einer Ebene schwingt, wird der Polarisationszustand der elektromagnetischen Welle als linear bezeichnet. Für den linearen Polarisationsgrad *DOLP* folgt:

$$DOLP = \frac{\sqrt{Q^2 + U^2}}{I}.$$
 (2.26)

Als zirkulare Polarisation wird analog der Zustand bezeichnet, bei dem der elektrische Feldvektor um die Ausbreitungsrichtung rotiert. Dies erfolgt mit konstanter Winkelgeschwindigkeit und ohne Änderung des Betrags. Der Polarisationsgrad der zirkular polarisierten Strahlung wird wie folgt definiert:

$$\frac{I_{zp}}{I} = \frac{V}{I}.$$
(2.27)

Die Wechselwirkung einer elektromagnetischen Welle mit Molekülen bzw. Partikeln wird mit Hilfe einer linearen Transformation des Stokes-Vektors beschrieben. Durch die Interaktion ändern sich Richtung, Intensität und Polarisationszustand der Strahlung. Die Stokes-Parameter nach der Streuung lassen sich durch die Multiplikation des Stokes-Vektors mit der Müllermatrix M darstellen (Hansen und Travis, 1974):

$$S_{sca} = \begin{pmatrix} I_{sca} \\ Q_{sca} \\ U_{sca} \\ V_{sca} \end{pmatrix} = MS_{in} = \begin{pmatrix} m_{11} & m_{12} & m_{13} & m_{14} \\ m_{21} & m_{22} & m_{23} & m_{24} \\ m_{31} & m_{32} & m_{33} & m_{34} \\ m_{41} & m_{42} & m_{43} & m_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I_{in} \\ Q_{in} \\ U_{in} \\ V_{in} \end{pmatrix}.$$
 (2.28)

M ist die Matrix mit den Elementen  $m_{ij}$ , die Bezeichnungen "sca" und "in" stehen für gestreute und einfallende Strahlung.

Bei den Messungen werden nur Intensitäten bestimmt, wodurch aus Glg. 2.28 für einen idealen Polarisationsfilter folgt:

Die Stokes-Parameter I, Q, U und die abgeleitete Größe *DOLP* können durch drei Intensitätsmessungen  $L_1, L_2, L_3$  unter Verwendung von Polarisationsfiltern bei drei verschiedenen Winkeln  $\phi$  berechnet werden. Dazu wird das Licht nach dem Passieren der Polarisationsfilter gemessen, welche jeweils um 60° in der Ebene senkrecht zur Einstrahlrichtung gedreht sind (Li et al., 2009). Die gemessene Intensität ergibt sich zu (Hansen und Travis, 1974):

$$L_{px} = \frac{1}{2}(I + Q\cos 2\phi + U\sin 2\phi)$$
(2.30)

Für die Intensitäten folgen dann nach Glg. 2.30  $L_1 = I_1(0^\circ), L_2 = I_2(60^\circ), L_3 = I_3(120^\circ)$ :

Für  $\phi = 0^{\circ}$  folgt:

$$L_{p1} = \frac{1}{2}(I+Q). \tag{2.31}$$

Für  $\phi = -60^{\circ}$  folgt:

$$L_{p2} = \frac{1}{2}(I - 0.5Q - \frac{\sqrt{3}}{2}U).$$
(2.32)

Für  $\phi = 60^{\circ}$  folgt:

$$L_{p3} = \frac{1}{2}(I - 0.5Q + \frac{\sqrt{3}}{2}U).$$
(2.33)

Damit lassen sich die drei unbekannten Größen I, Q und U aus dem Gleichungssystem und den Messungen  $L_{px}$  bestimmen:

$$I = \frac{2}{3}(L_{p1} + L_{p2} + L_{p3})$$
(2.34)

$$Q = -\frac{2}{3}(-2L_{p1} + L_{p2} + L_{p3})$$
(2.35)

$$U = -\frac{2}{\sqrt{3}}(L_{p2} - L_{p3}) \tag{2.36}$$

Für den linearen Polarisationsgrad folgt damit nach Glg. 2.26:

$$DOLP = \frac{I_{pol}}{I_{pol} + I_{unpol}} = \frac{2\sqrt{L_{p1}^2 + L_{p2}^2 + L_{p3}^2 - L_{p1}L_{p2} - L_{p1}L_{p3} - L_{p2}L_{P3}}}{(L_{p1} + L_{p2} + L_{p3})}.$$
 (2.37)

#### 2.3 Polarisationszustand unter Rayleighbedingungen

Lord Rayleigh entdeckte 1871 das Gesetz der Streuung der solaren Strahlung, welches den hauptverantwortlichen Prozess der Polarisation in der Atmosphäre beschreibt. Eine auf ein Molekül einfallende elektromagnetische Welle verursacht ein Dipolmoment  $\vec{p}$  (Böttger, 1997):

$$\vec{p} = \alpha_p \epsilon E^{in}, \qquad (2.38)$$

wobei  $E^{in}$  das einfallende elektrische Feld und  $\alpha_p$  die Polarisierbarkeit ist. Die Polarisierbarkeit ist vom komplexen Brechungsindex abhängig und für isotrope Teilchen eine Konstante. Der Dipol schwingt in die gleiche Richtung wie das elektrische Feld und strahlt in alle Richtungen Sekundärwellen ab. Das elektrische Feld  $E^S$  nach der Streuung folgt mit:

$$E^S \propto \frac{1}{s} \frac{\partial^2 \vec{p}}{\partial t^2} \sin\gamma,$$
 (2.39)

wobei  $\gamma$  den Winkel zwischen der Richtung des Dipolmoments und der Richtung der gestreuten Strahlung beschreibt. Aus Glg. 2.18 und Glg. 2.38 ergibt sich für die Intensität der gestreuten Strahlung das Rayleigh-Gesetz:

$$I_{\perp}^{S} = \frac{I^{i}}{r^{2}} \alpha_{p}^{2} (\frac{2\pi}{\lambda})^{4} \frac{1}{2},$$

$$I_{\parallel}^{S} = \frac{I^{i}}{r^{2}} \alpha_{p}^{2} (\frac{2\pi}{\lambda})^{4} \frac{\cos^{2}\theta}{2},$$
(2.40)

mit der Abhängigkeit der senkrechten  $I_{\perp}^{S}$  und parallelen  $I_{\parallel}^{S}$  Komponente vom Streuwinkel. Daraus folgt, dass der Dipol am stärksten senkrecht zur Schwingungsrichtung strahlt und die gestreute Strahlung bei einem Streuwinkel von 90° vollständig polarisiert ist. Die Rayleigh-Theorie beruht auf den folgenden Annahmen (Rayleigh, 1918):

- Die Teilchen sind wesentlich kleiner als die Wellenlänge der Strahlung.
- Die Teilchen sind nicht ionisiert.
- Der Brechungsindex b der Teilchen beträgt ca. 1.
- Die Teilchen besitzen keine Vorzugsschwingungsrichtung der Elektronen gegenüber der einfallenden Welle (Isotropie).

Der Einfluss der molekularen Anisotropie findet im Folgenden Berücksichtigung. Aus der Müllermatrix (Glg. 2.28) folgt nach Normalisierung eine Streuphasenmatrix P. Diese besteht ohne Vereinfachungen aus 16 Elementen. Für zufällig orientierte Partikel, welche mindestens eine Symmetrieebene haben, folgt die Vereinfachung (Liou, 1992):

$$P = \begin{pmatrix} P_{11} & P_{12} & 0 & 0 \\ P_{21} & P_{22} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & P_{33} & P_{34} \\ 0 & 0 & -P_{34} & P_{44} \end{pmatrix}.$$
 (2.41)

$$P_{11} = \frac{m_{11}}{1/(4\pi) \iint_{4\pi} m_{11} d^2 \Omega},$$
(2.42)

$$P_{ij} = P_{11} \cdot \frac{m_{ij}}{m_{11}}$$
 mit  $i, j = 1, 2, 3, 4.$  (2.43)

Bei einfallender unpolarisierter Strahlung definiert das Verhältnis von  $P_{21}$  zu  $P_{11}$  den Polarisationsgrad (Böttger, 1997). Bevor die solare Strahlung die Atmosphäre erreicht, ist es unpolarisiert. Durch eine Reflexion an der Erdoberfläche und der Streuung an Molekülen und Partikeln in der Atmosphäre wird es polarisiert. Die meisten in der Atmosphäre vorkommenden Gase streuen nicht isotrop, wodurch das Himmelslicht nie vollständig polarisiert ist (Bohren und Clothiaux, 2006). Aus der Anisotropie der atmosphärischen Gasmoleküle folgt ein Depolarisierungseffekt für die Molekülstreuung (Rayleigh, 1918 und Chandrasekhar, 1950). Neben diesem Effekt erklärt Coulson (1988) die nicht vollständige Polarisierung des Himmelslichts mit der Streuung der Strahlung durch Partikel und dem Einfluss der Mehrfachstreuung sowie Reflektionen am Erdboden auf die Polarisation des Himmelslichts. Die Streuphasenmatrix, welche den Effekt der Anisotropie beinhaltet, ist in Glg. 2.44 dargestellt (Hansen und Travis, 1974):

wobe<br/>i $\Delta$ über

$$\Delta = \frac{1-\delta}{1+\frac{\delta}{2}},\tag{2.45}$$

$$\Delta' = \frac{1 - 2\delta}{1 - \delta} \quad \text{und} \tag{2.46}$$

$$\delta = \left(\frac{I_{sca,\perp}}{I_{sca,\parallel}}\right)_{\theta = \pi/2},\tag{2.47}$$

der Depolarisierungsfaktor  $\delta$  definiert wird. Bei isotroper Streuung ist  $\delta = 0$ , für Luft wurde  $\delta \sim 0.03$  abgeleitet (Gucker et al., 1969).

Abbildung 2.1 zeigt simulierte Stokes-Komponenten und den DOP für eine Wellenlänge von 350 nm unter Rayleighbedingungen (Emde et al. 2010). Der Sonnenzenitwinkel beträgt 30° und der Azimutwinkel wurde mit 0° in Richtung Sonne gesetzt. Die niedrigste Intensität der Strahlung wird senkrecht zur Sonne in Blickrichtung erreicht. Mit zunehmender horizontaler Nähe nimmt die Intensität zu und fällt dann bei sehr großen Zenitwinkeln wieder ab. Der größte Polarisationsgrad wird nach Glg. 2.48 bei einem Streuwinkel von 90° erreicht (Hansen und Travis, 1974):

$$\frac{I_{pol}}{I} = \frac{\sin^2\theta}{1 + \cos^2\theta + 2\delta/(1 - \delta)}$$
(2.48)



Abbildung 2.1: Simulierte Stokes-Komponenten und DOP für 350 nm und einem solaren Zenitwinkel von 30° für eine reine Molekül-Atmosphäre, die Zenitwinkel sind durch gestrichelte Kreise gekennzeichnet und die Azimutwinkel stehen senkrecht zu den Kreisen und sind außerhalb beschriftet (Emde et al., 2010).

### 3 Messinstrumente und Auswertung

#### 3.1 Messprinzip des Cimel CE 318-DP

Das Sonnenphotometer Cimel Electronique CE 318 Dual-Polar misst die direkte Sonnenund diffuse Himmelsstrahlung sowie den Polarisationszustand der diffusen Himmelsstrahlung. Es verfügt über zwei optische Kanäle, welche mit unterschiedlichen Detektoren bestückt sind. Die Strahlung der Wellenlängen von 340 nm, 380 nm, 440 nm, 500 nm, 675 nm, 870 nm, 936 nm und 1020 nm wird mit einer Silizium-Diode und die Strahlung mit der Wellenlänge von 1020 nm sowie 1640 nm von der InGaAs-Diode gemessen. Durch den photovoltaischen Effekt wird Lichtenergie in eine elektrische Spannung umgewandelt und detektiert. Die Messungen erfolgen automatisch nach festgelegten Messprogrammen.



Abbildung 3.1: Schematischer Aufbau eines Sonnenphotometers (nach Shaw, 1983) mit zusätzlich eingezeichnetem Polarisator und Mikroprozessor.

Ein schematischer Aufbau des Sonnenphotometers ist in Abb. 3.1 dargestellt. Vor den Detektoren befinden sich jeweils ein Kollimator und die Interferenzfilter, welche sich auf einer drehbar gelagerten Scheibe befinden. Durch eine zweite rotierende Scheibe, auf der die Polarisationsfilter montiert sind, können polarisationszustandsabhängige Messungen durchgeführt werden. Das vom Detektor registrierte Signal wird als Zählrate ausgegeben.



Abbildung 3.2: Dual-Polar Sonnenphotometer in Guangzhou, November 2011 (links) und skizzierte Darstellung des Messprinzips des Polarisationszustands (rechts, bereitgestellt von Zhengqiang Li).

Die beiden Kollimatoren im Cimel CE 318-DP sind auf einer motorbetriebenden Basis befestigt (Abb. 3.2). Mit Hilfe der Uhrzeit und der Koordinaten des Standorts wird die Position der Sonne durch einen Mikroprozessor auf 0.05° genau bestimmt. Anschließend richtet ein Vier-Quadranten-Detektor die Kollimatoren exakt auf die Sonne aus (Holben et al., 1998 und Rollin, 2000). Da die Messungen der diffusen Himmelsstrahlung ein wesentlich schwächeres Eingangssignal haben als die der direkten Sonnenstrahlung, sind verschiedene Verstärker notwendig. Nach jeder Messung werden die Kollimatoren in Parkposition gebracht. Dies geschieht in Nadirrichtung, um so Verschmutzungen vorzubeugen. Ein Niederschlagssensor registriert Niederschläge und bricht gegebenenfalls die Messung ab. Im Speicher des Mikroprozessors werden die Messdaten mit den zugehörigen Messzeiten gespeichert. Der Speicher ist derart ausgelegt, dass alle Messdaten eines Tages gesichert werden können. Wenn der Speicher voll ist, werden die Daten überschrieben.

Cimel Electronique hat das Programm ASTPWin entwickelt, um die Messdaten des Sonnenphotometers direkt auf einen Computer einzulesen und dort zu speichern. Beim Einlesen werden neben den Messwerten der Strahlung auch die Systemparameter wie geografische Koordinaten, Gerätenummer, Batteriezustand, etc. übermittelt. Über ein Emailprogramm werden die Daten an das AERONET weitergeleitet. Alternativ ist es auch möglich, die Daten mittels Satellitenübertragung an das AERONET zu senden. Alle im Folgenden gezeigten AOD, Ångström-Exponenten und Partikelvolumengrößenverteilungen des Cimel CE 318-DP wurden mit der von AERONET zur Verfügung gestellten Routine berechnet (Dubovik und King, 2000).

#### 3.2 Messprogramme

Messungen der direkten solaren Strahlung erfolgen in allen 9 spektralen Banden um die Wellenlängen 340 nm, 380 nm, 440 nm, 500 nm, 675 nm, 870 nm, 936 nm, 1020 nm und 1640 nm, wobei die Bandbreite 2 nm bis 10 nm beträgt. Ein gesamter Zyklus über alle 9 Banden dauert auf Grund des Drehens des Filterrades ca. 10 s. Bei jeder Wellenlänge werden drei Messungen durchgeführt. Die Wiederholrate der Messungen ist abhängig von der optischen Luftmasse. Die Messung beginnt bei einer optischen Luftmasse von 7 am Morgen und endet bei einer optischen Luftmasse von 7 am Abend. Bei großen Luftmassen erfolgt die Messung im Intervall von m = 2, bei kleineren Luftmassen hingegen erfolgt die Messung aller 15 Minuten.

Für die polarisierten und unpolarisierten Himmelsstrahlungsmessungen werden zwei grundlegende Beobachtungssequenzen durchgeführt: (1) Messungen in der Vertikalebene der Sonne und (2) Almukantarmessungen (Abb. 3.3). Almukantar bezeichnet einen Kreis der Himmelssphäre, der mit dem Horizontkreis der Sonne parallel verläuft. Mit Hilfe dieser beiden Messungen werden alle Himmelsradianzen über einen großen Streuwinkelbereich zur Sonne bestimmt, wobei eine zeitlich und räumlich konstante Partikelverteilung angenommen wird.



