



Universität Leipzig
Fakultät für Physik und Geowissenschaften
Institut für Meteorologie

Geometrische und optische Eigenschaften von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

Diplomarbeit

zur Erlangung des akademischen Grades
Diplom-Meteorologin

Jana Preißler
19. November 2008

Gutachter: Prof. Dr. Jost Heintzenberg, Prof. Dr. Christoph Jacobi

Angefertigt am Leibniz-Institut für Troposphärenforschung, Leipzig

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	4
2. Troposphärische Aerosole	8
2.1. Physikalische Eigenschaften	8
2.1.1. Quellen und Senken von Aerosolpartikeln	8
2.1.2. Mikrophysikalische Eigenschaften	9
2.1.3. Optische Eigenschaften	10
2.2. Geometrische Eigenschaften von Aerosolschichten	14
2.3. Ansätze der Klassifikation von Aerosolen	14
3. Grundlagen und Verfahren zur Datenauswertung	16
3.1. Lidar	16
3.1.1. Aufbau und Prinzip	16
3.1.2. Lidargleichung	17
3.1.3. Berechnung optischer Partikeleigenschaften	20
3.1.4. Bestimmung von Schichtgrenzen mit der Gradientenmethode	25
3.1.5. Lidardatenanalyse in der Praxis	26
3.2. EMEP	31
3.3. Transportmodelle	34
3.3.1. Berechnung von Trajektorien	34
3.3.2. Lagrange'sche Partikeldispersionsmodelle	37
3.3.3. Anwendung von FLEXPART in dieser Studie	39
4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas	47
4.1. Methoden	47
4.1.1. Definition möglicher Quellregionen	48
4.1.2. Zuordnung von Quellregionen	49
4.2. Datensatz	56
4.3. Ergebnisse	57
4.3.1. Herkunftsstatistik	57
4.3.2. Jahreszeitliche Statistik	58
4.3.3. Geometrische Eigenschaften	61
4.3.4. Optische Eigenschaften	66
5. Zusammenfassung	72

Inhaltsverzeichnis

A. Programmbeschreibung FLEXPART	74
A.1. FLEXTRA	74
A.2. Eingabefelder	75
A.3. Berechnung der Grenzschichtparameter	76
A.4. Transport und Diffusion	79
A.4.1. Langevin-Gleichungen	79
A.4.2. Berechnung des Zeitschrittes	81
A.4.3. Parametrisierung der turbulenten Windkomponenten	81
A.4.4. Mesoskalige Windschwankungen	83
A.4.5. Konvektion	83
A.5. Vorwärts- und Rückwärtsrechnung	84
A.6. Entfernungsprozesse	84
A.7. Berechnung von Ungenauigkeiten	85
B. Symbolverzeichnis	86
C. Abkürzungsverzeichnis	89
D. Literaturverzeichnis	90

1. Einleitung

Aerosole in der freien Troposphäre liefern einen sehr wichtigen Beitrag zum Strahlungshaushalt der Erde und können somit das Klima der Erde nachhaltig beeinflussen. Die Art und das Ausmaß des Einflusses und der Veränderungen, die durch menschliche Aktivitäten hervorgerufen werden, sind jedoch nur wenig verstanden. Aerosole spielen eine wichtige Rolle bei der Entstehung von Wolken und der Bildung von Niederschlag. Sie haben einen direkten Einfluss auf die Strahlungsbilanz, indem sie das Sonnenlicht absorbieren und streuen. Der Beitrag direkter Aerosoleffekte zum globalen Strahlungshaushalt liegt im globalen Mittel zwischen $-0,1$ und $-0,9 \text{ W/m}^2$ (*IPCC-Bericht*, 2007). Diese breite Spanne macht Aerosole zum größten Faktor für die Unsicherheit von Klimaprognosen. Der Einfluss von Aerosolen umfasst neben der Auswirkung auf die Strahlung weitere Bereiche. So können Aerosole zum Beispiel sauren Regen verursachen, die Sicht beeinträchtigen und der menschlichen Gesundheit schaden.

Die Charakterisierung der Aerosole und ihrer Transportwege ist entscheidend für das Verständnis vieler atmosphärischer Prozesse. Ein verbessertes Verständnis dieser ist eine wichtige Voraussetzung für die Verbesserung von Atmosphärenmodellen. Bei all diesen Effekten spielen die optischen und mikrophysikalischen Eigenschaften der Aerosolpartikel sowie die vertikale Verteilung der Aerosolschichten in der Troposphäre eine große Rolle. Die Vertikalverteilung der Aerosole ist sehr bedeutend für den Strahlungsantrieb. Aerosolschichten über bewölkten und unbewölkten Grenzschichten beeinflussen den Strahlungshaushalt in sehr unterschiedlicher Weise. Grenzschichtaerosole aus lokalen Quellen haben wiederum einen anderen Einfluss als Schichten in der freien Troposphäre. Diese bestehen oft aus gealterten, weit transportierten Partikeln. Eine genauere Kenntnis über den Einfluss der Aerosole auf die Wolkenbildung hängt ebenfalls von deren vertikaler Verteilung ab.

Eine vertikal und zeitlich aufgelöste Bestimmung der Verteilung und der Eigenschaften von Aerosolen ist nur mit wenigen Messgeräten möglich. Passive Fernerkundungsverfahren, wie zum Beispiel Messungen mit Sonnenphotometern, liefern zwar optische Eigenschaften, jedoch keine vertikal aufgelösten Daten. Eine Unterscheidung zwischen Grenzschichtaerosol und Aerosolschichten in der freien Troposphäre ist damit nicht möglich. Es können Säulenwerte bestimmt werden, die sich auf ein Aerosolgemisch beziehen, welches aus verschiedenen Komponenten aus unterschiedlichsten Quellen bestehen kann. Von der vertikalen Position des Aerosols hängt dessen Lebensdauer ab. In der Grenzschicht ist die Lebensdauer mit wenigen Tagen gering (*Baltensperger und Nyeki*, 1998). Somit kommt es nur zu lokalen Auswirkungen. Befinden sich Aerosolschichten in der freien Troposphäre, beträgt die Lebensdauer bis zu Wochen, so dass die Aerosolpar-

1. Einleitung

tikel weite Transportwege zurücklegen können. Mit Flugzeugen kann man im Prinzip Aerosolprofile messen. Solche Messungen werden jedoch nur punktuell im Rahmen von Feldstudien durchgeführt. Die statistische Aussagekraft ist daher gering.

Lidar-Geräte¹ sind die einzigen Messinstrumente, mit denen man Vertikalprofile von Aerosoleigenschaften auf kontinuierlicher Basis messen kann. Einfache Rückstreulidargeräte erlauben bereits eine sehr gute Erfassung der vertikalen Schichtung der Atmosphäre und die Bestimmung von Profilen des Partikelrückstreukoeffizienten. Raman-Lidargeräte erlauben zudem die Messung von Vertikalprofilen des Partikelextinktionskoeffizienten und demzufolge die Berechnung des Extinktions-zu-Rückstreu-Verhältnisses². Rückstreukoeffizient und Extinktionskoeffizient gehören zu den extensiven Aerosoleigenschaften und hängen von der Menge der Aerosolpartikel ab. Im Gegensatz dazu ist das Lidarverhältnis eine intensive Größe, welche durch die Art der vorhandenen Aerosolpartikel bestimmt wird. Werden Raman-Lidarmessungen bei mehreren Wellenlängen durchgeführt, können weitere intensive optische Aerosoleigenschaften gemessen werden. Dazu gehören zum Beispiel die Wellenlängenabhängigkeit der Rückstreu- und Extinktionskoeffizienten sowie des Lidarverhältnisses.

Unter Verwendung eines ein Inversionsverfahrens (*Müller et al.*, 1999) lassen sich aus den spektralen optischen Daten mikrophysikalische Partikeleigenschaften ableiten. Er basiert auf der spektralen Abhängigkeit von Rückstreu- und Extinktionskoeffizient. Damit können der effektive Radius, das Volumen und die Oberfläche der Partikel sowie die Anzahlkonzentration und der mittlere komplexe Brechungsindex des Aerosols berechnet werden. Der Ansatz der Berechnung physikalischer Eigenschaften aus optischen Messgrößen mittels Inversionsmethoden wird nicht nur für Lidar verfolgt, sondern wurde ursprünglich für Messungen von höhenintegrierten Werten entwickelt (*Shaw*, 1979).

Am Institut für Troposphärenforschung (IfT) werden seit 1996 regelmäßig mehrmals pro Woche Messungen des Aerosolprofils durchgeführt. Die Lidarstation in Leipzig war in den Jahren 1997 bis 2000 Teil des Deutschen Lidarnetzwerkes und ist seit 2000 eine Kernstation des europäischen Lidarnetzwerkes EARLINET³. Der durch diese regelmäßigen Messungen gewonnene umfangreiche Datensatz wurde bisher in unterschiedlichen Studien analysiert. *Wandinger et al.* (2004) haben Messungen an unterschiedlichen EARLINET-Standorten ausgewertet und konnten zeigen, dass bei einer Westwindwetterlage die optische Dicke⁴ des Grenzschichtaerosols über Europa kontinuierlich von West nach Ost zunimmt. Weiterhin können hohe Aerosolkonzentrationen (optische Dicken) von Ost nach West transportiert werden. Starke Quellgebiete wie Westeuro-

¹LIDAR = **L**Ight **D**etecting **A**nd **R**anging

²Das Verhältnis von Extinktion zu Rückstreuung wird im Allgemeinen und in dieser Arbeit als Lidarverhältnis (L) bezeichnet.

³EARLINET = **E**uropean **A**erosol **R**esearch **L**idar **N**ETwork; (*EARLINET-Homepage*, 2008)

⁴Die optische Dicke ist das vertikale Integral des Extinktionskoeffizienten über die Strahlänge. Es handelt sich also um ein Maß für die Durchlässigkeit einer Aerosolschicht für Licht einer bestimmten Wellenlänge.

1. Einleitung

pa und Südosteuropa konnten anhand der EARLNET-Messungen identifiziert werden. *Mattis* (2003) zeigte hingegen anhand von Grenzschichtuntersuchungen über Leipzig von 2000 bis 2003, dass keine signifikanten Abhängigkeiten der intensiven oder extensiven optischen Aerosoleigenschaften von der Anströmrichtung bestehen. Vermutlich sind die Aerosolquellen in der näheren Umgebung von Leipzig zu stark. Somit überlagern die Eigenschaften der von ihnen emittierten Partikel alle eventuell vorhandenen Unterschiede der herantransportierten Aerosolschichten. *Müller et al.* (2007) haben aus Mehrwellenlängen-Raman-Messungen typische Werte von intensiven optischen Aerosoleigenschaften für verschiedene Aerosoltypen abgeleitet. Diese Studie basiert jedoch auf Messungen von relativ reinen Aerosolschichten, also Schichten, die in der freien Troposphäre über interkontinentale Distanzen hinweg transportiert wurden und sich auf dem Weg kaum mit anderen Aerosolen vermischt haben oder Grenzschichtaerosolen in homogenen Quellgebieten.

In einer jüngst veröffentlichten Arbeit von *Mattis et al.* (2008) werden die Ergebnisse der Auswertung der Leipziger Lidarmessungen der 10-Jahresperiode von 1997 bis 2006 zusammengefasst vorgestellt. Hauptquellgebiete der freien troposphärischen Aerosole sind Afrika (Saharastaub) und Nordamerika (anthropogene Aerosole und Waldbrandaerosol). Trajektorienanalysen waren ein wichtiges Werkzeug für die Identifizierung der Quellgebiete.

Das Ziel der hier vorliegenden Arbeit ist es nun, herauszufinden, ob sich auch Aerosole aus unterschiedlichen europäischen Quellregionen anhand ihrer intensiven und extensiven optischen Eigenschaften unterscheiden lassen. Es werden dabei Aerosolschichten untersucht, die in der freien Troposphäre an den Messort Leipzig herantransportiert wurden und somit von lokalen Quellen relativ unbeeinflusst sind. Ein weiterer Gegensatz zu den vorangegangenen Untersuchungen besteht darin, dass die Identifizierung der jeweiligen Quellgebiete nicht anhand einfacher Trajektorienberechnungen vorgenommen wird. In dieser Studie kommen wesentlich komplexere Transportsimulationen in Kombination mit Emissionskatastern zum Einsatz.

Diese Arbeit ist in 6 Kapitel gegliedert. In Kapitel 2 wird zunächst ein allgemeiner Überblick über die Eigenschaften troposphärischer Aerosole sowie über verschiedene Klassifizierungsmethoden gegeben. Allgemeine theoretische Grundlagen und die Verfahren zur Datenauswertung werden in Kapitel 3 eingeführt. Dabei wird auf die Lidarmesstechnik, Transportmodelle sowie Emissionskataster eingegangen. In Abschnitt 3.1.3.4 wird ein neues Verfahren zur Berechnung von Rückstreuprofilen vorgestellt, welches im Rahmen dieser Arbeit entwickelt wurde. Die für diese Arbeit verwendete Kombination des Partikeldispersionsmodells FLEXPART mit Emissionsdaten wird in Abschnitt 4.1.2 erläutert. Außerdem wurden die Aerosolschichten nach ihrer Herkunft innerhalb Europas klassifiziert. Die Charakterisierung dieser Schichten ist in Kapitel 4 zu finden. Zunächst wird die zu Grunde liegende Methodik erläutert und der verwendete Datensatz vorgestellt. Die erzielten Ergebnisse werden in Abschnitt 4.3 diskutiert. In Kapitel 5 werden die wichtigsten Ergebnisse zusammengefasst. Im Anhang der Arbeit befinden

1. Einleitung

sich eine detaillierte Beschreibung des verwendeten Transportmodells FLEXPART, ein Symbolverzeichnis sowie ein Abkürzungsverzeichnis.

2. Troposphärische Aerosole

Aerosol besteht aus kleinen, festen Partikeln oder flüssigen Tröpfchen, verteilt in einem Gas. Es setzt sich also aus zwei Komponenten zusammen. Im Folgenden werden die Eigenschaften der Aerosolpartikel näher betrachtet. Die Aerosolpartikel sind in der Atmosphäre Transportprozessen wie Sedimentation, Advektion und Durchmischung sowie einer Reihe von Umwandlungen unterworfen. Diese sind zum Beispiel Kondensation, Verdunstung, Koagulation¹ und chemische Reaktionen innerhalb und außerhalb von Wolkentropfen. Sowohl Transportprozesse als auch Umwandlungen können zu einer Veränderung von Größe, Anzahl und Zusammensetzung der Partikel führen.

2.1. Physikalische Eigenschaften

Die physikalischen und chemischen Eigenschaften von Aerosolpartikeln werden maßgeblich von der Art ihrer Entstehung bestimmt. In Abschnitt 2.1.1 werden kurz die Quellen und Senken von Aerosolpartikeln und in Abschnitt 2.1.2 ihre mikrophysikalischen Eigenschaften behandelt.

2.1.1. Quellen und Senken von Aerosolpartikeln

Die Bestimmung einzelner Aerosolquellen ist schwierig. Sie sind räumlich und zeitlich sehr variabel. Daraus resultieren große Unsicherheiten. Zu den natürlichen Quellen gehören zum Beispiel Wüsten, Ozeane, Vulkane und Waldbrände. Die wichtigste anthropogene Quelle ist die Verbrennung von fossilen Brennstoffen. Waldbrände können ebenfalls anthropogenen Ursprungs sein. Global betrachtet dominieren Aerosole aus natürlichen Quellen, zum Beispiel Wüsten oder Ozeane, da diese über sehr große Flächen emittieren (*Baltensperger und Nyeki, 1998*). Die groben, natürlich verursachten Aerosolpartikel haben jedoch eine kürzere Lebensdauer als die feineren, anthropogenen Aerosole. In Industrieländern übersteigt die anthropogene Emission die natürliche.

Senken von Aerosolpartikeln sind trockene und nasse Deposition. Werden die Partikel auf Grund der Gravitation am Erdboden abgelagert, handelt es sich um trockene Deposition. Sie können aber auch bei Niederschlägen durch Auswaschen aus der Atmosphäre entfernt werden. Dieser Prozess wird als nasse Deposition bezeichnet.

¹Koagulation bezeichnet den Prozess des Zusammenwachsens von vielen kleinen Tröpfchen zu einem größeren Tropfen.

2.1.2. Mikrophysikalische Eigenschaften

Zur Beschreibung des physikalischen Verhaltens, also auch der optischen Eigenschaften von Aerosolen, ist der Partikeldurchmesser der wichtigste Parameter. Er variiert von der molekularen Skala (ab $0,001 \mu\text{m}$) bis hin zu Werten größer als $100 \mu\text{m}$, also über fünf Größenordnungen. Die untere Grenze wird durch den Zusammenschluss von etwa sechs Molekülen bestimmt. Dies ist die kleinste Einheit, die existieren kann. Partikel, die größer als $100 \mu\text{m}$ sind, können sich im Allgemeinen nicht lange genug in der Luft halten, um als Aerosol beobachtet zu werden.

Partikel mit sehr unterschiedlichen Größen kommen in der Atmosphäre fast immer gleichzeitig vor. Das Größenspektrum wird nach dem Partikeldurchmesser d in grobe ($d > 2 \mu\text{m}$) und feine ($d < 2 \mu\text{m}$) Partikel unterteilt, wobei die feinen Partikel einer weiteren Klassifizierung unterliegen. Es handelt sich dabei um Partikel des Nukleationsmodes ($d < 0.1 \mu\text{m}$), des Größenbereichs in dem vor allem Keimneubildung stattfindet, und des Akkumulationsmodes ($0.1 < d < 2 \mu\text{m}$), des Bereichs in dem sich die Partikel hauptsächlich mit anderen zusammenschließen. Da Aerosolpartikel nicht immer kugelförmig sind, ist der Durchmesser schwer festzustellen. Hinzu kommt, dass ein Aerosol in der Atmosphäre aus verschiedenartigen Partikeln und somit auch aus Partikeln unterschiedlicher Größe besteht. Die Größenverteilung wird zur Vereinfachung oft auf einen effektiven Radius r_{eff} reduziert. Dieser stellt den oberflächengewichteten mittleren Radius eines Partikelensembles dar und ist definiert als:

$$r_{eff} = \frac{\int r^3 \frac{dn}{dr} dr}{\int r^2 \frac{dn}{dr} dr}, \quad (2.1)$$

(*Hansen und Travis, 1974*), wobei n die Partikelanzahldichte und r der Partikelradius ist.

Die Größenverteilung der Aerosolpartikel in der Atmosphäre lässt sich gut mit einer logarithmischen Normalverteilung beschreiben, die mehrere Moden aufweist.

$$\frac{dn}{d \log r} = \sum_{i=1}^3 c_i \exp \left[-(\ln r - \ln r_i)^2 / (2 \ln^2 \sigma_i) \right] \quad (2.2)$$

Hierbei ist $dn/d \log r$ die Partikelkonzentration pro Radiusintervall, r der mittlere Radius, i der Index des Modes, σ_i die Standardabweichung und c_i eine Konstante, die die Gesamtanzahl an Partikeln in jedem Mode angibt (*Heintzenberg und Welch, 1982*). Die log-Normalverteilung des Akkumulationsmodes ist in Abbildung 2.1 im Vergleich zur symmetrischen Gauß-Normalverteilung schematisch dargestellt.

Die Lebensdauer von Aerosolen in der Grenzschicht ist mit weniger als einer Woche relativ kurz. Sie ist von der Größe der Partikel abhängig und kann nur Stunden betragen. Sehr große ($d > 10 \mu\text{m}$) und sehr kleine ($d < 0,05 \mu\text{m}$) Partikel haben eine Lebensdauer von unter einer Stunde. Die große Spanne der Verweilzeiten von Stunden bis hin zu mehreren Tagen ist ein Grund für die hohe Variabilität der Größenverteilung, Zusammensetzung und Konzentration der Aerosolpartikel.

In der freien Troposphäre kann die Lebensdauer wesentlich länger werden. Sie hängt

2. Troposphärische Aerosole

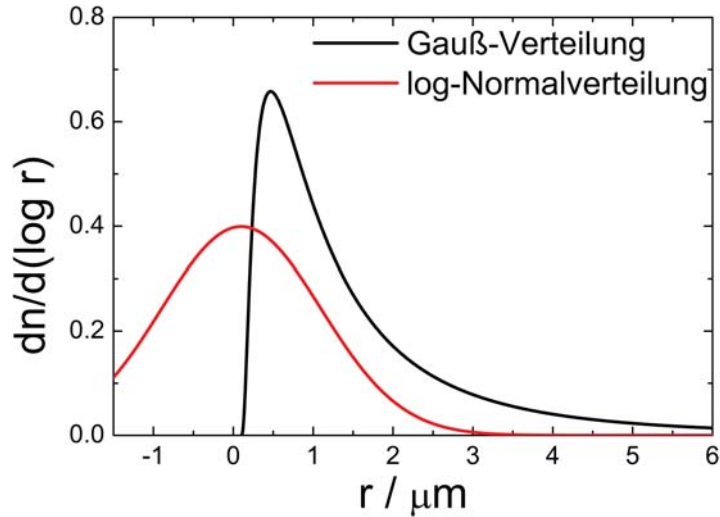


Abb. 2.1.: Schematische Darstellung der logarithmischen Normalverteilung (schwarz) und der Gauß'schen Normalverteilung (rot).

entscheidend von der Höhe, in der sich das Aerosol befindet und von den meteorologischen Gegebenheiten, hierbei vor allem vom Niederschlag, ab. Außerdem spielen die physikochemischen Eigenschaften des Aerosols eine Rolle.

2.1.3. Optische Eigenschaften

Die Wechselwirkungen zwischen Aerosolen und der Strahlung sind am größten, wenn die Größe der Partikel ungefähr mit der Wellenlänge übereinstimmt. Daraus folgt, dass die Partikel des langlebigeren Akkumulationsmodes (0.1 bis 1.0 μm) die kurzwellige solare Strahlung eher beeinflussen als die langwellige infrarote Strahlung, die von der Erdatmosphäre und dem Erdboden emittiert wird. Grobe Partikel führen ebenfalls zu einer relativ schwachen Beeinflussung der infraroten Strahlung, da diese eine geringere Verweildauer in der Atmosphäre haben. Die Streuung und Absorption einfallender Strahlung wird durch den totalen Streukoeffizienten α_{sca} und den Absorptionskoeffizienten α_{abs} beschrieben. Diese Koeffizienten sind ein Maß für den Verlustanteil der Strahlintensität pro Volumen auf Grund von Streuung beziehungsweise Absorption. Die beiden Verlustgrößen werden als Extinktion zusammengefasst. Der Extinktionskoeffizient α ist demnach die Summe aus Streukoeffizient und Absorptionskoeffizient

$$\alpha(z) = \alpha_{sca}(z) + \alpha_{abs}(z). \quad (2.3)$$

Das vertikale Integral des Extinktionskoeffizienten über die Strahllänge stellt die optische Dicke AOD (aerosol optical depth) des Aerosols dar

$$AOD = \int_0^{\infty} \alpha(z) dz. \quad (2.4)$$

Die optische Dicke einzelner Aerosolschichten wird bestimmt, indem der Extinktionskoeffizient vertikal zwischen der Schichtobergrenze und der Schichtuntergrenze integriert

2. Troposphärische Aerosole

wird.

Die Einfachstreueralbedo ω ist definiert als das Verhältnis von totaler Streuung zu Extinktion und berechnet sich demnach wie folgt:

$$\omega = \frac{\alpha_{sca}}{\alpha}. \quad (2.5)$$

Sie ist abhängig von der Partikelgröße, dem komplexen Brechungsindex und der Wellenlänge.

Die Wellenlängenabhängigkeit des Partikelextinktionskoeffizienten wird durch den Ångströmexponenten \mathring{a} beschrieben, der folgendermaßen definiert ist (*Ångström*, 1964):

$$\mathring{a}_\alpha = \frac{\ln(\alpha_1/\alpha_2)}{\ln(\lambda_2/\lambda_1)}, \quad (2.6)$$

wobei α_1 und α_2 die Extinktionskoeffizienten bei den jeweiligen Wellenlängen λ_1 und λ_2 bezeichnen. Der Ångströmexponent hängt mit der Größenverteilung des Aerosols zusammen. Große Werte von \mathring{a} deuten dabei auf eher kleine Partikel hin und kleine Werte auf eher große Partikel. Der Ångströmexponent wird häufig für die Charakterisierung von anthropogenem Aerosol verwendet, da er sensibel auf Änderungen im Akkumulationsmode der Größenverteilung reagiert (*Mattis et al.*, 2004).

Die Rückwärtsstreuung der einfallenden Strahlung, also die Streuung unter einem Winkel von 180° , wird durch den Rückstreukoeffizienten β beschrieben. Auf diese für die Fernerkundung mittels Lidar bedeutende Größe wird in Kapitel 3.1.3 näher eingegangen. Hier soll nur kurz erwähnt sein, dass ein Ångströmexponent auch für die Rückwärtsstreuung gemäß

$$\mathring{a}_\beta = \frac{\ln(\beta_1/\beta_2)}{\ln(\lambda_2/\lambda_1)} \quad (2.7)$$

angegeben werden kann.

Eine ebenfalls sehr wichtige optische Eigenschaft für die Charakterisierung von Aerosolen auf der Basis von Lidarmessungen ist das Lidarverhältnis. Es handelt sich dabei um das Verhältnis von Extinktionskoeffizienten zu Rückstreukoeffizienten

$$L_\lambda(R) = \frac{\alpha(R, \lambda)}{\beta(R, \lambda)}. \quad (2.8)$$

In Abschnitt 3.1.2 wird näher auf diese Größe eingegangen.

Werte für einige optische Eigenschaften von verschiedenen Aerosolenarten sind in Tabelle 2.1 zusammenfassend dargestellt. Sie wurden aus Lidarmessungen an verschiedenen Standorten in Europa berechnet. Die dargestellten Werte beziehen sich zum Teil auf die Grenzschicht. Dies ist durch PBL² gekennzeichnet. Die Eigenschaften von Grenzschichtaerosol sind im Allgemeinen durch lokale Quellen bestimmt (*Wandinger et al.*, 2004). Die Aerosolpartikel in der freien Troposphäre können sich nach Transportwegen von hunderten oder tausenden Kilometern deutlich von den lokal gebildeten Partikeln unterscheiden. Studien zu Aerosolschichten in der freien Troposphäre sind mit FT bezeichnet.

²PBL = Planetary Boundary Layer

Tabelle 2.1.: Aus Lidarmessungen bestimmte Werte für Eigenschaften von verschiedenen Aerosolarten oder von Aerosolen aus verschiedenen Anströmrichtungen am Messort. Dieser ist in eckigen Klammern aufgeführt. PBL bezeichnet Ergebnisse aus Messungen in der Grenzschicht und FT Werte von Schichten aus der freien Troposphäre.

Aerosolart / Quellgebiet und [Messort]	L_{355} in sr	L_{532} in sr	AOD (355 nm)	\hat{a}_α (355/532 nm)	Referenz
2000-2003 PBL, [Leipzig] ³	58±12	53±11	0,38±0,23	1,4±0,5	<i>Mattis et al.</i> (2004)
2000-2003 FT, [Leipzig]	52±16	53±20	0,07±0,04	1,0±0,8	<i>Mattis et al.</i> (2004)
marines Aerosol					
Atlantik FT, [Leipzig]		23±3		0,6±0,0	<i>Mattis</i> (2003)
Nordatlantik PBL, [Portugal]				0,3±0,1	<i>Müller et al.</i> (2007)
Atlantik FT, [Thessaloniki] ⁴	28±10		0,12±0,06		<i>Amiridis et al.</i> (2005)
Nordwesteuropa FT, [Leipzig]	63±17	66±15		1,3±0,6	<i>Mattis</i> (2003)
Mittelmeer PBL, [Italien]	10-20				<i>De Tomasi et al.</i> (2006)
anthropogenes Aerosol					
Westeuropa FT, [Italien]	40-60				<i>De Tomasi et al.</i> (2006)
Westeuropa PBL, [Hamburg]	55±5				<i>Matthias und Bösenberg</i> (2002)
West- und Mitteleuropa, [Portugal]		48±9	0,25	1,2	<i>Ansmann et al.</i> (2002)
Mitteleuropa FT, [Thessaloniki]	32±13		0,15±0,09		<i>Amiridis et al.</i> (2005)
Mitteleuropa FT, [Leipzig]	64±19	59±13		1,6±0,9	<i>Mattis</i> (2003)
Balkan, schneller Transport FT, [Thessaloniki]	38±19		0,16±0,09		<i>Amiridis et al.</i> (2005)
Balkan, langsamer Transport FT, [Thessaloniki]	44±25		0,23±0,18		<i>Amiridis et al.</i> (2005)
Südosteuropa FT, [Italien]	40-50				<i>De Tomasi et al.</i> (2006)
Osteuropa FT, [Leipzig]	68±13	54±11		1,9±0,7	<i>Mattis</i> (2003)
Osteuropa PBL, [Hamburg]	75±10				<i>Matthias und Bösenberg</i> (2002)

³Die von *Mattis et al.* (2004) gezeigten Werte umfassen alle Messungen, die im Zeitraum von Mai 2000 bis März 2003 mit MARTHA (siehe Abschnitt 3.1.1) durchgeführt wurden.

⁴Die von *Amiridis et al.* (2005) gezeigten Werte umfassen alle Messungen, die im Zeitraum von Januar 2001 bis Dezember 2004 in Thessaloniki durchgeführt wurden. Unterschieden werden die Ergebnisse nach den Richtungen der Herkunft der Ferntransportsschichten.

Tabelle 2.1.: Aus Lidarmessungen bestimmte Werte für Eigenschaften von verschiedenen Aerosolarten oder von Aerosolen aus verschiedenen Anströmrichtungen am Messort. Dieser ist in eckigen Klammern aufgeführt. PBL bezeichnet Ergebnisse aus Messungen in der Grenzschicht und FT Werte von Schichten aus der freien Troposphäre.

Aerosolart / Quellgebiet und [Messort]	L_{355} in sr	L_{532} in sr	AOD (355 nm)	\hat{a}_α (355/532 nm)	Referenz
Saharastaub ⁵					
Sahara FT, [Thessaloniki]	57±29		0,31±0,16		<i>Amiridis et al. (2005)</i>
Sahara FT, [Italien]	40–50				<i>De Tomasi et al. (2006)</i>
Sahara, eventuell vermischt mit marinem Aerosol FT, [Thessaloniki]	40±16		0,37±0,09		<i>Amiridis et al. (2005)</i>
Sahara, eventuell vermischt mit anthropogenem Aerosol FT, [Leipzig]	63±11	50±19		1.6±0.5	<i>Mattis (2003)</i>
Aerosol aus polaren Regionen					
polare Regionen und Nordeuropa FT, [Leipzig]	92±0	81±0		1.1±0.9	<i>Mattis (2003)</i>
Waldbrandaerosol					
Sibirien und Kanada FT, [Leipzig]		46±13	0,08–0,10	1,0±0,5	<i>Müller et al. (2005)</i>
Südosteuropa, [Thessaloniki] ⁶	61±4	≈50	1,15	≈1,8	<i>Balis et al. (2003)</i>

⁵Diese Aerosolart tritt selten in reiner Form auf, sondern ist oft mit anderen Aerosolarten vermischt.

⁶Einige der von *Balis et al. (2003)* vorgestellten Werte wurden aus Sonnenphotometermessungen ermittelt.

2.2. Geometrische Eigenschaften von Aerosolschichten

Für diese Arbeit wurden ausschließlich Aerosolschichten in der freien Troposphäre untersucht. Die geometrischen Eigenschaften beziehen sich auf diese Schichten. Dazu gehören die Höhen von Obergrenze und Untergrenze der Schicht und daraus resultierend die mittlere Schichthöhe sowie die Schichtdicke. Die Bestimmung dieser Werte erfolgte mit Hilfe der Gradientenmethode, die in Abschnitt 3.1.4 beschrieben wird.

2.3. Ansätze der Klassifikation von Aerosolen

Es ist hilfreich, Aerosole in Klassen zu unterteilen, da sie in vielerlei Hinsicht ein sehr breites Spektrum aufweisen. Die große Variabilität der Aerosoleigenschaften basiert, wie bereits erwähnt auf der Verschiedenartigkeit der Quellen und Entstehungsprozesse der Aerosole sowie ihrer variablen Lebensdauer von wenigen Tagen bis hin zu Monaten. In diesem Abschnitt wird hauptsächlich auf *Colbeck (1998)* Bezug genommen. Je nach Entstehung kann zwischen primärem und sekundärem Aerosol sowie zwischen natürlichem und anthropogenem Aerosol unterschieden werden. Primäres Aerosol entsteht direkt durch mechanische oder thermische Prozesse. Sekundäres Aerosol wird durch chemische Reaktionen oder Anlagerung an Kondensationskerne gebildet. Eine weitere Unterscheidung kann nach der Art der Aerosolpartikel und des Aerosolgases vorgenommen werden. Die wichtigsten Formen und ihre Zusammensetzung sind in Tabelle 2.2 aufgeführt.