Abbildung 3.3: Messablauf der diffusen Himmelsstrahlung in der Horizontalebene (a) und Vertikalebene (b) der Sonne (nach Rollin, 2000).

In der Almukantarsequenz wird eine Messreihe bei gleichem Zenitwinkel der Sonne über die Azimutwinkel im Bereich von -180° bis +180° durchgeführt. Der Azimutwinkel in Richtung der Sonne entspricht dem Wert 0°. In Abb. 3.3 (a) ist das Prinzip der Almukantarmessung dargestellt. Mit größer werdenden Winkeln in Richtung der Sonne erfolgt auch eine Zunahme der Winkelabstände bei der Messung. Die Almukantarmessung wird für jede Wellenlänge separat durchgeführt, wobei jede Almukantarmessung ca. 40 s dauert. Im automatischen Betrieb werden Almukantarmessungen täglich bei den optischen Luftmassen von 1.7, 2, 3 und 4 am Morgen und am Abend sowie stündlich zwischen 9 Uhr und 15 Uhr lokaler Zeit durchgeführt.

Die Messung in der Vertikalebene der Sonne verläuft nach dem gleichen Prinzip. Bei gleichbleibendem Azimutwinkel wird eine Messreihe unter verschiedenen Zenitwinkeln des Sonnenphotometers aufgezeichnet. Ein Schema der Messung ist in Abb. 3.3 (b) dargestellt. Eine Messung dauert ca. 30 s bei jeder Wellenlänge und findet nur bei optischen Luftmassen kleiner 2 statt, da sonst der Fehler der diffusen Himmelsstrahlungsmessungen durch die sich während der Messung verändernden Luftmasse zu groß wird. Nach dieser Principle-Plan-Sequenz werden auch die Messungen zum Polarisationszustand durchgeführt. Dabei erfolgen bei jeder Winkeleinstellung drei Radianzmessungen mit den Polarisatorstellungen 0°, 60° und 120° (vgl. Kapitel 2.2, Abb. 3.2 und Rollin, 2000).

#### 3.3 Messfehler

Die größten systematischen Messfehler von Sonnenphotometern sind die Temperaturabhängigkeit, das Streulicht und der Verschleiß von mechanischen Bauteilen wie Filtern, Kollimatoren und Detektoren (Shaw, 1983). Auch bei modernen Sonnenphotometern spielt dies immer noch eine Rolle. Jedoch wurde die Präzision der optischen Bauteile und die Elektronik der Instrumente in den letzten Jahren stetig verbessert. Ein Vergleich zweier oft verwendeter Geräte von den Herstellern Cimel und Prede ist bei Che et al. (2008) zu finden. Dabei wurde festgestellt, dass die Abweichungen der Messungen weniger als  $\pm 1.3\%$  betragen und daher die Messergebnisse beider Geräte für wissenschaftliche Studien verwendet werden können. Der Öffnungswinkel der Geräte wird von dem Gehäuse des Kollimators und der Blende bestimmt. Bei dem CE318-DP Modell beträgt dieser 1.3° und ist damit nur etwas mehr als doppelt so groß wie der Winkel, den die Sonne am Himmel einnimmt.

Li et al. (2009) und Holben et al. (1998) verdeutlichen die Temperaturabhängigkeit der Empfindlichkeit des Siliziumdetektors zur Detektion der diffusen Himmelsstrahlung bei einer Wellenlänge von 1020 nm. Eine erhöhte Umgebungstemperatur führt zu einem Anstieg der gemessenen Strahldichte von  $(0.25 \pm 0.05)\%/K$ . Folglich ist eine Temperaturkorrektur für das Eingangssignal erforderlich:

$$I_{korr} = I_{gem} \frac{(1 - \Delta T * f)}{100} \quad . \tag{3.1}$$

Hier bezeichnet  $I_{korr}$  die korrigierte Intensität,  $I_{gem}$  die gemessene Intensität,  $\Delta T$  die Differenz von Sensortemperatur zur Referenztemperatur (20 °C) und f den Korrekturfaktor. Holben et al. (1998) zeigten weiterhin, dass die Interferenzfilter mit der Zeit Alterungserscheinungen, d.h. mit der Zeit eine Änderung ihrer Parameter, aufweisen. Daher ist es notwendig, die Filter regelmäßig zu wechseln, um eine hohe Messgenauigkeit zu garantieren. Die Dioden des Cimel CE 318-DP weisen ein ständiges Hintergrundrauschen auf. Dieses Hintergrundrauschen wird mit Dunkelmessungen bestimmt, also Messungen, bei denen keine Strahlung an die Diode gelangt. Dieses Rauschen beträgt < 5 Counts und wird bei jeder Himmelsstrahlungs- bzw. Sonnenstrahlungsmessung vom Messwert subtrahiert. Neben diesem Fehler durch die Kalibrierung existiert außerdem eine Messungenauigkeit durch elektronisches Rauschen. Um diesen Fehler zu bestimmen, ist eine Messreihe unter gleichen atmosphärischen Bedingungen und bei Dunkelheit erforderlich. Die Standardabweichung der Messwerte ergibt dann den Fehler. Der Gesamtfehler ergibt sich entsprechend dem Gaußschen Fehlerfortpflanzungsgesetz aus dem Fehler durch das elektronische Rauschen und durch die Bestimmung der Kalibrierungskonstanten und ist für alle Messungen < 5% des Messwerts.

#### 3.4 Datenverarbeitung und -auswertung

Die Daten des Sonnenphotometers sind mit Ausnahme der Polarisationsmessungen über die AERONET-Webseite (2012) in unterschiedlichen Qualitätsstufen verfügbar. Nach der Übermittlung der Rohdaten liegt eine Version 1.0 der Messwerte vor, welche nach den oben beschriebenen Methoden berechnet werden. Im nächsten Schritt (Version 1.5) werden die Messungen auf den Einfluss von Wolken während der Messung überprüft. Hierzu werden Grenzwerte für die zeitliche Variabilität der AOD sowohl während einer Messung, als auch während eines Tages festgelegt. Bei Überschreitung der Grenzwerte werden die Datensätze nicht für die weitere Auswertung verwendet. In einigen Fällen ist es möglich, dass Datensätze mit stark schwankenden Aerosolmengen nicht verwendet bzw. Cirrus-Wolken nicht erkannt werden. Die höchste Qualitätsstufe ist die Version 2.0, welche allerdings erst nach einer erneuten Kalibrierung des Messgeräts erstellt wird und somit für die Messungen in China noch nicht verfügbar ist. In dieser Arbeit werden die Ergebnisse der Version 1.5 verwendet.

Polly<sup>XT</sup> ist ein Mehrwellenlängen-Raman- und Polarisations-Lidar. Aus den Messungen lassen sich Profile des Partikelrückstreukoeffizienten bei drei Wellenlängen 355 nm, 532 nm und 1064 nm und des Partikelextinktionskoeffizienten bei zwei Wellenlängen 355 nm und 532 nm bestimmen (Althausen et al., 2009). Der Rückstreukoeffizient beschreibt, welcher Teil der ausgesandten Strahlung unter 180° zurück zum Lidar gestreut wird. Aus den extensiven Größen Partikelextinktion und Partikelrückstreuung lassen sich als weitere intensive Größen neben dem Partikeldepolarisationsverhältnis bei 532 nm auch der Ångström-Exponent bzgl. der Extinktion und bzgl. der Rückstreuung und das Lidarverhältnis ableiten. Das Lidarverhältnis ist das Verhältnis von Extinktion zur Rückstreuung. Das gesamte Lidar-System läuft automatisch und lässt sich über eine Internetverbindung steuern. Die Daten werden auf einem Server am TROPOS gespeichert und sind dann als Quicklooks online über die Polly-Webseite einsehbar.

SCIATRAN 2.2 ist ein Softwarepaket, welches ein Strahlungstransfermodell sowie Auswertealgorithmen enthält. Das Programm wurde vom "Institut für Umweltphysik" (IUP) der Universität Bremen entwickelt (IUP-Webseite, 2012). Neben Radianzen sowie Wichtungsfunktionen und Luftmassenfaktoren können auch aktinische, aufwärtsund abwärtsgerichtete, diffuse und totale Strahlungsflussdichten modelliert werden. Das Wellenlängenspektrum reicht von UV bis NIR (175 nm - 2400 nm).

SCIATRAN wurde u.a. entwickelt, um Simulationen des Radianzspektrums, welches vom Weltraum aus gemessen wird, zu berechnen. Weiterhin ist es möglich, Modellierungen für bodengebundene sowie flugzeuggetragene Messungen durchzuführen. Für die spektralen Messungen der gestreuten solaren Strahlung können alle Messgeometrien sowie Positionen der Instrumente berücksichtigt werden. Für die Berechnungen innerhalb der Atmosphäre sind die gasförmigen Bestandteile und AOD in den Simulationen implementiert. Die Erdoberfläche wird als Lambertscher Reflektor mit wellenlängenabhängiger Albedo angesehen. Eine bidirektionale Reflektanzverteilung ermöglicht mit Hilfe von Parametrisierungen die Berücksichtigung einer Vielzahl von Oberflächentypen.

LibRadtran (Library for Radiative transfer) umfasst verschiedene Strahlungstransferroutinen (LibRadtran-Webseite, 2012). Das Hauptprogramm ist UV<br/>spec, womit sich spektrale Irradianzen und aktinische Strahlungsfluss<br/>dichten im Bereich von 120 nm bis 100  $\mu$ m bestimmen lassen. Das Programm pol<br/>Radtran ermöglicht polarisationsabhängige Berechnungen. In Kapitel 4 werden daraus Stokes-Vektore<br/>lemente und DOLP-Werte, die mittels PolRadtran berechnet werden, mit Messwerten aus Litang des Dual-Polar Sonnenphotometers verglichen.

#### 3.5 Transportmodelle

Transportmodelle werden genutzt, um mögliche Quellgebiete für Aerosole zu ermitteln und daraus den Aerosoltyp zu evaluieren. Einerseits werden Trajektorien berechnet und andererseits werden Massenkonzentrationen angegeben. Im späteren Kapitel werden Messbeispiele mit Berechnungen der Modelle verglichen. Neben den Modellen ist es möglich zusätzliche Informationen mit Hilfe von Satellitenbeobachtungen zu erhalten. Mit Messungen von "MODerate Resolution Imaging Spectrometer" (MODIS), welches auf den Satelliten Terra und Aqua installiert ist, können Karten erstellt werden, die Informationen über Biomassenverbrennung und Waldbrände in einem bestimmten Zeitraum liefern (MODIS-Webseite, 2012).

Das "HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory"-Modell (HYSPLIT) wurde von dem "Air Resources Laboratory" (ARL) der "National Oceanographic and Atmospheric Administration" (NOAA) aus den USA entwickelt. Es dient u.a. der Analyse von Quellgebieten der advehierten Luftmassen. Weiterhin wird es auch für die Vorhersage der Ausbreitung von verschiedenen Partikeln, wie z.B. Vulkanasche, Ruß aus Waldbränden oder radiaktivem Material verwendet. HYSPLIT ist ein Hybridmodell, welches sowohl das Euler- als auch das Lagrange-Verfahren in die Berechnungen einbezieht. Die Eulerrechnung setzt das Koordinatensystem und die dazugehörigen Gitterpunkte in einem 3-dimensionalen Gitter fest und die Lagrangerechnung beschreibt die Bewegung eines Luftpakets mit Hilfe von Trajektorien. Die Berechnungen basieren

auf der Grundlage meteorologischer Parameter verschiedener Wettermodelle. In dieser Arbeit werden mit Hilfe von HYSPLIT aus verschiedenen Höhen Rückwärtstrajektorien von Luftpaketen berechnet, woraus sich Rückschlüsse über die Quellgebiete des herantransportierten Aerosols ziehen lassen (ARL-Webseite, 2012).

FLEXPART ist ein Lagrange-Partikeldispersionsmodell des "Norwegischen Instituts für Luftuntersuchung" (NILU), welches Angaben über die Herkunft und das Alter natürlicher oder anthropogener Aerosolbelastung einer Luftmasse gibt. Die Simulierung erfolgt sowohl für mesoskalige und weitreichende Luftmassentransporte, als auch für Diffusion und die Ablagerung von feuchten und trockenen Partikeln sowie radioaktivem Fallout. Für die Berechnung der Rückwärtstrajektorien und der damit notwendigen meteorologischen Parameter werden die Daten des US-amerikanischen Wettermodells "Global Forecast System" (GFS) und des europäischen Wettermodells "European Centre for Medium Range Weather Forcasts" (ECMWF) verwendet. Für jede Simulation werden die Trajektorien von 50000 Partikeln unter Berücksichtigung von Turbulenz und Konvektionsparametrisierungen berechnet. Daraus lässt sich eine Wahrscheinlichkeitsdichte über die Herkunft des Aerosols ermitteln. Die globale Auflösung beträgt 1°x1° und bei einer großen Anzahl von simulierten Partikeltrajektorien 0.5°x0.5° (NILU-Webseite, 2012, Stohl et al., 2005).

"Dust REgional Atmospheric Model" (DREAM) ist ein Vorhersagemodell des "Barcelona Supercomputing Center" (BSC) aus Spanien für Wüstenstaub, welches auf nichtlinearen Euler-Partialgleichungen basiert. Dabei werden zunächst bodennahe Turbulenzen berücksichtigt, welche den Staub aufwirbeln. Besonderer Wert wird dabei auch auf die Parameter der Oberflächenbeschaffenheit wie Bodenfeuchte und -typ und Vegetationsart gelegt, da dies ausschlaggebend für den Staubtransport vom Boden in die Atmosphäre ist. Die Berechnung beruht auf Gitterpunkten, wobei die Vegetation eine Auflösung von 1 km und die Bodenbeschaffenheit eine Auflösung von 4 km hat. Der Aerosoltransport vom Quellgebiet weg, erfolgt mit Hilfe des Windes, wobei Modelldaten des ECMWF und "National Centers for Environmental Prediction" (NCEP) in das Transportmodell eingehen. Durch thermodynamische Prozesse und Regen wird der Staub trocken bzw. feucht ausgefällt (BSC-Webseite, 2012, Nickovic et al., 2001, Pérez et al., 2003).

"Navy Aerosol Analysis and Prediction System" (NAAPS) wurde als globales Aerosolvorhersagemodell für die US Navy durch das "Naval Research Laboratory" (NRL) aus den USA entwickelt. Es ist ein dreidimensionales Eulermodell, welches die Ausbreitung von vier Aerosoltypen berechnet: Rauch, Staub, feste Sulfate und gasförmiges Schwefeldioxid. Dabei werden keine Wechselwirkungen untereinander berücksichtigt, sondern allein der Massentransport. Die meteorologischen Parameter liefert das "Navy Operational Global Atmospheric Prediction System"-Modell (NOGAPS). NAAPS ist somit in der Lage 120-Stunden-Vorhersagen für die Partikelausbreitung im Intervall von 6 Stunden und einer horizontalen Auflösung von 1°x1° zu modellieren (NRL-Webseite, 2012).

#### 3.6 Ergebnisse vor der Megacities-Kampagne

Im Rahmen der Messkampagne "Program of Regional Integrated Experiments of Air Quality over PRD 2004" (PRIDE-PRD 2004) im PRD fand von Oktober 2004 bis November 2004 in China eine Charakterisierung der optischen Eigenschaften des anthropogenen Aerosols mit Hilfe von Lidar- und Sonnenphotometermessungen statt (Ansmann et al., 2005). Die Messungen erfolgten in Xinken im Süden der Provinz Guangdong. Die AOD hatte während der Messkampagne im Mittel den Wert 0.92 und liegt damit deutlich über den Beobachtungen der Jahrzehnte davor. 1960 betrug die AOD in der Guangdong Provinz im Mittel 0.5 bis 0.55 und 1990 bereits 0.75 bis 0.8 (Luo et al., 2001). Der Ångström-Exponent für die Wellenlängen zwischen 380 nm und 500 nm variierte während PRIDE-PRD 2004 zwischen 0.65 und 1.35 (im Mittel 0.97). Der überwiegend hohe Ångström-Exponent ist typisch für Regionen in China mit hoher Einwohnerzahl, wachsenden Städten, sich verkleinernden Vegetationsflächen und aus Industrieverbrennungen in hoher Anzahl ausgestoßener Rußpartikel (Li et al., 2003).