Tabelle 2.2.: Verschiedene primäre Aerosolarten und deren Zusammensetzung nach *Colbeck (1998)*.

Aerosolart	Zusammensetzung
Staub	feste Partikel durch mechanischen Zerfall
Dunst	feste Partikel aus physikochemischen Prozessen wie Verbrennung oder Sublimation
Rauch	sichtbares Aerosol, resultiert aus unvollständiger Verbrennung
Nebel	flüssiges Aerosol, resultierend aus der Kondensation von Wasserdampf in Bodennähe
Bioaerosol	flüssig oder fest, enthält Bestandteile von Lebewesen und besteht teilweise aus biologisch lebensfähigen Organismen
marine Partikel	Seesalzpartikel, werden durch Meeresoberflächenbewegungen wie Brandung und Gischt freigesetzt

Troposphärisches Aerosol wird außerdem nach dem Ort oder der Art der Entstehung unterschieden. Es gibt marines, kontinentales, städtisches und polares Aerosol, Wüsten-aerosol, Aerosol aus Biomasseverbrennung und Hintergrundaerosol (*Pandis et al., 1995*). Bei solch einer Vielfalt in der Entstehung variiert auch der Partikeldurchmesser

2. Troposphärische Aerosole

sehr stark. Gebräuchlich ist die Einteilung nach der Größe in $PM_{2,5}$ und PM_{10} . Diese Klassen beinhalten Partikel, die kleiner als $2,5 \mu\text{m}$ beziehungsweise kleiner als $10 \mu\text{m}$ sind. PM_{coarse} enthält Partikel mit einer Größe zwischen $2,5 \mu\text{m}$ und $10 \mu\text{m}$.

Mit Lidargeräten kann man Mineralstaub, marines Aerosol, Aerosol aus Biomasseverbrennung und sekundäre anthropogene Aerosole im Größenbereich $PM_{2,5}$ untersuchen. Für diese Studie wurden hauptsächlich sekundär gebildete anthropogene Aerosolpartikel untersucht und nach ihrer Herkunftsregion klassifiziert.

3. Grundlagen und Verfahren zur Datenauswertung

3.1. Lidar

Der Begriff Lidar ist in Analogie zum Radar die Kurzform für *light detecting and ranging*. Es handelt sich dabei um eine Methode zur aktiven Fernmessung von Vertikalprofilen in der Atmosphäre. Eine Vielzahl von Wechselwirkungen zwischen dem ausgesendeten Licht und atmosphärischen Bestandteilen erlaubt die Bestimmung verschiedener Zustandsgrößen, zum Beispiel Temperatur, Druck, Feuchte und Wind. Aber auch die Messung verschiedener Eigenschaften von Aerosolen und Wolken ist möglich. Mit Licht ist hier und im Folgenden nicht nur der sichtbare Anteil der Strahlung gemeint, sondern auch die Anteile des Lidarstrahls im infraroten und ultravioletten Spektralbereich.

Grundlage für jegliche Berechnungen ist die Lidargleichung. Sie wird in Abschnitt 3.1.2 vorgestellt. Das Lidarsystem als Grundlage der Messung wird in Abschnitt 3.1.1 kurz beschrieben. Genauere Betrachtungen sind in *Wandinger (2005)* zu finden.

3.1.1. Aufbau und Prinzip

Die Grundlage dieser Arbeit bilden Messungen, welche seit 1996 am Institut für Troposphärenforschung in Leipzig mit dem Mehrwellenlängenlidar MARTHA¹ durchgeführt wurden. Eine genaue Beschreibung des Gerätes und dessen Möglichkeiten ist in *Mattis et al. (2002)* zu finden. Das Raman-Lidar sendet kurze Laserpulse bei drei Wellenlängen mit einer Frequenz von 30 Hz aus. Diese werden durch einen Nd:YAG Laser² direkt (1064 nm) beziehungsweise nach Frequenzverdopplung und -verdreifachung (532 nm und 355 nm) erzeugt. Die ausgesendeten Photonen treten in vielfältige Wechselwirkungen mit den Bestandteilen der Atmosphäre. Sie werden zum Beispiel an Aerosolpartikeln und Molekülen gestreut oder absorbiert. Zurückgestreute Photonen werden mittels eines Cassegrain Spiegelteleskopes empfangen. Nach dem Empfang der Photonen filtert eine optische Anordnung bestimmte Wellenlängen und Polarisationen aus dem empfangenen Licht heraus. Die optischen Signale werden anschließend von einem Detektor in elektrische Signale umgewandelt. Die Intensität dieser Signale wird in Abhängigkeit der Zeit, die seit dem Aussenden vergangen ist, elektronisch ermittelt und gespeichert. Die Zeit vom Aussenden des Laserpulses zum Empfang der Photonen t wird mit Hilfe

¹MARTHA = Multiwavelength Atmospheric Raman lidar for Temperature, Humidity and Aerosol profiling

²Nd:YAG = Neodym-dotierter Yttrium-Aluminium-Granat

der Lichtgeschwindigkeit c über die Beziehung

$$R = \frac{ct}{2} \quad (3.1)$$

in die Entfernung R des streuenden Volumens umgerechnet. $t/2$ entspricht dabei der Zeit, die die Photonen bis zum Erreichen der Entfernung R benötigen. Die räumliche Auflösung des Gerätes hängt davon ab, mit welcher zeitlichen Auflösung die Signale detektiert werden können.

Die Raman-Lidar-Methode erlaubt eine unabhängige Messung von Extinktion und Rückstreuung. Mit einem Raman-Lidar wird der Effekt der Wellenlängenverschiebung bei inelastischer Streuung an Molekülen genutzt, die auch als Raman-Streuung bezeichnet wird. Bei elastischer Streuung an Partikeln und Molekülen bleibt die Wellenlänge der Strahlung durch den Streuvorgang unverändert. Die Verschiebung der Wellenlänge wird durch die Art des Moleküls bestimmt, an dem die Streuung statt findet. Mit dem MARTHA-System werden die Signale der elastischen Rückstreuung bei 355 nm, 532 nm und 1064 nm sowie die Signale aus den Vibrations-Rotations Raman-Banden von Stickstoff³ bei 387 nm und 607 nm gemessen. Licht der Wellenlänge von 355 nm wird nach der inelastischen Ramanstreuung an Stickstoffmolekülen bei 387 nm und Licht der Wellenlänge von 532 nm bei 607 nm zurück gestrahlt.

3.1.2. Lidargleichung

Die Lidargleichung bildet die Basis für alle weiteren Berechnungen. Die einfachste Form

$$P(R, \lambda) = KG(R)\beta(R, \lambda)T(R, \lambda) \quad (3.2)$$

und die folgenden Betrachtungen sind *Wandinger (2005)* entnommen. Hierbei ist P die Leistung des Signals aus einer Entfernung R und bei der Wellenlänge λ . K ist nicht von der Entfernung abhängig. Dieser Term beschreibt die Leistung des Lidarsystems. Der Term $G(R)$ ist von der Entfernung und der Messgeometrie abhängig. Der Rückstreuoeffizient $\beta(R, \lambda)$ ist nicht nur von der Entfernung vom System, sondern auch von der Wellenlänge abhängig. $T(R, \lambda)$ ist der Transmissionsterm. Er beschreibt, wie viel Licht der Wellenlänge λ auf dem Weg vom Lidar zur Entfernung R und zurück verloren geht. K und $G(R)$ werden vollständig vom Geräteaufbau bestimmt. Somit enthalten $\beta(R, \lambda)$ und $T(R, \lambda)$ alle Informationen über die Atmosphäre, sind also die eigentlichen Messgrößen.

Eine gebräuchlichere Form der Lidargleichung erhält man, indem man die einzelnen Terme genauer betrachtet. So ist

$$G(R) = \frac{O(R)}{R^2}, \quad (3.3)$$

³Außerdem üblich ist die Messung der Raman-Streuung an Sauerstoffmolekülen (*Wandinger, 2005*) oder Wasserdampf (*Mattis et al., 2002*), da auch diese Komponenten eine ausreichend hohe Konzentration in der Atmosphäre beziehungsweise in der Troposphäre aufweisen

3. Grundlagen und Verfahren zur Datenauswertung

wobei $O(R)$ die Überlappfunktion ist. Diese beschreibt die unvollständige Überlappung von Laserstrahl und Gesichtsfeld des Teleskopes als eine Funktion der Entfernung. Im Allgemeinen gilt $O(R) = 1$ für $R \geq R_{ovl}$. Die Höhe der vollständigen Überlappung R_{ovl} ist für jedes Lidarsystem anders. Für MARTHA gilt $R_{ovl} \approx 3$ km. Die genaue Form von $O(R)$ lässt sich experimentell bestimmen (*Wandinger und Ansmann, 2002a*). Die Signalintensität nimmt quadratisch mit der Entfernung ab. Ursache dafür ist, dass die Fläche, die vom Teleskop abgedeckt werden kann, einem Teil der Kugeloberfläche einer Kugel mit dem Radius R entspricht.

Der Rückstreuoeffizient beschreibt, wieviel Licht in die Rückwärtsrichtung gestreut wird. Er stellt also den spezifischen Wert des Streukoeffizienten α_{sca} für einen Streuwinkel von 180° dar. Der Rückstreuoeffizient kann folgendermaßen geschrieben werden:

$$\beta(R, \lambda) = \sum_j n_j(R) \frac{d\sigma_{j,sca}}{d\Omega}(\pi, \lambda). \quad (3.4)$$

Hierbei ist n_j die Konzentration der Streupartikel der Art j im vom Laser beleuchteten Volumen und $d\sigma_{j,sca}/d\Omega$ der differentielle Streuquerschnitt der Partikel für die Rückwärtsrichtung bei einer Wellenlänge λ .

Das Laserlicht wird in der Atmosphäre an Molekülen und an Partikeln gestreut. Der Gesamtrückstreuoeffizient setzt sich demnach aus der Summe der Rückstreuoeffizienten der beiden Komponenten zusammen

$$\beta(R, \lambda) = \beta_{par}(R, \lambda) + \beta_{mol}(R, \lambda). \quad (3.5)$$

Der konstante Systemfaktor K wird als

$$K = P_0 \frac{c\tau}{2} A\eta \quad (3.6)$$

beschrieben. Es ist hier P_0 die mittlere Leistung des Laserpulses, τ die zeitliche Pulslänge, A die Fläche der Empfangsoptik, und η die Systemeffizienz. In unserem Fall ist $A = \frac{\pi}{4} \text{m}^2$. Der Transmissionsterm resultiert aus der spezifischen Form des Lambert-Beer-Bouguer-Gesetz für Lidar:

$$T(R, \lambda) = \exp \left[-2 \int_0^R \alpha(r, \lambda) dr \right] \quad (3.7)$$

und kann Werte zwischen 0 und 1 annehmen. Der Faktor 2 steht hier für den Hin- und Rückweg des Strahls. Der Extinktionskoeffizient wird ähnlich dem Rückstreuoeffizienten definiert als

$$\alpha(R, \lambda) = \sum_j n_j(R) \sigma_{j,ext}(\lambda), \quad (3.8)$$

wobei $\sigma_{j,ext}$ der Extinktionsquerschnitt des Streuers j ist. Die Extinktion, also die Streuung des Lichts beruht auf den beiden Mechanismen Streuung (sca) und Absorption (abs). Auch sie besteht aus einem Anteil verursacht durch Partikel (par) und einem Anteil verursacht durch Moleküle (mol)

$$\alpha(R, \lambda) = \alpha_{par}^{abs}(R, \lambda) + \alpha_{mol}^{abs}(R, \lambda) + \alpha_{par}^{sca}(R, \lambda) + \alpha_{mol}^{sca}(R, \lambda). \quad (3.9)$$

3. Grundlagen und Verfahren zur Datenauswertung

Die Molekülextinktion und -rückstreuung wird aus meteorologischen Daten, der Temperatur und dem Druck, zum Beispiel aus Radiosondendaten, berechnet. Die Absorption durch Moleküle spielt bei den von MARTHA ausgesendeten Wellenlängen keine Rolle. Setzt man die vorangegangenen Gleichungen (3.3, 3.6, 3.7) in die Lidargleichung ein, erhält man

$$P(R, \lambda) = P_0 \frac{c\tau}{2} A\eta \frac{O(R)}{R^2} \beta(R, \lambda) \exp \left[-2 \int_0^R \alpha(r, \lambda) dr \right]. \quad (3.10)$$

Diese Lidargleichung für die elastische Rückstreuung an Aerosolpartikeln enthält zwei Unbekannte, den Partikelextinktionskoeffizienten α_{par} und den Partikelrückstreukoeffizienten β_{par} . Es handelt sich also um ein unterbestimmtes Problem. Dem gegenüber steht die Raman-Lidarmethode, bei der ein zweites unabhängiges Signal gemessen wird. Dieses Raman-Signal hängt nicht von der Partikelrückstreuung ab und die Lidargleichung kann wie folgt geschrieben werden

$$P(R, \lambda_{Ra}) = \frac{K}{R^2} O(R, \lambda_{Ra}) \beta_{Ra}(R, \lambda_0) \exp \left\{ - \int_0^R [\alpha(r, \lambda_0) + \alpha(r, \lambda_{Ra})] dr \right\}. \quad (3.11)$$

Hierbei bezeichnet β_{Ra} den Raman-Rückstreukoeffizienten, $\alpha(r, \lambda_0)$ die Extinktion auf dem Weg vom Lidar zum Rückstrevolumen, λ_0 die Laserwellenlänge und $\alpha(r, \lambda_{Ra})$ die Extinktion auf dem Weg zurück zum Lidar mit λ_{Ra} als Wellenlänge des inelastisch zurückgestreuten Signals. Der Raman-Rückstreukoeffizient kann wie folgt berechnet werden

$$\beta_{Ra}(R, \lambda_0) = n_{Ra}(R) \frac{d\sigma_{Ra}}{d\Omega}(\pi, \lambda_0). \quad (3.12)$$

Hier ist n_{Ra} die molekulare Anzahldichte des jeweils betrachteten Gases, in diesem Fall Stickstoff, und $d\sigma_{Ra}/d\Omega(\pi, \lambda_0)$ der molekulare differentielle Streuquerschnitt bei der Wellenlänge λ_0 unter einem Streuwinkel π . Das Profil der molekularen Anzahldichte wird aus Radiosondendaten oder aus Standardatmosphärenprofilen von Temperatur und Druck berechnet.

Das Verhältnis von Extinktion und Rückstreuung wird als Lidarverhältnis bezeichnet. Das Lidarverhältnis für den Molekülanteil L_{mol} ist bekannt

$$L_{mol} = \frac{\alpha_{mol}(R, \lambda)}{\beta_{mol}(R, \lambda)} = \frac{8\pi}{3} \text{sr}. \quad (3.13)$$

Das molekulare Lidarverhältnis ist nicht von der Entfernung abhängig, da das Verhältnis von Extinktion zu Rückstreuung für Moleküle konstant ist. Das Partikellidarverhältnis

$$L_{par}(R, \lambda) = \frac{\alpha_{par}(R, \lambda)}{\beta_{par}(R, \lambda)} \quad (3.14)$$

ist entfernungsabhängig, da es von der Größenverteilung, Form und chemischen Zusammensetzung der Partikel abhängt.

3.1.3. Berechnung optischer Partikeleigenschaften

Die Berechnung der Partikelrückstreu- und -extinktionskoeffizienten aus dem Lidarsignal kann auf verschiedene Art und Weise erfolgen (*Ansmann und Müller, 2005*). Die beiden grundlegenden Verfahren werden in den folgenden Abschnitten vorgestellt.

3.1.3.1. Berechnung des Partikelextinktionskoeffizienten

Setzt man 3.12 in 3.11 ein, logarithmiert und leitet nach R ab, folgt für die Gesamtextinktion

$$\alpha(R, \lambda_0) + \alpha(R, \lambda_{Ra}) = \frac{d}{dR} \ln \frac{N_{Ra}(R)}{S(R, \lambda_{Ra})} + \frac{d}{dR} \ln O(R, \lambda_{Ra}), \quad (3.15)$$

mit dem entfernungskorrigierten Signal der molekularen Rückstreuung $S(R, \lambda_{Ra}) = R^2 P(R, \lambda_{Ra})$. Die Berechnung des Extinktionskoeffizienten reagiert sensibel auf Ungenauigkeiten der experimentell bestimmten Überlappungsfunktion nahe am Lidar, da ihr Wert sich dort mit der Entfernung schnell ändert. Für große Entfernungen ist $O(R, \lambda_{Ra}) = 1$, so dass der zweite Term auf der rechten Seite entfällt. Dies gilt bei MARTHA ab etwa 3000 m. Die Berechnung des Extinktionskoeffizienten reagiert sensibel auf Ungenauigkeiten in der Überlappungskorrektur nahe am Lidar bis etwa 500 m, da der Wert der Überlappfunktion dort gering ist und sich mit der Entfernung schnell ändert. Nach der Korrektur des Überlappungseffektes auf den Signalen gilt allgemein die vereinfachte Beziehung

$$\alpha_{aer}(R, \lambda_0) + \alpha_{aer}(R, \lambda_{Ra}) = \frac{d}{dR} \ln \frac{N_{Ra}(R)}{S(R, \lambda_{Ra})} - \alpha_{mol}(R, \lambda_0) - \alpha_{mol}(R, \lambda_{Ra}). \quad (3.16)$$

wobei $S(R, \lambda_{Ra})$ nun das entfernungs- und überlappungskorrigierte Signal darstellt. Zur Berechnung des Extinktionskoeffizienten bei der Laserwellenlänge λ_0 muss der Ångströmxponent eingeführt werden. Man erhält

$$\alpha_{aer}(R, \lambda_0) = \frac{\frac{d}{dR} \ln \frac{N_{Ra}(R)}{S(R, \lambda_{Ra})} - \alpha_{mol}(R, \lambda_0) - \alpha_{mol}(R, \lambda_{Ra})}{1 + \left(\frac{\lambda_{Ra}}{\lambda_0}\right)^{\tilde{a}(R)}}. \quad (3.17)$$

Über- oder Unterschätzung des Ångströmxponenten um beispielsweise 0,5 führt zu einem relativen Fehler bei der Bestimmung der Extinktionskoeffizienten in der Größenordnung von 5 % (*Ansmann und Müller, 2005*).

3.1.3.2. Berechnung des Rückstreukoeffizienten aus elastischem und Raman-Rückstreusignal

Um den Partikelrückstreukoeffizienten nach der Raman-Methode zu berechnen, werden das totale und das molekulare Rückstreusignal benötigt. Dazu sind zwei gemessene Signalaare, aus der Entfernung R und der Entfernung R_0 , notwendig. Es wird das Verhältnis der elastischen Signale ($P(R, \lambda_0)$, $P(R_0, \lambda_0)$) und der Raman-Signale ($P(R, \lambda_{Ra})$,

$P(R_0, \lambda_{Ra})$) gebildet

$$\frac{P(R_0, \lambda_{Ra}) P(R, \lambda_0)}{P(R_0, \lambda_0) P(R, \lambda_{Ra})}. \quad (3.18)$$

Nach Einsetzen der dazugehörigen Lidargleichungen folgt

$$\begin{aligned} & \beta_{aer}(R, \lambda_0) + \beta_{mol}(R, \lambda_0) \quad (3.19) \\ &= [\beta_{aer}(R_0, \lambda_0) + \beta_{mol}(R_0, \lambda_0)] \frac{P(R_0, \lambda_{Ra}) P(R, \lambda_0)}{P(R_0, \lambda_0) P(R, \lambda_{Ra})} \frac{N_{Ra}(R)}{N_{Ra}(R_0)} \\ & \quad \times \frac{\exp\left\{-\int_{R_0}^R [\alpha_{aer}(r, \lambda_{Ra}) + \alpha_{mol}(r, \lambda_{Ra})] dr\right\}}{\exp\left\{-\int_{R_0}^R [\alpha_{aer}(r, \lambda_0) + \alpha_{mol}(r, \lambda_0)] dr\right\}}. \end{aligned}$$

Gleichung 3.19 setzt voraus, dass beide Signalkanäle gut justiert sind, so dass $O(R, \lambda_{Ra}) = O(R, \lambda_0)$. Dann treten Überlappungseffekte in der Lösungsgleichung nicht auf, weil sie sich bei der Bildung des Signalverhältnisses heraus kürzen. Das bedeutet, dass der Rückstreuoeffizient auch in geringer Entfernung vom Lidar berechnet werden kann. Die sogenannte Kalibrierhöhe R_0 wird üblicherweise so gewählt, dass der Partikelrückstreuoeffizient vernachlässigbar gegenüber der bekannten Molekülrückstreuung ist, also $\beta_{par}(R_0, \lambda_0) \ll \beta_{mol}(R_0, \lambda_0)$ gilt. Bei der Untersuchung troposphärischen Aerosols wird die Referenzhöhe in die praktisch partikelfreie oberen Troposphäre oder unteren Stratosphäre gesetzt.

3.1.3.3. Berechnung des Rückstreuoeffizienten nur aus dem elastischen Rückstreusignal

Der Klett-Algorithmus stammt ursprünglich von *Hitschfeld und Bordan* (1954), ist jedoch nach Klett benannt, da *Klett* (1981) die enthaltene Bernoulli-Lösung (Gleichung 3.26) neu formulierte und somit eine wesentlich vereinfachte Form der Analyse von Lidardaten fand. Die folgende Rechnung ist hauptsächlich von *Ansmann und Müller* (2005) übernommen. Aus der Lidargleichung (Gleichung 3.10) und den Komponenten von Rückstreuung (Gleichung 3.5) und Extinktion (Gleichung 3.9) lässt sich das höhen- und überlappungskorrigierte Lidarsignal $S(R, \lambda)$ berechnen

$$\begin{aligned} S(R, \lambda) &\equiv \frac{R^2}{O(R)} P(R, \lambda) \quad (3.20) \\ &= K [\beta_{par}(R, \lambda) + \beta_{mol}(R, \lambda)] \exp\left[-2 \int_0^R [\alpha_{par}(R, \lambda) + \alpha_{mol}(R, \lambda)] dr\right]. \end{aligned}$$

Die Extinktion kann durch die beiden Lidarverhältnisse (Gleichungen 3.14, 3.13) substituiert werden. Desweiteren wird der normalisierte totale Extinktionskoeffizient eingeführt (*Sasano et al.*, 1985). Dieser ist definiert als

$$Y(R, \lambda) \equiv \alpha_{par}(R, \lambda) + \frac{L_{par}(R, \lambda)}{L_{mol}} \alpha_{mol}(R, \lambda) \quad (3.21)$$

$$= L_{par}(R, \lambda) [\beta_{par}(R, \lambda) + \beta_{mol}(R, \lambda)]. \quad (3.22)$$

3. Grundlagen und Verfahren zur Datenauswertung

Einsetzen in die Gleichung 3.20 führt zu diesem Ergebnis:

$$\begin{aligned} S(R, \lambda) L_{par}(R, \lambda) \exp \left\{ -2 \int_0^R [L_{par}(r, \lambda) - L_{mol}] \beta_{mol}(r, \lambda) dr \right\} \\ = KY(R, \lambda) \exp \left[-2 \int_0^R Y(r, \lambda) dr \right]. \end{aligned} \quad (3.23)$$

Logarithmieren beider Seiten von Gleichung 3.23 und Ableitung nach R ergibt dann

$$\begin{aligned} \frac{d \ln \left(S(R, \lambda) L_{par}(R, \lambda) \exp \left\{ -2 \int_0^R [L_{par}(r, \lambda) - L_{mol}] \beta_{mol}(r, \lambda) dr \right\} \right)}{dR} \\ = \frac{1}{Y(R, \lambda)} \frac{dY(R, \lambda)}{dR} - 2Y(R, \lambda). \end{aligned} \quad (3.24)$$

Diese Bernoulli-Gleichung kann mit der folgenden Randbedingung gelöst werden:

$$Y(R_0, \lambda) = L_{par}(R_0, \lambda) [\beta_{par}(R_0, \lambda) + \beta_{mol}(R_0, \lambda)]. \quad (3.25)$$

Man erhält eine Lösung, für den totalen Rückstreuoeffizienten (*Sasano et al.*, 1985):

$$\beta_{par}(R, \lambda) + \beta_{mol}(R, \lambda) = \frac{S(R, \lambda) \exp \left\{ -2 \int_{R_0}^R [L_{par}(r, \lambda) - L_{mol}] \beta_{mol}(r, \lambda) dr \right\}}{\frac{S(R_0, \lambda)}{\beta_{par}(R_0, \lambda) + \beta_{mol}(R_0, \lambda)} - 2 \int_{R_0}^R L_{par}(r, \lambda) S(R, \lambda) T(r, R_0, \lambda) dr} \quad (3.26)$$

mit

$$T(r, R_0, \lambda) = \exp \left\{ -2 \int_{R_0}^r [L_{par}(r', \lambda) - L_{mol}] \beta_{mol}(r', \lambda) dr' \right\}. \quad (3.27)$$

Die Gleichung 3.26 kann von der Referenzhöhe R_0 an integriert werden. Dabei kann R_0 entweder den Anfang des Messbereichs, bei Vorwärtsintegration ($R > R_0$), oder das Ende, bei Rückwärtsintegration ($R < R_0$), bezeichnen. Numerische Stabilität wird nur bei der durch *Klett* (1981) eingeführten Rückwärtsintegration erreicht. Wie bei der Raman-Methode sollte die Referenzhöhe R_0 in der oberen Troposphäre liegen, um den Einfluss der Ungenauigkeit der Schätzung der Partikelstreuung in der Referenzhöhe auf die Lösung gering zu halten.

Nachteil dieser Methode ist, dass zwei physikalische Größen, nämlich Partikelrückstreuoeffizient und Partikelextinktionskoeffizient, aus nur einer gemessenen Größe, dem Lidarsignal, berechnet werden müssen. Zudem ist eine zutreffende Annahme des Profils des Partikellidarverhältnisses $L_{par}(R, \lambda)$ schwierig, da er von mikrophysikalischen und chemischen Eigenschaften sowie der Form der Partikel abhängt. Aus fehlerhaften Lidarverhältnissen können Fehler im Partikelrückstreuoeffizienten von 20 % bis 40 % entstehen (*Wallenhauer*, 1998). Diese sind bei einer Wellenlänge von 355 nm am größten. Der Fehler, der aus der Annahme des Referenzwertes entsteht, ist bei 1064 nm am größten (*Wallenhauer*, 1998).

3.1.3.4. Kombination der Klett- und Raman-Methoden

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Verfahren entwickelt, welches die beiden Methoden zur Berechnung der Profile der Rückstreuoeffizienten kombiniert. Somit können die Nachteile der einen Methode durch die Vorteile der anderen Methode kompensiert werden. Da für die Klett-Methode mehr Annahmen gemacht werden müssen, ist die Raman-Methode vorzuziehen. Doch auch diese hat Nachteile. Zum Beispiel ist bei Tagmessungen (siehe auch Abschnitt 3.1.5.2) das Raman-Rückstreuprofil mit zunehmender Höhe sehr stark verrauscht. Grund hierfür ist das allgemein schwache Raman-Signal, welches am Tag durch Sonnen- und Himmelsstrahlung überlagert wird. Das starke Rauschen in großen Höhen erschwert in diesen Fällen die Bestimmung des Referenzwertes. Der Referenzbereich muss also in geringerer Höhe gewählt werden.

Im Folgenden ist eine Möglichkeit zur Ermittlung eines Rückstreuprofiles vorgestellt, die im Rahmen dieser Arbeit entwickelt und angewendet wurde. Damit wird eine intensivere Analyse von Lidarmessungen ermöglicht, da auch Messungen ausgewertet werden können, die nicht bei optimalen Bedingungen durchgeführt wurden. Die Rückstreuprofile werden nach der folgenden Vorgehensweise ermittelt, die anhand des Beispiels der Messung am Vormittag des 15.09.2006 illustriert ist (Abbildung 3.1).

1. Berechnung des Klett-Rückstreuprofiles für verschiedene Lidarverhältnisse⁴ sowie mit und ohne Überlappkorrekturfunktion (Abbildung 3.1, links)
2. Berechnung eines vorläufigen Raman-Rückstreuprofiles (Abbildung 3.1, zweites Diagramm von links)
3. Bestimmung der vertrauenswürdigen Höhenbereiche (grau markiert in Abbildung 3.1)
 - das Klett-Rückstreuprofil kann nicht mehr verwendet werden, wenn die Lösungen mit verschiedenen Lidarverhältnissen oder mit und ohne Überlappkorrektur mit abnehmender Höhe signifikant voneinander abweichen (im Beispiel liegt diese Grenze bei 2 km)
 - das Raman-Rückstreuprofil kann bis zu der Höhe (Obergrenze des Vertrauensbereiches) verwendet werden, in der der relative, durch Signalrauschen bedingte statistische Fehler des Rückstreuoeffizienten 50 % oder einen Wert von $1 \text{ Mm}^{-1}\text{sr}^{-1}$ nicht übersteigt (im Beispiel etwa 5,5 km)
4. Festlegen eines Referenzbereiches für das Raman-Rückstreuprofil
 - unterhalb der Obergrenze des Vertrauensbereiches im Raman-Rückstreuprofil
 - das Klett-Rückstreuprofil sollte in diesem Referenzbereich möglichst konstant sein (im Beispiel zwischen 4,5 und 5,5 km)
5. Berechnung des mittleren Klett-Rückstreuoeffizienten in diesem Höhenbereich, als Referenzwert für die Neuberechnung der Raman-Rückstreuung

⁴Für die Datenanalyse im Rahmen dieser Arbeit wurden Lidarverhältnisse von 30, 50 und 80 sr verwendet.

3. Grundlagen und Verfahren zur Datenauswertung

6. Neuberechnung des Raman-Rückstreuprofils mit neuem Referenzwert für verschiedene Glättungslängen, um das Signal-zu-Rauschen-Verhältnis möglichst gering zu halten
7. Befindet sich die betreffende Aerosolschicht vollständig im Vertrauensbereich des Raman-Rückstreuprofils, wird dieses für die weitere Auswertung genutzt.
8. Kann jedoch das Ramanprofil nicht bis zur Oberkante der interessierenden Aerosolschicht berechnet werden, wird für den verbleibenden Höhenbereich, das Klett-Rückstreuprofil verwendet. (Abbildung 3.1, rechts)

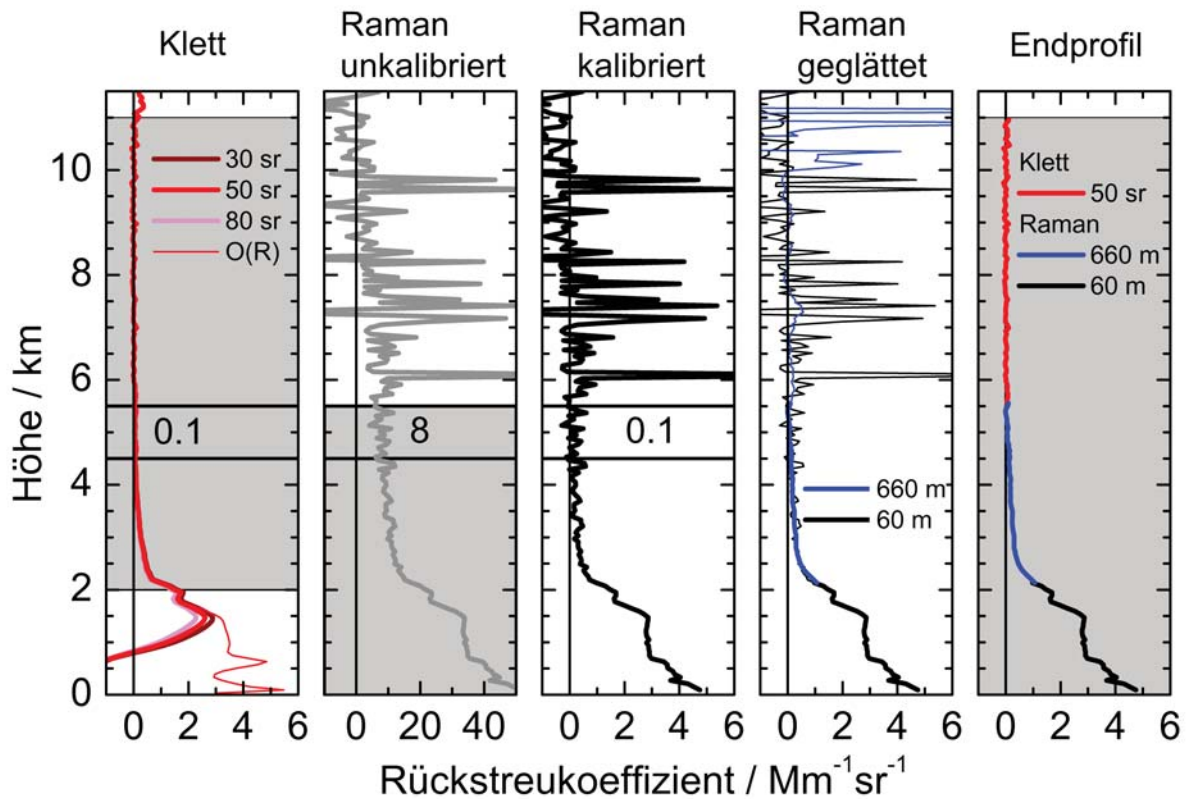


Abb. 3.1.: Von links nach rechts: Klett-Rückstreuprofil für Lidarverhältnisse von 30 sr, 50 sr und 80 sr ohne, und 50 sr mit Überlappkorrektur (rote, dünne Linie) mit dem Referenzwert im Höhenbereich von 4,5 bis 5,5 km und grau unterlegtem Vertrauensbereich; das vorläufige Profil der Raman-Rückstreuung für eine Höhenauflösung von 60 m mit dem Vertrauensbereich (grau unterlegt), dem Referenzhöhenbereich und dessen Mittelwert (man beachte die abweichende Achseneinteilung); das mittels Referenzwert aus dem Klett-Rückstreuprofil kalibrierte Profil der Raman-Rückstreuung; das kalibrierte Raman-Rückstreuprofil mit einer Höhenauflösung von 60 m und vertikal geglättet über 660 m (fett bis zur oberen Grenze des Vertrauensbereich, dünn darüber); das endgültige Rückstreuprofil kombiniert aus Raman-Rückstreuprofil mit 60 m Höhenauflösung bis 2 km und vertikal über 660 m gemittelt bis 5,5 km sowie dem Klett-Rückstreuprofil mit einem Lidarverhältnis von 50 sr von 5,5 bis 11 km.

Die Vor- und Nachteile von Klett- und Raman-Methode sind in Tabelle 3.1 noch einmal zusammengefasst.

Tabelle 3.1.: Vor- und Nachteile der Klett- und Raman-Methode zur Bestimmung von Rückstreuprofilen.

Klett-Methode	Raman-Methode
+ geringer Einfluss des Signalrauschens auf das Profil auch bei Tagmessungen	– großer Einfluss des Signalrauschens auf das Profil bei Tagmessungen
– Annahme einer Überlappkorrekturfunktion	+ der Überlappereffekt hebt sich bei der Berechnung auf
– Annahme des Lidarverhältnisses, welches mit der Höhe stark schwanken kann	+ keine Annahme des Lidarverhältnisses notwendig
– Annahme eines Referenzwertes	– Annahme eines Referenzwertes

3.1.4. Bestimmung von Schichtgrenzen mit der Gradientenmethode

Änderungen in der Aerosolkonzentration zeigen sich im Vertikalprofil des Lidarsignals als starke Gradienten. Aerosolschichten wurden im Rahmen dieser Arbeit mit der sogenannten Gradientenmethode identifiziert. Auch die Grenzschichthöhe kann mit dieser Methode ermittelt werden.

Für diese Arbeit sollen nur Aerosolschichten untersucht werden, die nicht aus lokalen Quellen stammen. Daher muss die planetare Grenzschicht⁵ und die darüber liegende Restschicht⁶ sicher erkannt und vor der weiteren Auswertung eliminiert werden. Im Folgenden werden die planetare Grenzschicht und die Restschicht zusammenfassend als Grenzschicht bezeichnet. Beide Schichten sind durch eine wesentlich höhere Aerosolkonzentration charakterisiert als die freie Troposphäre. Daher ist die Gradientenmethode gut geeignet, um die planetare Grenzschicht und die Restschicht zu identifizieren. *Mattis et al.* (2008) haben die Zuverlässigkeit dieser Methode zur Bestimmung der Grenzschicht mit Radiosondendaten evaluiert und bestätigt.

Ein Beispiel für die Anwendung der Gradientenmethode ist in Abbildung 3.2 gezeigt. Dargestellt ist die Zeitreihe des entfernungskorrigierten Lidarsignals bei 1064 nm der Messung vom 24.07.2006 auf der linken Seite und der Logarithmus der ersten Ableitung des korrigierten Signals $\frac{dS(R,1064 \text{ nm})}{dR}$ auf der rechten Seite. Die Grenzschicht und die Aerosolschichten sind auf dem Farbplot als rote Bereiche gut zu erkennen. Höhenbereiche ohne Partikel sind blau eingefärbt. Die Grenzen der Aerosolschichten können aber auch am Gradienten des Signals gut abgelesen werden und sind im rechten Teil der Abbildung 3.2 eingezeichnet. Starke Gradienten bezeichnen die Übergänge zwischen Grenzschicht und freier Troposphäre beziehungsweise zwischen Aerosolschichten und vergleichsweise

⁵Die planetare Grenzschicht ist über konvektive, turbulente Prozesse definiert (*Foken, 2003*) und nicht über die Aerosolkonzentration. In dieser gut durchmischten Schicht ist jedoch im Allgemeinen eine wesentlich höhere Aerosolkonzentration zu finden als in der freien Troposphäre.

⁶Als Restschicht werden die Reste der Mischungsschicht des Tages bezeichnet, die sich über der weniger dicken nächtlichen Grenzschicht halten. Diese bildet sich kurz vor Sonnenuntergang in Bodennähe (*Foken, 2003*).

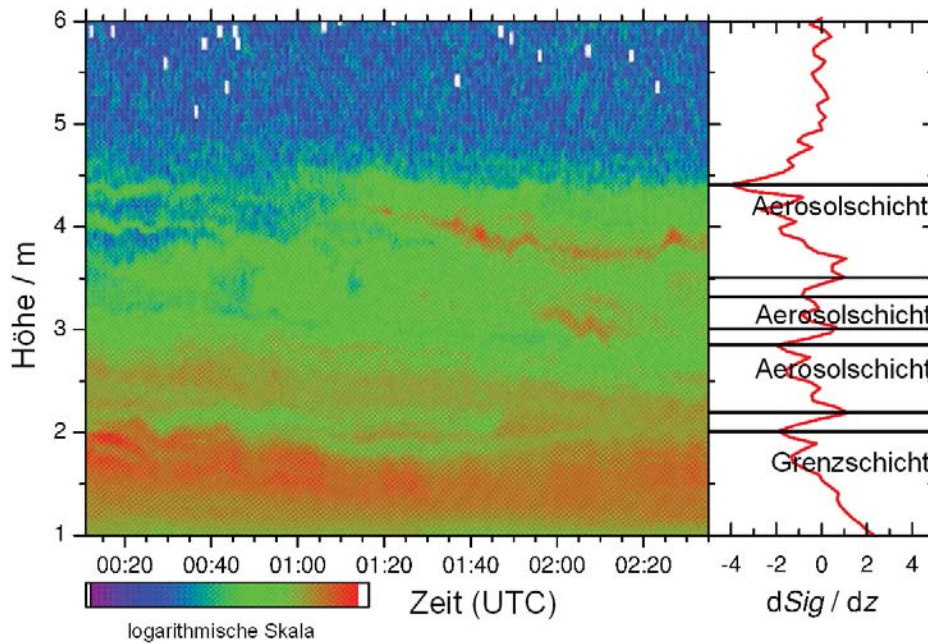


Abb. 3.2.: Zeitreihe der Lidarmessung am Morgen des 24.07.2006 (links) und der entsprechende Signalgradient (rechts). Der Farbplot zeigt das Lidarsignal auf logarithmischer Skala.

sauberen Luftschichten.

Die räumliche Auflösung des Lidars beträgt 400 ns, was ungefähr 60 m entspricht. Da für die Berechnung eines Gradienten mindestens drei Datenpunkte notwendig sind, beträgt die minimale Dicke einer mit dieser Methode detektierten Aerosolschicht etwa 180 m.

Es wurden keine Grenzwerte definiert, ab wann ein starker Gradient als solcher bezeichnet werden kann, da diese Werte natürlich auch von der Hintergrundaerosolkonzentration abhängen.

Die zweite Methode, Aerosolschichten zu finden, ist das Ablesen von kohärenten Strukturen im Farbplot der Zeitreihe (Abbildung 3.2, links). Diese Methode ist von der vorher beschriebenen unabhängig. Die beiden Methoden sind im Einzelnen subjektiv, stützen sich jedoch gegenseitig, wenn sie zusammen angewendet werden.

3.1.5. Lidardatenanalyse in der Praxis

Die vertikalen Aerosolprofile wurden mit einem Mehrwellenlängen-Raman-Lidar gemessen, das bereits in Abschnitt 3.1.1 beschrieben wurde. Es wurde die elastische Rückstreuung für die drei Wellenlängen 355 nm, 532 nm und 1064 nm gemessen. Hinzu kommen die Raman-Signale aus der inelastischen Streuung an Stickstoffmolekülen. Diese sind notwendig für die Berechnung der Partikelextinktionskoeffizienten (siehe auch Abschnitt 3.1.3.2).

Die Berechnung der Profile ist zum Teil problematisch. Es gibt viele Faktoren, die für eine ideale Messung erfüllt sein müssen. Einige dieser Faktoren sind im folgenden Ab-

schnitt gezeigt. Danach sind Fälle aufgeführt, in denen nicht alle dieser Kriterien erfüllt sind.

3.1.5.1. Gut auswertbare Fälle

Eine gut auszuwertende Messung sollte nachts durchgeführt werden. Optimalerweise herrschen wolkenlose Bedingungen, so dass auch Signale aus großer Höhe mit hohem Signal-zu-Rauschverhältnis gemessen werden können. In einem idealen Fall kann der Ergebnisdatensatz vollständig bestimmt werden. Die Ergebnisparameter sind für das verwendete Lidarsystem

- die Schichtgrenzen,
- der Rückstreuoeffizient bei den drei Wellenlängen 355 nm, 532 nm und 1064 nm,
- der Extinktionskoeffizient bei den Wellenlängen 355 nm und 532 nm,
- das Lidarverhältnis bei den Wellenlängen 355 nm und 532 nm,
- das Depolarisationsverhältnis⁷ bei 532 nm,
- der Ångströmxponent aus der Rückstreuung bei 355 und 532 nm sowie bei 532 und 1064 nm und aus der Extinktion bei 355 und 532 nm,
- die optische Dicke der identifizierten Schicht,
- der effektive Radius als Mittelwert für einzelne Schichten,
- die Einzelstreueralbedo als Mittelwert für einzelne Schichten,
- die Oberfläche und Volumenkonzentration der Partikel als Schichtmittelwerte und
- die Partikelanzahlkonzentration als Schichtmittelwerte.

Die Messung am frühen Morgen des 24.07.2006 erfüllt alle oben genannten Kriterien. Mittels Gradientenmethode konnten, wie in Abschnitt 3.1.4 schon gezeigt, drei Schichten in der freien Troposphäre bestimmt werden. Die Profile einiger der oben genannten Aerosoleigenschaften sind beispielhaft in Abbildung 3.3 gezeigt. Die Aerosolschichten sind grau unterlegt. Mittelwerte der Rückstreuoeffizienten, der Extinktionskoeffizienten, der Lidarverhältnisse und der Ångströmxponenten für die einzelnen Schichten sind als dicke senkrechte Linien dargestellt. Das Lidarverhältnis ist ein Beispiel dafür, dass einige Größen zum Teil nicht für die gesamte Schicht berechnet werden können. In solchen Fällen wurde der Mittelwert aus dem vorhandenen Höhenbereich innerhalb der Schicht

⁷Das Lidar sendet linear polarisiertes Licht aus. Bei der Streuung an nicht-sphärischen Partikeln, zum Beispiel Eis (*Schotland et al.*, 1971) oder Saharastaub (*Müller et al.*, 2003), ändert sich die Polarisation. Das zurückgestreute Licht hat einen Anteil, der orthogonal zum ausgesendeten polarisiert ist. Das Depolarisationsverhältnis ist das Verhältnis von senkrecht zu parallel polarisiertem Licht, in Bezug auf die ausgesendete Polarisation.

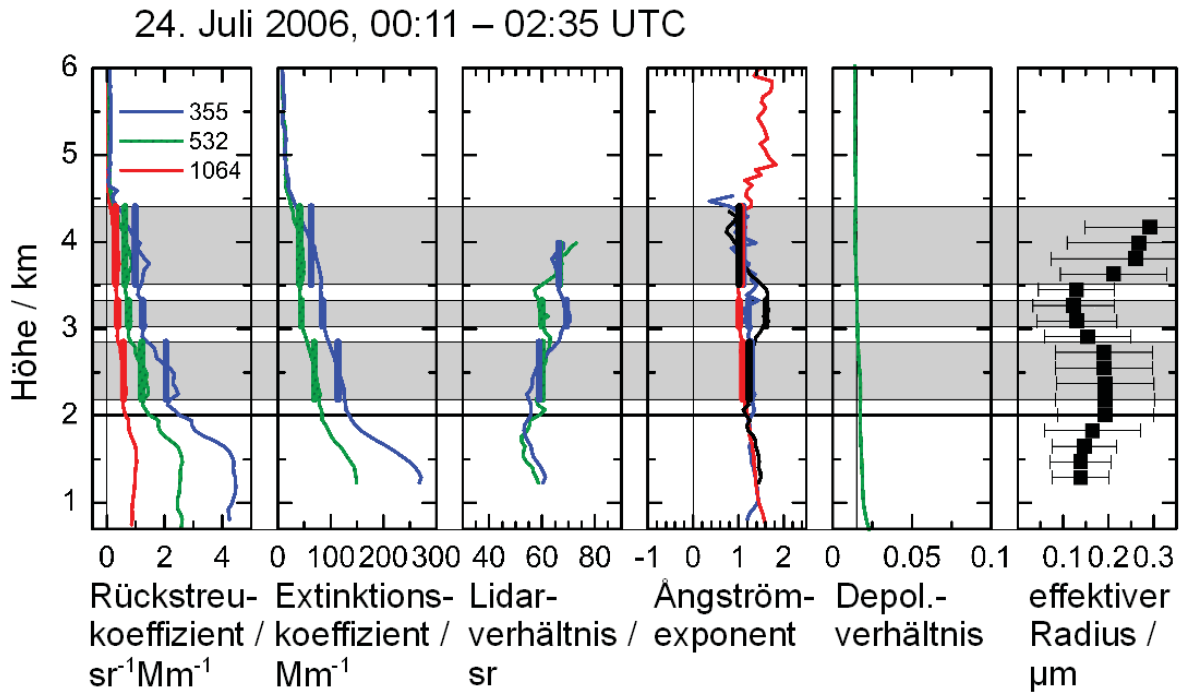


Abb. 3.3.: Vertikalprofile der analysierten Lidardaten aus der Messung vom Morgen des 24.07.2006. Von links nach rechts: der Rückstreu- koeffizient bei 355 nm (blau), 532 nm (grün) und 1064 nm (rot); der Extinktionskoeffizient bei 355 nm (blau) und 532 nm (grün); das Lidarverhältnis bei 355 nm (blau) und 532 nm (grün); der Ångströmxponent aus der Extinktion bei 355 und 532 nm (schwarz) und aus der Rückstreuung bei 355 und 532 nm (blau) sowie bei 532 und 1064 nm (rot); das Depolarisationsverhältnis bei 532 nm und der effektive Radius (von *Kolgotin und Müller (2008)*). Die grau unterlegten Höhenbereiche kennzeichnen die detektierten Aerosolschichten und die schwarze Linie in der Höhe von etwa 2 km zeigt die Höhe der planetaren Grenzschicht an. Die dicken senkrechten Linien in den ersten vier Diagrammen sind die Schichtmittelwerte, soweit diese berechnet werden konnten. Zeitlich wurden die Profile über 145 Minuten gemittelt.

berechnet und als Mittelwert der gesamten Schicht angenommen. Der effektive Radius wurde nach der Inversionsmethode von *Kolgotin und Müller (2008)* berechnet und für diese Arbeit zur Verfügung gestellt.

3.1.5.2. In der Auswertung problematische Fälle

Die meisten Fälle sind nicht ideal. Oft können nicht alle oben aufgelisteten Größen ermittelt werden. Die Bestimmung der Schichtgrenzen bildet die Grundlage für die vorgestellte Datenauswertung. Diese sind also für alle Fälle vorhanden. Das Profil des Rückstreu- koeffizienten bei 532 nm oder ein Teil davon konnte ebenfalls in den meisten Fällen bestimmt werden. In gut auszuwertenden Fällen konnten die Rückstreu- koeffizienten mit der Raman-Methode berechnet werden. Wurde durch das Raman-Profil nicht der gesamten zu untersuchende Höhenbereich abgedeckt, wurde es durch das Klett-Rückstreuprofil ergänzt. Konnte das Raman-Signal nicht verwendet werden, musste das gesamte Profil des Rückstreu- koeffizienten, nach der Klett-Methode berechnet, herangezogen werden. Auch das Partikelextinktionsverhältnis nach der Raman-Methode ist in vielen Fällen nicht

3. Grundlagen und Verfahren zur Datenauswertung

verfügbar. Das Profil des Extinktionskoeffizienten kann jedoch aus dem Rückstreuprofil abgeschätzt werden. Hierfür wurde die Rückstreuung bei 532 nm mit einem klimatologischen Wert des Lidarverhältnisses multipliziert.

Tagmessung Wie bereits erwähnt, ist durch den Tageslichthintergrund die Signalqualität am Tag oft nicht sehr hoch. Die berechneten Raman-Rückstreuprofile sind in der freien Troposphäre oft stark verrauscht und sind in dieser Höhe nicht für die weitere Auswertung geeignet.

Als Beispiel ist die Mittagsmessung vom 03.04.2002 in Abbildung 3.4 gezeigt. Vier Aerosolschichten konnten identifiziert werden. Das linke Profil in Abbildung 3.4 zeigt den nach der Raman-Methode berechneten Partikelrückstreukoeffizient, das mittlere das Profil des Klett-Rückstreukoeffizienten und das rechte stellt die Kombination von Raman- und Klett-Lösung dar. Der Referenzwert für das Profil des Klett-Rückstreukoeffizienten

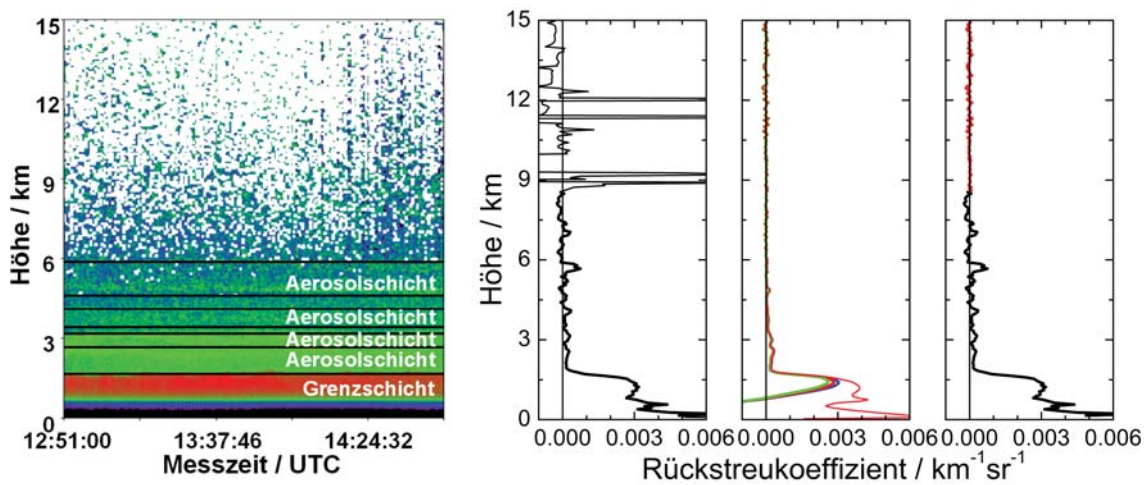


Abb. 3.4.: *Links:* Zeitreihe der Signalstärke der Mittagsmessung vom 03.04.2002 bei 1064 nm mit 60 m Höhengauflösung. Die Zeitauflösung entspricht etwa 30 s. Insgesamt entspricht das in diesem Fall 231 Zeitintervallen. *Mitte links:* Partikelrückstreukoeffizient nach der Raman-Methode mit einer Höhengauflösung von 60 m bis etwa 1700 m Höhe, gemittelt über 300 m von 1700 m bis 5900 m und über 660 m darüber, außerdem gemittelt über den gesamten Zeitraum. Die fette Linie kennzeichnet den vertrauenswürdigen Höhenbereich des Profils. Die dünne Linie ist der Teil des Profils, der zu stark verrauscht ist. *Mitte rechts:* Partikelrückstreukoeffizient nach der Klett-Methode für die Lidarverhältnisse 30 sr (blau), 50 sr (rot) und 80 sr (grün) ohne, und 50 sr (rot, dünn) mit Überlappkorrektur. *Rechts:* Die Kombination von Raman-Rückstreuprofil (schwarz) bis 8600 m und Klett-Rückstreuprofil (rot) darüber.

wurde für die Schicht zwischen 6500 und 7500 m festgelegt und als Null angenommen. Die Zeitreihe des Lidarsignals zeigt in dieser Höhe nur sehr geringe Aerosolkonzentrationen. Für die Berechnung des Raman-Profiles wurde der gleiche Referenzwert im gleichen Höhenbereich angenommen. Es zeigt sich, bis auf den Überlappbereich, eine gute Übereinstimmung zwischen den beiden Profilen. Die Klett-Lösung ist jedoch oberhalb von 8 km im Gegensatz zur Raman-Lösung wenig verrauscht, muss aber unterhalb von 2000

3. Grundlagen und Verfahren zur Datenauswertung

m hinsichtlich des Überlappungseffektes korrigiert werden. Dies bringt große Unsicherheiten unterhalb von 500 bis 1000 m mit sich.

Messfälle mit Wolken Probleme in der Auswertung ergaben sich insbesondere bei Fällen mit Wolken. Wolken weisen eine sehr hohe Rückstreuung auf und erschweren somit die Detektion der Aerosolschichten und die Auswertung der verschiedenen Parameter. Wurden die Wolken nur kurzzeitig erfasst, wurde der betroffenen Zeitraum bei der Berechnung der Rückstreuprofile weggelassen. Erstreckten sich die Wolken jedoch über einen längeren Messzeitraum, hätte das Weglassen von Zeitintervallen einen zu großen Datenverlust bedeutet. In diesen Fällen wurden Höhenbereiche mit Wolken aus den Rückstreuprofilen ausgeschnitten und die nicht für weitere Auswertungen verwendet.

Wie Abbildung 3.5 belegt, können beide Fälle auch kombiniert auftreten. Der Zeitreihenplot in Abbildung 3.5 zeigt Wolken in knapp 2000 m Höhe und in etwa 2500 m Höhe. Die tieferen Wolken in 2000 m Höhe erstrecken sich fast über den gesamten Messzeitraum. Die höheren Wolken wurden nur in 22 Zeitintervallen, also für etwa 11 Minuten aufgenommen. Die rote Linie im rechten Diagramm der Abbildung 3.5 zeigt das Profil des Partikelrückstreukoeffizienten berechnet nach der Raman-Methode bei Mittelung über den gesamten Messzeitraum. Da bei dieser Vorgehensweise ein größerer Höhenab-

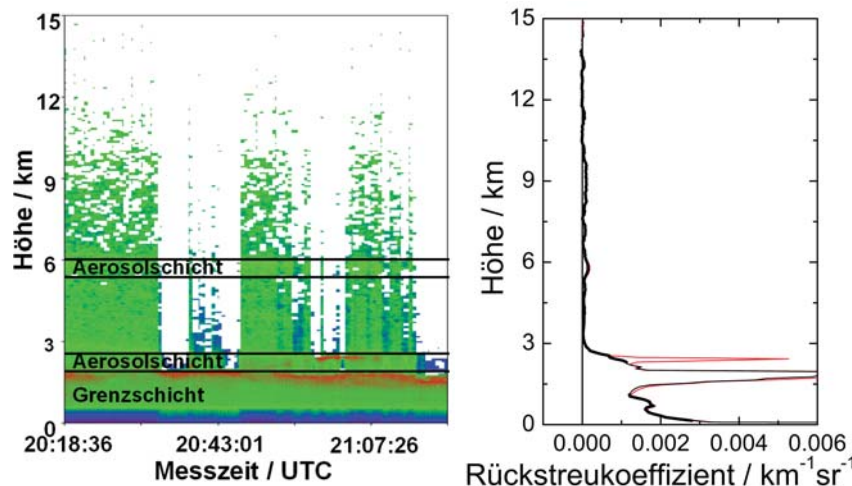


Abb. 3.5.: *Links:* Zeitreihe der Signalstärke der Abendmessung vom 04.07.2002 bei 1064 nm mit 60 m Höhenauflösung. Die Zeitaufösung entspricht etwa 30 s. *Rechts:* Partikelrückstreukoeffizient nach der Raman-Methode aus der Abendmessung des 04.07.2002 mit einer Höhenauflösung von 60 m bis etwa 2700 m Höhe und gemittelt über 300 m darüber, außerdem gemittelt über 50 Minuten. Die rote Linie zeigt den Partikelrückstreukoeffizienten nach der Raman-Methode, wenn über den gesamten Messzeitraum gemittelt wird. Die dünne schwarze Linie zeigt den unteren Wolkenbereich, der ebenfalls nicht für die Auswertung verwendet wurde. Die dicke schwarze Linie kennzeichnet das Profil des Partikelrückstreukoeffizienten nach der Raman-Methode das für die Berechnung weiterer Größen verwendet wurde.

schnitt durch Wolken beeinträchtigt wird, als bei der Entfernung des Zeitraumes in dem

die oberen Wolken gemessen wurden, wurde im Folgenden nur noch das schwarze Profil des linken Diagramms in Abbildung 3.5 betrachtet. Der Zeitraum von 11 Minuten, in dem die höheren Wolken auftreten, wurde nicht weiter berücksichtigt. Die übrigen Zeitintervalle wurden für die Berechnung des Rückstreuprofiles (Abbildung 3.5, links) verwendet. Die dicke schwarze Linie zeigt den Teil des Raman-Profiles, der für die weitere Auswertung verwendet wurde. Die dünne schwarze Linie kennzeichnet den Einfluss der tieferen Wolken. Dieser Höhenbereich wurde für das endgültige Raman-Profil ebenfalls nicht verwendet.

3.2. EMEP

EMEP (Co-operative Programme for Monitoring and Evaluation of the Long-range Transmission of Air Pollutants in Europe) ist ein wissenschaftliches Programm, das betrieben wird, um grenzüberschreitende Probleme bezüglich der Luftverschmutzung in internationaler Zusammenarbeit zu lösen. Diese Zusammenarbeit wird von CLRTAP (Convention on Long-range Transboundary Air Pollution) geregelt. Ziel dieses Abkommens ist eine Begrenzung und, falls möglich, eine Reduktion der Verursachung von Luftverschmutzung durch die Teilnehmerstaaten (*CLRTAP-Homepage*, 2008). Die Teilnehmerstaaten gehören der UNECE (United Nations Economic Commission for Europe, Wirtschaftskommission der Vereinten Nationen für Europa) an.

EMEP ist für die wissenschaftliche Unterstützung des LRTAP-Abkommens zuständig. Die Aufgaben von EMEP umfassen die Beobachtung der Atmosphäre und die Atmosphärenmodellierung, die Bestandsaufnahme und Hochrechnung der Emissionen sowie eine Beurteilung der Situation. Die Arbeit von EMEP wird von vier Zentren koordiniert und von vier Arbeitsgruppen durchgeführt (*EMEP-Homepage*, 2008). Neben den Messungen und den Emissionsangaben bilden Modellergebnisse die Grundlage zu einer flächendeckenden Charakterisierung. Das Gesamtmodell hat eine Euler'sche Struktur. (*EMEP-Modellbeschreibung*, 2008)

Die Emissionsdaten von verschiedenen Spurengasen und Luftschadstoffen sind über die *EMEP-Datenbank* (2008) frei verfügbar (*Vestreng und others*, 2006, 2007). Für diese Arbeit wurden die Jahressummen der Emissionen von Kohlenmonoxid, von $PM_{2,5}$ und von PM_{coarse} verwendet.

Einige Beispielkarten, die man direkt aus der Datenbank (*EMEP-Datenbank*, 2008) herunterladen kann, sind in Abbildung 3.6 zu sehen. Diese Karten zeigen die Gesamtemissionen der Komponenten Kohlenmonoxid, Schwefeloxide, $PM_{2,5}$ und PM_{coarse} in Europa im Jahr 2005 in Tonnen. Auch Emissionsdaten anderer Komponenten sind frei verfügbar, wurden aber für die weitere Auswertung nicht verwendet und sind daher nicht gezeigt. Die Emissionsdaten aller in dieser Studie untersuchten Jahre liegen vor. Für diese Arbeit wurde jeweils das zutreffende Jahr für die Auswertung verwendet. Es treten keine großen Unterschiede von Jahr zu Jahr auf (siehe Abbildung 3.7).

3. Grundlagen und Verfahren zur Datenauswertung

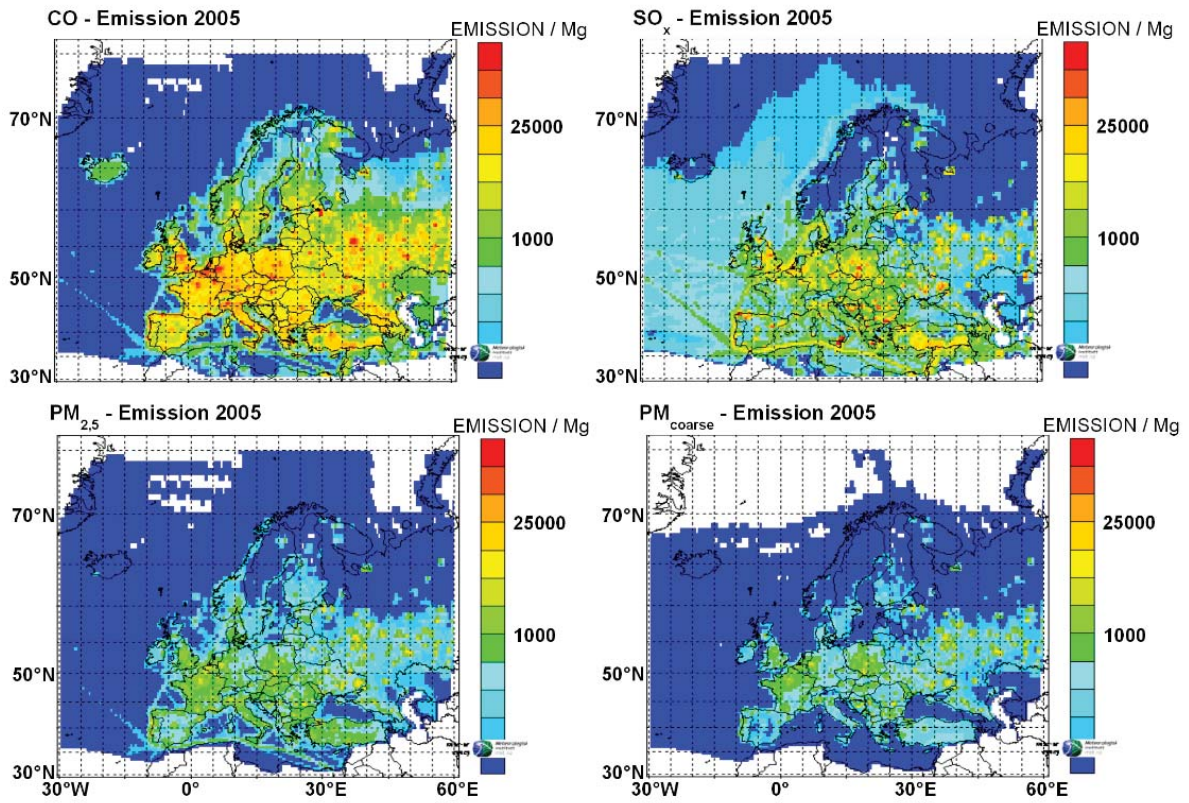


Abb. 3.6.: Gesamtemissionen von Kohlenmonoxid, Schwefeloxiden, PM_{2,5} und PM_{coarse} im Jahr 2005 in Tonnen.