Während PRIDE-PRD 2004 wurde weiterführend der Einfluss von absorbierenden Partikeln auf den Strahlungshaushalt untersucht (Wendisch et al., 2008). Dabei wurden auch die aerosoloptischen Eigenschaften aus Nephelometer- und Absorptionsphotometermessungen genutzt. Die Messungen dienen als Grundlage für ein Strahlungstransfermodell. Es wurde festgestellt, dass durch die hohe Aerosolbelastung im PRD sich solare Erwärmungsraten von bis zu 10 K pro Tag am oberen Rand der Aerosolschicht ergeben können. Dies kann zu einer Stabilisierung der Atmosphäre und folglich zu einer tieferen Grenzschichthöhe führen, da die thermische Turbulenz geringer wird.



Abbildung 3.4: AOD und Ångström-Exponent (Monatsmittelwerte) 2004-2007 für drei Stationen des CSHNET: Beijing Forest (115.43° O, 39.97° N, 1120 m über NN, schwarze Kurve), Dinghu Mt. (112.53° O, 23.17° N, rote Kurve, 300 m über NN), Xishuangbanna (101.27° O, 21.90° N, 570 m über NN, blaue Kurve), (Wang et al., 2011).

Wang et al. (2011) haben 3-Jahres-Messdaten des "Chinese Sun Hazemeter Network" (CSHNET) für verschiedene Regionen Chinas ausgewertet. Es wurde beobachtet, dass die örtliche Variabilität der Aerosolbelastung Jahreszeiten abhängig ist. Die Abb. 3.4 zeigt exemplarisch die Messreihen der AOD und des Ångström-Exponenten für drei Standorte von denen sich Dinghu Mt. (rote Kurve) im PRD, Beijing Forest (schwarze Kurve) im Nordosten und Xishuangbanna (blaue Kurve) im Südwesten befindet. Die größte AOD im PRD wurde mit Werten von 1.1 bei einer Wellenlänge von 500 nm in den Frühlingsmonaten festgestellt. Verbunden damit waren eine schwächere Niederschlagsintensität und geringere Windgeschwindigkeiten, wodurch die Partikelakkumulation begünstigt wurde. Im Jahresmittel beträgt die AOD 0.66 ± 0.21 und der Ångström-Exponent 1.00 ± 0.41. Der Ångström-Exponent weist über das gesamte Jahr hohe Werte auf. Dies ist durch eine hohe Rußpartikelanzahl aus der Verbrennung von Biomasse und fossilen Energieträgern zu erklären.

Von Huang et al. (2009) wurde der Polarisationsgrad in Abhängigkeit vom Streuwinkel für verschiedene Himmelsbedingungen untersucht. Bei wolkenfreiem Himmel wird bei einem Streuwinkel von 90° das Maximum von DOP mit 0.49 erreicht. Bei dünner Bewölkung beträgt das Maximum des DOP 0.357 und verschiebt sich hin zu kleineren Streuwinkeln um 2°, welches auf eine höhere Anzahl an Wolkentröpfchen und Partikeln zurückgeführt wird. Bei einer Bedeckung mit dicken Wolken zeigen die Messungen des DOP große Fluktuationen und das DOP-Maximum erreicht nur noch 0.17. Das Maximum des DOP verschiebt sich weiter zu kleineren Streuwinkeln und erreicht den größten Wert bei 87°.



Abbildung 3.5: Streuwinkelabhängiger DOLP bei 440 nm, 500 nm, 870 nm, 1020 nm und 1640 nm für verschiedene Partikelgrößen (Li et al., 2009).

Li et al. (2009) haben den DOLP bei fünf Wellenlängen (440 nm, 500 nm, 870 nm, 1020 nm und 1640 nm) aus Messungen mit einem Cimel Dual-Polar Sonnenphotometer bestimmt (Abb. 3.5). Aus den damit verbundenen Messungen der diffusen Himmelsstrahlung sind nach Bestimmung der Größenverteilung die Messungen einteilbar, bei denen die AOD überwiegend vom Akkumulationsmodus (Partikelgröße ca. 0.1  $\mu$ m - 1  $\mu$ m), vom groben Modus (Partikelgröße ca. 1  $\mu$ m - 10  $\mu$ m) bzw. einer Mischung von beiden Moden bestimmt wurde. Beim Akkumulationsmodus nimmt das DOLP-Maximum von 340 nm zu 1640 nm Wellenlänge zu. Bei Partikeln, welche dem groben

Modus entsprechen, kehrt sich der spektrale Gang um. Folglich weisen die kurzen Wellenlängen höhere DOLP-Maxima auf als die längeren Wellenlängen. Für eine Mischung beider Moden wird der Wellenlängengang, d.h. die Abstände zwischen den DOLP-Maxima der Wellenlängen, kleiner.

## 4 Molekülstreuung am Beispiel in Litang

Vom 13.10.2011 bis 16.10.2011 erfolgte im Rahmen eines gemeinsamen Experiments mit dem Institute of Remote Sensing Applications (IRSA aus Peking, China) eine Kalibrierungskampagne in Litang (29°58'33"N, 100°15'43"O) in der Provinz Sichuan (Abb. 4.1). Litang liegt auf 3950 m über NN auf dem Tibetischen Plateau. Diese Höhe qualifiziert den Ort für die Kalibrierung von Sonnenphotometern, da Messungen in einer nur noch aus Molekülen bestehenden Atmosphäre durchgeführt werden können. Weitere Teilnehmer der Kalibrierungskampagne waren neben dem TROPOS, das Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics (AIOFM aus Hefei, China) und das LOA. Im Folgenden wird auf das Kalibrierungsprinzip der Sonnenphotometermessungen eingegangen. Da in Litang außerdem Messungen zum Polarisationszustand der Atmosphäre über der planetaren Grenzschicht erfolgten, ist eine Beschreibung der Polarisationseigenschaften nach Molekülstreuung möglich. Es erfolgt ein Vergleich der aus den Messungen abgeleiteten Polarisationszustandsgrößen (Stokes-Elemente, DOLP) mit Modellrechnungen der Strahlungstransferprogramme LibRadtran und SCIATRAN, welche am Leipziger Institut für Meteorologie (LIM aus Deutschland) durchgeführt wurden.

#### 4.1 Kalibrierung

Um eine dauerhafte und genaue Datenqualität der Messwerte zu gewährleisten, sollten Sonnenphotometer regelmäßig im Abstand von 1 bis 2 Jahren kalibriert werden. Im Laufe der Zeit altern die Filter und die Kalibrierungskonstanten müssen neu bestimmt werden. Für die verschiedenen Messparameter werden drei Kalibriermethoden angewandt: direkte Sonnenstrahlung (1), diffuse Himmelsstrahlung (2) und lineare Polarisation der diffusen Himmelsstrahlung (3).

Bei der Messung der direkten Sonnenstrahlung (1) wird mit Hilfe der Langley-Plot-Methode die Strahlung bestimmt, welche das Photometer am äußeren Rand der Atmosphäre messen würde. Dabei erfolgt die Messung der direkten solaren Strahlung bei verschiedenen Sonnenzenitwinkeln. Das Prinzip beruht auf der spektralen Extinktion und dem daraus folgenden Lambert-Beer-Bouguer-Gesetz (vgl. Glg. 2.5). Die Messungen werden logarithmisch gegen die optische Luftmasse aufgetragen. Mittels Extrapolierung der optischen Luftmasse auf Null erhält man die außeratmosphärische Einstrahlung. Über einen Vergleich der bekannten solaren Strahlung am Oberrand der Atmosphäre und den Messungen wird die Kalibrierkonstante bestimmt.



Abbildung 4.1: Kalibrierung des Dual-Polar Sonnenphotometers in Litang (3950m), Sichuan Provinz (Volksrepublik China), Oktober 2011 (links) und Topografiekarte von China, wobei der gelbe Stern Litang markiert (rechts), (Informationswebseite für China, 2012).

Eine wichtige Voraussetzung für die Durchführung der Kalibrierung sind konstante atmosphärische Bedingungen und ein geringer Partikelgehalt während der gesamten Messzeit. Für Messungen nahe des Meeresspiegels ist dies nur unzureichend gewährleistet, weshalb die Langley-Kalibrierung im Hochgebirge oberhalb der atmosphärischen Grenzschicht durchgeführt wird.

Um die Messungen der diffusen Himmelsstrahlung (2) von digitalen Zählraten in Radianzen umzurechnen, werden weitere Kalibrierungkoeffizienten benötigt. Im Labor von PHOTONS wird die Kalibrierung der Sonnenphotometer für Messungen der diffusen Himmelsstrahlung mit einer Ulbrichtkugel durchgeführt. Durch den Vergleich der bekannten Strahlung mit der vom Gerät gemessenen Strahlung können die Kalibrierungskonstanten bestimmt werden.

Für die Polarisationskalibrierung (3) sind zwei Schritte notwendig (Li et al., 2009). Im ersten Schritt wird eine Radianzkalibrierung für  $L_{px}$  (x = 1, 2, 3) durchgeführt. Die Glg. 2.37 kann somit zu einer Funktion von Rohsignalen und Kalibrationsparametern vereinfacht werden. Diese Parameter können über eine unpolarisierte Strahlungsquelle (Ulbrichtkugel) bestimmt werden. Im zweiten Schritt wird die DOLP-Veränderung durch die Polarisationsfilter untersucht, was mit einer polarisierten Strahlungsquelle im Labor durchgeführt wird. Im Labor von PHOTONS wird hierfür eine Ulbrichtkugel mit in Ausstrahlrichtung installierten Glasscheiben mit bekanntem Brechungsindizes verwendet (POLBOX-System). Durch diese Anordnung ist die Strahlung linear polarisiert und der DOLP kann zwischen 0 und 0.6 eingestellt werden. Der Nachteil des POLBOX-Systems ist das geringe Signal bei 340 nm und 380 nm. Es wurde daher eine alternative Methode für die Polarisationskalibrierung entwickelt, bei welcher mittels der an einer Wasseroberfläche reflektierten direkten Sonnenstrahlung gemessen wird (Li et al., 2010).

In Litang erfolgte die Kalibrierung der AOD bei allen Wellenlängen. In Abb. 4.2 ist ein Langley-Plot für die Wellenlänge von 500 nm dargestellt. Die AOD betrug während der Messung 0.038. Um eine dem AERONET entsprechende Datenqualität zu garantieren, müssten Kalibrierungen der direkten Sonnenstrahlung über einen Zeitraum von

mehreren Wochen durchgeführt werden. Um einen zu langen Ausfall der Messgeräte zu vermeiden, werden die Sonnenphotometer mit "Master"-Sonnenphotometern interkalibriert. Diese Geräte werden über mehrere Monate kalibriert und dann für Interkalibrierungen von AERONET-Sonnenphotometern zur Verfügung gestellt. Ein solches "Master"-Sonnenphotometer wurde auch in Litang für die Interkalibrierung genutzt. Während der Messungen der polarisierten diffusen Himmelsstrahlung zeigte sich, dass die Wellenlängen 340 nm und 380 nm keine zufriedenstellenden Ergebnisse lieferten und für wissenschaftliche Studien nicht verwendet werden konnten. Eine erneute Kalibrierung ist daher notwendig, um die Daten dieser beiden Wellenlängen auszuwerten. Die gesamte Auswertung der Messdaten des Cimel CE318-DP erfolgt auf der Grundlage der Kalibrierungen, die von PHOTONS und in Litang durchgeführt wurden.



Abbildung 4.2: Langley-Plot vom 14. Oktober 2011 in Litang für die Wellenlänge 500 nm, 0:30-5:30 UTC.

#### 4.2 Vergleich mit Modellrechnungen

Um den Polarisationszustand der diffusen Himmelsstrahlung in einer partikelbelasteten Atmosphäre charakterisieren zu können, ist es wichtig, das Streuverhalten der Moleküle in einer reinen Rayleigh-Atmosphäre zu betrachten. Mittels der Rayleigh-Theorie können die einzelnen Parameter I, Q, U und V bestimmt werden. Die Voraussetzung ist, dass die Anzahl der Moleküle in einem "Luftpaket" im Vergleich zu der Anzahl an Partikeln groß ist. Daraus folgt, dass der Einfluss der Molekülstreuung auf den DOLP am größten ist (Coulson, 1988). Moleküle sind gegenüber Partikeln bessere Polarisierer, wodurch die Moleküle einen größeren DOLP verursachen als Partikel (vgl. Kapitel 2.3). Die Messungen des Polarisationszustands in großer Höhe bei annähernd partikelfreier Luft ermöglichen einen Vergleich mit den theoretisch berechneten Stokes-Parametern I, Q, U, V und DOLP.

Bei dem Experiment in Litang wurden auch Messungen zum Polarisationszustand der diffusen Himmelsstrahlung durchgeführt. Für den Streuwinkel  $\Theta = 0$  existieren kaum Messwerte, da der genutzte Detektor für die Messung des Polarisationszustands mit der Empfindlichkeit an die diffuse Himmelsstrahlungsmessung angepasst sein muss und deshalb bei direkten Sonnenstrahlungsmessungen in Sättigung geht. Zum Messzeitpunkt betrug die AOD 0.04 und die moleküloptische Dicke 0.15.



Abbildung 4.3: Vergleich des linearen Polarisationsgrads vom 14.10.2011, 03:34 UTC in Litang, 440 nm Wellenlänge, gemessener Wert (schwarze Kurve), theoretisch maximaler Wert bei Rayleighstreuung (rote Kurve), nach Glg. 2.44.

Die Abb. 4.3 zeigt einen Vergleich des gemessenen DOLP und des mit Hilfe von Glg. 2.44 bestimmten theoretisch maximal möglichen DOLP unter Rayleighbedingungen. Der Verlauf der beiden Kurven des DOLP ist annähernd konstant, mit einem Minimum bei  $\Theta = 0^{\circ}$  und einem Maximum bei  $\Theta = 90^{\circ}$  (Rayleigh=0.94, Litang=0.80). Messungen von Coulson (1980) wiesen ein DOLP-Maximum unter Rayleighbedingungen von 0.855 auf. Die Differenz überschreitet den Fehlerbereich des Sonnenphotometers von 5% deutlich, wodurch dies nicht die alleinige Ursache für die Abweichung sein kann. Der Unterschied zwischen Messdaten und der Rayleigh-Theorie lässt sich aus

der durch Partikel in der Atmosphäre hervorgerufenen Mehrfachstreuung der diffusen Himmelsstrahlung erklären. Ein weiterer nicht zu vernachlässigender Einfluss, welcher die Polarisationseigenschaften außerdem verändern kann, sind die Bodeneigenschaften, wodurch die einfallende Strahlung an der Erdoberfläche reflektiert wird.

Die Abb. 4.4 zeigt den mittels Glg. 2.35 aus den Messungen in Litang bestimmten Stokes-Parameter Q und den aus der Müllermatrix Glg. 2.44 unter Rayleighbedingungen theoretisch berechneten Stokes-Parameter Q. Das Minimum liegt laut Theorie mit -0.7 bei 90° und weist einen cosinusförmigen Verlauf auf. Die Messung hingegen zeigt eine Differenz von  $15^{\circ}$  auf und erreicht das Minimum bei  $105^{\circ}$ . Außerdem ist der Kurvenverlauf im Bereich des Minimums um einen Faktor 2 kleiner gegenüber den Berechnungen als Folge verringerter Seitwärtsstreuung während der Messungen. Im Bereich sehr kleiner Streuwinkel sind die Ergebnisse der Berechnungen kleiner als die der Messungen. Eine mögliche Ursache könnte in der höheren Vorwärtsstreuung im Bereich kleiner Streuwinkel liegen, welche durch den Einfluss von Partikeln hervorgerufen wird. Grundsätzlich lässt sich im Nachhinein erkennen, dass in Litang keine idealen Rayleighbedingungen mit partikelfreien Luftmassen vorherrschend waren und durch Streuprozesse, aufgrund von Partikeln, Abweichungen in den Polarisationseigenschaften entstanden. In diesem Bezug könnte sich die Entfernung des Messstandorts zur nahe gelegenen Stadt Litang, die ca. 1 km beträgt, auf die Messungen ausgewirkt haben. Aufgrund der geringen Entfernung ist es wahrscheinlich, dass die Messungen von urbanen Aerosolen aus Verkehr und Haushalten beeinflusst wurden. Weiterhin können für die Ursache der unterschiedlichen Polarisationseigenschaften advehierte Luftmassen sein, welche z.B. Staub enthalten können.