3. Grundlagen und Verfahren zur Datenauswertung

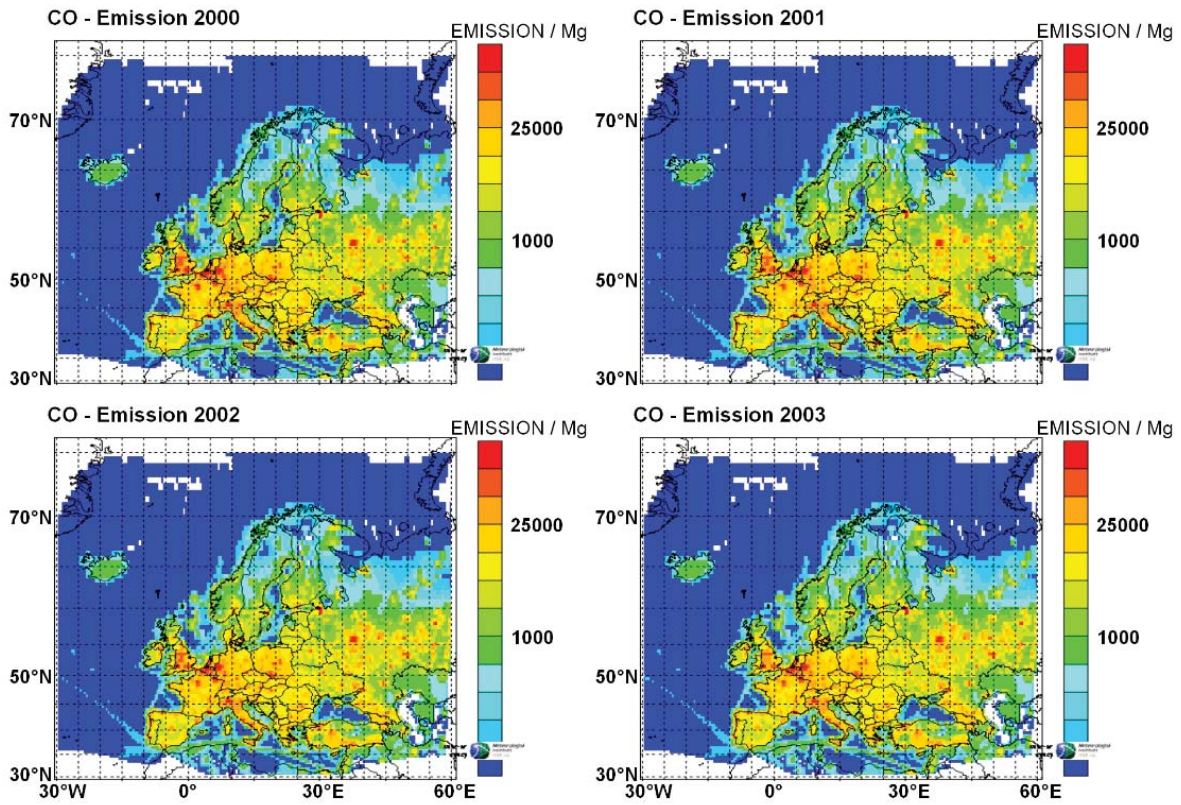


Abb. 3.7.: Gesamtemission von Kohlenmonooxid in den Jahren von 2000 bis 2003 in Tonnen.

3.3. Transportmodelle

Zur Untersuchung dynamischer Prozesse in der Atmosphäre von der synoptischen bis zur klimatologischen Skala sind Trajektorien ein gutes Hilfsmittel. Sie werden aus meteorologischen Feldern berechnet und erleichtern das Erkennen von Strömungsmustern. Trajektorien können vorwärts in der Zeit berechnet werden und somit die Ausbreitung von Luftmassen im Laufe der Zeit beschreiben. Rückwärtstrajektorien hingegen können Transportwege und mögliche Quellgebiete von bestimmten Luftmassen angeben. Eine Anwendung finden Trajektorien in Transportmodellen. Es wird zwischen den folgenden beiden Modellarten unterschieden. In Euler'schen Transportmodellen wird die ein- und ausströmende Luft in einzelnen Gitterzellen betrachtet. Nachteile dieser Modelle sind der hohe Rechenaufwand und das Auftreten von künstlicher numerischer Diffusion. Diese Art der Diffusion tritt bei Lagrange'schen Partikeldispersionsmodellen, kurz LPDM, nicht auf. Das Auflösungsvermögen von LPDM ist bei gleicher Rechenleistung besser und feinskalige Strukturen können genauer wiedergegeben werden als bei Euler'schen Modellen (*Stohl, 1998a*), da ein LPDM nicht an ein Berechnungsgitter gebunden ist. Die Lagrange'sche Betrachtungsweise verfolgt die Bewegung des Luftpaketes in Raum und Zeit. Die daraus resultierenden Zugbahnen sind die Trajektorien.

Im Abschnitt 3.3.2 werden Lagrange'sche Modelle näher betrachtet. Im vorliegenden Kapitel wird außerdem die Berechnung verschiedener Arten von Trajektorien vorgestellt.

3.3.1. Berechnung von Trajektorien

Zur Vereinfachung werden die Luftpakete in Lagrange'schen Modellen oft als infinitesimal klein angenommen. Die Trajektorie eines solchen Luftpaketes ist definiert durch die differentielle Trajektoriengleichung (aus *Stohl (1998a)*)

$$\frac{d\mathbf{X}}{dt} = \mathbf{v}\{\mathbf{X}(t)\}, \quad (3.28)$$

wobei t die Zeit, \mathbf{X} der Ortsvektor (x, y, z) und \mathbf{v} der Windvektor (u, v, w) ist. Die Lösung der Trajektoriengleichung kann auf unterschiedliche Arten durchgeführt werden. Bei der kinematischen Lösung wird nur das Windfeld verwendet. Bei der dynamischen Lösung wird das Luftpaket mit einer konservativen Größe, wie zum Beispiel der potentiellen Temperatur, markiert. Für diese Lösung wird neben dem Geschwindigkeitsfeld auch das Massenfild genutzt. Die kinematischen Trajektorien werden als genauer betrachtet und haben sich durchgesetzt (*Stohl und Seibert, 1998b*).

Die kinematische Lösung der obigen Gleichung sieht im allgemeinen dreidimensionalen

3. Grundlagen und Verfahren zur Datenauswertung

Fall wie folgt aus

$$\begin{aligned}x_{n+1} &= x_n + \int_{t_n}^{t_{n+1}} u(x, y, z, t) dt \\y_{n+1} &= y_n + \int_{t_n}^{t_{n+1}} v(x, y, z, t) dt \\z_{n+1} &= z_n + \int_{t_n}^{t_{n+1}} w(x, y, z, t) dt.\end{aligned}\tag{3.29}$$

Die Indizes kennzeichnen den Zeitschritt. Dieses iterative Schema führt zu einem Endpunkt $(x_{n+1}, y_{n+1}, z_{n+1})$ einer Vorwärtstrajektorie mit dem Startpunkt (x_n, y_n, z_n) , beziehungsweise zu einem Endpunkt (x_n, y_n, z_n) einer Rückwärtstrajektorie mit dem Startpunkt $(x_{n+1}, y_{n+1}, z_{n+1})$. Die Lösung für den Spezialfall isentroper Flächen beispielsweise, kann wie von *Merrill et al.* (1986) geschrieben werden

$$\begin{aligned}x_{n+1} &= x_n + \int_{t_n}^{t_{n+1}} u(x, y, \theta, t) dt \\y_{n+1} &= y_n + \int_{t_n}^{t_{n+1}} v(x, y, \theta, t) dt.\end{aligned}\tag{3.30}$$

Hier ist (x_{n+1}, y_{n+1}) der Endpunkt einer Vorwärtstrajektorie mit dem Startpunkt (x_n, y_n) , beziehungsweise (x_n, y_n) der Endpunkt einer Rückwärtstrajektorie mit dem Startpunkt (x_{n+1}, y_{n+1}) . Isentrope Flächen sind Flächen gleicher potentieller Temperatur

$$\theta = T \left(\frac{1000 \text{ hPa}}{p} \right)^{R_L/c_p},\tag{3.31}$$

wobei θ die potentielle Temperatur, T die aktuelle Temperatur, p der aktuelle Luftdruck in hPa, R_L die spezifische Gaskonstante und c_p die spezifische Wärmekapazität ist.

Von praktisch angewendeten Trajektorienmodellen wird die Trajektorienungleichung wie folgt berechnet (*Stohl et al.*, 2002a)

$$\Delta x_i = v_i * \Delta t,\tag{3.32}$$

wobei $i = 1, 2, 3$ die drei Raumkoordinaten kennzeichnet.

Trajektorien hängen immer von den verwendeten meteorologischen Feldern ab. Diese stellen die größte Fehlerquelle in der Berechnung dar. Die genauesten Winddaten liefern die numerischen Wettervorhersagezentren, da sie die am besten entwickelten Methoden nutzen. Weitere Fehlerquellen sind Interpolation oder fehlerhafte Konvergenz. Die zeitliche Interpolation erzeugt größere Fehler als die räumliche (*Stohl et al.*, 1995). Außerdem werden durch die Interpolation der vertikalen Windkomponente größere Fehler verursacht, als durch die des Horizontalwindes, da das vertikale Windfeld eine größere Veränderlichkeit aufweist (*Stohl et al.*, 1995). Die Unsicherheit der Trajektorien kann zu einer Fehlinterpretation der Strömungssituation führen. Somit ist die Genauigkeit der Beziehungen zwischen Quelle und Empfänger immer begrenzt durch die Genauigkeit der

3. Grundlagen und Verfahren zur Datenauswertung

Trajektorien.

Es gibt verschiedene Arten der Trajektorienberechnung, deren Unterschiede hauptsächlich in der Behandlung der Vertikalgeschwindigkeit liegen. Einige werden in Tabelle 3.2 kurz erläutert. Weitere Informationen dazu sind in *Stohl et al. (1995)* und *Stohl und Seibert (1998b)* zu finden.

Tabelle 3.2.: Arten der Trajektorienberechnung und die jeweilige Berücksichtigung der Vertikalgeschwindigkeit von *Stohl et al. (1995)* und *Stohl und Seibert (1998b)*.

Bezeichnung	Berechnung	Vertikalbewegung
dreidimensional	alle drei Windkomponenten werden einbezogen	explizit
isoeta	auf einem Modelllevel, die Luftpakete folgen den Modelloberflächen	berücksichtigt vernachlässigt ($w = 0$)
geländefolgende isoeta	analog zu isoeta; die Vertikalkoordinate ist so gewählt, dass das unterste Modelllevel dem Gelände folgt	vernachlässigt
isentrop	nur die horizontalen Windkomponenten werden genutzt; die Höhe wird so gewählt, dass die Bedingung einer konstanten potentiellen Temperatur entlang der Trajektorie erfüllt ist (siehe auch Gleichungen 3.30)	adiabatisch
isobar	Horizontalwind wird auf die vorgegebenen Druckflächen interpoliert	vernachlässigt
Grenzschicht- trajektorien	aus dem in der Grenzschicht vertikal gemittelten horizontalen Wind	parametrisiert

$$\bar{v} = \frac{1}{p_h - p_s} \int_{p_s}^{p_h} \mathbf{v} dp; \quad (3.33)$$

p_h ... Druck am Oberrand der Grenzschicht

p_s ... Bodendruck

Die Höhe der Grenzschicht kann entweder direkt aus den meteorologischen Daten berechnet werden, oder es wird ein klimatologischer Wert eingesetzt.

Die große Unsicherheit bei der Trajektorienberechnung auf Grund von Fehlern in den meteorologischen Ausgangsfeldern, wird zum Problem, wenn nur einzelne Trajektorien betrachtet werden. Abweichungen von 100 % sind durchaus möglich (*Stohl et al., 2002a*), wobei hier die Länge der Trajektorie als Referenz dient. Vor allem in divergenter Strömung bei Vorwärtstrajektorien beziehungsweise konvergenter Strömung bei Rückwärtstrajektorien kann die Position der Trajektorie stark von der Realität abweichen.

Ein weiteres Problem ist, dass die Richtigkeit einer Trajektorie selten überprüft werden kann. Es wurden jedoch Validierungsexperimente mit Ballons und radioaktiven Tracern durchgeführt (*Stohl et al.*, 1998c). Damit wurden die verschiedenen Berechnungsarten experimentell getestet, um einen Vertrauensbereich ermitteln zu können. Einzelne Trajektorien können jedoch, je nach Wetterlage und Ausgangssituation, erheblich davon abweichen.

Tracer sind Luftpakete die mit einer bestimmten Eigenschaft markiert werden. Das kann Radioaktivität sein, aber auch eine bestimmte meteorologische Eigenschaft, die sich von denen der umgebenden Luftmasse unterscheiden. Die Berechnung infinitesimal kleiner Luftpakete ist demnach ein weiterer Nachteil bei der Betrachtung einzelner Trajektorien. Transport von Luftschadstoffen oder Tracern ist damit nicht möglich. Eine einzelne Trajektorie kann außerdem kaum eine größere Luftmasse repräsentieren, da diese Verformungs- oder gar Teilungsprozesse durchlaufen kann. Für Transportuntersuchungen ist die Berechnung einzelner Trajektorien also wenig aussagekräftig. Besser dafür geeignet sind Transportmodelle.

3.3.2. Lagrange'sche Partikeldispersionsmodelle

Diese Modelle simulieren Transport- und Diffusionsprozesse durch die Berechnung von Trajektorien von sehr vielen kleinen Luftvolumina, auch Partikel genannt. Für die Transportberechnungen werden Horizontal- und Vertikalwind eines meteorologischen Modells verwendet. Die turbulenten Anteile gehen nicht mit ein. Trotzdem erlauben LPDM eine realistische Transportberechnung in der Grenzschicht, also unter turbulenten Bedingungen. Diese Schwankungen werden statistisch modelliert. Die turbulente Diffusion wird mittels Langevin-Gleichung (*Thomson*, 1987), (*Stohl et al.*, 1998c)

$$dv_{ti} = a_i(\mathbf{X}, \mathbf{v}_t, t)dt + b_{ij}(\mathbf{X}, \mathbf{v}_t, t)dW_j \quad (3.34)$$

als Markov-Prozess⁸ beschrieben (*Legg und Raupach*, 1982). Hier ist v_t die turbulente Geschwindigkeit, a_i sind Driftterme und b_{ij} Diffusionsterme. Desweiteren sind dW_j schrittweise Komponenten eines Wiener-Prozesses⁹ mit dem Mittelwert 0 und der Varianz dt . Sie sind unkorreliert in der Zeit. Da alle simulierten Prozesse linear sind, ist die Rückwärtsrechnung einfach umzusetzen.

Bei der Berechnung der einzelnen Trajektorien der Luftvolumen können die gleichen Fehler auftreten, wie bei den einfachen Trajektorienmodellen. Die große Menge der Volumina erhöht jedoch die Wahrscheinlichkeit, dass im Mittel reale Zugbahnen repräsentiert werden.

Eine sehr wichtige Voraussetzung für die Anwendung eines LPDM ist das *well-mixed*-Kriterium (*Thomson*, 1987): Sind Volumina im Anfangsfeld gleichmäßig in der turbulenten Strömung verteilt, bleibt das während der Transportsimulation so. Nur Modelle,

⁸Stochastischer Prozess. Die Annahme hierbei ist, dass der Zustand eines Systems nicht von der Vergangenheit, sondern nur von der Gegenwart abhängt. Zufällige Zustandsänderungen können mit dem Markov-Prozess gut modelliert werden.

⁹Zeitstetiger stochastischer Prozess, der normal verteilte, unabhängige Zuwächse hat. Er wird ebenfalls zur Simulation zufälliger Entwicklungen verwendet.

die diese Bedingung erfüllen, sind physikalisch korrekt. Für die berechneten Trajektorien gilt außerdem, dass ursprünglich benachbarte Luftvolumen benachbart bleiben. Die Reihenfolge der Volumina bleibt also gleich.

Um Rechenzeit zu sparen, können in Quellnähe kurze Zeitschritte gewählt werden und längere Zeitschritte, wenn sich die betrachteten Luftvolumen in einer bereits gut durchmischten Schicht befinden. Die Ausgabe eines LPDM ist vierdimensional und somit sehr komplex.

3.3.2.1. Lagrange'sche Box-Modelle

Lagrange'sche Box-Modelle berechnen Konzentrationsänderungen innerhalb einer Box, die sich vorwärts entlang einer vorher berechneten Rückwärtstrajektorie bewegt. Diese Konzentrationsänderungen können zum Beispiel durch chemische Reaktionen oder Deposition verursacht sein. Advektion kann im Gegensatz zu Euler'schen Modellen nicht auftreten. Somit sind auch keine Randbedingungen notwendig. Diese Art der Berechnung ist sehr effizient bezüglich der Rechenleistung. In größeren Höhen sind diese Modelle gut anwendbar. In der Grenzschicht muss die Höhe der Box jeweils an die Grenzschichthöhe angepasst werden. Die Randbedingungen müssen in diesem Falle also bekannt sein, da Lufteintrag von oben möglich ist.

3.3.2.2. Lagrange'sche Säulenmodelle

Lagrange'sche Säulenmodelle berechnen den Luftaustausch zwischen Boxen, die in einer Säule übereinander angeordnet sind. Ein Problem hierbei ist, dass die Boxen exakt übereinander angeordnet sein sollten, um den turbulenten vertikalen Austausch korrekt wiederzugeben. Die vertikale Scherung des Horizontalwindes wirkt dem entgegen. Durch Vernachlässigung der Scherung werden diese Modelle ungenauer als dreidimensionale Euler'sche Modelle, sind jedoch weniger rechenaufwändig.

3.3.2.3. FLEXPART

Für diese Arbeit wird das Lagrange'sche Partikeldispersionsmodell FLEXPART verwendet (*Stohl et al.*, 2005). Dieses Modell simuliert den großräumigen und mesoskaligen Transport und die Diffusion von kleinen Luftvolumen in der Atmosphäre. Außerdem können trockene und nasse Deposition und radioaktiver Zerfall berechnet werden. Die Quellen der Luftvolumen können verschiedene Formen haben. So können mit FLEXPART Punkt-, Linien-, Flächen- oder Volumenquellen simuliert werden. Das Modell kann vorwärts in der Zeit ausgeführt werden, um zum Beispiel die Ausbreitung eines Schadstoffes von der Quelle zu simulieren, oder rückwärts in der Zeit, um potentielle Quellen von gemessenen Luftbestandteilen zu finden. FLEXPART ermöglicht außerdem das Einbetten von horizontal höher aufgelösten Gebieten. Die vertikale Auflösung lässt sich jedoch nicht variieren.

Für die Simulationen sind die dreidimensionalen Felder jeweils der drei Windkomponenten, der Temperatur und der spezifischen Feuchte notwendig, sowie die zweidimensionalen Felder des Bodendrucks, des Wolkenbedeckungsgrades, der Horizontalwindkompo-

nenten in 10 m Höhe, der Temperatur in 2 m Höhe, der Taupunkttemperatur in 2 m Höhe, des großskaligen und konvektiven Niederschlages, des fühlbaren Wärmestromes, der solaren Strahlung, der meridionalen und zonalen Windschubspannung am Boden, der Topographie, der Land-See-Verteilung und der subskaligen Standardabweichung der Topographie.

FLEXPART kann mit den meteorologischen Feldern verschiedener numerischer Wettervorhersagemodelle betrieben werden. Es gibt FLEXPART-Versionen für ECMWF¹⁰ und GFS¹¹ sowie für MM5¹². Im Gegensatz zu den nicht öffentlichen ECMWF-Datensätzen sind die Daten des GFS-Modells sowohl aktuell als auch archiviert frei verfügbar. Für diese Arbeit wurde die GFS-Version von FLEXPART verwendet.

Eine Programmbeschreibung basierend auf dem Handbuch (*Stohl et al.*, 2005) und die Fehlerbetrachtung an einem Beispiel sind ebenfalls im Anhang in Abschnitt A zu finden.

3.3.3. Anwendung von FLEXPART in dieser Studie

Ein sehr wichtiges Hilfsmittel für die Zuordnung von Quellregionen in dieser Arbeit war das Lagrange'sche Partikeldispersionsmodell FLEXPART. Es bietet zahlreiche Möglichkeiten der individuellen Anpassung. Die Einstellungen, die im Rahmen der vorliegenden Arbeit angewendet wurden, sind in den folgenden Abschnitten aufgeführt. Für einige Parameter wurden Vergleichsrechnungen durchgeführt, um das Optimum an Rechenleistung, Aussagekraft und Relevanz für das gestellte Problem zu erreichen. Die Ergebnisse dieser Tests werden ebenfalls im Folgenden aufgezeigt.

3.3.3.1. Allgemeines

Für die Zuordnung wurde in dieser Arbeit das Modell FLEXPART (Abschnitt 3.3.2.3) in der Version „6.4 for GFS“ verwendet. Es wurden Rückwärtsrechnungen über 10 Tage durchgeführt mit Zeitschritten von vier Stunden. Die Simulationen wurden im Gebiet von 0° bis 90° nördlicher Breite und von 90° westlicher bis 90° östlicher Länge mit einer Auflösung von 1° durchgeführt. Es wurden 50.000 Volumina über Leipzig entlassen. Diese wurden gleichmäßig verteilt, über den Zeitraum der untersuchten Messung und über den Höhenbereich der beobachteten Aerosolschicht, frei gesetzt.

Als Tracermaterial wurde Kohlenmonooxid gewählt. Die Simulation von CO-Volumen gibt die Luftströmung gut wieder, da dieses Gas eine sehr lange Lebensdauer hat (*Stohl et al.*, 2002b). Im Modell wurde dieser Tracer mit einer unendlichen Lebensdauer charakterisiert. Aerosolpartikel haben in der freien Troposphäre ebenfalls eine hohe Verweildauer und bewegen sich mit der jeweiligen Luftmasse fort. Kohlenmonooxid wird bei den meisten anthropogenen Emissionsarten freigesetzt und Europa weist nur wenige natürliche Aerosolquellen auf. Weitere Gründe für die Wahl von Kohlenmonooxid als Tracer sind, dass in FLEXPART bisher keine Partikeltracer zur Verfügung stehen und dass die

¹⁰ECMWF = European Centre for Medium-Range Weather Forecasts

¹¹GFS = Global Forecast System, das globale numerische Wettermodell des amerikanischen Wetterdienstes

¹²MM5 = Mesoscale Meteorology Model 5

3. Grundlagen und Verfahren zur Datenauswertung

Ergebnisse aus Simulationen von CO experimentell am einfachsten zu überprüfen und somit am besten untersucht sind.

Die meteorologischen Felder mit einer zeitlichen Auflösung von sechs Stunden und einer horizontalen Auflösung von 1° stammen aus der GFS-Analyse. Diese NCEP-FNL¹³ Datensätze werden für die Jahre 2000 bis 2006 online zur Verfügung gestellt (*CISL, FNL-Datensatz*, 2008). Die Auswertung der Lidarmessungen außerhalb dieses Zeitraumes konnten also mit dieser Modellversion nicht durchgeführt werden.

Ausgegeben werden die Ergebnisse von FLEXPART als Aufenthaltszeit pro Gitterzelle in Sekunden. Diese wird berechnet als Summe der Dauer des Aufenthalts von allen simulierten Volumina in der betreffenden Gitterzelle. Nach vier Stunden Simulationszeit wird eine neue Ausgabe erzeugt. Diese enthält die aufsummierten Aufenthaltszeiten über die vier Stunden und über jeweils 500 m bis zu einer Höhe von 1.000 m, über 1.000 m bis zu einer Höhe von 5.000 m und über 5.000 m bis 15.000 m. Diese Höheneinteilung kann vom Anwender vorgegeben werden. Im folgenden Abschnitt wird beschrieben, wie diese Ausgabefelder dargestellt werden können.

3.3.3.2. Analyse der FLEXPART-Ergebnisse

Für eine variable Darstellung der Simulationsergebnisse wurden eigene Werkzeuge geschaffen. Mit Hilfe von Skripten in der plattformunabhängigen Programmiersprache Python wurden verschiedene Ausgabeformen ermöglicht. Die Ergebnisse der FLEXPART-Simulationen werden als dreidimensionale Abbildungen ausgegeben. Auf x- und y-Achse sind jeweils die geographische Länge und Breite dargestellt. Die Farbskala bezeichnet den dekadischen Logarithmus der Summe der Aufenthaltszeiten aller simulierten Volumina in einer Gitterzelle.

Dargestellt werden können die Aufenthaltszeiten aufsummiert über den gesamten Simulationszeitraum oder nur über bestimmte Zeiträume. Somit ist die Abbildung von Zeitreihen möglich. Die einzelnen Höhenschichten, also von 0 bis 500 m, von 500 bis 1.000 m, von 1.000 bis 2.000 m und so weiter, können einzeln dargestellt oder ebenfalls aufsummiert werden. Somit können die sogenannten Footprints erzeugt werden. Diese zeigen die Aufenthaltszeiten der Volumina in einer Schicht einer bestimmten Dicke vom Boden an. Für die Quellzuordnung war der 500 m-Footprint von besonderer Bedeutung, also die Darstellung der Aufenthaltszeiten in der Schicht unterhalb von 500 m. Das Hauptaugenmerk lag auf diesen Karten, da dort im Wesentlichen die Emission stattfindet. Die gesamte Säule der Aufenthaltszeiten einer jeden Gitterzelle kann ebenfalls dargestellt werden. Zeitreihen können als Säule oder als Footprints geplottet werden. Eine detaillierte Illustration dieser Möglichkeiten an einem Beispiel wird in Abschnitt 4.1.2 gezeigt.

¹³NCEP = National Centers for Environmental Prediction
FNL = final global analyses

3.3.3.3. Variation der Anzahl der simulierten Volumina

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die optimale Anzahl der simulierten Volumina bestimmt. Dazu wurden zwei Messfälle untersucht. Auf die Messung vom 24.07.2006 wurde in Abschnitt 3.1.5.1 bereits eingegangen. Die Profile aus der Messung vom 05.07.2001 ist in Abbildung 3.8 gezeigt. Während dieser Messung konnten zwei Aerosolschichten in der

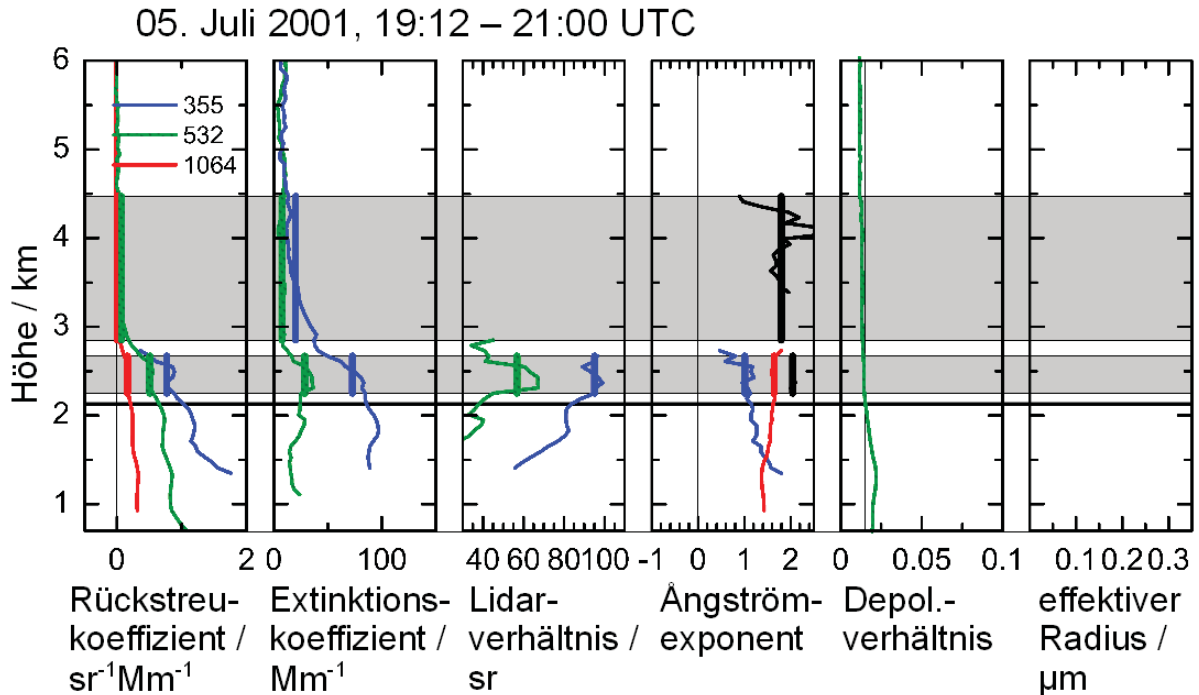


Abb. 3.8.: Vertikalprofile der analysierten Lidardaten aus der Messung vom Abend des 05.07.2001. Von links nach rechts: der Rückstreu- und Extinktionskoeffizient bei 355 nm (blau), 532 nm (grün) und 1064 nm (rot); der Extinktionskoeffizient bei 355 nm (blau) und 532 nm (grün); das Lidarverhältnis bei 355 nm (blau) und 532 nm (grün); der Ängströmxponent aus der Extinktion bei 355 nm (blau) und 532 nm (grün) und aus der Rückstreuung bei 355 nm (blau) und 1064 nm (rot) sowie bei 532 nm (grün); das Depolarisationsverhältnis bei 532 nm. Für den effektiven Radius wurden keine Werte berechnet. Die grau unterlegten Höhenbereiche kennzeichnen die detektierten Aerosolschichten und die schwarze Linie in der Höhe von knapp über 2 km zeigt die Höhe der planetaren Grenzschicht an. Die dicken senkrechten Linien in den ersten vier Diagrammen sind die Schichtmittelwerte, soweit diese berechnet werden konnten. Zeitlich wurden die Profile über 108 Minuten gemittelt.

freien Troposphäre detektiert werden. Für die Schicht von 2250 bis 2670 m konnten fast alle in Abschnitt 3.1.5.1 aufgelisteten Größen bestimmt werden. Der effektive Radius wurde nicht berechnet.

Die Ergebnisse des Vergleichs der Simulationen mit einer unterschiedlichen Anzahl von Volumina sind in den Abbildungen 3.9 und 3.10 zu sehen. Abbildung 3.9 zeigt das Ergebnis der Rückwärtsrechnung, der die Aerosolschicht von 2250 bis 2670 m der Messung vom 05.07.2001 zu Grunde liegt. In Abbildung 3.10 ist das Ergebnis der Rückwärtsrechnung, die auf der Schicht von 2190 bis 2810 m aus der Messung vom 24.07.2006 basiert, dargestellt (Abbildung 3.2). Die Rückwärtssimulationen wurden über fünf (Messung vom

3. Grundlagen und Verfahren zur Datenauswertung

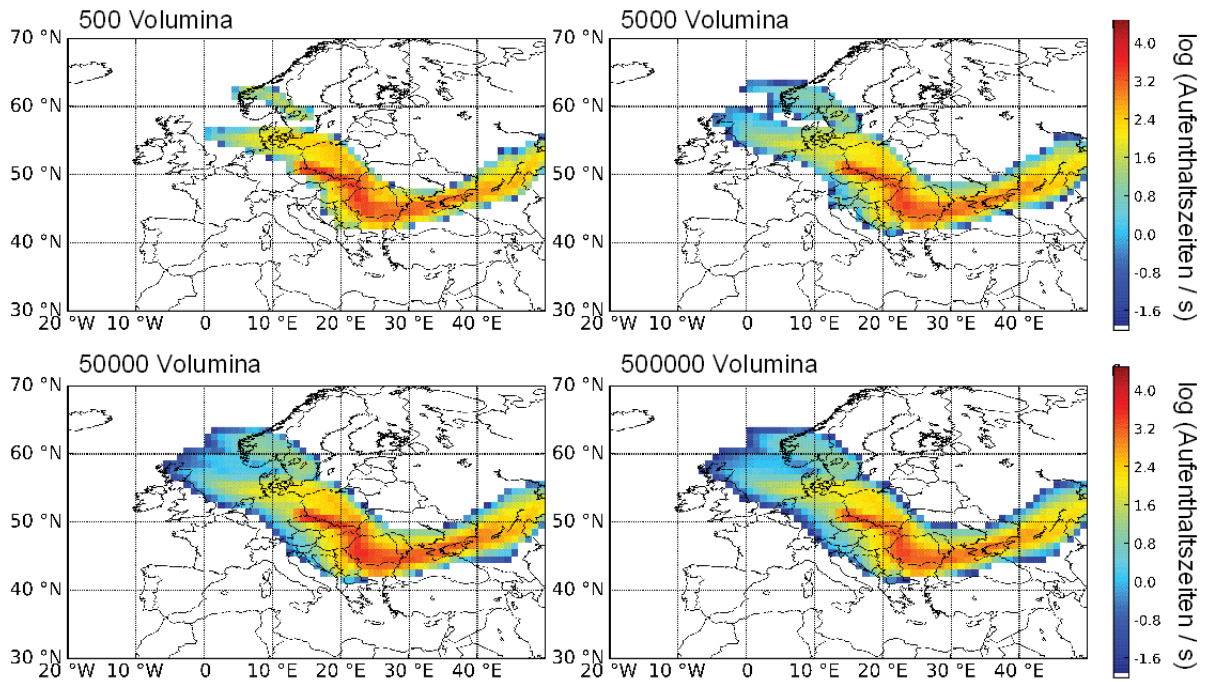


Abb. 3.9.: Aufenthaltszeiten nach der 5 Tage-Rückwärtssimulation von 500 (oben links), 5.000 (oben rechts), 50.000 (unten links) und 500.000 (unten rechts) Kohlenmonoxid-Volumina für die Aerosolschicht von 2250 bis 2670 m aus der Messung vom 05.07.2001, aufsummiert von 0 bis 2.000 m.

05.07.2001, Schicht von 2250 bis 2670 m, Abbildung 3.9) beziehungsweise zehn (Messung vom 24.07.2006, Schicht von 2190 bis 2850 m, Abbildung 3.10) Tage mit jeweils 500, 5.000, 50.000 und 500.000 Kohlenmonoxid-Volumina durchgeführt. Dargestellt sind die Aufenthaltszeiten aufsummiert für jede Gitterzelle über alle Volumina. Die Farbskala zeigt den dekadischen Logarithmus der Aufenthaltszeiten.

Der Vergleich macht deutlich, dass die Simulationen von 500 und 5.000 Volumina nicht alle Strukturen wiedergeben, die bei der Simulation von 50.000 Volumina gefunden werden können. Eine Erhöhung der Anzahl um eine weitere Größenordnung, zeigt hingegen keine neuen Strukturen. Das Strömungsmuster ist dem der 50.000 Partikel sehr ähnlich. Die Werte unterscheiden sich nur in der absoluten Größe, nicht in der Verteilung von hohen oder niedrigen Aufenthaltszeiten.

Ein Vergleich der benötigten Rechenzeit der Simulationen von einer unterschiedlichen Anzahl von Volumina ist in Tabelle 3.3 aufgeführt. Die Berechnung von 500 und 5.000 Volumina dauert etwa gleich lang. Fast doppelt soviel Zeit braucht die Simulation von 50.000 Volumina. Die Zeiteinsparung, die die Berechnung von 500 oder 5.000 Volumina mit sich bringt, bedeutet jedoch gleichzeitig einen recht großen Informationsverlust. Mehr als dreimal länger als die Simulation von 50.000 Volumina dauert die von 500.000 Volumina. Da diese keine signifikanten Änderungen im Ergebnis bringen, wurde die Berechnung von 50.000 Volumina als optimal für diese Anwendung befunden.

3. Grundlagen und Verfahren zur Datenauswertung

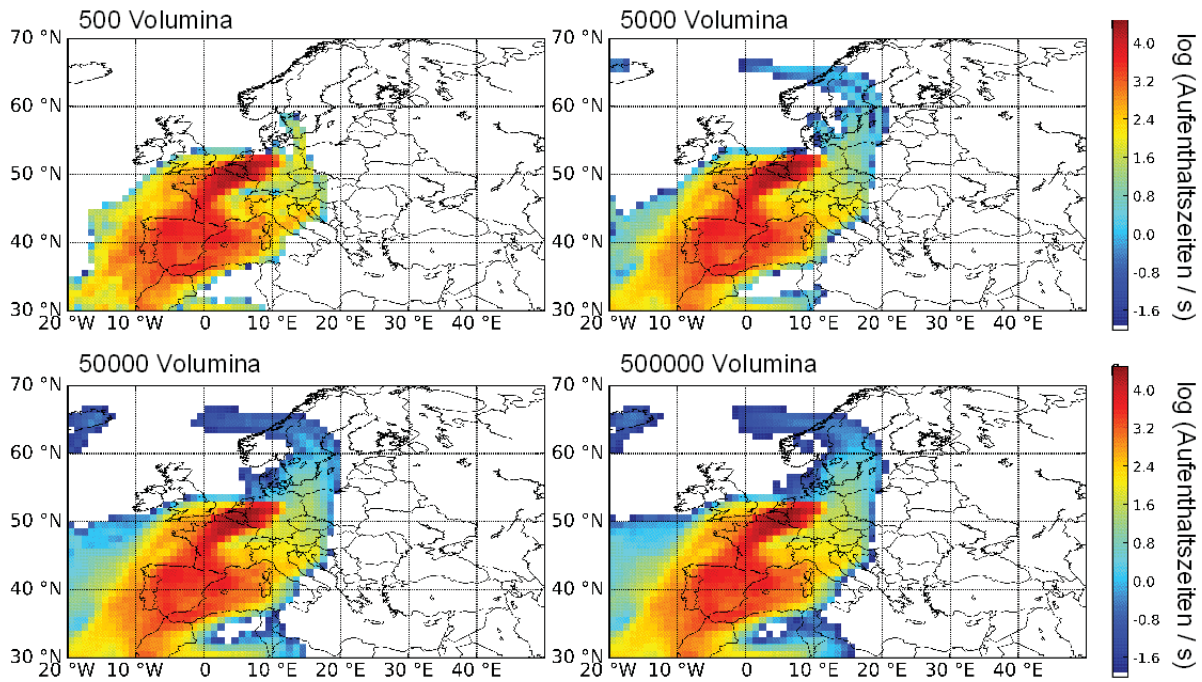


Abb. 3.10.: Aufenthaltszeiten nach der 10 Tage-Rückwärtssimulation von 500 (oben links), 5.000 (oben rechts), 50.000 (unten links) und 500.000 (unten rechts) Kohlenmonooxid-Volumina für die Aerosolschicht von 2190 bis 2850 m aus der Messung vom 24.07.2006, aufsummiert von 0 bis 2.000 m.

Tabelle 3.3.: Vergleich der benötigten Rechenzeiten für die 10 Tage-Rückwärtssimulation einer unterschiedlichen Anzahl von simulierten Volumina für die Schicht von 2190 m bis 2850 m aus der Messung des 24.07.2006.

Anzahl der simulierten Volumina	500	5.000	50.000	500.000
Rechenzeit in Minuten	8	9	14	67

3.3.3.4. Variation der Simulationsdauer

Die Zeitspanne der Rückwärtssimulation wurde für diese Studie ebenfalls unter den Gesichtspunkten der Rechenzeit und des Informationsgehalts untersucht. Hierfür wurden Simulationen über fünf und über zehn Tage durchgeführt. Die Ergebnisse für die zwei Beispielfälle 05.07.2001 und 24.07.2006 sind in den Abbildungen 3.11 und 3.12 zu sehen. Dargestellt sind die 500 m- und 2.000 m-Footprints nach fünf und zehn Tagen Rückwärtsrechnung. Es zeigen sich deutliche Unterschiede zwischen den Simulationsergebnissen nach der kürzeren und der längeren Simulationsdauer. Die Wolke der simulierten Volumina ist deutlich größer und neue Strukturen werden bei einer längeren Rückwärtsrechnung sichtbar. Im Fall der Schicht von 2250 bis 2670 m aus der Messung des 05.07.2001 (Abbildung 3.11) ist die Hauptströmung schon bei der 5 Tage-Simulation erfasst. Für die Zuordnung zu europäischen Quellregionen wäre diese Art der Berechnung ausreichend. Im Gegensatz dazu ist im Fall der Schicht von 2190 bis 2850 m aus der Messung des 24.07.2006 (Abbildung 3.12) mit Hilfe der 5 Tage-Rechnung nur ein Teil

3. Grundlagen und Verfahren zur Datenauswertung

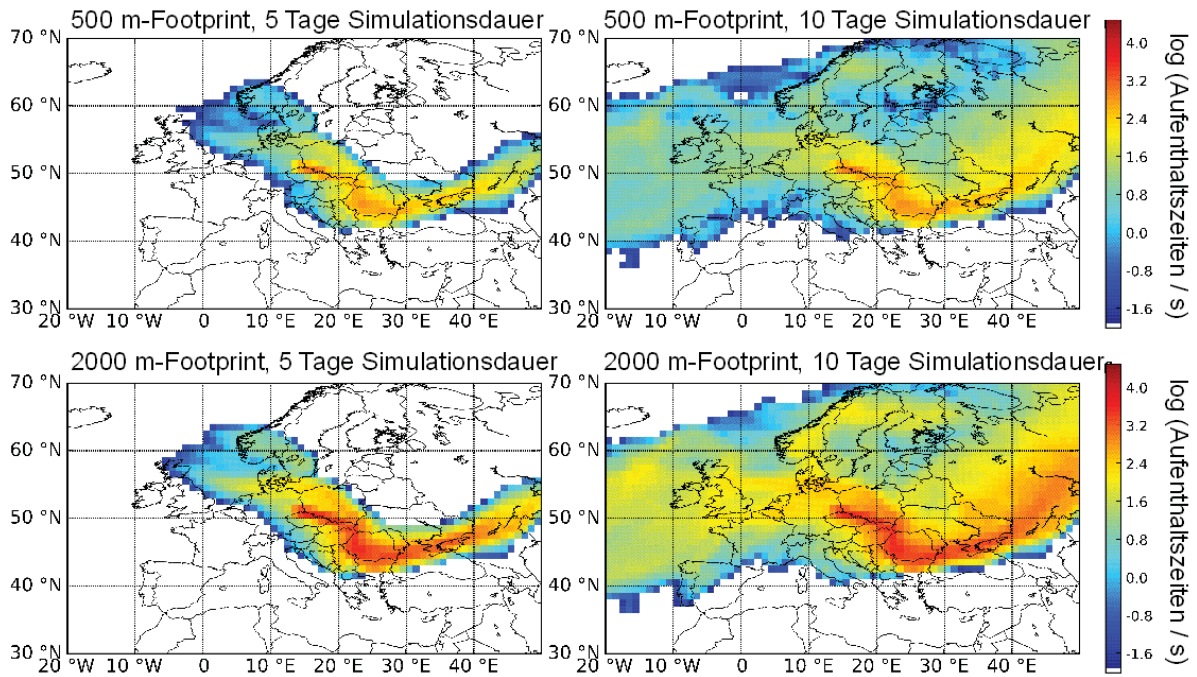


Abb. 3.11.: Aufenthaltszeiten für die Aerosolschicht von 2250 bis 2670 m aus der Messung vom 05.07.2001 aufsummiert von 0 bis 500 m (oben) und 0 bis 2.000 m (unten) nach der 5 Tage- (links) und 10 Tage-Rückwärtssimulation (rechts).

der Strömung innerhalb Europas wiedergegeben. Die 10 Tage-Simulation ist in diesem Beispiel notwendig, um alle möglichen Quellregionen in Europa richtig zu erkennen. In Tabelle 3.4 ist zudem ein Vergleich der Rechenzeiten bei der Rückwärtsrechnung von fünf und von zehn Tagen aufgeführt. Die 10 Tage-Simulation dauert etwa doppelt so

Tabelle 3.4.: Vergleich der Rechenzeiten bei der Simulation von 50.000 Volumina für verschiedene Schichten und Simulationszeiten.

Messung	Schichtgrenzen	Rechenzeit bei einer Rückwärtsrechnung über	
		5 Tage	10 Tage
05.07.2001	von 2250 m bis 2670 m	6 min	15 min
24.07.2006	von 2190 m bis 2850 m	7 min	14 min

lang, wie die 5 Tage-Simulation. Da dieser Unterschied jedoch die Größenordnung von wenigen Minuten beträgt, wird die längere Rechenzeit zu Gunsten des Informationsgehaltes in Kauf genommen.

3. Grundlagen und Verfahren zur Datenauswertung

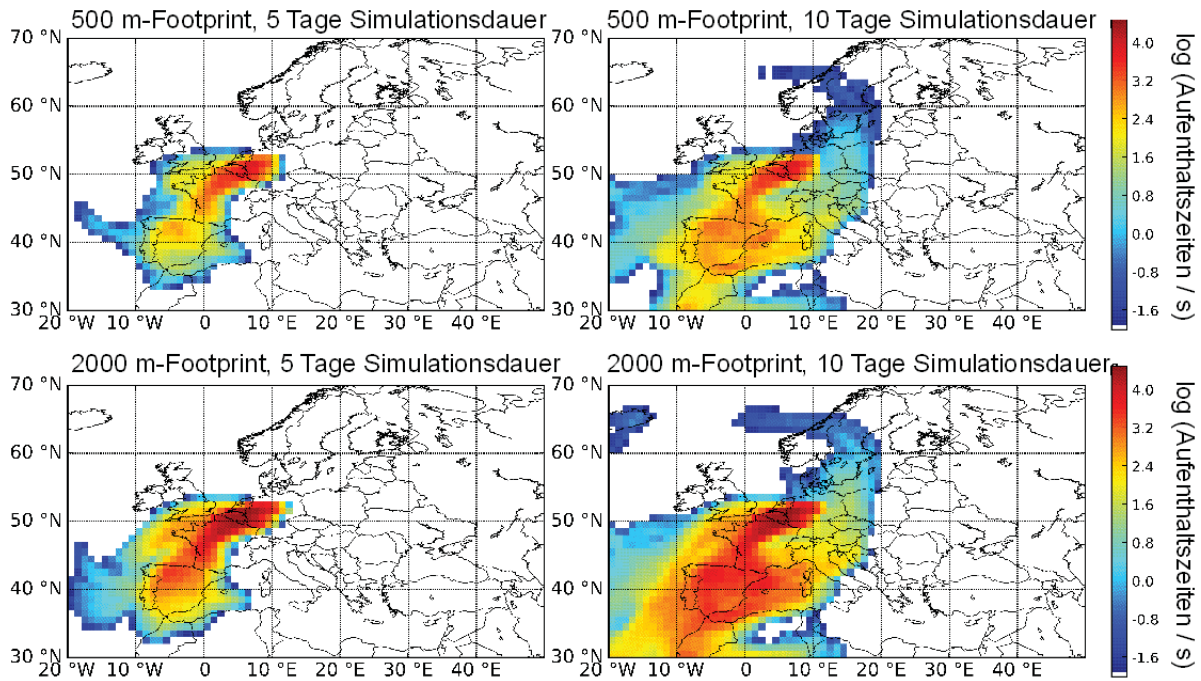


Abb. 3.12.: Aufenthaltszeiten für die Aerosolschicht von 2190 bis 2850 m aus der Messung vom 24.07.2006 aufsummiert von 0 bis 500 m (oben) und 0 bis 2.000 m (unten) nach der 5 Tage- (links) und 10 Tage-Rückwärtssimulation (rechts).

3.3.3.5. Kombination von FLEXPART und EMEP

Im Rahmen dieser Arbeit wurden die Ergebnisse der FLEXPART-Simulationen mit den Jahresemissionen aus EMEP-Daten kombiniert. Hierfür wurden die Aufenthaltszeiten jeder Gitterzelle mit dem jeweiligen Wert der Jahresemission multipliziert. Die Aufenthaltszeiten wurden also mit der Emission gewichtet, um die möglichen Quellregionen hervorzuheben.

Kohlenmonoxid ist ein Repräsentant für anthropogene Verschmutzung. Andere Spurengase zeigen ein ähnliches Bild der Emissionskarten, wobei Absolutwerte natürlich abweichen. Dies ist in Abbildung 3.13 gezeigt. Zu sehen sind die gewichteten Summen der Aufenthaltszeiten für die Aerosolschicht von 2190 bis 2850 m der Beispielmessung vom 24.07.2006. Gewichtet wurde jeweils mit den Emissionswerten von $PM_{2,5}$, PM_{coarse} und Kohlenmonoxid aus EMEP-Emissionskatastern. Es zeigt sich, dass das Muster in allen drei Karten gleich ist. Die Größenordnung der Werte weicht jedoch voneinander ab. Die Wichtung mit der Kohlenmonoxidemission liefert die höchsten Werte. Aus diesen Gründen wurden die Modellergebnisse mit den Jahresemissionen von Kohlenmonoxid gewichtet. Das Ergebnis für den Beispielfall (24.07.2006) ist in Abbildung 3.14 gezeigt.

3. Grundlagen und Verfahren zur Datenauswertung

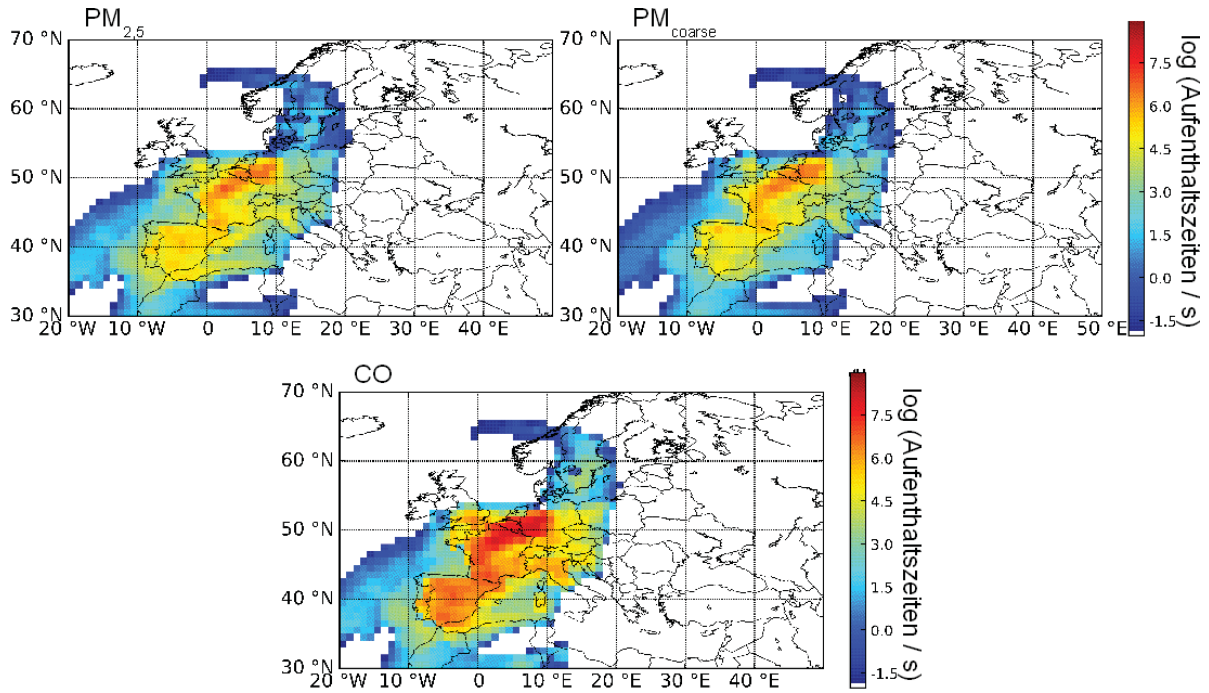


Abb. 3.13.: Aufenthaltszeiten gewichtet mit der Jahresemission von $PM_{2.5}$ (oben links), PM_{coarse} (oben rechts) und Kohlenmonooxid (unten) für die Aerosolschicht von 2190 bis 2850 m der Messung vom 24.07.2006 aufsummiert von 0 bis 500 m nach der 10 Tage-Rückwärtssimulation.

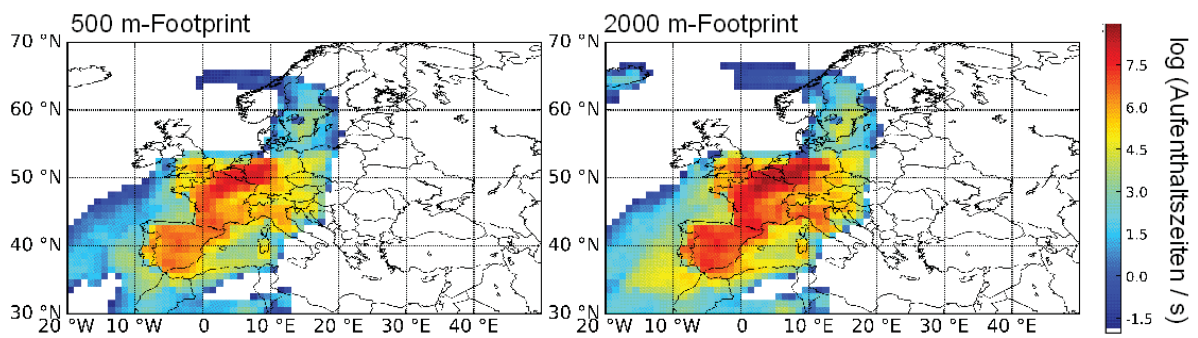


Abb. 3.14.: Aufenthaltszeiten multipliziert mit der Jahresemission von Kohlenmonooxid für die Aerosolschicht von 2190 bis 2850 m der Messung vom 24.07.2006 aufsummiert von 0 bis 500 m (links) beziehungsweise von 0 bis 2.000 m (rechts).

4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

In diesem Abschnitt wird zunächst die Vorgehensweise der Quellzuordnung beschrieben (Abschnitte 4.1, 4.1.1 und 4.1.2). Danach wird der verwendete Datensatz vorgestellt (Abschnitt 4.2). Anschließend werden die Ergebnisse präsentiert (Abschnitt 4.3).

4.1. Methoden

Ziel dieser Arbeit ist es, die Eigenschaften von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas zu charakterisieren. Dazu wurden folgende Schritte durchgeführt:

- 1. Definition der Quellgebiete** (Abschnitt 4.1.1)
Zur Definition der Quellgebiete wurden die folgenden beiden Ansätze gewählt.
 - I Es wurden neun Regionen besonders starker Emission mit Hilfe von EMEP-Karten ermittelt.
 - II Europa wurde in vier flächendeckende Sektoren eingeteilt. Diese Unterteilung wurde unabhängig von Emissionswerten durchgeführt.
- 2. Identifizierung der freien troposphärischen Schichten aus Lidarmessungen**
Alle Messungen aus dem Zeitraum 1996 bis 2006 wurden mit der Gradientenmethode (siehe Abschnitt 3.1.4) analysiert, um alle Aerosolschichten in der freien Troposphäre zu identifizieren.
- 3. Bestimmung der Eigenschaften für jede einzelne beobachtete Schicht** (Abschnitt 3.1.3.4)
Dazu wurden die geometrischen Eigenschaften bestimmt, also Untergrenze und Obergrenze sowie mittlere Höhe und Schichtdicke jeder Schicht. Außerdem wurden die Schichtmittelwerte von Extinktion, Rückstreuung, Lidarverhältnis, Ångströmexponent und optischer Dicke berechnet
- 4. Zuordnung der einzelnen Schichten zu Quellgebieten mittels FLEXPART-Simulationen** (Abschnitt 4.1.2)

4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

Die FLEXPART-Simulationen für jede einzelne Schicht im Zeitraum 2000 bis 2006 wurde durchgeführt und analysiert. Die Zuordnung zu den Quellregionen erfolgte, nachdem die FLEXPART-Ergebnisse und die EMEP-Emissionsdaten für jede Schicht kombiniert dargestellt wurden.

- Zusammenfassung der Eigenschaften aller Schichten, die im vorherigen Schritt einem bestimmten Quellgebiet zugeordnet wurden** (Kapitel 4.3)
Das Ziel hierbei war die Bestimmung charakteristischer Aerosoleigenschaften für die einzelnen Quellregionen und Sektoren.

4.1.1. Definition möglicher Quellregionen

Quellregionen sind abgegrenzte Gebiete starker Emission. Die ausgewählten Regionen sind auf der linken Karte in Abbildung 4.1 zu sehen. In Tabelle 4.1 sind zudem die genauen Koordinaten der Quellregionen aufgelistet. Neben der Definition der Quellregionen wurde Europa in vier Sektoren unterteilt, West-, Ost-, Südwest- und Südosteuropa. Diese sind ebenfalls in Abbildung 4.1 auf der rechten Seite zu sehen.

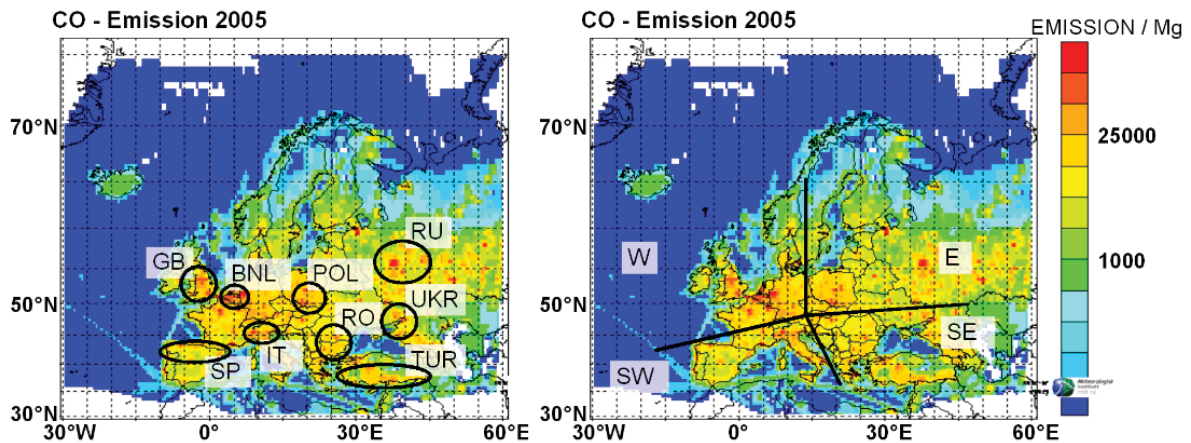


Abb. 4.1.: Gesamtemissionen von Kohlenmonoxid im Jahr 2005 in Tonnen. *Links:* Die Kreise symbolisieren die festgelegten Quellregionen GB = Großbritannien, BNL = Belgien, Niederlande und Luxemburg, POL = Polen, RU = Russland, SP = Spanien, IT = Italien, RO = Rumänien, UKR = Ukraine und TUR = Türkei. Die genauen Koordinaten der Quellregionen sind in Tabelle 4.1 aufgeführt. *Rechts:* Die Sektoren W = Westeuropa, E = Osteuropa, SW = Südwesteuropa und SE = Südosteuropa.

Für die Festlegung der Quellregionen, wurden außer der Kohlenmonoxidemission Schwefeloxide, $PM_{2,5}$ und PM_{coarse} berücksichtigt. Die Verteilung der Emission anthropogenen Kohlenmonoxids ist der anderer anthropogener Luftschadstoffe ähnlich. Daher wird Kohlenmonoxid hier auch als Näherung für generelle anthropogene Verschmutzung verstanden. Ein Gebiet wurde anhand der Karten in Abbildung 3.6 als Quellregion definiert, wenn:

- die mittlere Emission des Gebietes von mindestens einer der vier Komponenten die der Umgebung um etwa eine Größenordnung übersteigt,

4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

Tabelle 4.1.: Die Bezeichnung der Quellregionen, die dazu gehörenden Gebiete und die Koordinaten der Eckpunkte.

Kürzel	Bezeichnung	Gebiete	Koordinaten der linken unteren und der rechten oberen Ecke (geographische Länge, geographische Breite)	Sektor
GB	Großbritannien	England, Wales	(-7°, 51°) (2°, 55°)	W
BNL	BeNeLux	Belgien, Niederlande, Luxemburg, Nordfrankreich, Ruhrgebiet	(1°, 48°) (8°, 53°)	W
POL	Polen	Südpolen, Krakau, Warschau	(16°, 49°) (22°, 53°)	E
RU	Russland	Westrussland entlang der Wolga, Moskau	(36°, 53°) (45°, 58°)	E
SP	Spanien	Nordspanien und Madrid	(-9°, 40°) (4°, 44°)	SW
IT	Italien	Norditalien, Poebene	(7°, 43°) (13°, 47°)	SW
RO	Rumänien	südliches Rumänien, Bulgarien	(22°, 41°) (28°, 46°)	SE
UKR	Ukraine	Südostukraine, Küste des Asowschen Meeres	(36°, 44°) (42°, 49°)	SE
TUR	Türkei	Südtürkei, Mittelmeerküste der Türkei, Grenzen zu Syrien und Irak	(27°, 36°) (45°, 40°)	SE

- das Gebiet auf allen vier in Abbildung 3.6 gezeigten Karten als Gegend relativ starker Emission zu sehen ist und
- es größer als $2^\circ \times 2^\circ$ ist.

Der Ansatz der Einteilung Europas in Sektoren hat den Vorteil, dass er flächendeckend ist. Das Zentrum der Einteilung liegt nicht über Leipzig, da es sich um eine generelle Einteilung Europas handelt. Es soll nicht die Anströmcharakteristik am Messort wiedergegeben werden. Das nördliche Europa wurde nicht explizit in diese Klassifikation einbezogen, da dort die Emissionen wesentlich schwächer sind.

4.1.2. Zuordnung von Quellregionen

Nach der Festlegung möglicher Quellregionen wurde im Rahmen dieser Arbeit jede einzelne Schicht ein bis zwei Quellregionen (entsprechend Ansatz I) und parallel dazu einem

4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

Sektor (nach Ansatz II) zugeordnet. Das Verfahren ist am Beispiel der Schicht von 2190 bis 2850 m aus der Messung am frühen Morgen des 24.07.2006 verdeutlicht (siehe auch Abbildung 3.2).

Es wurden 50000 Volumina über Leipzig entlassen. Die Säulenwerte der Aufenthaltszeiten für jede Gitterzelle sind in Abbildung 4.2 für den gesamten Simulationszeitraum von zehn Tagen gezeigt. Aus dieser Art der Darstellung kann gut die allgemeine Anströmung abgelesen werden. Im gezeigten Beispiel handelt es sich um eine Anströmung aus westlicher Richtung.

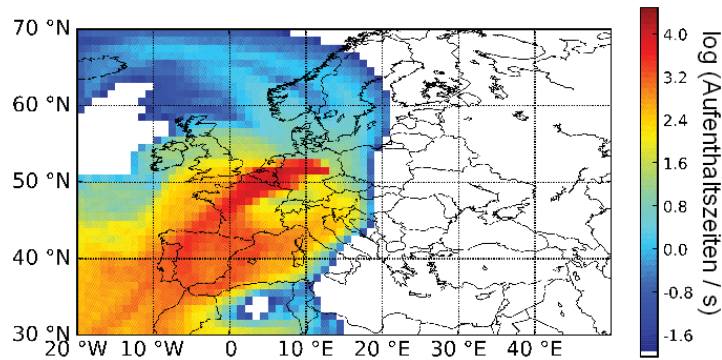


Abb. 4.2.: Aufenthaltszeiten für die Aerosolschicht zwischen 2190 m und 2850 m des Falles vom 24.07.2006 aufsummiert über den gesamten Zeitraum von zehn Tagen und über die ganze Säule.

Wie schon erläutert, können zudem die Aufenthaltszeiten über festgelegte Zeitintervalle aufsummiert und dargestellt werden. Im Beispiel (Abbildung 4.3) sind Zeitintervalle von jeweils 24 h gezeigt. Dargestellt ist der Verlauf rückwärts in der Zeit ab Ende der Lidarmessung von links nach rechts und von oben nach unten. Das Ende der Lidarmessung ist gleichzeitig der Beginn der Rückwärtssimulation. In Abbildung 4.3 sind also oben links die Aufenthaltszeiten zu sehen, wie sie nach 24 Stunden Simulationsdauer berechnet wurden. Die Karte unten rechts zeigt die Aufenthaltszeiten der 50000 Volumina in den 24 letzten simulierten Stunden, also zwischen dem Ende des neunten Tages und dem Ende des zehnten und letzten Tag. Mit dieser Art von Zeitreihen kann der zeitliche Verlauf der Wolke von Kohlenmonooxidvolumina rückwärts verfolgt werden. Deutlich zu sehen ist im Beispiel die Divergenz, also das Aufweiten der Wolke. In den letzten 48 Stunden vor Ende der Messung der Aerosolschicht über Leipzig (die beiden oberen Karten in Abbildung 4.3) befindet sich die simulierte Wolke über dem Quellgebiet BNL (BeNe-Lux). Außerdem passierte die Wolke die Quellregion SP (Spanien) 144 bis 96 Stunden vor Ende der Messung.