Die in Abb. 4.5 dargestellte Volumengrößenverteilung der Sonnenphotometermessung zeigt das Vorhandensein größerer Partikel, durch das für diese Höhe verhältnismäßig große Volumen der Partikel im Bereich von 1  $\mu$ m bis 15  $\mu$ m. Es liegt also nahe, dass die gemessenen Polarisationseigenschaften in Litang durch Partikel beeinflusst wurden. Abbildung 4.6 zeigt den DOLP bei verschiedenen Streuwinkeln und bei verschiedenen Wellenlängen. Der größte Wert des DOLP beträgt 0.8 bei 440 nm Wellenlänge und bei einem Streuwinkel von 90°. Dieses Maximum des DOLP verringert sich von 440 nm zu größeren Wellenlängen hin. Bei der Wellenlänge von 1640 nm beträgt der größte DOLP nur etwa 0.3. Diese Wellenlängenabhängigkeit des DOLP wird dem Vorhandsein großer Partikel zugeordnet (Li et al., 2009). Ohne den Einfluss von Partikeln wäre im Hochgebirge ein umgekehrter spektraler Gang zu erwarten, bei dem der DOLP bei 400 nm Wellenlänge am kleinsten und bei 1640 nm am größten ist.



Abbildung 4.4: Vergleich des Stokes-Parameters Q vom 14.10.2011, 03:34 UTC in Litang, 440 nm Wellenlänge, nach Glg. 2.35 und 2.44.



Abbildung 4.5: Volumengrößenverteilung vom 14.10.2011, 03:03 UTC in Litang.



Abbildung 4.6: Spektraler DOLP vom 14. Oktober 2011, 03:22 - 03:34 UTC in Litang, Sonnenzenitwinkel: 53.86°.



Abbildung 4.7: Vergleich des Stokes-Parameters Ivom 14.10.2011, 01:26 UTC in Litang, Sonnenzenitwinkel 76.55°, 440 nm Wellenlänge.



Abbildung 4.8: Vergleich des Stokes-Parameters Q vom 14.10.2011, 01:26 UTC in Litang, Sonnenzenitwinkel 76.55°, 440 nm Wellenlänge.

Die Modellrechnungen mit SCIATRAN und LibRadtran liefern die Stokes-Parameter I und Q sowie den DOLP für den 14. Oktober 2011, 01:26 UTC in Litang. In den Simulationen wurde neben der Rayleighstreuung (Rayleighoptische Dicke = 0.15) auch die Streuung durch Partikel mittels AOD (0.04) und Volumengrößenverteilung berücksichtigt. In Abb. 4.7 ist ein Vergleich des gemessenen und des berechneten Stokes-Vektors I dargestellt. Die Werte wurden normiert, wobei die Messungen an die Modelldaten mit einem Korrekturfaktor von 150 angepasst wurden. Dies weist große Unterschiede auf, welche sich nicht auf Messungenauigkeiten zurückführen lassen. Mögliche Ursachen könnten die gewählten Anfangsbedingungen der Simulation bzw. der Abweichungen der Berechnungen infolge Mehrfachstreuung sein, welche vom Modell nicht berücksichtigt wurden. Signifikant ist die Differenz im Vorwärtsstreupeak. Als Ursache wird eine Unterschätzung der Partikelgröße durch das Modell angenommen, da größere Partikel eine stärkere Vorwärtsstreuung zur Folge haben. Die Kurvenverläufe stimmen zwischen 20° und 80° nahezu überein. In Abb. 4.8 sind der gemessene und berechnete Stokes-Parameter Q dargestellt. Für die Simulation gelten die gleichen Parameter. Bei der Normierung beträgt der Korrekturfaktor allerdings 50. Zu erwarten wäre ein vergleichbarer Faktor wie beim Stokes-Parameter I. Die Differenz der Korrekturfaktoren verdeutlicht ebenso Unstimmigkeiten zwischen Messungen und Berechnungen. Das Minimum des gemessenen Stokes-Parameters Q wird bei einem Streuwinkel von  $105^{\circ}$  erreicht, wobei die Modellierung das Minimum bei  $80^{\circ}$  anzeigt. Daneben zeigt der Kurvenverlauf weitere Unterschiede, die weit außerhalb des Fehlerbereichs von 5% liegen. Unter Rayleighbedingungen beträgt der Stokes-Parameter U = 0. Mittels Sonnenphotometer lässt sich jedoch ein Stokes-Parameter U messen. Dies verdeutlicht
erneut den Einfluss der Partikel durch Größe, Form und Absorptionseigenschaften auf die Streu- und Polarisationseigenschaften. Vom Modell wurde ein U von nahezu 0 ermittelt (Abb. 4.9).

Eine wichtige abgeleitete Größe der Stokes-Parameter ist der DOLP. Der Vergleich für die Messung am 14. Oktober 2011 ist in Abb. 4.10 dargestellt. Der Kurvenverlauf zwischen 20° und 80° zeigt Übereinstimmungen, auch beträgt die Differenz des DOLP-Maximums nur 0.022, jedoch stimmt die Position des Maximums von 80° der Modellrechnung mit keiner Theorie und Messung überein. Infolge von großen Streuern verschiebt sich das Polarisationsmaximum um 1° bis 3° zu kleineren Streuwinkeln (Huang et. al, 2010). Jedoch ist der Einfluss der Partikelstreuung gegenüber der Molekülstreuung in Litang sehr gering, wodurch sich Abweichungen bei den Modellwerten von 10° nicht erklären lassen.

Anhand der Messungen in Litang zeigt sich der Einfluss der Molekülstreuung auf den Polarisationszustand der diffusen Himmelsstrahlung. Ein hoher linearer Polarisationsgrad und ein Maximum bei 90° Streuwinkel lassen sich mit der Rayleigh-Theorie erklären. Durch eine AOD von 0.04 wird jedoch ein nicht zu vernachlässigender Einfluss der Partikelstreuung deutlich. Folglich weichen die Stokes-Parameter Q und U von den idealen Werten der Rayleighberechnungen ab und der DOLP wird vermindert. Die Simulationsberechnungen zeigen zwar Übereinstimmungen mit den Messdaten, werden aber für weitere Betrachtungen aufgrund der großen Abweichungen nicht herangezogen.



Abbildung 4.9: Vergleich des Stokes-Parameters U vom 14.10.2011, 01:26 UTC in Litang, Sonnenzenitwinkel 76.55°, 440 nm Wellenlänge.



Abbildung 4.10: Vergleich des DOLP vom 14.10.2011, 01:26 UTC in Litang, Sonnenzenitwinkel 76.55°, 440 nm Wellenlänge.

## **5** Messkampagne Megacities

Das interdisziplinäre Schwerpunktsprogramm der deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) unterstützt seit 2007 die Arbeit von Geographen, Stadtplanern, Architekten, Hydrologen, Soziologen, Gesundheits- sowie Atmosphärenwissenschaftlern besonders in den Metropolregionen Dhaka in Bangladesh und Guangzhou in China. Diverse Projekte untersuchen unterschiedliche Probleme und Fragestellungen, die in Megastädten auftreten, wie z.B. Stadtentwicklung, Luftverschmutzung und Gesundheit. Im Rahmen des Projekts "Aerosol and health mapping over megacities" (dt.:"Megastädte: Informelle Dynamik des globalen Wandels" (Megacities)) werden vom LIM, TROPOS und Uni Bielefeld Untersuchungen zum veränderten Strahlungshaushalt durch Partikel sowie Erkrankungen, welche sich auf anthropogene Partikelbelastung der Atemluft zurückführen lassen, in Guangzhou durchgeführt.

Für diese Untersuchungen wurde von Oktober 2011 bis Juli 2012 in Guangzhou/PRD ein gemeinsames Experiment vom LIM, dem TROPOS, dem IRSA, der Universität Bielefeld (Deutschland), der Sun Yat-sen Universität (Guangzhou, China), der Taiwan National Tsing Hua Universität und der Montana Universität (USA) durchgeführt. Das Ziel des Experiments ist die Charakterisierung der vertikalen Verteilung und optischen sowie mikrophysikalischen Parameter des Aerosols. Zusätzlich wird von Gesundheitswissenschaftlern ein Zusammenhang zwischen Erkrankungen und aerosolrelevanter Verschmutzung untersucht.

Guangzhou liegt im Süden Chinas in der Provinz Guangdong am Ufer des Perflusses 100 km nordwestlich von Hongkong. Die Region des PRD, welche eine Fläche von ca. 62500 km<sup>2</sup> besitzt, umfasst neben Guangzhou weitere Großstädte wie Dongguan, Shenzhen, Zhongshan und Hongkong. Damit ist dies eines der am dicht besiedelten Gebiete in China und wird aufgrund seiner weltweiten industriellen Bedeutung oft als "Werkbank der Welt" bezeichnet. Mit dem ständigen Wirtschaftswachstum ist eine stetige Zunahme der Schadstoffemission und der Partikelbelastung zu beobachten (Luo et al., 2001). Das Gebiet des PRD rückt daher zunehmend in den Fokus von Studien, welche die Luftqualität untersuchen.

In Abb. 5.1 ist die geografische Lage der Messstation dargestellt. Alle Messgeräte wurden auf dem Dach eines Gebäudes der Sun Yat-sen Universität auf dem Ostcampus in Guangzhou (23°04'08"N, 113°22'52"O, ca. 23.5 m über NN) installiert.



Abbildung 5.1: Gebiet des PRD, wobei der rote Kreis den Messstandort markiert (Informationswebseite für China, 2012).

### 5.1 Meteorologische Bedingungen

Im PRD herrscht subtropisches bis tropisches Klima mit einer Jahresmitteltemperatur von 21.8 °C (Abb. 5.2). Das Wetter wird durch die asiatische Monsunzirkulation geprägt. Mit der Änderung der Lage der intertropischen Konvergenzzone dreht die Hauptwindrichtung in den Sommermonaten von südlichen Windrichtungen auf nordnordöstliche Richtungen in den Wintermonaten. Durch die starke Sonneneinstrahlung im Sommer bildet sich über dem Kontinent eine markante Tiefdruckrinne, wodurch warme und feuchte Luftmassen vom Südchinesischen Meer auf den Kontinent transportiert werden. In der Regenzeit, die von April bis September andauert, fallen ca. 100 mm bis 300 mm Regen pro Monat. Im Winter ist die solare Einstrahlung geringer und der Kontinent kühlt sich durch terrestrische Ausstrahlung ab. Daraus resultiert ein kontinentales Hochdruckgebiet, das trockene Polarluft Richtung Süden transportiert. Von Oktober bis März fallen in der Trockenzeit daher nur ca. 20 mm bis 90 mm Niederschlag pro Monat.

Die in Abb. 5.3 und Abb. 5.4 dargestellten Messungen einer in der Nähe zur Messstation befindlichen Wetterstation verdeutlichen den Temperaturverlauf und die Niederschlagsmengen während der Messkampagne. Nach anfänglich kräftigen Regenfällen im November 2011 setzte sich trockenes Wetter durch, so dass im Dezember 2011 kein Niederschlag registriert wurde. Von Januar 2012 bis Mitte März 2012 gab es zahlreiche Tage mit starker Bewölkung und Niederschlag. Die Ursache lag in dem 2012 schwächer ausgeprägtem Kontinentalhoch, wodurch nicht - wie zu dieser Jahreszeit normalerweise üblich - trockene Luft vom Kontinent nach Süden geleitet wurde, sondern feuchte Luftmassen aus der Region des Südchinesischen Meeres dominierten. Weiterhin wird die erhöhte Niederschlagsaktivität im südostasiatischen Raum auf ein "La Niña"-Ereignis zurückgeführt (NOAA-Webseiten, 2012, Philander, 1990). Dies geht mit überdurchschnittlichen Luftdruckunterschieden zwischen Südamerika und Südostasien einher. Das warme Oberflächenwassers des Ostpazifiks wird durch die verstärkte Walkerzirkulation nach Südostasien getrieben. Daraus resultiert, dass an der Westküste Südamerikas aus der Tiefe kaltes Meerwasser nachströmt. Die Folge dieser veränderten Zirkulation sind starke Niederschläge in Australien sowie Südostasien und Trockenheit über dem südamerikanischen Kontinent. Bei einem "El Niño"-Ereignis hingegen erreicht die Oberflächentemperatur des Meerwassers im Ostpazifik überdurchschnittliche warme Werte, wodurch es an der südamerikanischen Küste zu starken Niederschlägen kommt.

In Guangzhou setzte dann ab April der Monsun mit einer Niederschlagssumme von über 1000 mm Niederschlag (April bis Juni) ein. Der Mittelwert des Niederschlags für diesen Zeitraum liegt bei 700 mm.



Abbildung 5.2: Klimadiagramm Guangzhou (Geoklima-Webseite, 2012).



Abbildung 5.3: Zeitreihen der Tagesmaximumtemperatur (rote Kurve), der Tagesmitteltemperatur (blaue Kurve), der Tagesminimumtemperatur (grüne Kurve) sowie der gleitenden Mittelwerte für eine Periode von 30 Tagen im Zeitraum vom 27. Oktober 2011 bis 09. Juli 2012 in Guangzhou (Meteorologische Messstation: 592870, Webseite des National Climatic Data Center, 2012).



Abbildung 5.4: Zeitreihe der Niederschlagstagessummen im Zeitraum vom 27. Oktober 2011 bis 09. Juli 2012 in Guangzhou (Meteorologische Messstation: 592870, Webseite des National Climatic Data Center, 2012).

#### 5.2 Statistik über die Messreihe

Im Rahmen der Megacities-Kampagne in Guangzhou in der Zeit vom 27. Oktober 2011 bis 09. Juli 2012 wurde mit dem Sonnenphotometer an 140 Tagen gemessen, davon war an 95 Tagen keine Bewölkung während der Messungen vorhanden. Somit konnte an maximal 23 aufeinanderfolgenden Tagen (10.12.2011 bis 02.01.2012) ohne Unterbrechung gemessen werden (Abb. 5.5). Regelmäßig liegen jedoch nur einzelne bzw. zwei zusammenhängende Beobachtungstage vor.

Ein Uberblick der Tagesmittelwerte der AOD bei 500 nm für alle Messtage während der Messkampagne ist in Abb. 5.6 dargestellt. Nach der Installation der Messgeräte im Oktober war überwiegend stabiles Hochdruckwetter vorherrschend, welches im November und Dezember kontinuierliche Messungen an 44 Tagen ermöglichte. Die Mittelwerte der AOD in Guangzhou betragen bei der Wellenlänge von 500 nm im November 0.55 und im Dezember 0.50 und sind damit um 0.4 kleiner als bei der Messkampagne PRIDE-PRD2004 (AOD = 0.92). In den Wintermonaten Januar (AOD = 0.64) und Februar (AOD = 0.84) war es häufig bedeckt bzw. regnete es, sodass nur 12 Messtage ohne Bewölkung vorliegen.



Abbildung 5.5: Absolute Häufigkeit N einer zusammenhängenden Messreihe.