Die Summe über den gesamten Zeitraum kann, wie schon erläutert, nicht nur für die gesamte Säule (Abbildung 4.2) sondern auch für sogenannte Footprints geplottet werden. In Abbildung 4.4 sind die Footprints bis 500 m, 2000 m, 5000 m und 10000 m gezeigt. Aus dieser Darstellung kann abgelesen werden, wo die Wolke der simulierten Volumina mit hoher Wahrscheinlichkeit Bodenkontakt hatte oder wie hoch sich die Volumina über dem Boden befanden. Der 500 m-Footprint zeigt, wie schon erwähnt, den möglichen Bodenkontakt am deutlichsten an. Andere Footprints weisen hingegen auf die vertikale

4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

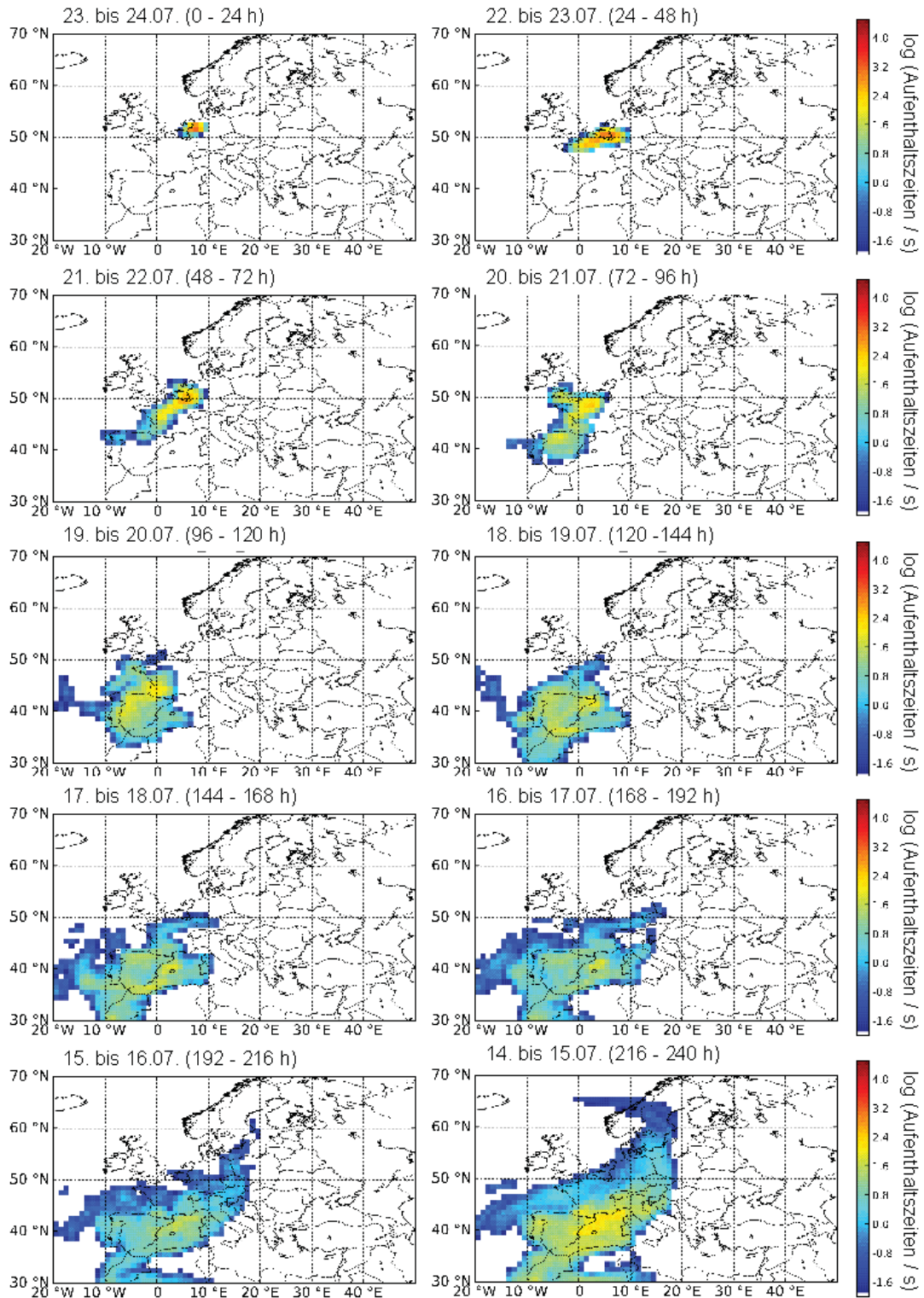


Abb. 4.3.: Zeitreihe der Aufenthaltszeiten für die Aerosolschicht zwischen 2190 m und 2850 m des Falles vom 24.07.2006. Aufsummiert wurde über jeweils 24 h, begonnen ab Ende der Lidarmessung rückwärts in der Zeit (von links nach rechts und von oben nach unten). Gezeigt sind die 2000 m-Footprints. Der dargestellte Zeitraum in Stunden seit Beginn der Simulation ist jeweils in Klammern angegeben.

4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

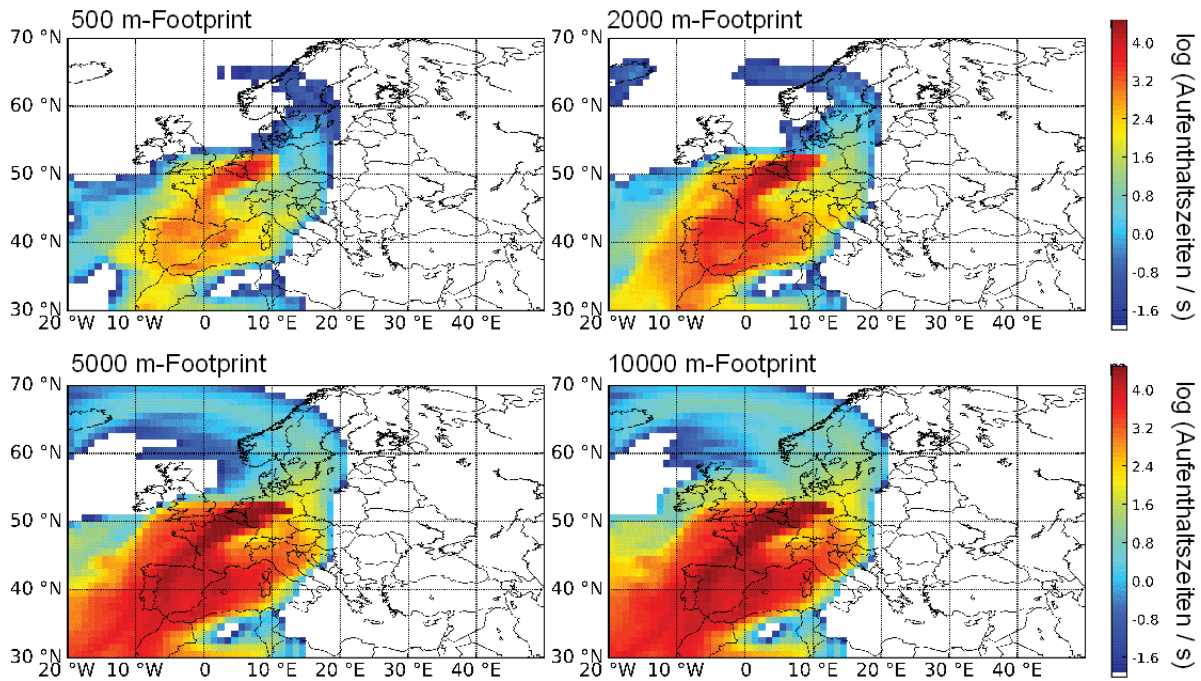


Abb. 4.4.: Aufenthaltszeiten für die Aerosolschicht zwischen 2190 m und 2850 m des Falles vom 24.07.2006 aufsummiert über den gesamten Zeitraum (10 Tage) und von 0 bis 500 m (oben links), von 0 bis 2000 m (oben rechts), von 0 bis 5000 m (unten links) und von 0 bis 10000 m (unten rechts).

Verteilung der Volumina hin. So ist zum Beispiel der Unterschied zwischen dem 5000 m-Footprint und dem 10000 m-Footprint gering. Dies bedeutet, dass sich sehr wenige Volumina in der Schicht zwischen 5000 und 10000 m befanden oder ihre Aufenthaltszeit dort gering war.

Die Kombination von Ergebnissen aus den FLEXPART-Simulationen und den Jahresmissionen von Kohlenmonoxid verstärkt die Aussagekraft der Plots bezüglich der Zuordnung der Quellen. Der direkte Vergleich eines 500 m-Footprints mit und ohne Emissionsgewichtung ist in Abbildung 4.5 zu sehen. Die Aufenthaltszeiten über dem Kontinent sind stärker gewichtet, da dort die Emission von Kohlenmonoxid größer ist, als über Meeresflächen. Deutlich hervorgehobene Gebiete in der rechten Karte in Abbildung 4.5 weisen, im Hinblick auf anthropogen verursachte Aerosolschichten, auf mögliche Quellen hin. Im gezeigten Beispiel, der Schicht von 2190 bis 2850 m der Messung vom 24.07.2006, ist BNL die wahrscheinlichste Quellregion. Die Hauptquellregion ist diejenige, mit dem größten Wert des Produktes aus der Aufenthaltsdauer und der Emission. Existieren zwei Regionen mit ähnlichen Werten, wurde eine weitere mögliche Quellregion angegeben. Die Hauptquellregion ist immer diejenige mit den höheren Werten. Sind die Werte gleich, wurde die Region als Hauptquellregion angenommen, die Leipzig näher liegt.

Im Beispiel wurde SP als zusätzlich mögliche Quellregion eingestuft. Weitere eingefärbte Gebiete wie IT oder GB sind wenig wahrscheinlich, da diese nur auf der Karte mit den gewichteten Aufenthaltszeiten deutlich zu sehen sind und weil die angezeigten Werte in diesen Regionen um drei beziehungsweise zwei Größenordnungen geringer sind, als die

4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

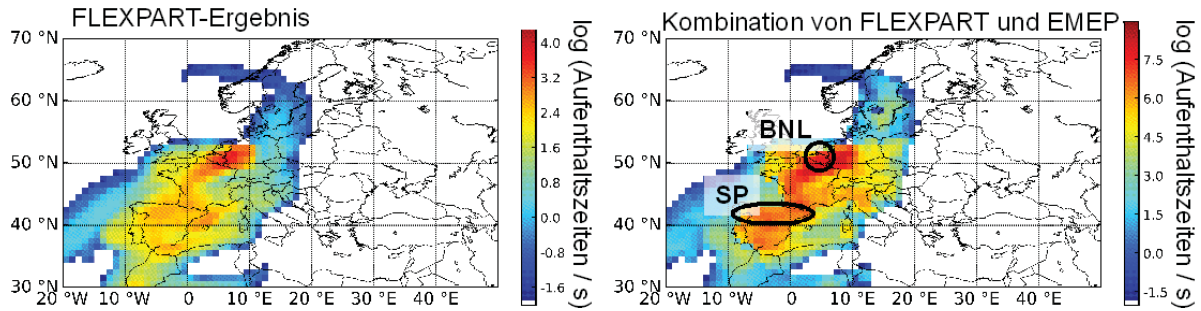


Abb. 4.5.: *Links:* Summe der Aufenthaltszeiten. *Rechts:* Summe der Aufenthaltszeiten multipliziert mit der Gesamtemission des Jahres 2006 von Kohlenmonoxid. Jeweils für die Aerosolschicht von 2190 bis 2850 m der Messung vom 24.07.2006 und aufsummiert von 0 bis 500 m. Zusätzlich sind auf der rechten Karte die zugeordneten Quellregionen BeNeLux (BNL) und Spanien (SP) als Kreise eingezeichnet.

von BNL und SP.

Als Herkunftssektor wurde derjenige festgelegt, in dem die Summe der Aufenthaltszeiten ihr Maximum hat. Die Festlegung des Sektors erfolgte somit nicht ausschließlich durch die in Tabelle 4.1 gezeigten Zuordnung der Quellregionen. Die Anzahl der Schichten aus den Sektoren ergibt sich demnach nicht immer als Summe der Schichten aus den Quellregionen, die sich in diesem Sektor befinden, da die Einteilung nach Quellregionen nicht flächendeckend ist. Im Allgemeinen und im gezeigten Beispiel liegt die Hauptquellregion jedoch im zugeordneten Sektor, hier Westeuropa.

Unter Berücksichtigung all dieser Erkenntnisse, wurde der Aerosolschicht von 2190 bis 2850 m der Messung vom 24.07.2006 die Quellregion BNL zugordnet. Der Sektor, aus dem diese Schicht nach Leipzig transportiert wurde, ist Westeuropa (W). SP wurde als zusätzlich mögliche Quellregion eingestuft.

In Tabelle 4.2 sind alle geometrischen und optischen Daten sowie die Quellenzuordnung für jede der drei Schichten der Messung vom 24.07.2006 zusammengefasst. Es wird deutlich, dass alle in Abschnitt 3.1.5.1 aufgelisteten Größen ermittelt werden konnten.

Solch ein Datensatz wurde für jede untersuchte Messung zusammengestellt. Für die meisten Fälle konnte er, aus bereits genannten Gründen, nicht vollständig berechnet werden. Die folgende Tabelle zeigt den Datensatz der Messung vom 04.07.2002. In Abschnitt 3.1.5.2 wird dieser Fall als Beispiel einer Messung mit Wolken vorgestellt. Auf Grund der Wolken konnten nur die geometrischen Eigenschaften, die mittlere Rückstreuung bei 532 nm und die optische Dicke konnten für die beiden Schichten bestimmt werden.

4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

Tabelle 4.2.: Überblick über die Auswertung der Messung des 24.07.2006. Für die Schichtmittelwerte der optischen Eigenschaften sind die Standardabweichungen angegeben.

	1. Schicht	2. Schicht	3. Schicht
geometrische Eigenschaften			
Schichtuntergrenze	2190	3030	3510
Schichtmitte	2520	3180	3960
Schichtobergrenze	2850	3330	4410
Schichtdicke	660	300	900
optische Eigenschaften			
$\bar{\beta}_{355nm} / \text{Mm}^{-1} \text{sr}^{-1}$	2,1±0,4	1,2±0,1	1,0±0,3
$\bar{\beta}_{532nm} / \text{Mm}^{-1} \text{sr}^{-1}$	1,2±0,2	0,8±0,1	0,6±0,2
$\bar{\beta}_{1064nm} / \text{Mm}^{-1} \text{sr}^{-1}$	0,6±0,1	0,37±0,02	0,3±0,1
$\bar{\alpha}_{355nm} / \text{Mm}^{-1} \text{sr}^{-1}$	114±11	85±2	63±16
$\bar{\alpha}_{532nm} / \text{Mm}^{-1} \text{sr}^{-1}$	70±8	44±2	41±8
AOD_{532nm}	0,04±0,01	0,02±0,003	0,03±0,01
\dot{a}_{β} bei 355 und 532 nm	1,3±0,04	1,2±0,1	1,1±0,2
\dot{a}_{β} bei 532 und 1064 nm	1,1±0,02	1,0±0,02	1,1±0,1
\dot{a}_{α} bei 355 und 532 nm	1,2±0,1	1,6±0,1	1,0±0,2
\bar{L}_{355nm}	59±4	69±1	66±2
\bar{L}_{532nm}	60±2	60±1	67±4
Quellzuordnung			
Sektor	W	W	W
Quellregion	BNL	BNL	BNL
zusätzlich mögliche Quellregion	SP		NOT

4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

Tabelle 4.3.: Überblick über die Auswertung der Messung des 04.07.2002. Für die Schichtmittelwerte der optischen Eigenschaften sind die Standardabweichungen angegeben.

	1. Schicht	2. Schicht
geometrische Eigenschaften		
Schichtuntergrenze	2010	5500
Schichtmitte	2340	5750
Schichtobergrenze	2670	6000
Schichtdicke	660	500
optische Eigenschaften		
$\bar{\beta}_{355nm} / \text{Mm}^{-1} \text{sr}^{-1}$		
$\bar{\beta}_{532nm} / \text{Mm}^{-1} \text{sr}^{-1}$	1,0±0,4	0,1±0,03
$\bar{\beta}_{1064nm} / \text{Mm}^{-1} \text{sr}^{-1}$		
$\bar{\alpha}_{355nm} / \text{Mm}^{-1} \text{sr}^{-1}$		
$\bar{\alpha}_{532nm} / \text{Mm}^{-1} \text{sr}^{-1}$		
AOD_{532nm}	0,02±0,01	0,00
\dot{a}_β bei 355 und 532 nm		
\dot{a}_β bei 532 und 1064 nm		
\dot{a}_α bei 355 und 532 nm		
\bar{L}_{355nm}		
\bar{L}_{532nm}		
Quellenzuordnung		
Sektor	W	SW
Quellregion	BNL	SP
zusätzlich mögliche Quellregion	RU	

4.2. Datensatz

Am IfT werden seit 1997 regelmäßig Messungen der Vertikalverteilung von Aerosoleigenschaften durchgeführt. Leipzig ist eine EARLINET-Station. Die Strategie des Lidar-netzwerkes sieht regelmäßige Messungen am Montag und Donnerstag Abend sowie am Montag Mittag vor. Die Einhaltung dieses regelmäßigen Zeitplanes liefert einen statistisch signifikanten Datensatz und verhindert systematische Verfälschungen, die durch reine Schönwettermessungen entstehen würden (*Bösenberg, 2003*). Die im Rahmen von EARLINET durchgeführten regelmäßigen Messungen werden im Folgenden als reguläre Messungen bezeichnet. Diese werden durch Messungen von Spezialfällen ergänzt. Solche Spezialfälle sind zum Beispiel das Auftreten von Waldbrandaerosol oder Saharastaub. Die Daten aus außerplanmäßigen Messungen können zur Bestimmung von charakteristischen Eigenschaften von Aerosolen herangezogen werden. Bei der Bestimmung von Häufigkeiten wurden sie jedoch nicht verwendet. Nur die regulären Messungen werden für statistische Untersuchungen des Auftretens von Aerosolschichten genutzt. Diese Messungen sind auf Grund ihrer Regelmäßigkeit gut geeignet, um Langzeitstudien durchzuführen und Jahresgänge verschiedener Eigenschaften zu untersuchen.

Aus dem gesamten Datensatz von 1997 bis heute wurden für diese Arbeit nur die Messungen des Zeitraumes von 2000 bis 2006 ausgewertet. Dieser Datensatz wurde gewählt, da in dem Zeitraum die meteorologischen Felder verfügbar sind, so wie sie für die Simulationen mit der beschriebenen Version von FLEXPART (Abschnitt A) benötigt werden. Zwischen 2000 und 2006 wurden 614 Messungen durchgeführt. In 345 von diesen Messungen wurden Aerosolschichten in der freien Troposphäre beobachtet. 96 Messungen wiederum weisen Schichten aus wahrscheinlich europäischen oder unbekanntem Quellregionen auf. Diese werden im Folgenden der Lesbarkeit halber nur noch als relevante Schichten bezeichnet. 131 solcher Schichten konnten in 56 regulären Messungen beobachtet werden.

Diese erste Unterteilung der Schichten nach potentiellen Quellen auf kontinentaler Skala wurde von *Mattis et al. (2008)* mittels HYSPLIT (Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory), dem frei verfügbaren Trajektorienmodell des ARL (Air Research Laboratory) (*HYSPLIT-Modell, 2008*) durchgeführt. Es handelt sich um eine grobe Einteilung in die Regionen Nordamerika, Nordafrika beziehungsweise Sahara, polare Regionen nördlich von 70°, Asien und Sibirien sowie Europa. Einige Schichten konnten anhand der 10-Tage-Rückwärtstrajektorien nicht zugeordnet werden und wurden der Klasse „Unbekannt“ zugeteilt. Die Ergebnisse dieser vorangegangenen Studie sind in *Mattis et al. (2008)* zu finden. Im Rahmen dieser Arbeit wurden alle Schichten der Klassen „Europa“ und „Unbekannt“ nach den im vorigen Kapitel beschriebenen Verfahren ausgewertet. Insgesamt 219 freie troposphärische Aerosolschichten wurden in diesen 96 Messungen gefunden. In vielen Fällen konnten demnach mehrere Aerosolschichten detektiert werden.

4.3. Ergebnisse

In diesem Abschnitt wird zuerst die Herkunftsstatistik gezeigt. Anschließend wird auf die jahreszeitliche Verteilung der untersuchten Messungen eingegangen (Abschnitt 4.3.2). Die Ergebnisse aus der Untersuchung der geometrischen und optischen Eigenschaften werden in den danach folgenden Abschnitten (4.3.3 und 4.3.4) präsentiert.

4.3.1. Herkunftsstatistik

Abbildung 4.6 zeigt, wie oft Aerosolschichten während regulärer Messungen beobachtet wurden, die aus den einzelnen Sektoren (Abbildung 4.1) herantransportiert wurden. Es wird deutlich, dass die westlichen Sektoren W und SW in etwas geringerem Maße zu in Leipzig beobachteten Aerosolschichten beitragen als die östlichen E und SE. In 31 Fällen (24 %) konnten die Aerosolschichten keiner innereuropäischen Quelle zugeordnet werden. Diese Schichten wurden unter „NOT“ zusammengefasst. Die große Anzahl solcher Schichten ist darauf zurückzuführen, dass alle von *Mattis et al.* (2008) als unbekannt klassifizierten Schichten nach dem in Abschnitt 4.1.2 beschriebenen Verfahren ausgewertet wurden. Ein weiterer Grund ist, dass alle beobachteten Aerosolschichten einer Messung untersucht wurden, sofern eine davon den Klassen „Unbekannt“ oder „Europa“ zugeordnet worden war. Dies betrifft auch die Schichten, die schon im Vorfeld außereuropäischen Quellen zugeordnet werden konnten.

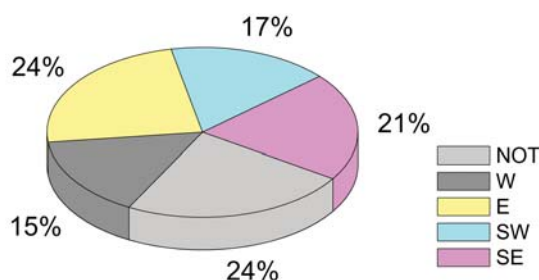


Abb. 4.6.: Häufigkeit der beobachteten Aerosolschichten aus regulären Messungen in Abhängigkeit der definierten Sektoren SW, W, E und SE. Insgesamt handelt es sich um 131 Schichten.

Die 131 Schichten aus regulären Messungen wurden für diese Arbeit zusätzlich den in Abbildung 4.1 gezeigten Quellregionen zugeordnet. In Abbildung 4.7 ist die Häufigkeit der Beobachtung von Aerosolschichten aus den entsprechenden Hauptquellregionen zu sehen. Es wurden 3 (GB und UKR, 2,3 %) bis 20 (POL, 15 %) Schichten aus den jeweiligen Hauptquellregionen herantransportiert. Am stärksten vertreten sind die Quellregionen Polen, BeNeLux und Spanien. Die Quellregionen Großbritannien und Ukraine hingegen tragen im Zeitraum von 2000 bis 2006 nur wenig zu in Leipzig beobachteten Aerosolschichten bei. Der Anteil außereuropäischer und unbekannter Quellen ist mit 31 (NOT, 24 %) Schichten auch in der Klassifikation nach Sektoren abgebildet.

Die Häufigkeiten der Schichten aus zusätzlich möglichen Quellregionen ist in Abbildung 4.8 gezeigt. Die relative Häufigkeit der Schichten ist hierbei ähnlich verteilt, wie bei der Klassifikation nach Hauptquellregionen. Zusätzlich zu den Quellregionen Polen

4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

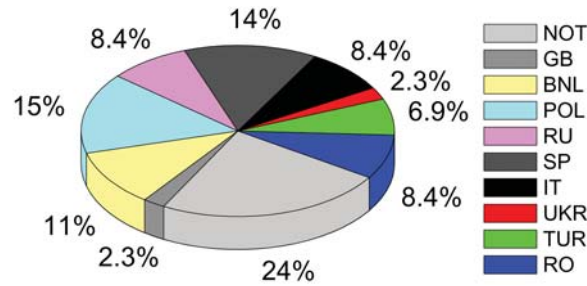


Abb. 4.7.: Häufigkeit der beobachteten Aerosolschichten aus regulären Messungen in Abhängigkeit der definierten Quellregionen. Insgesamt handelt es sich um 131 Schichten.

und BeNeLux liefert die Quellregion Russland einen hohen Beitrag als zusätzlich mögliche Quellregion der ausgewerteten Aerosolschichten. Die Quellregionen Ukraine, Türkei und Italien hatten wenig Einfluss auf die untersuchten Messungen. Der Anteil an Aerosolschichten, die zusätzlich aus außereuropäischen oder unbekanntem Quellen stammen können, ist prozentual geringer als bei der Einteilung nach Hauptquellregionen.

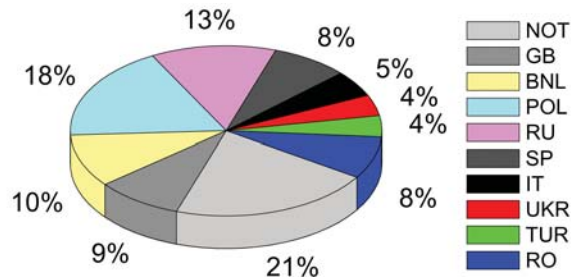


Abb. 4.8.: Häufigkeit der beobachteten Aerosolschichten aus regulären Messungen, für die zusätzliche Quellregionen möglich sind. Diese Angaben beziehen sich auf insgesamt 100 Schichten.

Aus den Abbildungen 4.7 und 4.8 wird deutlich, dass den Quellregionen Großbritannien, Italien, Ukraine und Türkei nur sehr wenige Schichten zugeordnet werden konnten. Eine signifikante Analyse der geometrischen und optischen Eigenschaften war aus diesem Grund für diese Quellregionen nicht möglich. Im Folgenden werden nur die Ergebnisse für die Sektoren und für die Hauptquellregionen gezeigt.

4.3.2. Jahreszeitliche Statistik

Einen Überblick über alle 56 regulären Messungen von relevanten Schichten zeigt Abbildung 4.9. Diese wurden für jeden einzelnen Monat relativ zur Anzahl an regulären Messungen, die im jeweiligen Monat durchgeführt wurden, dargestellt. Zusätzlich ist die Anzahl der Messungen als monatliche Summe über alle sieben Jahre dargestellt, relativ zur monatlichen Summe der gesamten regulären Messungen. Von Oktober 2004 bis Mai 2005 kam es aus technischen Gründen zu einem Messausfall. Es sind in diesem Zeitraum also keine Daten vorhanden. Die Verteilung der Messungen mit relevanten Schichten variiert von Jahr zu Jahr. Vor allem in der Darstellung der Summe über alle sieben Jahre

4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

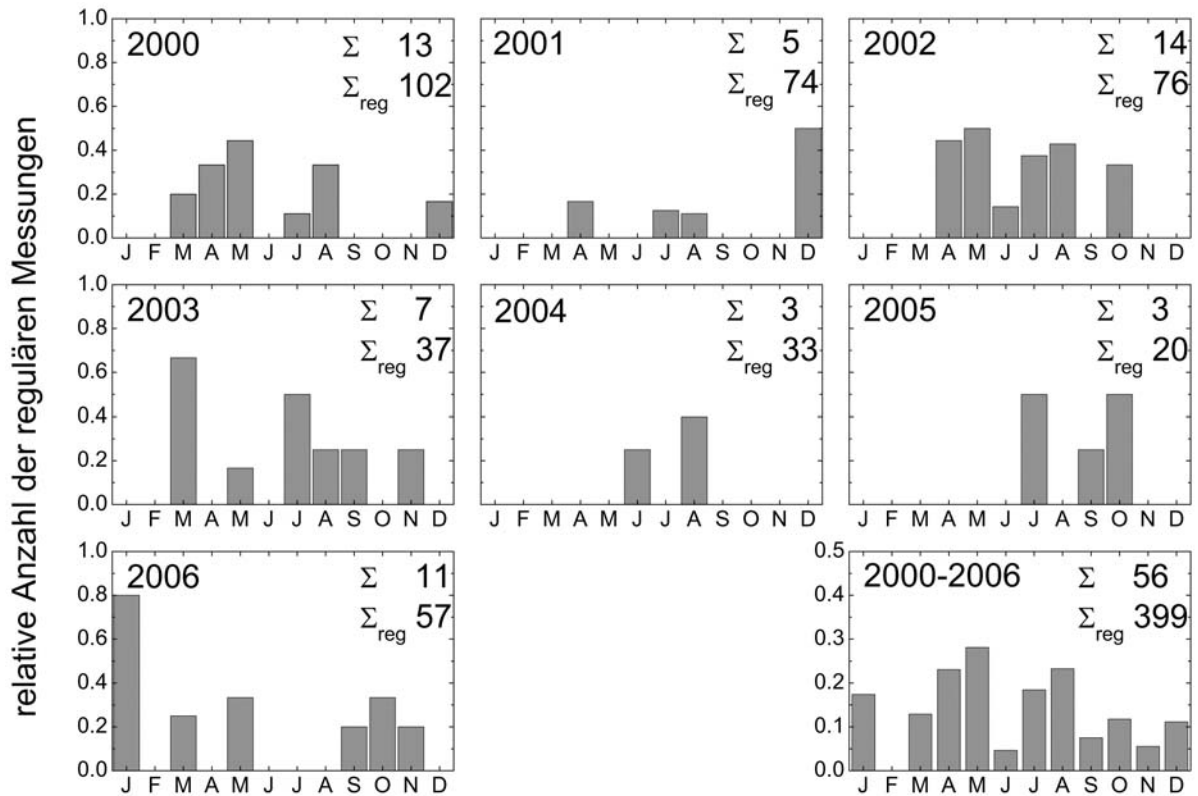


Abb. 4.9.: Relative Anzahl der regulären Messungen, in denen relevante Schichten in der freien Troposphäre beobachtet werden konnten. Dargestellt sind die jeweiligen Monate der untersuchten Jahre 2000 bis 2006, sowie die Summe der regulären Messungen mit relevanten Aerosolschichten für die einzelnen Monate der sieben Jahre relativ zur Summe der gesamten regulären Messungen (unten rechts). Die Anzahl der regulären Messungen (Σ_{reg}) und die Anzahl regulärer Messungen mit relevanten Schichten (Σ) für jedes Jahr sind in jedem Diagramm zusätzlich angegeben.

ist zu sehen, dass im Frühling und Sommer mehr relevante Schichten beobachtet werden konnten als im Herbst oder Winter. Dies stimmt mit den Ergebnissen von *Mattis et al.* (2008) überein. Ein klarer Jahrgang ist nicht erkennbar. Gründe für diese jahreszeitliche Verteilung können die saisonale Abhängigkeit der Quellen und Senken von Aerosolen sowie der Wetterlage sein.

Im Folgenden werden die Ergebnisse der Untersuchung der saisonalen Abhängigkeit von Aerosolschichten aus den Sektoren gezeigt. Es wurde ermittelt, aus welchen Sektoren die Aerosolschichten vorwiegend kamen, die in den einzelnen Jahreszeiten beobachtet wurden. Dies ist für die Schichten aus regulären Messungen in Abbildung 4.10 zu sehen. Die dargestellten Häufigkeiten sind relativ zur Gesamtanzahl der in der jeweiligen Jahreszeit regulär gemessenen Schichten gezeigt. Zwischen März und Mai ist der Anteil der beobachteten Aerosolschichten aus Osteuropa am größten. Im Sommer konnten die meisten Schichten den Sektoren Ost- und Westeuropa zugeordnet werden. Schichten aus südlichen Quellregionen sind von Juni bis August weniger häufig und ebenso Schichten aus unbekanntem und außereuropäischen Quellen. Im Herbst ist ein gegenläufiger Trend zu beobachten. Sehr viele Aerosolschichten aus Wintermessungen konnten keinem der

4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

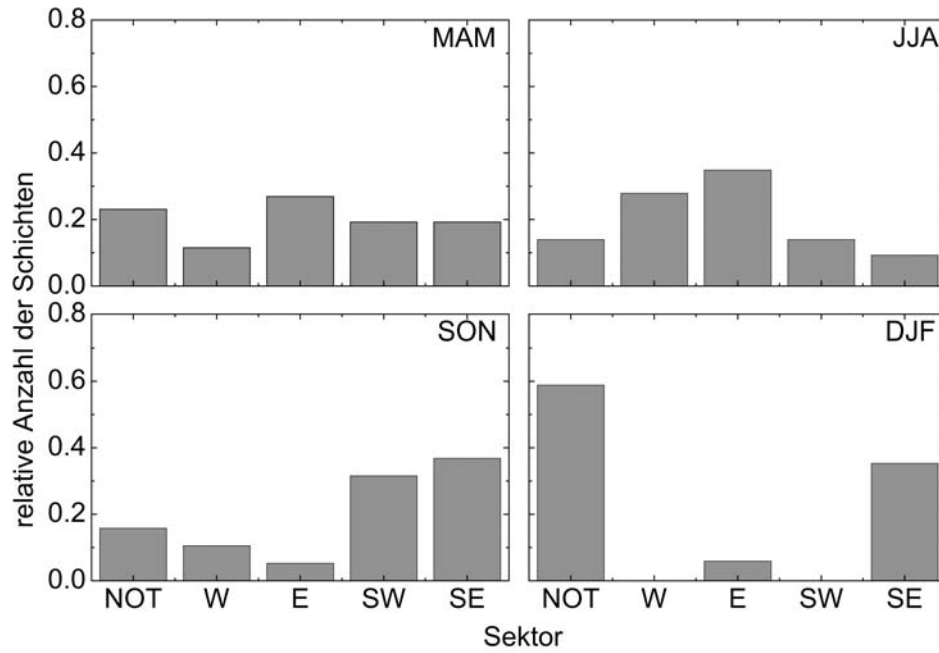


Abb. 4.10.: Relative Häufigkeit der Beobachtung von Schichten aus regulären Messungen aus den definierten Sektoren (W, E, SW, SE, NOT). Die Angaben beziehen sich auf die Jahreszeiten Frühling (März, April, Mai), Sommer (Juni, Juli, August), Herbst (September, Oktober, November) und Winter (Dezember, Januar, Februar) und sind relativ zur Gesamtanzahl der Schichten, die in den einzelnen Jahreszeiten gemessen wurden.

definierten Sektoren zugeordnet werden. Schichten aus Südosteuropa wurden aber auch relativ häufig detektiert. Zwischen Dezember und Januar lieferten die westlichen Sektoren W und SW keinen Beitrag.