Im März erreichte die AOD den höchsten Monatsmittelwert von 1.08. Die Ergebnisse des CSHNET zeigten ebenfalls im März die größten Werte (vgl. Kapitel 3.6, Wang et al., 2011). Mit dem Beginn der Regenzeit im April (AOD = 0.87) nimmt der Monatsmittelwert der AOD ab und geht auf 0.49 im Mai zurück. Für den gesamten Messzeitraum ergibt sich ein Mittelwert von 0.68, welcher im Rahmen des Fehlers mit den Messungen von Wang et al. (2011) übereinstimmt. In Abb. 5.6 ist das Histogramm der AOD für alle 95 Messtage dargestellt. Die Verteilung der AOD nimmt die Form einer Log-Normalverteilung an. Die Werte erstrecken sich von 0.18 bis 2.22 mit einem Medianwert von 0.68. Um den Mittelwert ist ein ausgeprägter Modus zu erkennen, ein weiterer ist im Bereich von 1.1. Daraus folgt, dass die AOD in Guangzhou dauerhaft hohe Werte aufweist. Es zeigt sich somit, dass immer urbanes Aerosol bzw. Wüstenstaub in der Atmosphäre vorhanden war (AOD > 0.15) und an keinem Messtag eine klare Atmosphäre mit maritimen Aerosol beobachtet werden konnte (AOD < 0.06, Kaskaoutis et al., 2007). Im Vergleich der Messungen von Guangzhou mit Leipzig, wo von 2001 bis 2008 Tagesmittelwerte von 0.02 bis 1.16 und ein Gesamtmittelwert von 0.18 gemessen wurde (Meißner, 2009), wird der hohe Partikelgehalt im PRD deutlich.



Abbildung 5.6: Tagesmittelwerte der AOD (links) und Histogramm der AOD (rechts) bei 500 nm Wellenlänge für Guangzhou im Zeitraum vom 27.10.2011 bis 09.07.2012.



Abbildung 5.7: Tagesvariabilität der AOD bei 500 nm für Guangzhou im Zeitraum vom 27.10.2011 bis 09.07.2012.

Die Variabilität der AOD ist von den Aerosolquellen und den vorherrschenden meteorologischen Bedingungen abhängig. Ein Maß für die Stärke der AOD-Variabilität ist dessen Tagesvariabilität, welche in Abb. 5.7 die Differenz der AOD zum Folgetag für 500 nm darstellt. Für den Messzeitraum folgt eine hohe zeitliche Variabilität, wobei die Abweichung zum Vortag bis zu 1.2 beträgt. Im Mittel unterschied sich die AOD zum Vortag um 0.26. In Guangzhou wurden größere Schwankungen der Tagesvariabilität beobachtet als bei den Messwerten in Leipzig, wo die mittlere Abweichung 0.1 beträgt.



Abbildung 5.8: Tagesmittelwerte des Angström-Exponenten (440 nm - 870 nm) (links) und Histogramm des Ångström-Exponenten (440 nm - 870 nm) (rechts) für Guangzhou im Zeitraum vom 27.10.2011 bis 09.07.2012, basierend auf den Tagesmittelwerten.

Der Mittelwert des Ångström-Exponenten für 440 nm - 870 nm (Abb. 5.8) beträgt von Oktober 2011 bis April 2012 1.26 und ist damit im Vergleich zu den Sommermonaten relativ groß. Dieser hohe Mittelwert lässt auf einen Aerosoltyp schließen, welcher sich hauptsächlich aus anthropogenen Partikeln zusammensetzt (Wang et al. 2011). In den Monaten Mai und Juni hat der Ångström-Exponent im Mittel einen Wert von 0.89 erreicht.

Die Häufigkeitsverteilung des Ångström-Exponenten für den gesamten Zeitraum zeigt Abb. 5.8. Die Tagesmittelwerte erstrecken sich von 0.27 bis 1.46 und es folgt ein Mittelwert von 1.18. An insgesamt 15 von 95 Tagen war der Tagesmittelwert des Ångström-Exponenten kleiner als 1, was vorrangig auf das Vorhandensein großer Partikel in der Atmosphäre zurückzuführen ist. Niedrige Ångström-Exponenten treten gehäuft in den feuchten Sommermonaten auf. Während dieser Monate ist die Partikelgröße durch hygroskopisches Wachstum größer als im Winter (Wang et al., 2011).

Aus der Korrelation der AOD und des Ångström-Exponenten lassen sich Rückschlüsse über den Aerosoltyp ziehen (Abb. 5.9). Von Kaskaoutis et al. (2007) wurde ein Algorithmus entwickelt, welcher anhand von Grenzwerten die Unterscheidung von urbanindustriellen, maritimen, Staub- und Mischaerosol ermöglicht. Bei Anwendung der Grenzwerte auf den Datensatz folgt, dass in Guangzhou ausschließlich Mischaerosol vorhanden ist. Der Algorithmus berücksichtigt jedoch nicht das hygroskopische Wachstum der Partikel, so dass die AOD als auch der Ångström-Exponent für einen Aerosoltyp unterschiedliche Werte annehmen können.

Am 3. Dezember 2011 wurden im Gegensatz zu den meisten Messungen in den Wintermonaten niedrige Werte des Ångström-Exponenten gemessen. Der Ångström-Exponent fiel morgens von 1.1 auf 0.7 und stieg im Laufe des Tages wieder auf 1.1 an. Dieser Fall wird im nächsten Abschnitt mit Hilfe von Lidarprofilen, Polarisationszustandsmessungen des Sonnenphotometers sowie Transportmodellen auf Aerosolherkunft und -art genauer untersucht.



Abbildung 5.9: Korrelation der AOD für 500 nm und des Ångström-Exponenten (440 nm - 870 nm) basierend auf den Tagesmittelwerten.

### 5.3 Messbeispiele

#### 5.3.1 Wüstenstaub und urbanes Aerosol am 02. und 03. Dezember 2011

In diesem Abschnitt werden die optischen und mikrophysikalischen Eigenschaften des in Guangzhou gemessenen Aerosols genauer betrachtet. Anhand der Zeitreihe des Ångström-Exponenten (Abb. 5.8) lässt sich eine erste bezüglich der Aerosoleigenschaften, interessante Periode vom 2. zum 3. Dezember 2011 erkennen. Jahreszeitlich bedingt dominierten überwiegend anthropogene Partikel die Aerosoleigenschaften (Ansmann et al., 2005). Aus einem Kontinentalhoch resultierende nordöstliche Anströmungen führten bodennah zu einer Anreicherung von urbanen Partikeln (vgl. dazu Abb. 5.10 und Abb. 5.12). In der Höhe herrschte jedoch eine westliche Strömung.

Der AOD-Tagesmittelwert bei 500 nm Wellenlänge betrug am 1. Dezember 0.43 und am 2. Dezember nur noch 0.26. Im Verlauf des 2. Dezembers drehte die Anströmung in der Höhe auf nordwestliche Richtungen (Abb. 5.11 und Abb. 5.12). In der Nacht zum 3. Dezember fiel die AOD weiter ab und erreichte einen Tagesmittelwert von 0.18 (vgl. Abb. 5.13). Die konkreten Messwerte der AOD sind der Tabelle 5.1 zu entnehmen.



Abbildung 5.10: Analysekarte (Asien) des GFS-Modells für 500 hPa Geopotential [gpdm] (schwarze Linien), Bodendruck [hPa] (weiße Linien), relative Topographie H500-H1000 [gpdm] (farbige Fläche) für den 01. Dezember 2011, 12 UTC, rotes Kreuz markiert Guangzhou, (wetter3-Webseite, 2012).



Abbildung 5.11: Analysekarte (Asien) des GFS-Modells für 500 hPa Geopotential [gpdm] (schwarze Linien), Bodendruck [hPa] (weiße Linien), relative Topographie H500-H1000 [gpdm] (farbige Fläche) für den 02. Dezember 2011, 18 UTC, rotes Kreuz markiert Guangzhou, (wetter3-Webseite, 2012).



Abbildung 5.12: HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien für den 01. Dezember 2011, 12 UTC (links) in 500 m, 2500 m und 5500 m und den 03. Dezember 2011, 0 UTC (rechts) in 500 m, 2000 m und 3000 m in Guangzhou, (ARL-Webseite, 2012).

| Wellenlänge | Median | Max   | Min   | ] | Wellenlänge | Median | Max   | Min   |
|-------------|--------|-------|-------|---|-------------|--------|-------|-------|
| 340 nm      | 0.380  | 0.449 | 0.339 |   | 340 nm      | 0.256  | 0.293 | 0.213 |
| 380 nm      | 0.339  | 0.398 | 0.305 | ] | 380 nm      | 0.227  | 0.273 | 0.183 |
| 440 nm      | 0.293  | 0.341 | 0.266 |   | 440 nm      | 0.199  | 0.234 | 0.162 |
| 500 nm      | 0.251  | 0.293 | 0.227 |   | 500 nm      | 0.175  | 0.199 | 0.144 |
| 670 nm      | 0.165  | 0.189 | 0.148 |   | 670 nm      | 0.125  | 0.142 | 0.106 |
| 870 nm      | 0.125  | 0.143 | 0.108 |   | 870 nm      | 0.109  | 0.123 | 0.099 |
| 1020 nm     | 0.092  | 0.100 | 0.082 |   | 1020 nm     | 0.083  | 0.097 | 0.072 |
| 1640 nm     | 0.057  | 0.075 | 0.050 | ] | 1640 nm     | 0.066  | 0.081 | 0.062 |

Tabelle 5.1: Parameter der spektralen AOD (Median, Maximum und Minimum) bei allen Wellenlängen für den 02. Dezember 2011 (links) und den 03. Dezember 2011 (rechts).



Abbildung 5.13: Spektraler zeitlicher Verlauf der AOD (340 nm, 500 nm und 1020 nm) vom 02. und 03. Dezember 2011, jeweils von 00:00 - 08:30 UTC.



Abbildung 5.14: Ångström-Exponent (380 nm - 500 nm), Ångström-Exponent (500 nm - 870 nm) und differentieller Ångström-Exponent vom 02. und 03. Dezember 2011, jeweils von 00:00-08:30 UTC in Guangzhou.

Abb. 5.14 stellt den Ångström-Exponenten (380 nm - 500 nm), den Ångström-Exponenten (500 nm - 870 nm) und den differentiellen Ångström-Exponenten, der über Glg. 2.8 berechnet wurde, vom 2. und 3. Dezember dar. Der Mittelwert des Ångström-Exponenten 500 nm - 870 nm beträgt am 2. Dezember 1.27. Am 3. Dezember fällt der Ångström-Exponent (500 nm - 870 nm) bis zum Mittag auf 0.7 ab. Der differentielle Ångström-Exponent ist am 2. Dezember mit einem Minimum von -0.27 um ein Vielfaches kleiner als -0.05 und deutet damit auf eine monomodale Größenverteilung des Aerosols hin, welche für urban-industrielles Aerosol charakteristisch ist (O'Neill et al., 2001). Am 3. Dezember hingegen erreicht der differentielle Ångström-Exponent ein Maximum von 0.2, welches auf eine bimodale Größenverteilung mit einem dominantem groben Modus des Aerosols hindeutet (Schuster et al., 2006).

Ein Verlauf des spektralen DOLP bei einem Streuwinkel von  $90^{\circ}$  vom 2. zum 3. Dezember wird in Abb. 5.15 sowie ein Vergleich bei allen verfügbaren Wellenlängen bei Streuwinkeln von  $0^{\circ}$  bis 130° in Abb. 5.16 gezeigt. Am 2. Dezember weist dieser kaum eine spektrale Abhängigkeit auf, wobei die Unterschiede hier bei ca. 0 bis 0.04 liegen. Diese Abhängigkeit des DOLP von der Wellenlänge wird beobachtet, wenn Partikel verschiedener Größen an den Streuprozessen beteilligt sind (Li et al., 2009). Am 3. Dezember kehrt sich der spektrale Gang des DOLP um und ist deutlicher ausgeprägt, wobei der DOLP bei größeren Wellenlängen geringere Maximalwerte besitzt als bei den kürzeren Wellenlängen. Die Kurve für 1640 nm hat keinen idealen Verlauf, im Vergleich zu den anderen Wellenlängen, da bei dieser Wellenlänge die gemessenen Eingangssignale sehr gering sind und die Berechnung des DOLP auf eine kleine Änderung der Radianz sehr empfindlich reagiert. Boesche et al. (2006) zeigt, dass durch Aerosole eine erhöhte Streuung mit höheren Radianzen gemessen wird und dementsprechend eine größere AOD vorliegt. Je stärker die Streuung an Partikeln, desto geringer wird der DOLP, da Streuprozesse an Aerosolen im Vergleich zu atmosphärischen Molekülen weniger stark polarisierend wirken. Neben der Streuung nimmt auch die Form und Größe der Partikel Einfluss auf den DOLP. Viele Partikel sind nicht kugelförmig und größer als natürliche atmosphärische Bestandteile. Der DOLP ist gegenüber physikalischen Eigenschaften sehr sensibel, weshalb die Strahlung depolarisiert wird und kleinere Polarisationswerte erreicht. Vom 2. zum 3. Dezember wird eine deutliche Anderung der AOD bezüglich der kurzen Wellenlängen sichtbar. Diese Anderung wird zu den großen Wellenlängen hin kleiner. Somit nimmt der Einfluss der kleinen Partikel an der Streuung der solaren Strahlung gegenüber den großen Partikeln ab. Daraus lässt sich ableiten, dass die Streuer am 3. Dezember überwiegend große Partikel sind und der spektrale Gang von geringen Werten des DOLP bei 1640 nm hin zu großen Werten des DOLP bei 440 nm verläuft (Li et al., 2009).



Abbildung 5.15: Verlauf des maximalen DOLP in Guangzhou bei den Wellenlängen: 500 nm, 870 nm, 1640 nm vom 02. Dezember 2011 (06-09 UTC) und 03. Dezember 2011 (01-09 UTC).



Abbildung 5.16: DOLP in Abhängigkeit vom Streuwinkel für verschiedene Wellenlängen in Guangzhou vom 02. Dezember 2011, 07:54-08:09 UTC (Sonnenzenitwinkel 71.23°) (links) und 03. Dezember 2011, 04:49-05:05 UTC (Sonnenzenitwinkel: 46°) (rechts).



Abbildung 5.17: Volumengrößenverteilung in Guangzhou vom 02. Dezember 2011, 08:31 UTC und 03. Dezember 2011, 05:33 UTC.

Die anhand der DOLP-Messungen beobachteten Änderungen zeigen sich auch in der Volumengrößenverteilung (Abb. 5.17), wobei eine Luftmassenveränderung vom 2. zum 3. Dezember in Bezug auf die Partikelgröße deutlich wird. Es zeigt sich eine klare Unterteilung in feine und grobe Partikel. Am 2. Dezember überwiegen die kleinen Partikel mit 0.04  $\mu$ m<sup>3</sup>/ $\mu$ m<sup>2</sup> gegenüber den großen mit 0.02  $\mu$ m<sup>3</sup>/ $\mu$ m<sup>2</sup>. Dies kehrt sich zum 3. Dezember um, wodurch die großen Partikel zwischen 1  $\mu$ m und 10  $\mu$ m bis zu 0.06  $\mu$ m<sup>3</sup>/ $\mu$ m<sup>2</sup> erreichen.



Abbildung 5.18: Entfernungskorrigiertes Signal bei 1064 nm am 03. Dezember 2011 von 00-06 UTC in Guangzhou.