Desweiteren wurde untersucht, in welchen Jahreszeiten besonders viele Aerosolschichten aus den einzelnen Sektoren stammten. In Abbildung 4.11 ist die Anzahl dieser Schichten relativ zur Gesamtanzahl der Schichten, die dem jeweiligen Sektor zugeordnet wurden, dargestellt. Schichten aus Ost- und Westeuropa wurden am häufigsten im Sommer beobachtet und Schichten aus den Sektoren SE und SW im Frühling. Der westeuropäische Sektor liefert im Winter keinen Beitrag zu den in regulären Messungen beobachteten Schichten. Aus Osteuropa kommen in Herbst und Winter ebenfalls nur sehr wenige Schichten. Im Winter wurden keine Schichten aus Südwesteuropa detektiert. Südosteuropäische Aerosolschichten werden im Sommer relativ selten beobachtet dafür häufiger im Herbst und Winter.

Im Frühling wurden 37 % und somit die meisten der 219 relevanten Schichten gemessen. Im Sommer wurden 29 % der Aerosolschichten beobachtet, 21 % im Herbst und 13 % im Winter.

4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

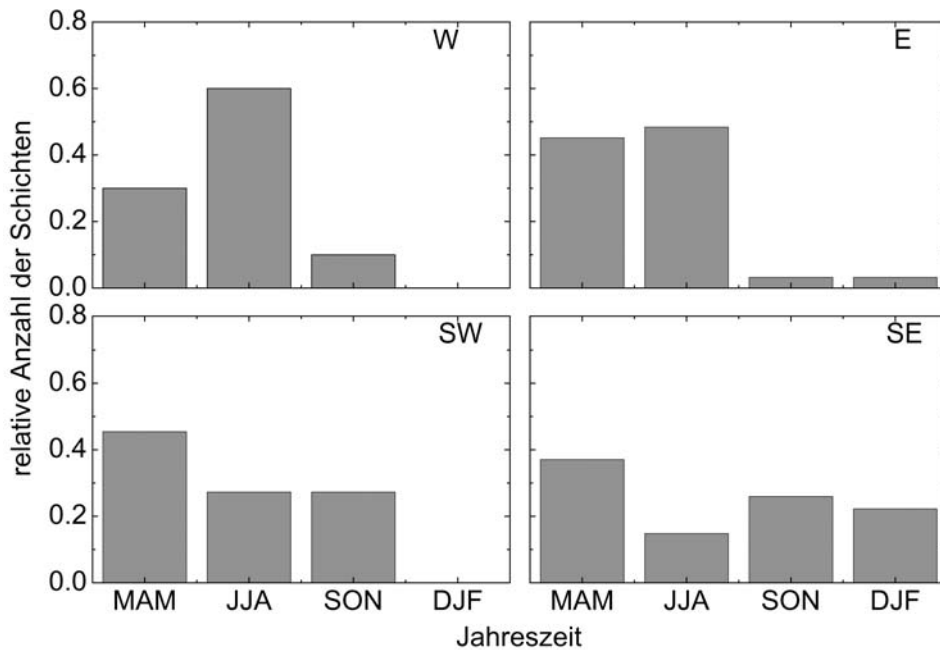


Abb. 4.11.: Relative Häufigkeit der Beobachtung von Schichten aus regulären Messungen in den einzelnen Jahreszeiten, dargestellt für die vier europäischen Sektoren. Diese Angaben sind relativ zu der Anzahl von Schichten, die den jeweiligen Sektoren insgesamt zugeordnet wurden.

4.3.3. Geometrische Eigenschaften

Die Auswertung der geometrischen Eigenschaften wurde für alle 219 Schichten durchgeführt. In Abbildung 4.12 ist die Häufigkeit der Messfälle mit einer bestimmten Anzahl von Schichten gezeigt. Es konnten bis zu sechs Schichten in einer Messung beobachtet werden. In 88 % der Messungen wurden eine bis drei Schichten detektiert.

Die Werte für die Sektoren in den folgenden Abbildungen können mit 36 bis 47 Schichten als signifikant betrachtet werden. Die Anzahl von Schichten aus den Quellregionen ist zum Teil sehr klein. Aus den Daten der 5 Schichten, die der Quellregion UKR zugeordnet wurden, lassen sich beispielsweise keine signifikanten und repräsentativen Werte ableiten. Dies muss bei der Betrachtung der Ergebnisse berücksichtigt werden. Hinzu kommt, dass die Einteilung Europas in die möglichen Quellregionen nicht flächendeckend ist. Dennoch werden die geometrischen Eigenschaften für alle Sektoren und Quellregionen gezeigt, da acht von neun Quellregionen mehr als zehn Aerosolschichten zugeordnet werden konnten.

In Abbildung 4.13 ist für jeden Sektor und jede Quellregion die Verteilung der geometrischen Dicke der Aerosolschichten zu sehen. Gezeigt sind die 5, 25, 75 und 95 Perzentile und der Median. Diese Art der Darstellung spiegelt sowohl den Schwerpunkt als auch die Variabilität der Verteilung wider. Der Median wurde dem Mittelwert vorgezogen, weil dieser robuster gegenüber Ausreißern ist, also Werten die extrem abweichen und somit die Aussagekraft des Mittelwertes beeinträchtigen können. Die Schichtdicke schwankt sehr stark zwischen 180 m, was die geringste detektierbare Schichtdicke ist, und mehr

4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

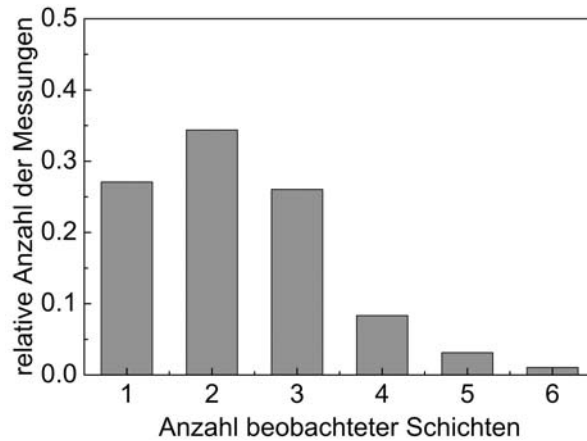


Abb. 4.12.: Relative Häufigkeitsverteilung der pro Messung beobachteten Anzahl von Aerosolschichten. 96 Messungen liegen der Abbildung zu Grunde.

als 3500 m. Die Mediane der Schichten aus westlicher Richtung, also aus den Sektoren W und SW, sind etwas geringer als die von Schichten aus östlicher Richtung, also aus den Sektoren E und SE. Der Median der Schichtdicken von Schichten aus außereuropäischen Quellen liegt dazwischen. Die Verteilungen der Schichtdicken für die einzelnen Quellregionen zeigen für GB, SP und TUR, starke Schwankungen der Werte. Zum Teil wurden sehr dicke Schichten aus diesen Quellregionen herantransportiert, die Medianwerte liegen jedoch im Größenbereich der Medianwerte der anderen Quellregionen. Dieses Verhalten deutet darauf hin, dass die Aerosolquellen in diesen Regionen zeitlich oder räumlich sehr variabel sind.

In Abbildung 4.14 sind die Höhen von Schichtobergrenze (oben), Schichtmitte (mitte) und Schichtuntergrenze (unten) dargestellt. Die untersuchten freien troposphärischen Schichten erstreckten sich über Höhenbereiche von 1.000 bis 8.000 m. Deutlich wird aus den Diagrammen auf der linken Seite der Abbildung 4.14, dass die Höhenverteilung für die Sektoren Westeuropa, Osteuropa und Südosteuropa ähnlich sind. Die Mediane weichen nur wenig voneinander ab. Die Mediane von Schichtober- und -untergrenze sowie Schichtmitte der Aerosolschichten aus Südwesteuropa liegen etwa 700 m höher als die Mediane der Verteilungen von Schichten aus den anderen europäischen Sektoren. Dies ist möglicherweise mit den meteorologischen Situationen zu erklären, die zu Südwestanströmung in Mitteldeutschland führen. Zum Beispiel sind Tiefdruckgebiete über dem westlichen Teil Europas einerseits Ursache für südwestliche Strömung und bewirken andererseits ein Anheben der warmen Luftmasse aus südlicheren Gebieten.

Ein Vergleich mit den Verteilungen der Schichtdicken (Abbildung 4.13, rechts) zeigt, dass Quellregionen mit sehr dicken Schichten eine breite Verteilung der Schichtobergrenzen aufweisen. Die Unterteilung nach Sektoren zeigt, dass höhere Schichten oft dünner sind als tiefere. Aus den Graphiken auf der rechten Seite der Abbildung 4.14 geht hervor, dass Schichten aus Quellregionen, die Leipzig näher sind, also BNL und POL, tiefer beobachtet wurden als Schichten aus entfernteren Regionen. Gründe dafür könnten der relativ kürzere Transportweg sein. Werden die Luftmassen über große Entfernungen transpor-

4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

tiert ist die Wahrscheinlichkeit des Auswaschens durch Regen oder Einmischens in die PBL, vor allem für tiefer liegende Aerosolschichten, recht hoch. Es muss natürlich auch die Art des Transportweges berücksichtigt werden. So liegt die Quellregion IT ebenfalls nicht sehr weit von Leipzig entfernt. Dass die Schichten aus IT dennoch in so großer Höhe beobachtet wurden, kann daran liegen, dass die Luftmassen die Alpen über- oder umströmen müssen, wobei die Aerosolschichten angehoben werden beziehungsweise der Transportweg verlängert wird.

4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

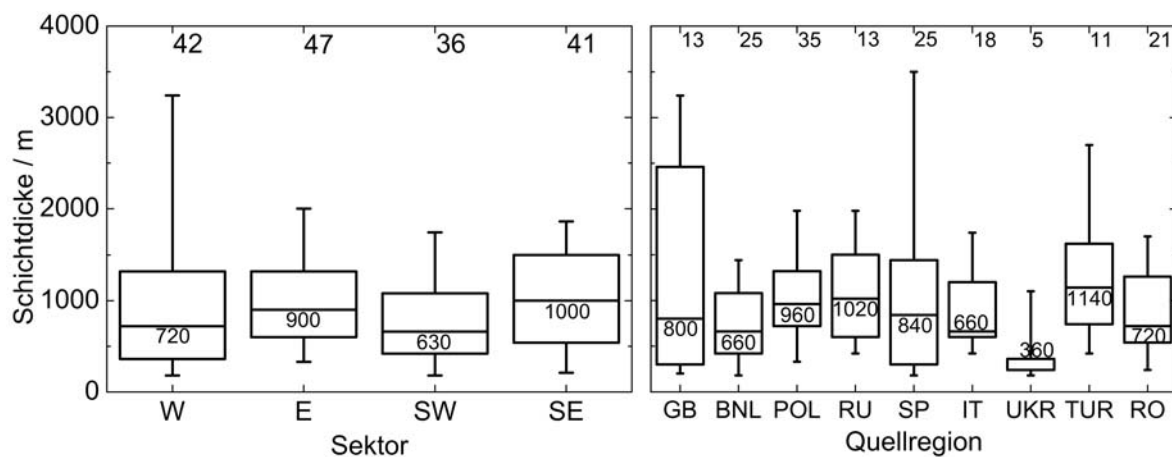


Abb. 4.13.: Verteilungen der Dicken der beobachteten freien troposphärischen Schichten, die den Sektoren und den Quellregionen zugeordnet werden konnten. Die Rechtecke bezeichnen die 25 und 75 Perzentile, die waagerechte Linie den Median und die Fehlerbalken die 5 und 95 Perzentile. Die Anzahl der beobachteten Aerosolschichten pro Sektor und Quellregion sind oben im Bild angegeben und der Medianwert unterhalb der waagerechten Linie im Rechteck.

4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

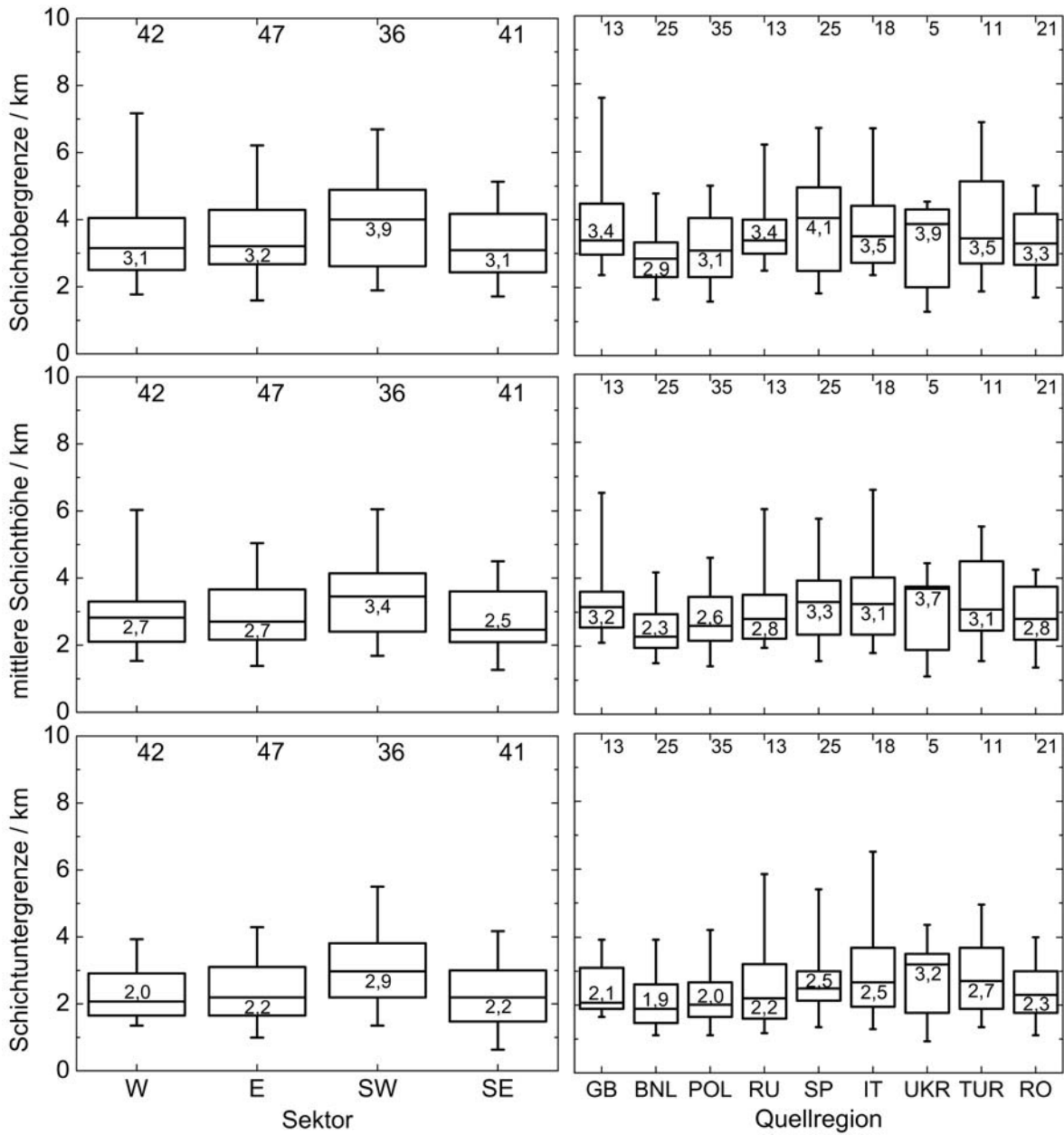


Abb. 4.14.: Verteilungen von Schichtobergrenzen (oben), Schichtmitten (mitte) und Schichtuntergrenzen (unten) jedes Sektors und jeder Quellregion. Außerdem sind die Anzahl der Schichten, die in jede Verteilung eingegangen sind, und der Wert jedes Medians gezeigt.

4.3.4. Optische Eigenschaften

Die Kenntnis der optischen Eigenschaften von Aerosolen ist wichtig für eine Abschätzung des Einflusses den sie auf Prozesse in der Atmosphäre haben. Im vorliegenden Abschnitt werden die Ergebnisse für die optische Dicke und den mittleren Extinktionskoeffizienten bei 532 nm (4.3.4.1), die Lidarverhältnisse bei 355 und 532 nm (4.3.4.2) und den Ångströmxponenten aus dem Extinktions- und dem Rückstreukoeffizienten bei 355 und 532 nm (4.3.4.3) vorgestellt.

4.3.4.1. Optische Dicke und Extinktionskoeffizient

Die optische Dicke der Aerosolschichten ist das Höhenintegral über den Extinktionskoeffizienten beziehungsweise über das Produkt aus Rückstreukoeffizient und Lidarverhältnis (Abschnitte 2.1.3 und 3.1.3). Die Berechnung der Profile des Extinktionskoeffizienten nach der Raman-Methode konnte nur für 37 Schichten durchgeführt werden. Die Profile des Rückstreukoeffizienten (532 nm) konnten hingegen für 160 der 166 Schichten aus den europäischen Sektoren bestimmt werden.

Die Lidarverhältnisse, die zur Bestimmung der optischen Dicke aus den Rückstreukoeffizienten benötigt werden, wurden wie folgt ermittelt. Für die 37 Schichten, für die die Profile der Extinktionskoeffizienten und damit der Lidarverhältnisse vorliegen, wurden diese entsprechend der Anströmung den jeweiligen Sektoren und Quellregionen zugeteilt. Danach wurde für jede Quellregion und jeden Sektor der Mittelwert der Lidarverhältnisse bestimmt. Diese Mittelwerte wurden in der Berechnung der optischen Dicke aus den Profilen der Rückstreukoeffizienten verwendet. Mit dieser Methode konnten für 89 % der 219 untersuchten Schichten die optische Dicke bestimmt werden. Anschließend wurde der mittlere Extinktionskoeffizient aus dem Verhältnis von optischer Dicke zu geometrischer Schichtdicke berechnet.

Die Verteilungen der optischen Dicke bei einer Wellenlänge von 532 nm sind in Abbildung 4.15 auf logarithmischer Skala dargestellt. Die Medianwerte der optischen Dicke der Schichten aus den einzelnen Sektoren unterscheiden sich nur wenig. Der Median des Sektors Südwesteuropa liegt mit 0,01 etwas niedriger, die Perzentile befinden sich jedoch in ähnlichen Größenbereichen, wie die der anderen Sektoren. Die größten Einzelwerte wurden im südosteuropäischen Sektor beobachtet. Auch *Mattis* (2003), *Amiridis et al.* (2005) und *De Tomasi et al.* (2006) finden höhere optische Dicken für südost- und osteuropäische als für mittel- und westeuropäische Quellen. Im rechten Diagramm der Abbildung 4.15, der Darstellung der Verteilungen der Quellregionen, schwanken die Medianwerte zwischen 0,01 und 0,03. Das Maximum von 0,03 wurde für die Quellregionen IT und RO gefunden. Die Verteilungen einiger Quellregionen sind sehr variabel.

Ein Vergleich mit den Abbildungen 4.13 und 4.14 zeigt, dass dickere Schichten größere optische Dicken aufweisen. Da höhere Schichten geometrisch dünner sind, ist die optische Dicke dieser ebenfalls geringer. Bei den Quellregionen ist diese Tendenz in schwächerer Form ebenfalls erkennbar.

Für anthropogene Verschmutzung ungewöhnlich hohe Werte wurden für drei Schichten aus der Quellregion RO gefunden. Diese wurden alle während der Messung am Abend

4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

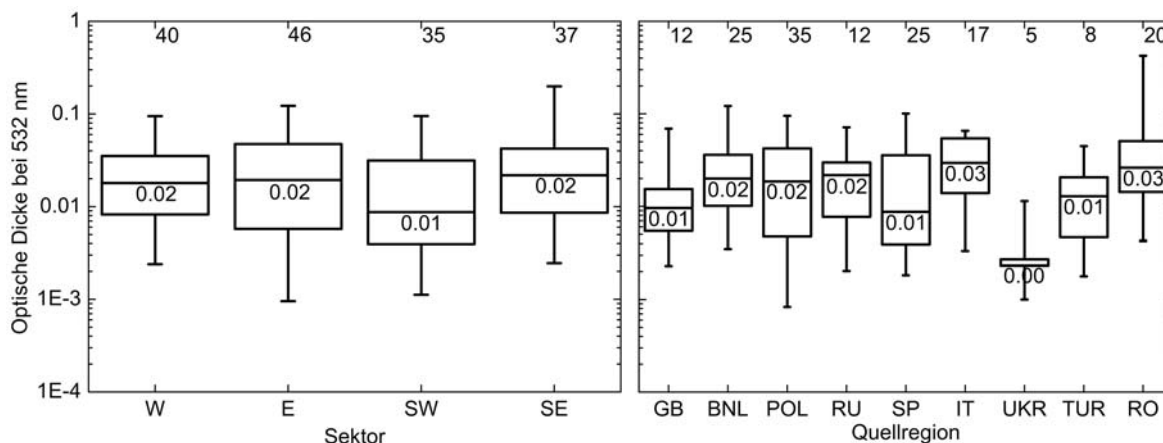


Abb. 4.15.: Die Verteilungen der optischen Dicke berechnet aus dem Rückstreukoeffizienten und dem Lidarverhältnis bei 532 nm für die Schichten aus den jeweiligen Sektoren und Quellregionen. Außerdem sind die Anzahl der Schichten und der Wert jedes Medians gezeigt.

des 20.04.2000 beobachtet. Recht hohe Depolarisationsverhältnisse weisen in diesem Fall eher auf Mineralstaub hin (*Ansmann et al.*, 2008), was die hohen optischen Dicken erklären würde. Die FLEXPART-Ergebnisse zeigen sehr geringe Aufenthaltszeiten dieser drei Schichten über der Sahara. Die Herkunft der Luftmasse aus Südosteuropa erscheint deutlich aus den Simulationsergebnissen. Im Jahr 2007 wurde, ebenfalls im Frühling, ein ähnlicher Fall beobachtet. *Birmili et al.* (2008) fanden Staubstürme in der Ukraine als Ursache für die hohe Staubbelastung in der Troposphäre über Mitteleuropa. Es ist im Hinblick dieser Ergebnisse unwahrscheinlich, dass es sich bei dem Fall vom 20.04.2000 um anthropogen verursachte Aerosolschichten handelt. Da die Quelle innerhalb Europas liegt, wurden die drei Schichten im untersuchten Datensatz belassen, auch wenn es sich um einen Sonderfall handelt.

Wandinger et al. (2004) untersuchten die optische Dicke der planetaren Grenzschicht über verschiedenen EARLINET-Stationen und fanden bei westlicher Strömung ansteigende Werte von Westen nach Osten. Für Leipzig wurden für den Zeitraum von 2000 bis 2002 bei östlicher Anströmung höhere optische Dicken der Grenzschicht berechnet als bei westlicher Anströmung. Dieser Unterschied zwischen den Luftmassen aus unterschiedlichen Anströmrichtungen kann für die in dieser Studie untersuchten Aerosolschichten in der freien Troposphäre nicht festgestellt werden. Es ist hierbei jedoch zu beachten, dass die für diese Schichten berechneten Werte, und somit deren Unterschiede, etwa eine Größenordnung geringer sind, als die der PBL. Zudem sind die Verteilungen recht breit. Die Verteilungen des mittleren Extinktionskoeffizienten, berechnet aus der optischen Dicke bei 532 nm und der Schichtdicke, ist in Abbildung 4.16 gezeigt. Die Verteilungen des Sektors SE und der Quellregion RO wurden jeweils zweimal berechnet, einmal mit den drei Schichten aus der Messung vom 20.04.2000 und einmal ohne. Es wird deutlich, dass sich die 95 Perzentile stark ändern. Der Medianwert variiert hingegen nur wenig. Für Schichten aus dem westeuropäischen Sektor wurden die höchsten mittleren Extinktionskoeffizienten berechnet. Die Verteilungen der anderen Sektoren unterscheiden sich

4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

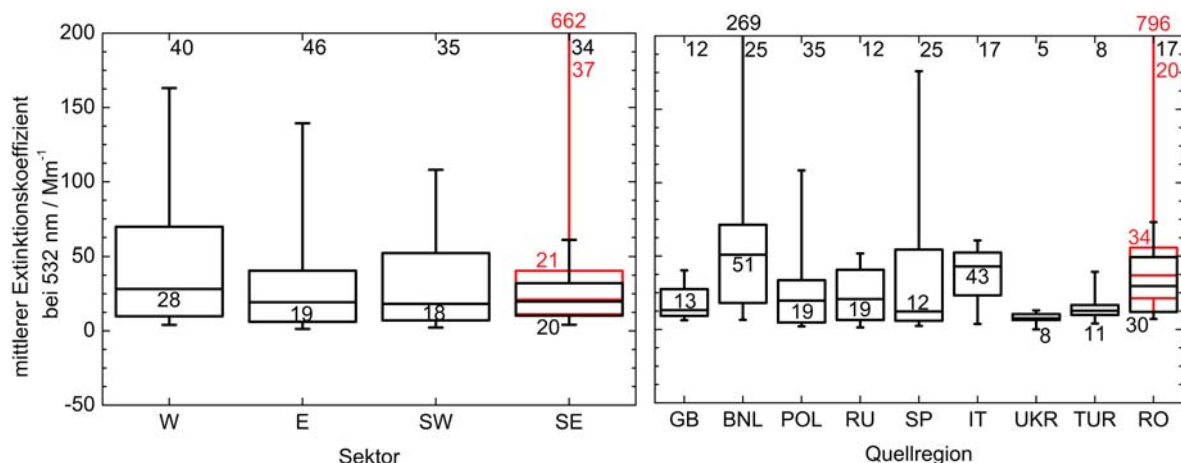


Abb. 4.16.: Die Verteilungen des mittleren Extinktionskoeffizienten berechnet aus der optischen Dicke bei 532 nm und der geometrischen Dicke für die Schichten aus den jeweiligen Sektoren und Quellregionen. Außerdem sind die Anzahl der Schichten und der Wert jedes Medians gezeigt. Über dem Diagramm stehen die Werte der 95 Perzentile, die zu groß sind, um bei der verwendeten Skala abgebildet zu werden. Die Verteilungen des Sektors SE und der Quellregion RO ist mit (rot) und ohne (schwarz) den Sonderfall vom 20.04.2000 dargestellt.

nicht sehr voneinander. Große Unterschiede kann man dagegen für die Verteilungen der einzelnen Quellregionen feststellen. Die Verteilungen von BNL, IT und RO weisen sehr hohe Werte des mittleren Extinktionskoeffizienten auf, wobei die Verteilung der Schichten aus BNL sehr breit ist. Schichten aus SP und POL zeigen ebenfalls eine recht hohe Variabilität. Die geringsten Medianwerte weisen die Verteilungen der Quellregionen GB, SP, TUR und UKR auf. Den Quellregionen UKR und TUR wurden relativ wenige Schichten zugeordnet und somit konnten nur wenige mittlere Extinktionskoeffizienten berechnet werden.

Matthias und Bösenberg (2002) haben die planetare Grenzschicht über Hamburg untersucht. Die gemessenen Luftmassen wurden in verschiedene Herkunftsrichtungen unterteilt. Für westliche und südwestliche Anströmung wurde eine mittlere Extinktion von $180 \pm 20 \text{ Mm}^{-1}$ beziehungsweise $200 \pm 20 \text{ Mm}^{-1}$ gefunden. Luftmassen aus östlicher Richtung zeigten eine etwas geringere mittlere Extinktion von $160 \pm 15 \text{ Mm}^{-1}$. Deutlich höhere Werte lieferten Luftmassen aus südöstlicher Richtung mit $250 \pm 60 \text{ Mm}^{-1}$. Der direkte Vergleich mit den hier vorgestellten Werten zeigt große Unterschiede in der Größenordnung der Werte. Ursache dafür kann sein, dass für die vorliegende Arbeit nicht die Grenzschicht, sondern Aerosolschichten in der freien Troposphäre untersucht wurden. Die Unterteilungen können ebenfalls nicht direkt verglichen werden. *Matthias und Bösenberg* (2002) klassifizierten die Luftmassen nach Anströmrichtungen am Messort und nicht nach vom Messstandpunkt unabhängigen Sektoren.

4.3.4.2. Lidarverhältnis

Die Berechnung der Profile der Extinktionskoeffizienten war nur für wenige Schichten möglich, da die Werte zu einem großen Teil zu klein waren, um sich noch deutlich vom

4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

molekularen Hintergrundwert abzuheben. Daher konnten die Lidarverhältnisse für 355 nm nur für 14 % und für 532 nm nur für 15% der untersuchten Aerosolschichten berechnet werden. Demzufolge ist die Einteilung der Schichtmittelwerte in Quellregionen nicht aussagekräftig. In Tabelle 4.4 ist ein Überblick über die Anzahl der berechneten Schichtmittelwerte der Lidarverhältnisse und Ängströmxponenten pro Quellregion aufgeführt. Abbildung 4.17 zeigt die Verteilungen der Schichtmittelwerte der Lidarverhältnisse bei 355 und 532 nm für die den einzelnen Sektoren. Auch diesen konnten zum Teil nur sehr

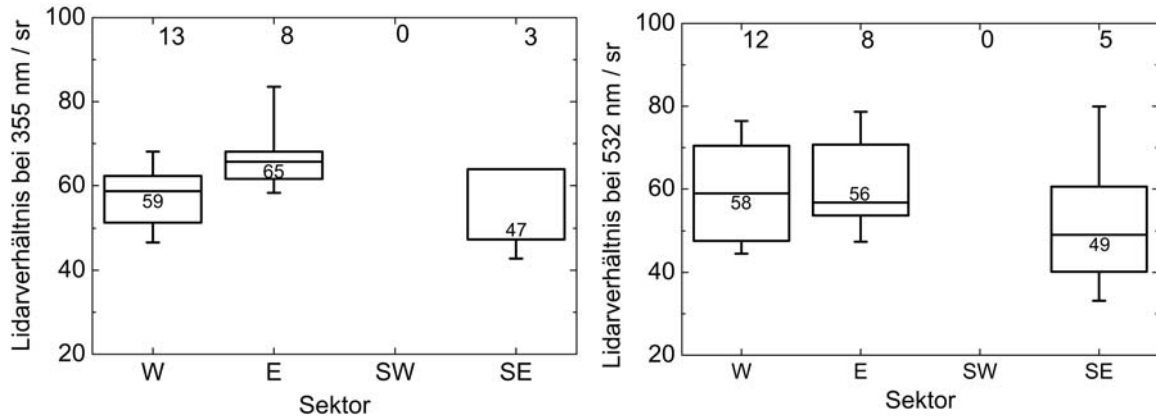


Abb. 4.17.: Die Verteilungen der Mittelwerte der Lidarverhältnisse pro Schicht bei einer Wellenlänge von 355 nm (links) und 532 nm (rechts) für die Schichten aus den verschiedenen Sektoren. Die Anzahl der auswertbaren Schichten und der Wert jedes Medians sind zusätzlich gezeigt.

wenige oder gar keine Schichtmittelwerte der Lidarverhältnisse zugeordnet werden. Es lassen sich nur für die Sektoren W, E und SE Medianwerte finden, die jedoch wegen der geringen Anzahl der Schichten mit einer großen Unsicherheit behaftet sind.

Die Lidarverhältnisse für Schichten aus Westeuropa sind mit Medianwerten von 59 ± 10 sr bei 355 nm und 58 ± 14 sr bei 532 nm ähnlich. Die Medianwerte der Lidarverhältnisse der Schichten aus Osteuropa unterscheiden sich hingegen deutlich mit 65 ± 9 sr bei 355 nm und 56 ± 11 sr bei 532 nm. Das Lidarverhältnis bei 355 nm ist im Allgemeinen größer als das bei 532 nm (Müller *et al.*, 2007). Schichten aus Südosteuropa weisen Lidarverhältnisse mit einem Median von 47 ± 11 sr bei 355 nm und 49 ± 18 sr bei 532 nm auf. Aussagen über signifikante Unterschiede zwischen den einzelnen Sektoren sind auf Grund der geringen Datenanzahl nicht möglich. Die Medianwerte der Lidarverhältnisse deuten auf anthropogene Verschmutzung hin (Müller *et al.*, 2001a), (Müller *et al.*, 2007), was bei innereuropäischen Quellregionen plausibel ist. Aber auch Staub oder Waldbrandaerosol sind möglich. Allein aus den Lidarverhältnissen kann keine Aussage über die Art den Aerosols getroffen werden.

Im Zeitraum von 2000 bis 2003 wurden von Mattis *et al.* (2004) für Aerosolschichten in der freien Troposphäre über Leipzig Lidarverhältnisse von durchschnittlich 52 sr bei 355 nm und 53 sr bei 532 nm ermittelt. Im oberen Teil der Grenzschicht wurden Werte von 58 sr (355 nm) und 53 sr (532 nm) gefunden. Für Osteuropa hat Mattis (2003) Lidarverhältnisse von 68 sr (355 nm) und 54 sr (532 nm) gefunden (siehe auch Tabelle 2.1). Dies stimmt etwa mit den Ergebnissen dieser Arbeit überein.