Am Morgen des 3. Dezember 2011 zeigt die Messung des Lidars in Abb. 5.18 zwischen 2000 m und 3000 m eine abgehobene Aerosolschicht, welche im Tagesverlauf zu einer geringeren Höhe herabsinkt. Diese grenzt sich deutlich von der Restschicht zwischen 1000 m und 1500 m und der Grenzschicht unterhalb ca. 500 m ab. Die grüne bis gelbe Färbung signalisiert ein stärkeres Rückstreusignal, während die blaue Färbung ein schwaches Signal repräsentiert. In den unteren 250 m nimmt das Signal aufgrund des Überlappeffekts ab. In dieser Schicht sind ebenfalls Partikel vorhanden, welche jedoch in dieser Darstellung nicht erkennbar sind. Die in der Nacht zuvor aus den Rückstreusignalen berechneten Lidarprofile sind in Abb. 5.19 dargestellt. Die abgehobene Schicht ist deutlich in den Profilen des Partikelrückstreukoeffizienten, des Extinktionskoeffizienten und des Depolarisationsverhältnisses zu erkennen. Die beobachtete Schicht hebt sich von der planetaren Grenzschicht und der Restschicht ab. Das Lidarverhältnis variiert in dieser Höhe zwischen 30 sr<sup>-1</sup> und 50 sr<sup>-1</sup>. Ein typisches Lidarverhältnis für Saharastaub ist 55  $\mathrm{sr}^{-1}$  (Tesche et al., 2008). In Asien wurden Lidarverhältnisse zwischen 40 sr<sup>-1</sup> und 60 sr<sup>-1</sup> für transportierten Wüstenstaub beobachtet (Müller et al., 2007). Messungen des Lidarverhältnisses im PRD bei früheren



Abbildung 5.19: Partikelrückstreukoeffizient bei 355 nm, 532 nm und 1064 nm, Extinktionskoeffizient bei 355 nm und 532 nm, Lidarverhältnis, Rückstreu-Ångström 355 nm/532 nm und 532 nm/1064 nm, Partikel- und Volumendepolarisationsverhältnis (von links nach rechts) am 02. Dezember 2011 von 18-22 UTC in Guangzhou.

Kampagnen führten zu einem gemittelten Wert von  $47 \text{ sr}^{-1}$  (Ansmann et al., 2005). Es erscheint daher naheliegend, dass es sich bei der beobachteten Schicht um eine gealterte Aerosolschicht aus Wüstenstaub und urbanen Partikeln handeln könnte.

Im Maximum zeigt der Partikelrückstreukoeffizient in der Aerosolschicht mäßig hohe Werte im Bereich von  $0.7 \text{ Mm}^{-1}$  bis  $1.2 \text{ Mm}^{-1}$ . Das Partikeldepolarisationverhältnis ist mit 0.2 im Maximum deutlich höher als an den Tagen zuvor. Diese hohen Werte lassen auf nichtkugelförmige Partikel in der Schicht schließen. Bei der Messkampagne SAMUM (SAharan Mineral dUst experiMent) wurde bei reinen Staubschichten ein Depolarisationsverhältnis von über 0.3 gemessen (Freudenthaler et al., 2008 und Ansmann et al., 2008). Es ist anzunehmen, dass aufgrund des Depolarisationsverhältnisses in Guangzhou in der Aerosolschicht auch kleinere Partikel urbanen Ursprungs enthalten sind. Ab 1500 m fällt mit zunehmennder Höhe der Rückstreu-Ångström rasch bis auf 0.5 ab. Die geringen Werte des Ångström-Exponenten in dieser Schicht deuten auf größere Partikel hin. Am unteren Rand in 1500 m Höhe steigt der Rückstreu-Ångström bis auf 2.5 an. Das Lidarverhältnis bei 355 nm ist in dieser Höhe deutlich kleiner als bei

532 nm Wellenlänge, welches auf den hohen Rückstreu-Ångström und der geringen Extinktion zurückzuführen ist. Dies führt zu der Annahme, dass in 1500 m absorbierende Partikel urbanen Ursprungs vorhanden sein können.

Um Aussagen über die Herkunft des Aerosols treffen zu können, werden drei HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien in den Höhen 500 m, 2000 m und 3000 m betrachtet. Alle drei Rückwärtstrajektorien (Abb. 5.12) führen über die Wüstengebiete im Nordwesten Chinas. Die Rückwärtstrajektorien in 2000 m und 3000 m Höhe haben über diesen Gebieten innerhalb eines Tages weite Strecken zurückgelegt, welches hohe Windgeschwindigkeiten repräsentiert und Staubaufwirbelungen begünstigt. Das Staubvorhersagemodell DREAM zeigt für den 3. Dezember eine Staubkonzentration von bis zu 4 g/m<sup>-2</sup> über den Wüstenregionen an (Abb. 5.20). Die Ausbreitung der Staubschichten reicht bis über das Südchinesische Meer. Über Guangzhou werden noch Werte von bis zu 0.5 g/m<sup>-2</sup> simuliert. Aus den Messungen und den Modellen lässt sich ableiten, dass sich Anfang Dezember ein markanter Luftmassenwechsel in Bodennähe von Nordnordost auf Nordwest vollzogen hat. Bei dem Aerosol kann es sich also um eine Mischung aus anthropogenen Partikeln in niedrigeren Höhen und überwiegend großen Wüstenstaubpartikeln in der abgehobenen Schicht zwischen 2000 m und 3000 m handeln.



Abbildung 5.20: DREAM-Staubanalyse für den 03. Dezember 2011, 00 UTC, Staubgehalt in  $g/m^2$  und 3000 m Wind (BSC-Webseite, 2012).

#### 5.3.2 Aerosol aus Biomasseverbrennung und Wüstenstaub am 25. und 26. März 2012

In der letzten Märzwoche 2012 setzte sich vorübergehend eine niederschlagsfreie Phase durch. Am Boden herrschte eine nördliche Anströmung, während in der Höhe Westwind vorherrschte (vgl. Abb. 5.21 und Abb. 5.22). Die HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien für den 25. März 2012, 20 UTC führen in 2000 m Höhe in nordnordwestlicher Richtung nach Sibirien, in 2500 m Höhe nordwestlich über das Hochland von Tibet und in 4000 m Höhe westlich über Indien und Nordafrika. Die Sonnenphotometermessungen zeigten am 25. März einen hohen Tagesmittelwert der AOD bei 500 nm von 1.07, welcher sich am 26. März auf 1.37 erhöhte (Tabelle 5.2 und Abb. 5.23). Ebenso stieg der Tagesmittelwert des Ångström-Exponenten (380 nm - 870 nm) von 1.02 am 25. März auf 1.23 am 26. März. Der differentielle Ångström-Exponent bewegte sich am 25. März im Bereich von 0 bis -0.03 (Abb. 5.24). Der Ångström-Exponent (380 nm - 870 nm) hatte an diesem Tag einen nahezu linearen Verlauf, welches für eine bimodale Größenverteilung zutrifft. Am 26. März betrug der differentielle Ångström-Exponent -0.11 bis -0.19, was an diesem Tag auf einen stärker ausgeprägten feinen Modus in der Größenverteilung hinweist.



Abbildung 5.21: Analysekarte (Asien) des GFS-Modells für 500 hPa Geopotential [gpdm] (schwarze Linien), Bodendruck [hPa] (weiße Linien), relative Topographie H500-H1000 [gpdm] (farbige Fläche) für den 25. März 2012, 18 UTC, rotes Kreuz markiert Guangzhou, (wetter3-Webseite, 2012).



Abbildung 5.22: HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien für den 25. März 2012 20 UTC, (ARL-Webseite, 2012).

| Wellenlänge | Median | Max   | Min   | Wellenlänge | Median | Max   | Min   |
|-------------|--------|-------|-------|-------------|--------|-------|-------|
| 340 nm      | 1.509  | 1.697 | 1.357 | 340 nm      | 2.003  | 2.144 | 1.815 |
| 380 nm      | 1.408  | 1.559 | 1.259 | 380 nm      | 1.849  | 1.969 | 1.701 |
| 440 nm      | 1.223  | 1.345 | 1.102 | 440 nm      | 1.590  | 1.689 | 1.469 |
| 500 nm      | 1.072  | 1.178 | 0.969 | 500  nm     | 1.368  | 1.452 | 1.261 |
| 670 nm      | 0.758  | 0.822 | 0.700 | 670  nm     | 0.922  | 0.987 | 0.857 |
| 870 nm      | 0.607  | 0.659 | 0.567 | 870 nm      | 0.695  | 0.753 | 0.639 |
| 1020 nm     | 0.482  | 0.504 | 0.464 | 1020 nm     | 0.538  | 0.581 | 0.516 |
| 1640 nm     | 0.318  | 0.338 | 0.305 | 1640  nm    | 0.324  | 0.365 | 0.310 |

Tabelle 5.2: Parameter der spektralen AOD (Median, Maximum und Minimum) bei allen Wellenlängen für den 25. März 2012 (links) und 26. März 2012 (rechts).



Abbildung 5.23: Spektraler zeitlicher Verlauf der AOD (340 nm, 500 nm und 1020 nm) vom 25. und 26. März 2012, jeweils von 00:00-04:30 UTC.



Abbildung 5.24: Ångström-Exponent (380 nm - 500 nm), Ångström-Exponent (500 nm - 870 nm) und differentieller Ångström-Exponent vom 25. und 26. März 2012, jeweils von 00:00-04:30 UTC (rechts) in Guangzhou.

Der DOLP (Abb. 5.25) am 25. März weist einen geringen spektralen Gang auf, welcher das Vorhandensein von sowohl kleinen als auch großen Partikeln charakterisiert. Die Kurve der 1020 nm Wellenlänge hebt sich durch ein geringes Maximum hervor, welches einen höheren Anteil von großen Partikeln an den Streuprozessen verdeutlicht. Das Maximum des spektralen DOLP ist mit 0.375 niedrig und spiegelt eine erhöhte Mehrfachstreuung und somit allgemein eine hohe Anzahl an Partikeln in der Atmosphäre wieder. Am 26. März sind die Maxima etwas kleiner und erreichen nur noch 0.33. Besonders die Wellenlängen 440 nm und 500 nm heben sich durch ein noch niedrigeres Maximum von 0.225 hervor. Dieser spektrale Gang verdeutlicht den größeren Anteil an kleinen Partikeln in der Atmosphäre als am Vortag. Die Bestimmung der Volumengrößenverteilung mittels Sonnenphotometers (Abb. 5.26) am 25. März verdeutlicht einen ausgeprägten feinen Modus, als auch einen etwas größeren groben Modus mit einem Maximalwert bis 0.1  $\mu$ m<sup>3</sup>/ $\mu$ m<sup>2</sup> bei 3  $\mu$ m. Am 26. März ist die Größe des groben Modus nahezu unverändert. Jedoch ist der feine Modus deutlich größer ausgeprägt und erreicht bis zu 0.13  $\mu$ m<sup>3</sup>/ $\mu$ m<sup>2</sup> bei 0.15  $\mu$ m.



Abbildung 5.25: Spektraler DOLP in Guangzhou vom 25. März 2012, 09:42-09:57 UTC (links) und spektraler DOLP vom 26. März 2012, 09:44-09:59 UTC (rechts), Sonnenzenitwinkel: 75.63°.



Abbildung 5.26: Volumengrößenverteilung vom 25. März 2012, 09:16 UTC und 26. März 2012, 09:19 UTC in Guangzhou.

Im entfernungskorrigierten Lidarsignal (Abb. 5.27) bei 1064 nm werden die planetare Grenzschicht bis 1000 m Höhe und eine Aerosolschicht zwischen 2500 m und 4500 m sichtbar. Im unteren Bereich der Aerosolschicht zwischen 2500 m und 3500 m ist das Rückstreusignal stärker ausgeprägt als in der Höhe von 3500 m bis 4500 m. Im Verlauf der Nacht vom 25. zum 26. März nimmt die vertikale Ausdehnung der Aerosolschicht von 4000 m auf 6000 m zu.

Die aus den Lidarmessungen abgeleiteten Profile des Rückstreukoeffizienten, des Extinktionskoeffizienten, des Lidarverhältnisses, des auf den Rückstreukoeffizienten bezogenen Rückstreu-Ångström und des Depolarisationsverhältnisses werden in Abb. 5.28 gezeigt. Die verschiedenen Schichten finden sich auch in den optischen Eigenschaften wieder. Die untere Schicht reicht bis 2500 m und die darüber folgende Aerosolschicht erreicht eine Höhe von 6000 m. Der Rückstreukoeffizient erreicht in 3000 m Höhe mit 9 Mm<sup>-1</sup>sr<sup>-1</sup> den größten Wert innerhalb der Aerosolschicht. Dort ist auch der Extinktionskoeffizient mit bis zu  $450 \text{ Mm}^{-1}$  bei 355 nm Wellenlänge am größten. Dies trägt entscheidend zur hohen AOD bei. Aufgrund des geringen Depolarisationsverhältnisses in dieser Höhe sind Wüstenstaubpartikel nur in geringer Konzentration zu erwarten. Der Rückstreu-Ångström (355 nm/532 nm) steigt in der Aerosolschicht bis auf 1.17 an. Dies verdeutlicht, dass überwiegend anthropogene Partikel die hohe AOD verursachen. Partikeldepolarisationswerte von bis zu 0.15 in der unteren Aerosolschicht verdeutlichen einen erhöhten Anteil an nichtsphärischen Partikeln. Der Rückstreu-Angström (355 nm/532 nm) geht bis 0.5 zurück und lässt somit auf große Partikel schließen. Das Lidarverhältnis weist in der oberen Aerosolschicht Werte zwischen 40 sr<sup>-1</sup> und 60 sr<sup>-1</sup> auf, welche mit zunehmender Höhe ansteigen. Aus dem Lidarverhältnis der Aerosolschicht ist kaum zu unterscheiden, um welche Partikeltypen es sich handeln könnte, da die Werte sowohl für Staubpartikel als auch urbanes Aerosol zutreffend sind.



Abbildung 5.27: Entfernungskorrigiertes Signal bei 1064 nm vom 25. März 2012 von 18-00 UTC in Guangzhou.



Abbildung 5.28: Partikelrückstreukoeffizient bei 355 nm, 532 nm und 1064 nm, Extinktionskoeffizient bei 355 nm und 532 nm, Lidarverhältnis, Rückstreu-Ångström 355 nm/532 nm und 532 nm/1064 nm, Partikelund Volumendepolarisationsverhältnis (von links nach rechts) am 25. März 2012 von 18-22 UTC in Guangzhou.



Abbildung 5.29: DREAM-Staubanalyse für den 26. März 2012, 0 UTC für Asien, Staubgehalt in  $g/m^2$  und 3000 m Wind (BSC-Webseite, 2012).

Um zu untersuchen, welche Partikeltypen sich in der Aerosolschicht befinden könnten, werden die HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien sowie weitere Modelle betrachet. Die Trajektorien in 2000 m (rot) und 2500 m (blau) aus Abb. 5.22 führen über die nördlichen und nordwestlichen Regionen Chinas. Für diesen Zeitraum werden von dem Staubanalysemodell DREAM (Abb. 5.29) über Zentralchina hohe Staubkonzentrationen angezeigt, welche sich in abgeschwächter Form bis Guangzhou ausgebreitet haben. Die FLEXPART-Simulation (Abb. 5.30) zeigt, dass ein großer Teil der Luftmasse zwischen 2500 m und 5000 m von Westafrika, über Saudi Arabien, Nord-Indien, Burma und Süd-China bis Guangzhou transportiert wurde. Vor dem Ende der Trockenzeit, im Monat März, wird vielerorts in Südostasien Biomasse in großem Umfang verbrannt. Dies wird durch die Messungen von MODIS (Abb. 5.31) bestätigt, was in der letzten Märzwoche in Südostasien viele offene Feuer registriert. Das Modell NAAPS (Abb. 5.32) simuliert über Burma Rußkonzentrationen am Boden über 64  $\mu g/m^3$  und über Guangzhou 4  $\mu$ g/m<sup>3</sup> bis 8  $\mu$ g/m<sup>3</sup>. Die HYSPLIT-Rückwärtstrajektorie in 4000 m Höhe führt auch aus westlicher Richtung kommend über die Gebiete mit hoher Feueraktivität und lässt auf den Herantransport von kleinen Rußpartikeln schließen. Jedoch wird in dieser Höhe durch das Lidar ein moderates Depolarisationsverhältnis von 0.07 festgestellt. Anhand von Lidarmessungen im brasilianischen Amazonasregenwald wurde festgestellt, dass gealtertes Aerosol aus der Biomasseverbrennung kein markantes Depolarisationsverhältnis aufweist Baars (2012). Das Depolarisationsverhältnis dieser Messungen war stets unter 0.05. Dabei wird für reine Rußpartikel ein Depolarisationsverhältnis von  $0.03 \pm 0.02$  angenommen. Für die Messungen in Guangzhou lässt sich daraus schließen, dass neben Rußpartikeln auch große nichtsphärische Partikel zu den Streuprozessen beitragen. Die Rückwärtstrajektorie in 4500 m Höhe lässt sich bis über die Westsahara zurückverfolgen, so dass Wüstenstaubpartikel in der Aerosolschicht enthalten sein können. Damit kann man das Depolarisationsverhältnis von 0.07 erklären.



Abbildung 5.30: FLEXPART-Simulation für die integrierte Aufenthaltszeit von Partikeln, welche sich zwischen 2500 m und 5000 m während der letzten 10 Tage vor dem 25. März 2012 bewegt haben, (NILU-Webseite, 2012).



Abbildung 5.31: MODIS 10-Tages-Feuerkarte zwischen dem 21. März und 30. März 2012, beobachtete Feuer (rote Markierungen), (MODIS-Webseite, 2012).



Abbildung 5.32: NAAPS-Modellierung der Konzentration von Staub, Rauch, fester und gasförmiger Sulfate am 25. März 2012, 18 UTC, Südostasien, (NRL-Webseite, 2012).

Die Messungen in Guangzhou erlauben trotz vieler Regentage eine Charakterisierung der Partikel im südchinesischen PRD. Aus dem hohen AOD-Mittelwert von 0.68 folgt eine hohe Aerosolbelastung in der Metropolregion. Jahreszeitlich bedingt war die Verschmutzung im Frühjahr am größten, da kurz vor dem Ende der Trockenzeit noch viel Biomasse verbrannt wird und weniger Partikel durch Niederschläge ausgewaschen werden. Mit Hilfe der kombinierten Sonnenphotometer- und Lidarmessungen wurden anhand von zwei Messbeispielen verschiedene Aerosoltypen und -zusammensetzungen über Guangzhou nachgewiesen. Während der gesamten Messungen prägten jedoch Aerosole urbaner Herkunft die optischen und mikrophysikalischen Eigenschaften.

## 6 Zusammenfassung

Diese Arbeit befasst sich mit der Auswertung von Messungen des Cimel Sonnenphotometers (CE 318-DP) in China. Zusätzlich werden Messungen des Polarisations-Raman-Lidars Polly<sup>XT</sup> für die Aerosolcharakterisierung herangezogen. Das Sonnenphotometer liefert spektrale Zeitreihen von AOD, DOLP sowie Ångström-Exponenten und Volumengrößenverteilungen. Mit Hilfe von Polly<sup>XT</sup> werden die Partikelrückstreukoeffizienten bei drei Wellenlängen, 355 nm, 532 nm und 1064 nm, die Partikelextinktionskoeffizienten bei zwei Wellenlängen, 355 nm und 532 nm, und das Partikeldepolarisationsverhältnis bestimmt.

Zusätzlich zu den Messungen in Guangzhou werden in der Auswertung Messungen, im Rahmen einer Kalibrierung des Sonnenphotometers (Mitte Oktober 2011) in 4000 m Höhe unter Rayleighbedingungen in Litang vorgestellt. Dabei wurde eine AOD von 0.04 gemessen. Das Maximum des DOLP bei 440 nm Wellenlänge liegt bei 0.8 und hat damit eine Abweichung von 0.055 von bisherigen Messwerten unter Rayleighbedingungen (Coulson, 1980). Aus dem spektralen Gang des DOLP und der Volumengrößenverteilung folgt, dass sich zum Messzeitpunkt größere Partikel im Bereich von 2  $\mu$ m bis 9  $\mu$ m in der Atmosphäre befanden. Anschließende Vergleiche der gemessenen Stokes-Parameter mit berechneten Werten unter Rayleighbedingungen und mit Modelldaten zeigten keine oder nur geringfügige Übereinstimmungen. Dies lässt sich einerseits auf den Einfluss von Partikeln auf die Streuung und andererseits auf den daraus folgenden fehlerhaften Annahmen in den Modellrechnungen zurückführen.

Im Anschluss an die Messungen in Litang wurden Messungen in Guangzhou im subtropisch geprägten Süden des Landes in der Guangdong-Provinz durchgeführt (Oktober 2011 bis Juli 2012). Anhand der gesammelten Daten war es möglich, verschiedene Aerosoltypen mit Hilfe der optischen und mikrophysikalischen Eigenschaften der Partikel zu charakterisieren. In Guangzhou wurde eine hohe AOD durch anthropogene Verschmutzung festgestellt. Die Tagesmittelwerte der AOD bei 500 nm Wellenlänge bewegten sich zwischen 0.18 und 2.22. Die größte AOD wurde während der Trockenzeit im Frühjahr gemessen und erreichte im März den höchsten Monatsmittelwert mit 1.08. Eine mögliche Ursache könnte in der erhöhten Verbrennung von Biomasse während der Trockenzeit liegen. Von Januar bis Mitte März fielen aufgrund häufiger Regentage infolge eines "La Niña"-Ereignisses viele Messungen aus. Der Gesamtmittelwert des Ångström-Exponenten (440 nm - 870 nm) beträgt 1.18. Daraus folgt, dass das Aerosol in Guangzhou durch einen hohen Anteil urbaner Partikel dominiert wird. Zu den größten Aerosolquellen im PRD zählen die Verbrennung von Biomasse und fossiler Energieträger, die Industrieanlagen sowie die stark gestiegene Teilnahme am Straßenverkehr. Jedoch konnte auch der Ferntransport von anthropogenen und natürlichen Aerosolen nachgewiesen werden. Es zeigt sich hierfür eine Jahreszeitabhängigkeit der nachgewiesenen Aerosoltypen.

Anfang Dezember 2011 wurden mit einer nordnordöstlichen Strömung kleine urbangeprägte Partikel herangeführt (AOD = 0.257 und Ångström-Exponent = 1.26). Der feine Modus der Volumengrößenverteilung im Bereich von 100 nm bis 300 nm war stärker ausgeprägt als der grobe Modus. Anhand des geringen spektralen Gangs des DOLP wird aber auch deutlich, dass außerdem große Partikel zum Messzeitpunkt vorhanden waren. Am 3. Dezember 2011 stellte sich die Anströmung auf nordwestliche Richtungen um, wodurch Wüstenstaubpartikel aus den ariden Gebieten Chinas herangeführt wurden. Polly<sup>XT</sup> registrierte ein Depolarisationsverhältnis von bis zu 0.2. Die Volumengrößenverteilung kehrte sich im Vergleich zum Vortag um, welches sich in einem markanten groben Modus bei 2  $\mu$ m bis 10  $\mu$ m wiederspiegelt. Der DOLP wies in diesem Fall einen spektralen Gang der Intensität von 1640 nm hin zu 440 nm auf. Am 25. März 2012 wurde eine hohe AOD von 1.07 gemessen. Neben Wüstenstaubpartikeln in einer Schicht zwischen 2 km und 2.5 km konnte an diesem Tag über der Staubschicht ein großer Anteil kleiner Partikel nachgewiesen werden. Hohe Extinkti-

Staubschicht ein großer Anteil kleiner Partikel nachgewiesen werden. Hohe Extinktionswerte von bis zu 450 Mm<sup>-1</sup> in diesem Bereich verdeutlichen, dass die Partikel dieser Schicht einen wesentlichen Beitrag zu der hohen AOD an diesem Tag leisten. Die Volumengrößenverteilung hat einen ausgeprägten feinen und groben Modus. Dies spiegelt sich auch mit einem Tagesmittelwert des Ångström-Exponenten von 1.02 wieder. Details werden erst durch den höhenaufgelösten Ångström-Exponenten des Lidars sichtbar. Der Ångström-Exponent fällt in 2.5 km Höhe auf 0.25 ab und steigt darüber bis 1.2 an. Während der Trockenzeit wird in nicht urbanen Gebieten viel Biomasse verbrannt. Die daraus entstehenden Rußpartikel können sich bei schwachen Windverhältnissen im PRD anreichern oder aber, wie auch am 25. März 2012, herantransportiert werden.

Anhand der vorgestellten Ergebnisse ist es möglich einen Einblick über die Aerosolzusammensetzung und deren Eigenschaften im PRD zu erhalten. Aufgrund der ausgeprägten Emissionen in China wurde während der betrachteten Messungen immer ein Anteil an urbanen Partikeln registriert. Dies verdeutlicht die Problematik der dauerhaft hohen anthropogenen Aerosolbelastung. Daraus resultiert die Bedeutung der optischen, mikrophysikalischen und chemischen Eigenschaften der Partikel und deren Einfluss auf den Strahlungshaushalt und das Klima. Desweiteren kristallisiert sich die Notwendigkeit von Messungen in der Zukunft heraus, um die Entwicklung der Emissionen in China und anderen Staaten mit hohen Schadstoffemissionen zu untersuchen und somit kontrollieren zu können.

# Abkürzungsverzeichnis

| AERONET       | AErosol RObotic NETwork                                 |
|---------------|---|
| AIOFM         | Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics            |
| AOD           | AerosolOptische Dicke                                   |
| ARL           | Air Resources Laboratory                                |
| BSC           | Barcelona Supercomputing Center                         |
| CSHNET        | Chinese Sun Hazemeter Network                           |
| DOP           | Degree Of Polarization                                  |
| DOLP          | Degree Of Linear Polarization                           |
| DREAM         | Dust REgional Atmospheric Model                         |
| ECMWF         | European Centre for Medium range Weather Forecasts      |
| GFS           | Global Forecast System                                  |
| HYSPLIT       | HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory |
| TROPOS        | Leibniz Institut für Troposphärenforschung              |
| IUP           | Institut für Umweltphysik                               |
| IRSA          | Institute of Remote Sensing Applications                |
| LibRadtran    | library for Radiative transfer                          |
| LIDAR         | Light Detection And Ranging                             |
| LIM           | Leipziger Institut für Meteorologie                     |
| LOA           | Laboratoire d'Optique Atmosphérique                     |
| MODIS         | MODerate resolution Imaging Spectrometer                |
| NAAPS         | Navy Aerosol Analysis and Prediction System             |
| NCEP          | National Centers for Environmental Prediction           |
| NILU          | Norwegisches Institut für Luftuntersuchung              |
| NOAA          | National Oceanic and Atmospheric Administration         |
| NOGAPS        | Navy Operational Global Atmospheric Prediction System   |
| NRL           | Naval Research Laboratory                               |
| PHOTONS       | PHOtométrie pour le Traitement Opérationnel de          |
|               | Normalisation Satellitaire                              |
| PRD           | Pearl River Delta                                       |
| PRIDE-PRD2004 | Program of Regional Integrated Experiments of           |
|               | Air Quality over PRD 2004                               |
| SAMUM         | SAharan Mineral dUst experiMent                         |
| UTC           | Coordinated Universal Time                              |

# Symbol verzeichnis

| Symbol             | Name  | Einheit                    |
|--------------------|---|----------------------------|
| L                  | Due chara ania dara                                     |                            |
| 0<br>7             | Brechungsindex  | -<br>•1                    |
| $\vec{E}$          | Komplexer elektrischer Feldvektor                       | $V m^{-1}$                 |
| $E_0$              | Realer elektrischer Feldvektor                          | $Vm^{-1}$                  |
| $E^{in}_{\alpha}$  | Elektrisches Feld einer einfallendenden Welle           | $Vm^{-1}$                  |
| $E^{S}$            | Elektrisches Feld einer gestreuten Welle                | $Vm^{-1}$                  |
| $E_{\perp}$        | Senkrechte Komponente des elektrischen Felds            | $Vm^{-1}$                  |
| $E_{\parallel}$    | Parallele Komponente des elektrischen Felds             | $Vm^{-1}$                  |
| $ec{e}_{\perp}$    | Basisvektor senkrecht zur Streuebene                    | -                          |
| $ec{e}_\parallel$  | Basisvektor parallel zur Streuebene                     | -                          |
| f                  | Temperaturkorrekturfaktur                               | -                          |
| $f_{es}$           | Korrekturfaktor für Distanz Sonne-Erde                  | -                          |
| $F_0$              | Spektrale Irradianz                                     | $Wm^{-2}\mu m^{-1}$        |
| g                  | Asymmetrieparameter                                     | -                          |
| $\vec{H}$          | Komplexer magnetischer Feldvektor                       | $Am^{-1}$                  |
| $I(\lambda)$       | Gemessene Strahldichte                                  | $Wm^{-2}sr^{-1}\mu m^{-1}$ |
| $I_0(\lambda)$     | Strahldichte am Oberrand der Atmosphäre                 | $Wm^{-2}sr^{-1}\mu m^{-1}$ |
| Ι                  | Stokes-Parameter der Intensität                         | $Wm^{-2}sr^{-1}\mu m^{-1}$ |
| $I_{in}$           | Einfallender Stokes-Parameter der Intensität            | $Wm^{-2}sr^{-1}\mu m^{-1}$ |
| $I_{sca}$          | Gestreuter Stokes-Parameter der Intensität              | $Wm^{-2}sr^{-1}\mu m^{-1}$ |
| $I_N$              | Normierter Stokes-Parameter der Intensität              | - ,                        |
| $I_{unpol}$        | Unpolarisierter Anteil der Intensität                   | $Wm^{-2}sr^{-1}\mu m^{-1}$ |
| $I_{nol}$          | Polarisierter Anteil der Intensität                     | $Wm^{-2}sr^{-1}\mu m^{-1}$ |
| $I_{zn}$           | Zirkular polarisierter Anteil der Intensität            | $Wm^{-2}sr^{-1}\mu m^{-1}$ |
| $\tilde{I_{korr}}$ | Korrigierte Intensität                                  | $Wm^{-2}sr^{-1}\mu m^{-1}$ |
| $I_{aem}$          | Gemessene Intensität                                    | $Wm^{-2}sr^{-1}\mu m^{-1}$ |
| $k^{gem}$          | Wellenzahl  | - ,                        |
| $L_{nr}$           | Intensitätsmessung des Sonnenphotometers                | $Wm^{-2}sr^{-1}\mu m^{-1}$ |
| $m^{pu}$           | Optische Luftmasse                                      | - ,                        |
| $m_{ii}$           | Matrixelement   | -                          |
| n(r)               | Differentielle Anzahlgrößenverteilung                   | $cm^{-3}$                  |
| N                  | Absolute Partikelanzahlkonzentration                    | $cm^{-3}$                  |
| $p(\lambda)$       | Streuphasenfunktion                                     | -                          |
| $\stackrel{P}{P}$  | Streuphasenmatrix                                       | _                          |
| O                  | Stokes-Parameter der linearen Polarisation              | $Wm^{-2}sr^{-1}um^{-1}$    |
| $\tilde{Q}_{in}$   | Einfallender Stokes-Parameter der linearen Polarisation | $Wm^{-2}sr^{-1}um^{-1}$    |
| Qeca               | Gestreuter Stokes-Parameter der linearen Polarisation   | $Wm^{-2}sr^{-1}\mu m^{-1}$ |
| r                  | Partikelradius  | um                         |
| $r_{aN}$           | Geometrisch gemittelter Radius                          | $\mu m$                    |
| $\vec{\vec{S}}$    | Stokes-Vektor   | -                          |
|                    |   |                            |

| Symbol               | Name   | Einheit                    |
|----------------------|--|----------------------------|
|                      |  |                            |
| s                    | Weg  | m                          |
| t                    | Zeit   | s                          |
| U                    | Stokes-Parameter der linearen Polarisation   | $Wm^{-2}sr^{-1}\mu m^{-1}$ |
| $U_{in}$             | Einfallender Stokes-Parameter der            | $Wm^{-2}sr^{-1}\mu m^{-1}$ |
|                      | linearen Polarisation                        |                            |
| $U_{sca}$            | Gestreuter Stokes-Parameter der              | $Wm^{-2}sr^{-1}\mu m^{-1}$ |
|                      | linearen Polarisation                        |                            |
| V                    | Stokes-Parameter der zirkularen Polarisation | $Wm^{-2}sr^{-1}\mu m^{-1}$ |
| $V_{in}$             | Einfallender Stokes-Parameter der            | $Wm^{-2}sr^{-1}\mu m^{-1}$ |
|                      | zirkularen Polarisation                      |                            |
| $V_{sca}$            | Gestreuter Stokes-Parameter der              | $Wm^{-2}sr^{-1}\mu m^{-1}$ |
|                      | zirkularen Polarisation                      |                            |
| dV(r)                | Volumengrößenverteilung                      | $\mu m^3/\mu m^2$          |
| x                    | Größenparameter                              | -                          |
| z                    | Ausbreitungsrichtung der einfallenden        | -                          |
|                      | elektromagnetischen Welle                    |                            |
| $\alpha$             | Ångström-Exponent                            | -                          |
| $\alpha_p$           | Polarisierbarkeit                            | -                          |
| $\gamma$             | Winkel zwischen Dipolmomentrichtung und      | 0                          |
|                      | Richtung der gestreuten Strahlung            |                            |
| $\delta$             | Depolarisierungsfaktor                       | -                          |
| $\Delta_{Ph}$        | Phasendifferenz                              | 0                          |
| $\epsilon$           | Dielektrizitätskonstante                     | $Fm^{-1}$                  |
| $\kappa$             | Magnetische Permeabilität                    | $Hm^{-1}$                  |
| $\lambda$            | Wellenlänge                                  | $\mu m$                    |
| $\sigma$             | Streueffizienzfaktor                         | -                          |
| $\sigma_{g,i}$       | Geometrische Standardabweichung              | $\mu m$                    |
| $	au(\lambda)$       | Optische Dicke                               | -                          |
| $	au_{m,s}(\lambda)$ | Moleküloptische Dicke                        | -                          |
| $	au_{p,s}(\lambda)$ | Aerosoloptische Dicke                        | -                          |
| $	au_{m,a}(\lambda)$ | Optische Dicke aufgrund Gasabsorption        | -                          |
| $	au_{p,a}(\lambda)$ | Optische Dicke aufgrund Partikelabsorption   | -                          |
| $\phi$               | Winkeleinstellung der Polarisationsfilter    | 0                          |
| Θ                    | Streuwinkel                                  | 0                          |
| $\Theta_z$           | Zenitwinkel der Sonne                        | 0                          |
| $d^2\Omega$          | Differentieller Raumwinkel                   | sr                         |
| $\omega_c$           | Zirkulare Frequenz                           | $s^{-1}$                   |

## Literaturverzeichnis

Aeronet-Webseite, http://aeronet.gsfc.nasa.gov/, (2012).

- Albrecht, B., "Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness", Science 245 (1989).
- Althausen, D., Engelmann, R., Baars, H., Heese, B., Ansmann, A., Müller, D., Komppula, M., "Portable Raman Lidar Polly<sup>XT</sup> for Automated Profiling of Aerosol Backscatter, Extinction, and Depolarization", Journal of Atmospheric and Oceanic Technology Vol. 26, 2366-2378 (2009).
- Ångström, A., "On the atmospheric transmission of sun radiation and on dust in the air", Geografiska Annaler 11, 156-166 (1929).
- Ansmann, A., Engelmann, R., Althausen, D., Wandinger, U., "High aerosol load over the Pearl River Delta, China, observed with Raman lidar and Sun photometer", Geophysical Research Letters, Vol. 32, L13815 (2005).
- Ansmann, A., Tesche, M., Althausen, D., Müller, D., Seifert, P., Freudenthaler, V., Heese, B., Wiegner, M., Pisani, G., Knippertz, P., Dubovik, O., "Influence of Saharan dust on cloud glaciation in Southern Morocco during Saharan Mineral Dust Experiment", Journal of Geophysical Research 113(D4), D04210 (2008).
- ARL-Webseite, "HYSPLIT HYbrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory Model", http://www.arl.noaa.gov/HYSPLIT\_info.php, (2012).
- Baars, H., "Aerosol profiling with lidar in the Amazon Basin during wet and dry season 2008", Dissertation (2012).
- Bakan, S., "Grundlagen der Strahlungsübertragung", ProMET 2/3, 2-4 (1985).
- Bohren, C. F., Clothiaux, E. E., "Fundamentals of Atmospheric Radiation", Weinheim (2006).
- Bösche, E., "Aufbau und Beschreibung eines Polarisations-Spektrometers für die Fernerkundung der Atmosphäre", Diplomarbeit (2002).
- Böttger, U., "Zur Ableitbarkeit von Aerosoleigenschaften aus Polarisationsmessungen", Dissertation (1997).
- BSC-Webseite, DREAM Dust REgional Atmospheric Model, http://www.bsc.es/projects/earthscience/BSC-DREAM/, (2012).

Chandrasekhar, S., "Radiative Transfer", Oxford Univ. Press (1950).

- Che, H., Shi, G., Uchiyama, A., Yamazaki, A., Chen, H., Goloub, P., Zhang, X., "Intercomparison between aerosol optical properties by a PREDE skyradiometer and CIMEL sunphotometer over Beijing, China", Atmospheric Chemical Physics, 8, 3199-3214 (2008).
- Coulson, K. L., "Polarization and Intensity of Light in the Atmosphere", A. Deepak Publishing, Hampton, Virginia (1988).

- Davies, C. N., "Size distribution of atmospheric particles", Journal of Aerosol Science 5, 293-300 (1974).
- Dubovik, O., King, M.D., "A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from Sun and sky radiance measurements", Journal of Geophysical Research 105, No. D16, 20.673-20.696 (2000).
- Emde, C., Buras, R., Mayer, B., Blumthaler, M., "The impact of aerosols on polarized sky radiance: model development, validation, and applications", Atmospheric Chemistry and Physics 10, 383-396 (2010).
- Forster, P., Ramaswamy, V., Artaxo, P., Berntsen, T., Betts, R., Fahey, D., W., Haywood, J., Lean, J., Lowe, D., C., Myhre, G., Nganga, J., Prinn, R., Raga, G., Schulz, M., Van Dorlond, R., "Changes in Atmospheric Constituents and in Radiative Forcing, in Climate Change: The Physical Science Basis", Cambridge University Press, New York, 131-216 (2007).
- Freudenthaler, V., Esselborn, M., Wiegner, M., Heese, B., Tesche, M., Ansmann, A., Müller, D., Althausen, D., Wirth, M., Fix, A., Ehret, G., Knippertz, P., Toledano, C., Gasteiger, J., Garhammer, M., Seefeldner, M., "Depolarization ratio profiling at several wavelengths in pure Saharan dust during SAMUM 2006", Tellus B, Volume 61, Special Issue: Results of the Saharan Mineral Dust Experiment (SAMUM-1), 165-179 (2008).
- Geoklima-Webseite, http://www.w-hanisch.de/geoklima/, (2012).
- Gucker, F. T., Basu, S., Pulido, A. A., Chiu, G., "Intensity and Polarization of Light Scattered by Some Permanent Gases", The Journal of Chemical Physics 50, 2526 (1969).
- Hansen, J. E., Travis, L., "Light Scattering in Planetary Atmospheres", Space Science Reviews 16, 527-610 (1974).
- Holben, B. N., Eck, T. F., Slutsker, I., Tanré, D., Buis, J. P., Setzer, A., Vermote, E., Reagan, J. A., Kaufman, Y. J., Nakajima, T., Lavenu, F., Jankowiak, I., Smirnov, A., "AERONET-A Federated Instrument Network and Data Archive for Aerosol Characterization", Remote Sensing Environment 66, 1-16 (1998).
- Huang, X., Bu, Y., Wang, X., "Relations between skylight scattering angle and degree of polarization under different sky conditions", Chinese Optics Letters Vol. 8, No. 6, (2010).
- Informationswebseite für China, http://www.chinatoday.com/china-map.gif, http://www.info2china.com/info2chinad/travel/china landkarten/china topographische landkarte.jpg (2012).
- IUP-Webseite, SCIATRAN, http://www.iup.physik.uni-bremen.de/sciatran, (2012).
- Kaskaoutis, D. G., Kambezidis, H. D., Hatzianastassiou, N., Kosmopoulos, P. G., Badarinath, K. V. S., "Aerosol climatology: on the discrimination of aerosol types over four AERONET sites", Atmospheric Chemistry and Physics Discussions 7, Mai, 6357-6411 (2007).

- Lee, K., H., Li, Z., Wong, M., S., Xin, J., Wang, Y., Hao, W.-M., Zhao, F., "Aerosol single scattering albedo estimated across China from a combination of ground and satellite measurements", Journal Geophysical Research 112, D22S15 (2007).
- Li, C. C., Mao, J., Lau, K.-H. A., Chen, J.-C., Yuan, Z., Liu, X., Zhu, A., Liu, G., "Characteristics of distribution and seasonal variation of aerosol optical depth in eastern China with MODIS products", Chin. Sci. Bull. 48, 2488-2495 (2003).
- Li, Z., Goloub, P., Dubovik, O., Blarel, L., Zhang, W., Podvin, T., Sinyuk, A., Sorokin, M., Chen, H., Holben, B., Tanré, D., Canini, M., Buis, J. P., "Improvements for ground-based remote sensing of atmospheric aerosol properties by additional polarimetric measurements", Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 110, 1954-1961 (2009).
- Li, Z., Blarel, L., Podvin, T., Goloub, P., Ligang C., "Calibration of the degree of linear polarization measurement of polarized radiometer using solar light", Applied Optics Vol. 49, No. 8 (2010).
- LibRadtran-Webseite, libRAdtran-library for radiative transfer, http://www.libradtran.org/doku.php, (2012).
- Liou, K., N., "Radiation and Cloud Processes in the Atmosphere", Oxford University Press (1992).
- Luo, Y., Lu, D., Zhou, X., Li, W., He, Q., "Characteristics of the spatial distribution and yearly variation of aerosol optical depth over China in the last 30 years", Journal of Geophysical Research 106, No. D13, 14.501-14.513 (2001).
- Meißner, K., "Optische Eigenschaften des atmosphärischen Aerosols im sichtbaren Spektralbereich über einem zentraleuropäischen Standort: AERONET Photometermessungen von 2001-2008", Diplomarbeit, Technische Universität Dresden (2009).
- Mie, G., "Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen", Annalen der Physik, Vierte Folge, Band 25, No. 3, 377-445 (1908).
- MODIS-Webseite, http://rapidfire.sci.gsfc.nasa.gov/firemaps/, (2012).
- Müller, D., Ansmann, A., Mattis, I., Tesche, M., Wandinger, U., Althausen, D., Pisani, G., "Aerosol-type-dependent lidar ratios observed with Raman lidar", Journal of Geophysical Research, Vol. 112, D16202 (2007).
- National Climatic Data Center, http://www.ncdc.noaa.gov/, Meteorologische Messstation: 592870, (2012).
- Nickovic, S., Kallos, G., Papadopoulos, A., Kakaliagou, O., "A model for prediction of desert dust cycle in the atmosphere", Journal of Geophysical Research 106, 18.113-18.129 (2001).
- NILU-Webseite, FLEXPART, http://transport.nilu.no/flexpart, (2012).
- NOAA-Webseiten, Multivariate ENSO Index (MEI), http://www.esrl.noaa.gov/psd/enso/mei/mei.html, La Niña, http://www.elnino.noaa.gov/lanina.html, (2012).
- NRL-Webseite, NAAPS Navy Aerosol Analysis and Prediction System, http://www.nrlmry.navy.mil/aerosol/, (2012).
- O'Neill, N. T., Dubovik, O., Eck, T. F., "Modified Ångström exponent for the characterization of submicrometer aerosols", Applied Optics 40, Mai, 2368-2375 (2001).
- Penner, J., E., Andreae, M., Annegarn, H., Barrie, L., Feichter, J., Hegg, D., Jayaraman, A., Leaitch, R., Murphy, D., Nganga, J., Pitari, G., "Aerosols, their Direct and Indirect Effects, in Climate Change 2001: The Scientific Basis", Cambridge University Press, 291-335 (2001).
- Pérez, C., Nickovic, S., Baldasano, J. M., B., Sicard, M., Rocadenbosch, F., "A long Sahara dust event over the western Mediterranean: Lidar, Sun photometer observations, and regional dust modelling", Journal of Geophysical Research 111, D15214 (2003).
- Philander, S., G., H., "El Niño, La Niña and the Southern Oscillation", Academic Press, San Diego, CA (1990).
- Polly-Webseite, http://polly.tropos.de/lidar/, (2012).
- Quenzel, H., "Allgemeines zur Wechselwirkung zwischen Strahlung und Materie" und "Streuung an Luftmolekülen und Aerosolpartikeln", ProMET 2/3, 7-9 (1985).
- Rayleigh, L., Strutt, J. W., "On the Light from the Sky, its Polarization and colour", Philosophical Magazine 41, 107-120 und 274-279 (1918).
- Rollin, E. M., "An introduction to the use of Sun-photometry for the atmospheric correction of airborne sensor data", http://www.ncaveo.ac.uk/site-resources/pdf/cimel.pdf, (2000).
- Schuster, G., L., Dubovik, O., Holben, B., N., "Ångström exponent and bimodal aerosol size distributions", Journal of Geophysical Research 111, April, 7207 (2006).
- Seinfeld, J., H., Carmichael, G., R., Arimoto, R., Conant, W., C., Brechtel, F., J., Bates, T., S., Cahill, T., A., Clarke, A., D., Doherty, S., J., Flatau, P., J., Huebert, B., J., Kim, J., Markowicz, K., M., Quinn, P., K., Russell, L., M., Russel, P., B., Shimizu, A., Shinozuka, Y., Song, C., H., Tang, Y., Uno, I., Vogelmann, A., M., Weber, R., J., Woo, J.-H., Zhang, X., Y., "ACE-ASIA: Regional Climatic and Atmospheric Chemical Effects of Asian Dust and Pollution", American Meteorological Society 85(3), 367-380 (2004).
- Seinfeld, J., H., Pandis, S., N., "Atmospheric Chemistry and Physics From Air Pollution to Climate Change", John Wileys and Sons (1998).
- Shaw, Glenn E., "Sun Photometry", American Meteorological Society Vol. 64, No. 1, January (1983).
- Stohl, A., Forster, C., Frank, A., Seibert, P., Wotawa, G. "Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FlexPart version 6.2.", Atmospheric Chemistry and Physics 5, 2461-2474 (2005).

- Tesche, M., Ansmann, A., Müller, D., Althausen, D., Mattis, I., Heese, B., Freudenthaler, V., Wiegner, M., Esselborn, M., Pisani, G., Knippertz, P., "Vertical profiling of Saharan dust with Raman lidars and airborne HSRL in southern Morocco during SAMUM", Tellus B, Volume 61, Special Issue: Results of the Saharan Mineral Dust Experiment (SAMUM-1), 144-164 (2008).
- Twomey, S., "The influence of pollution on the shortwave albedo of clouds", Journal of Atmospheric Science, Vol. 34, Issue 7, 1149-1154 (1977).
- Wang, T., Poon, C. N., Kwok, Y. H., Li, Y. S.: "Characterizing the temporal variability and emission patterns of pollution plumes in the Pearl River Delta of China", Atmospheric Environment 37, 3539-3550 (2003).
- Wang, Y., Xin, J., Li, Z., Wang, S., Wang, P., Hao, W. M., Nordgren, B. L., Chen, H., Wang, L., Sun, Y., "Seasonal variations in aerosol optical properties over China", Journal of Geophysical Research, Vol. 116, D18209 (2011).
- Wendisch, M., Hellmuth, O., Ansmann, A., Heintzenberg, J., Engelmann, R., Althausen, D., Eichler, H., Müller, D., Hu, M., Zhang, Y., Mao, J., "Radiative and dynamic effects of absorbing aerosol particles over the Pearl River Delta, China", Atmospheric Environment 42, 6405-6416 (2008).
- Wendisch, M., Yang, P., "Theory of Atmospheric Transfer A Comprehensive Introduction", Wiley and Sons., Weinheim (2012).
- wetter3-Webseite, http://www.wetter3.de/Archiv/, (2012).

## Erklärung

Hiermit bestätige ich, dass ich die vorliegende Masterarbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet habe. Ich versichere, dass diese Arbeit noch nicht zur Erlangung eines Mastergrades an anderer Stelle vorgelegen hat.

Leipzig, Februar 2013

(Michael Bauditz)