4.3.4.3. Ångströmexponent

Da für die Berechnung der Ångströmexponenten die Profile der Extinktionskoeffizienten und der Rückstreukoeffizienten bei 355 und 532 nm benötigt werden, konnte diese für nur 17 % der Schichten durchgeführt werden. In Abbildung 4.18 sind die Verteilungen der Schichtmittelwerte der Ångströmexponenten aus der Extinktion und der Rückstreuung jeweils bei 355 nm und 532 nm für die einzelnen Sektoren dargestellt. Da die Rückstreu-

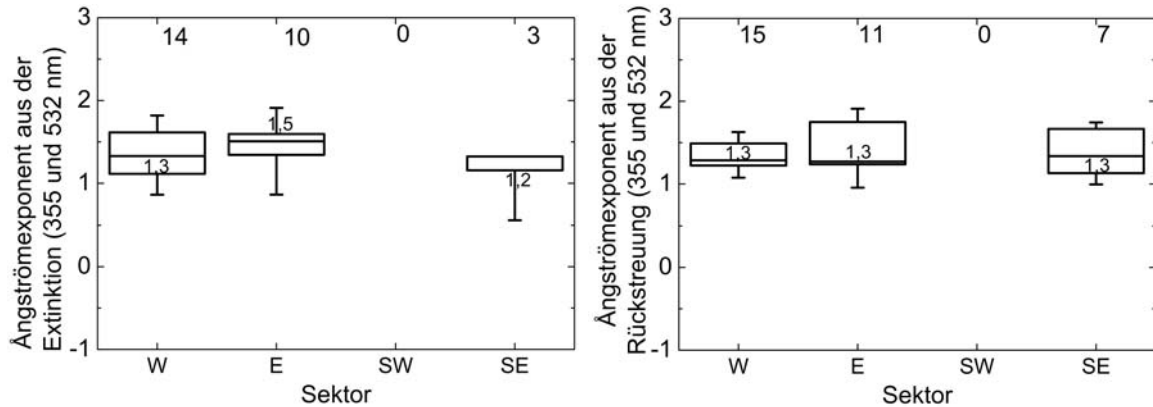


Abb. 4.18.: Die Verteilungen Schichtmittelwerte der Ångströmexponenten aus der Extinktion (links) und der Rückstreuung (rechts) bei jeweils 355 und 532 nm für die Schichten aus den verschiedenen Sektoren. Die Anzahl der auswertbaren Schichten und der Wert jedes Medians sind zusätzlich gezeigt.

profile für 355 nm ebenfalls für nur sehr wenige Schichten berechnet werden konnten, ist auch hier die Datenanzahl zu gering, um charakteristische Ångströmexponenten für alle Sektoren oder gar Quellregionen zu definieren. Für den Sektor SW sind keine Schichtmittelwerte des Ångströmexponenten vorhanden.

Die Medianwerte der übrigen Sektoren liegen etwa bei 1,3, wobei für den Sektor SE nur sehr wenige Schichtmittelwerte berechnet werden konnten und die entsprechenden Werte nicht als signifikant betrachtet werden können. Die Ångströmexponenten berechnet aus der Rückstreuung zeigen ähnliche Medianwerte, jedoch eine weniger breite Verteilung als die Ångströmexponenten berechnet aus der Extinktion. Der Medianwert von \hat{a}_α und die 75 Perzentile von \hat{a}_β sind für den Sektor E etwas größer als für den Sektor W. Größere Ångströmexponenten deuten auf kleinere Partikel hin. Diese Hypothese wird auch durch die größeren Werten der Lidarverhältnisse im osteuropäischen Sektor gestützt.

Auch von *Mattis* (2003) werden größere Ångströmexponenten bei Ostanströmung gefunden. Dort sind die Unterschiede zwischen den Clustern jedoch deutlich stärker ausgeprägt (siehe Tabelle 2.1).

4. Charakterisierung von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas

Tabelle 4.4.: Überblick über die Anzahl der Schichtmittelwerte von verschiedenen optischen Eigenschaften für die einzelnen Quellregionen.

optische Eigenschaft	GB	BNL	POL	RU	SP	IT	UKR	TUR	RO
L_{355nm}	3	11	4	5	0	0	0	0	2
L_{532nm}	3	11	4	5	0	0	0	0	3
\dot{a}_α bei 355 und 532 nm	3	10	5	5	1	0	0	0	4
\dot{a}_β bei 355 und 532 nm	5	10	6	5	0	0	0	0	6

5. Zusammenfassung

Ziel dieser Arbeit war die Ermittlung von geometrischen und optischen Eigenschaften von freien troposphärischen Aerosolschichten und die Klassifizierung dieser nach ihrer Herkunft innerhalb Europas. Hierfür wurden Lidardaten aus 96 Messungen aus sieben Jahren ausgewertet. Die geometrischen Eigenschaften der Schichten wurden mittels Gradientenmethode bestimmt. Für die Berechnung der optischen Eigenschaften wurden die Profile der Partikelrückstreuung nach einem neuen Verfahren bestimmt, dessen Entwicklung ebenfalls Teil dieser Arbeit war. Außerdem neu war die Kombination von FLEXPART-Ergebnissen und EMEP-Emissionsdaten. Dieses Verfahren wurde für die Zuordnung der Aerosolschichten zu den europäischen Quellregionen verwendet. Es wurde untersucht, ob Zusammenhänge zwischen den Eigenschaften und der Herkunft der Schichten bestehen.

Den vier europäischen Sektoren konnten jeweils etwa die gleiche Anzahl von Aerosolschichten zugeordnet werden. Diese Einteilung Europas ist flächendeckend. Aus den im Rahmen dieser Arbeit definierten Quellregionen wurden zum Teil nur sehr wenige Schichten beobachtet. Zudem war die Zuordnung nach Quellregionen nicht immer eindeutig möglich. In solchen Fällen wurde eine zweite mögliche Quellregion angegeben. Dies war für 78 % der Schichten notwendig, was auf Unsicherheiten in der genauen Eingrenzung der Quellregionen hinweist. Ein weiterer Nachteil der Einteilung Europas in Quellregionen war, dass sie nicht flächendeckend ist. Um diesen Ansatz dennoch weiter zu verfolgen, sind ein größerer Datensatz oder verbesserte Möglichkeiten zur Auswertung von Lidardaten, vor allem der Extinktion notwendig. Denn sogar die Charakterisierung von Aerosolschichten aus einzelnen Sektoren war für einige optische Parameter nicht möglich.

Die geometrischen Eigenschaften der Aerosolschichten bildeten die Basis der Auswertung der optischen Eigenschaften sowie der Herkunftsanalyse. Sie wurden für alle 219 Schichten bestimmt. Außerdem ermöglichte die neu entwickelte Methode die Berechnung des Rückstreuprofiles bei 532 nm für alle Messungen und 89 % der untersuchten Schichten. Da die Extinktionsprofile jedoch nur für 17 % der Schichten direkt aus dem Lidarsignal berechnet werden konnten, ist die Datenmenge für die optischen Eigenschaften Lidarverhältnis und Ångströmxponent sehr gering. Damit wurde eine aussagekräftige Charakterisierung einzelner Sektoren und vor allem Quellregionen erschwert.

Die Messungen waren nicht gleichmäßig über die Jahre und Monate verteilt. Ein Jahrgang ist ebenfalls nicht erkennbar. Desweiteren gab es große saisonale Unterschiede.

5. Zusammenfassung

Ursache hierfür sind die jahreszeitlich geprägten klimatischen Bedingungen und Hauptanströmrichtungen über Leipzig. So wurden im Winter fast nur Schichten aus dem südosteuropäischen Sektor beobachtet. Alle anderen Schichten waren außereuropäischen Ursprungs. Die Untersuchung der Höhe der Aerosolschichten zeigte einen deutlichen Unterschied zwischen Schichten aus Südwesteuropa und Schichten aus den anderen Sektoren. Ein Vergleich der Höhe von Schichten eingeteilt nach Quellregionen lässt die Annahme einer Abhängigkeit von der Länge des Transportweges zu. So wurden die Aerosolschichten aus den Quellregionen BNL und POL im Mittel tiefer detektiert, als andere. Im Mittel höhere Schichten zeigten wiederum eine etwas geringere geometrische Dicke, als niedrigere. Dies könnte folglich ebenfalls am längeren Transportweg gelegen haben.

Die Verteilungen der optischen Dicke pro Sektor zeigen, dass geometrisch dickere Schichten auch größere optische Dicken aufweisen. Da höhere Schichten dünner sind, ist die optische Dicke dieser ebenfalls geringer. Unabhängig von der Geometrie der Schichten ist der mittlere Extinktionskoeffizient berechnet aus der optischen Dicke und der Schichtdicke. Die höchsten Werte wurden für Westeuropa berechnet. Die Medianwerte der Lidarverhältnisse schwanken zwischen 47 und 65 sr (355 nm) und zwischen 49 und 58 sr (532 nm) und die der Ångströmxponenten aus der Extinktion zwischen 1,2 und 1,5. Die Medianwerte des Ångströmxponenten aus der Rückstreuung liegen bei 1,3 und unterscheiden sich nicht für die drei Sektoren, für die Aerosolschichten ausgewertet werden konnten. Die Datenmenge lässt eine Charakterisierung der Quellregionen in Hinblick auf die Lidarverhältnisse und Ångströmxponenten nicht zu.

Die in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse bezüglich der Quellregionen und Sektoren sind teilweise wenig signifikant. Um eine genauere Charakterisierung von einzelnen Quellregionen durchzuführen, ist eine weitere Verbesserung der Auswertung von Lidardaten notwendig. Die Entwicklung des Verfahrens zur Berechnung der Rückstreuprofile im Rahmen dieser Arbeit war ein sehr wichtiger Schritt in diese Richtung. Auch die Kopplung von Resultaten aus einem Partikeldispersionsmodell mit Emissionsdaten für die Identifikation von möglichen Quellregionen ist sinnvoll und vielversprechend.

A. Programmbeschreibung FLEXPART

Bei FLEXPART handelt es sich um ein Lagrange'sches Partikeldispersionsmodell. Es wurde aus dem Trajektorienmodell FLEXTRA weiterentwickelt, welches im folgenden Abschnitt erläutert wird. Grundidee war es, großräumige und mesoskalige Dispersion von Luftschadstoffen aus Punktquellen zu berechnen. FLEXPART berechnet die Trajektorien einer großen Anzahl von Partikeln, wobei jedes einzelne ein Volumen eines Tracermaterials repräsentiert. Im vorliegenden Kapitel wird auf einzelne Möglichkeiten von FLEXPART genauer eingegangen.

A.1. FLEXTRA

Das Trajektorienmodell FLEXTRA wird von *Stohl et al. (1995)* beschrieben. Mit Hilfe dieses Modells können einzelne kinematische Trajektorien unter Verwendung verschiedener meteorologischer Erhaltungsgrößen berechnet werden. Welche Arten von Trajektorien möglich sind, hängt vom meteorologischen Datenfeld ab.

Die Trajektoriengleichung (Gleichung 3.28) wird mittels iterativem Schema nach *Peterssen (1940)* integriert

$$\mathbf{X}_1 = \mathbf{X}_0 + \Delta t \mathbf{v}(\mathbf{X}_0, t), \quad (\text{A.1})$$

$$\mathbf{X}_n = \mathbf{X}_0 + \frac{\Delta t}{2} [\mathbf{v}(\mathbf{X}_0, t) + \mathbf{v}(\mathbf{X}_{n-1}, t + \Delta t)]. \quad (\text{A.2})$$

In dieser Gleichung ist Δt der Integrationszeitschritt, \mathbf{X}_0 ist der Ortsvektor der Ausgangsposition und \mathbf{X}_1 und \mathbf{X}_n sind die Ortsvektoren zum ersten bzw n-ten Iterationsschritt. Im Modell werden flexible Integrationszeitschritte benutzt. Δt muss dabei das Courant-Friedrichs-Lewy-Kriterium, kurz cfl-Kriterium $C < 1$, mit $C = \frac{v_i \Delta t}{\Delta x_i}$ erfüllen. Δx_i sind hierbei die Gitterpunktabstände und v_i sind die zugehörigen Windkomponenten. Die Bedingung $\Delta t = C \cdot \Delta t_w$ muss ebenfalls erfüllt sein, wobei Δt_w die zeitliche Auflösung des Windfeldes ist. Dadurch wird sicher gestellt, dass die kleinsten durch das Windfeld aufgelösten Strukturen bei der Trajektorienberechnung wiedergegeben werden können.

Eine Fehlerquelle bei der Berechnung von Trajektorien ist die Interpolation (*Stohl et al., 1995*). Die meteorologischen Felder besitzen eine gewisse räumliche und zeitliche Auflösung. Zwischen den Gitterpunkten muss jedoch interpoliert werden. Sehr große Fehler verursacht zum Beispiel die Interpolation der Vertikalgeschwindigkeit, da diese räumlich sehr variabel ist. Sehr rechenaufwändige Interpolationsverfahren erreichen geringe

Interpolationsfehler. Ein kleinerer Rechenaufwand bedeutet hingegen größere Ungenauigkeit. Die Modellergebnisse wurden mittels verschiedener Experimente validiert (*Stohl und Koffi*, 1998d).

A.2. Eingabefelder

Die für die Simulation verwendeten meteorologischen Felder stammen aus der GFS-Analyse (**G**lobal **F**orecast **S**ystem) und können aus dem Archiv des CISL heruntergeladen werden (*CISL, FNL-Datensatz*, 2008). Für diese Arbeit wurden die archivierten 6-stündigen Analysefelder verwendet. Verfügbar sind außerdem die 3-stündige Felder, bestehend aus Analysefeldern alle 6 Stunden und Prognosefeldern dazwischen, jedoch nicht für den benötigten Zeitraum. Für andere Modellversionen von FLEXPART können auch ECMWF-Felder (**E**uropean **C**entre for **M**edium-**R**ange **W**eather **F**orecasts) verwendet werden.

Eine ausführlichere Beschreibung des GFS-Modells ist auf der Homepage des *Environmental Modeling Center* unter *GFS-Beschreibung* (2007) zu finden. Hier wird nur auf die wichtigsten Parameter eingegangen.

horizontale Auflösung Das Feld ist spektral in Dreiecke zerlegt. Ein Gauß-Gitter von 768 x 384 Punkten entspricht grob $0.5^\circ \times 0.5^\circ$.

vertikale Auflösung Der Höhenbereich erstreckt sich vom Erdboden ($\sigma=1$) bis $\sigma=0$ in 64 Schichten in ungleichen Abständen. Für einen Oberflächendruck von 1000 hPa befinden sich 15 Schichten unter 800 hPa, und 24 Schichten über 100 hPa.

Integrations schemen Die Zeitintegration erfolgt hauptsächlich mit Leapfrog für nicht-lineare Advektionsterme. Ein semi-implizites Schema wird für Schwerewellen und zonale Advektion von Vorticity und Feuchte verwendet. Physikalische und dynamische Prozesse werden getrennt behandelt.

Atmosphärendynamik Die primitiven Gleichungen werden mit den abhängigen Variablen Vorticity, Divergenz, logarithmischer Bodendruck, spezifische Feuchte, virtuelle Temperatur und Wolkenkondensation gelöst.

Strahlung Die langwellige Strahlung wird mit einem Strahlungstransfermodell berechnet, in dem Aerosoleffekte nicht berücksichtigt sind. Für die kurzwellige Strahlung werden Ozon, Wasserdampf, CO_2 und Sauerstoff berücksichtigt. Das Modell enthält acht Spektralbanden im ultravioletten (UV) und im sichtbaren (VIS) Spektralbereich sowie eine im nahen infraroten. Ebenfalls enthalten sind eine saisonale Klimatologie für die Bildung einer Mischung troposphärischer Aerosolkomponenten und eine horizontale Verteilung der Oberflächenalbedo nach Vegetationstypen.

Konvektion Der Massenfluss der Wolke wird unter der Annahme eines Quasigleichgewichts berechnet. Enthalten sind ein *Downdraft*-Mechanismus, Luftmasseneintrag

aus *Updrafts* und die Verdunstung des Niederschlags. Die Massenflüsse können Impulse transportieren.

Bedeckungsgrad Er wird diagnostisch berechnet. Es gibt keine Bedeckung, wenn keine Kondensation auftritt.

Kondensation und Niederschlag Es existieren zwei Quellen für Wolkenkondensat, der konvektive Austrag und die Kondensation. Als Senken werden Niederschlag und Verdunstung einbezogen. Niederschlag, der die unterste Atmosphärenschicht erreicht, erreicht laut Modell auch den Boden und gilt somit als Niederschlag.

Orographie Sie basiert auf dem globalen digitalen Elevationsmodell (DEM) des *Geological Survey* der Vereinigten Staaten (USGS, *Digital Elevation Model* (2008)). Die Auflösung beträgt 30" (Bogensekunden), was etwa 1km entspricht. Daraus werden Statistiken, welche die durchschnittliche Höhe, Bergvarianz, maximale Orographie und Land-See-Verteilung beinhalten, direkt berechnet.

Ozean Es wird eine tägliche Analyse der Meeresoberflächentemperatur verwendet, die die Beobachtungen der letzten sieben Tage assimiliert.

Oberflächeneigenschaften Die Rauigkeitslänge wird in zwölf Vegetationstypen eingeteilt. Über dem Ozean ist sie abhängig von der Windschubspannung. Die Albedo ist über Land ebenfalls vom Vegetationstyp und über dem Meer von der Oberflächentemperatur abhängig. Die Langwellenemissivität ist für alle Oberflächen gleich der Schwarzkörperemission. Vegetationstypen variieren auf der Grundlage einer monatlichen Klimatologie.

A.3. Berechnung der Grenzschichtparameter

Als Grundlage für die folgenden Abschnitte dient das Handbuch der Modellversion 6.2 *Stohl et al.* (2005).

Eine fundamentale Aufgabe eines Transportmodells ist die möglichst genaue Wiedergabe der Prozesse in der Grenzschicht. Aufgrund der vorherrschenden turbulenten Bedingungen ist darauf besonderen Wert zu legen. Der vorliegende Abschnitt zeigt, wie die physikalische Parametrisierung von Grenzschichtparametern in FLEXPART implementiert ist. Die dafür benötigten Größen, wie zum Beispiel die beiden Komponenten der Windschubspannung am Boden, Wind- und Temperaturdaten sowie die Wärmeflüsse, werden den gegebenen meteorologischen Feldern entnommen.

Eine entscheidende Größe in der Grenzschichtmeteorologie ist die Schubspannungsgeschwindigkeit u_* . Sie ist über die turbulenten Impulsflüsse $\overline{u'w'}$ und $\overline{v'w'}$ definiert

$$u_* = \sqrt[4]{\overline{u'w'^2} + \overline{v'w'^2}}, \quad (\text{A.3})$$

wobei u' , v' und w' die Abweichungen von den mittleren Windkomponenten \bar{u} , \bar{v} und \bar{w} nach der Reynolds'schen Zerlegung (*Reynolds*, 1894) darstellen (*Foken*, 2003). Ist u in

A. Programmbeschreibung FLEXPART

Richtung des mittleren Windes ausgerichtet, gilt für die Schubspannungsgeschwindigkeit

$$u_*^2 = -\overline{u'w'}. \quad (\text{A.4})$$

Bei u_* handelt es sich um eine generalisierte Geschwindigkeit. Sie ist ein Maß für die Schubspannung τ und drückt diese mit Hilfe der Luftdichte ρ in der Dimension einer Geschwindigkeit aus *Foken* (2003)

$$u_* = \sqrt{\frac{\tau}{\rho}}. \quad (\text{A.5})$$

Die Schubspannung wird im Modell aus

$$\tau = \sqrt{\tau_1^2 + \tau_2^2} \quad (\text{A.6})$$

berechnet (*Stohl et al.*, 2005). Hierbei sind τ_1^2 und τ_2^2 die Schubspannungen in Ost-West- und in Nord-Süd-Richtung. Die Schubspannungsgeschwindigkeit wird in FLEXPART mit der Formel

$$u_* = \frac{\kappa \Delta u}{\ln \frac{z_l}{L} - \Psi_m \left(\frac{z_l}{L} \right) + \Psi_m \left(\frac{10}{L} \right)} \quad (\text{A.7})$$

iterativ berechnet. Hier ist κ die von-Kármán-Konstante, die mit einem Wert von 0,4 belegt ist und die Proportionalität des Mischungsweges l zur Höhe z beschreibt

$$l = \kappa \cdot z. \quad (\text{A.8})$$

Der Mischungsweg ist die Strecke, die ein Turbulenzelement zurücklegt muss, bis es durch den Austausch mit der Umgebung vollständig deren Eigenschaften angenommen hat. Desweiteren ist in Gleichung A.7 z_l die Höhe der zweiten Modellschicht, Δu die Differenz zwischen dem Wind in der Höhe z_l und dem in 10 m Höhe sowie Ψ_m und Ψ_h die Stabilitätskorrektionsfunktionen für Impuls (**momentum**) und Wärme (**heat**), wie sie von *Businger et al.* (1971) eingeführt wurden. Die Obukhov-Länge L und die Temperaturskala θ_* werden ebenfalls iterativ berechnet. Die Temperaturskala ist als

$$\theta_* = -\frac{\overline{w'\theta'}}{u_*} \quad (\text{A.9})$$

definiert (*Foken*, 2003) und wird im Modell über die Gleichung

$$\theta_* = \frac{\kappa \Delta \theta u}{R \left[\ln \frac{z_l}{2} - \Psi_h \left(\frac{z_l}{L} \right) + \Psi_h \left(\frac{2}{L} \right) \right]}, \quad (\text{A.10})$$

berechnet. $\Delta \theta$ stellt, ähnlich wie Δu , die Differenz zwischen der potentiellen Temperatur in der Höhe z_l und der in 2 m Höhe dar und R ist die Gaskonstante. Die Obukhov-Länge wird laut *Foken* (2003) über die Beziehung

$$L = -\frac{u_*^3}{\kappa \frac{g}{T} \frac{Q_H}{\rho \cdot c_p}} \quad (\text{A.11})$$

A. Programmbeschreibung FLEXPART

definiert. Es ist g die Schwerebeschleunigung, T die Temperatur, Q_H der fühlbare Wärmestrom und c_p die spezifische Wärmekapazität der Luft bei konstantem Druck. Die charakteristische Länge L wird mit der Gleichung

$$L = \frac{\bar{T}u_*^2}{g\kappa\theta_*} \quad (\text{A.12})$$

in die Modellrechnung einbezogen. Für \bar{T} wird hierbei die Temperatur des ersten Modelllevels eingesetzt. Der fühlbare Wärmestrom wird durch

$$\overline{(w'\theta'_v)}_0 = -\rho c_p u_* \theta_* \quad (\text{A.13})$$

berechnet. θ'_v ist der fluktuierende Anteil der virtuellen potentiellen Temperatur. Die Grenzschichthöhe h_{mix} wird vom Modell nach *Vogelezang und Holtslag* (1996) unter Verwendung der kritischen Richardson-Zahl bestimmt. Demnach ist h_{mix} die Höhe, in der die Richardson-Zahl

$$Ri_l = \frac{(g/\theta_{v1})(\theta_{vl} - \theta_{v1})(z_l - z_1)}{(u_l - u_1)^2 + (v_l - v_1)^2 + 100u_*^2} \quad (\text{A.14})$$

erstmal den kritischen Wert 0,25 überschreitet. Hierbei ist θ_{v1} die virtuelle potentielle Temperatur des ersten Modelllevels und θ_{vl} die des l -ten Modelllevels, die sich jeweils in der Höhe z_1 und z_l befinden. Die Windkomponenten in der jeweiligen Höhe sind (u_1, v_1) beziehungsweise (u_l, v_l) . Für konvektive Fälle kann die obige Gleichung verbessert werden, indem θ_{v1} durch

$$\theta'_{v1} = \theta_{v1} + 8,5 \frac{\overline{(w'\theta'_v)}_0}{w_* c_p}, \quad (\text{A.15})$$

ersetzt wird, wobei

$$w_* = \left[\frac{\overline{(w'\theta'_v)}_0 g h_{mix}}{\theta_{v1} c_p} \right]^{1/3} \quad (\text{A.16})$$

die konvektive Geschwindigkeitsskala bezeichnet. Der zweite Term auf der rechten Seite der Gleichung A.15 bezeichnet die positive Temperaturdifferenz der aufsteigenden warmen Luftmassen. Da w_* anfangs nicht bekannt ist, werden h_{mix} und w_* iterativ berechnet.

Die Höhe der Grenzschicht am Nachmittag würde signifikant unterschätzt, wenn zwischen den Daten von 12 Uhr und 18 Uhr linear interpoliert werden würde. Die Grenzschichthöhe erreicht ihr Maximum am Nachmittag. Dieses ist demnach in den 6-stündlichen Daten nicht erfasst. Beim Interpolieren können somit große Fehler auftreten. Ähnliche Effekte können durch komplexe Topographie, hohe Variabilität in der Landnutzung oder in der Bodenfeuchtigkeit verursacht werden. Aus diesen Fehlern würden signifikante Abweichungen in der Größe der Wolke von simulierten Luftvolumen resultieren. In FLEXPART ist deshalb eine etwas beliebige Parametrisierung implementiert, um diese Fehler zu vermeiden. Räumliche Unterschiede der Grenzschichthöhe, die aus der Topographie resultieren, werden berücksichtigt, indem eine einhüllende Grenzschichthöhe

$$H_{env} = h_{mix} + \min \left[\sigma_z, \max \left(C \frac{V}{N}, 0 \right) \right] \quad (\text{A.17})$$

berechnet wird, wobei σ_z die subskalige Modelltopographie, C eine Konstante (hier: 2,0), V die Windgeschwindigkeit, N die Brunt-Väisälä-Frequenz und V/N die lokale Froude-Zahl ist. Für die folgenden Rechnungen wird H_{env} an Stelle von h_{mix} verwendet. H_{env} wird nicht auf die Position des Luftvolumens interpoliert, sondern die maximale H_{env} aller Gitterpunkte, die das Luftvolumen in Raum und Zeit umgeben, wird benutzt.

A.4. Transport und Diffusion

Die zu lösende Gleichung 3.28 wurde schon in Abschnitt 3.3.1 vorgestellt. Der Windvektor \mathbf{v} wird zerlegt in einen mittleren Wind $\bar{\mathbf{v}}$, die turbulenten Abweichungen \mathbf{v}_t und die mesoskaligen Abweichungen \mathbf{v}_m . Es gilt also $\mathbf{v} = \bar{\mathbf{v}} + \mathbf{v}_t + \mathbf{v}_m$. In FLEXPART erfolgt eine Iteration für den mittleren Wind mit dem Schema nach Pettersson (Gleichungen A.1, A.2; *Pettersson* (1940)), falls dies möglich ist. Für die Anwendung werden Windfelder eines zweiten Zeitpunktes benötigt. Wenn dieser außerhalb des Berechnungszeitraumes liegt, kann das Schema nicht benutzt werden. Ebenfalls nicht möglich ist die Anwendung, falls ein Luftvolumen die Grenzen eines eingebetteten, zum Beispiel höher aufgelösten, Gebietes kreuzt und wenn in der atmosphärischen Grenzschicht $c_{tl} > 0$ gilt. Die Konstante c_{tl} kann vom Anwender vorgegeben werden und wird für die Berechnung des Zeitschrittes benötigt. Diese wird in Abschnitt A.4.2 erläutert. Der Transport und die turbulente Dispersion wird berechnet, indem die meteorologischen Daten auf die Position des Luftvolumens interpoliert und die Langevin-Gleichungen (Gleichung 3.34) gelöst werden. Die Lösung der Langevin-Gleichungen, wie sie von FLEXPART durchgeführt wird, ist in Abschnitt A.4.1 angegeben.

Da die Pole auf einem Längen-Breiten-Gitter Singularitäten darstellen, wird der Horizontalwind nahe an den Polen in polar stereographische Koordinaten umgewandelt. In diesen Breiten wird die Advektion der Luftvolumen in dem polar stereographischen System berechnet. Bei der polar stereographischen Projektion wird eine Halbkugel der Erde auf einer Tangentialebene abgebildet. Das Projektionszentrum liegt bei der Abbildung der Nordhalbkugel am Südpol und bei der Abbildung der Südhalbkugel am Nordpol. Die Graphik A.1 soll dies verdeutlichen.

A.4.1. Langevin-Gleichungen

Wie von anderen Lagrange'schen Partikeldispersionsmodellen auch (siehe Abschnitt 3.3.2), wird die turbulente Windkomponente \mathbf{v}_t von FLEXPART als ein Markov-Prozess parametrisiert, der auf den Langevin-Gleichungen (Gleichung 3.34) basiert. Im Modell werden Kreuzkorrelationen zwischen den Windkomponenten nicht berücksichtigt, da sie nur einen geringen Effekt auf die großräumige Dispersion haben (*Ullasz, 1994*). In FLEXPART wird Gauß-Turbulenz angenommen. Diese ist nur in stabilen und neutralen Verhältnissen uneingeschränkt gültig. Unter konvektiven Bedingungen ist diese Annahme also nicht richtig. Für Transportentfernungen bei denen die Partikel in der Grenzschicht gut durchmischt werden, ist der Fehler jedoch gering. Die genannten Annahmen führen

A. Programmbeschreibung FLEXPART

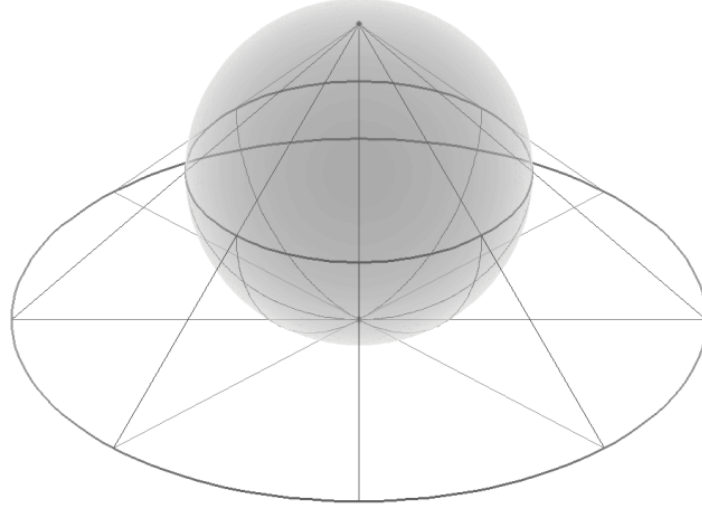


Abb. A.1.: Prinzip der polaren stereographischen Projektion. Hier wird die Südhälfte abgebildet, das Projektionszentrum liegt also am Nordpol. (*Wikipedia: Polare stereographische Projektion*, 2008)

zu einer Langevin-Gleichung für die vertikale Windkomponente w

$$dw = -w \frac{dt}{\tau_{Lw}} + \frac{\partial \sigma_w^2}{\partial z} dt + \frac{\sigma_w^2}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial z} dt + \left(\frac{2}{\tau_{Lw}} \right)^{1/2} \sigma_w dW, \quad (\text{A.18})$$

in der w und σ_w die turbulente vertikale Windkomponente und deren Standardabweichung sind. Weiterhin ist τ_{Lw} die Lagrange'sche Zeitskala der Autokorrelation der Vertikalgeschwindigkeit und ρ die Dichte. Der dritte Term auf der rechten Seite stellt die Dichtekorrektur dar (*Stohl und Thomson, 1999*). Der extra Term hat die Form einer zusätzlichen Beschleunigung die auf die Luftvolumen wirkt und ist physikalisch gesehen eine Konsequenz aus der Druckkraft. Dieser Korrekturterm bezieht die Abnahme der Dichte mit der Höhe in das Modell ein. Die Dichtefluktuationen in einer Höhe (ρ') werden vernachlässigt. Die Dichte wird für jede Modellschicht und der Dichtegradient für jede halbe Modellschicht berechnet und auf die Partikelposition interpoliert. Je dicker die Grenzschicht ist, umso größer ist laut *Stohl und Thomson (1999)* der Effekt der Dichtekorrektur. Für die horizontalen Windkomponenten sehen die Langevin-Gleichungen aus, wie die Gleichung A.18, jedoch ohne den zweiten und dritten Term auf der rechten Seite. Eine alternative Schreibweise der Langevin-Gleichung verwendet w/σ_w statt w

$$d \left(\frac{w}{\sigma_w} \right) = - \frac{w}{\sigma_w} \frac{dt}{\tau_{Lw}} + \frac{\partial \sigma_w}{\partial z} dt + \frac{\sigma_w}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial z} dt + \left(\frac{2}{\tau_{Lw}} \right)^{1/2} dW. \quad (\text{A.19})$$

Es werden zwei verschiedene Methoden zur numerischen Lösung der Langevin-Gleichungen verwendet. Diese werden am Beispiel der Gleichung A.19 gezeigt. Gilt $\Delta t/\tau_{Lw} < 0,5$, wird

$$\left(\frac{w}{\sigma_w} \right)_{k+1} = \left(1 - \frac{\Delta t}{\tau_{Lw}} \right) \left(\frac{w}{\sigma_w} \right)_k + \frac{\partial \sigma_w}{\partial z} \Delta t + \frac{\sigma_w}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial z} \Delta t + \left(\frac{2\Delta t}{\tau_{Lw}} \right)^{1/2} \zeta \quad (\text{A.20})$$

benutzt, wobei k der Index des Zeitschrittes ist und ζ eine normalverteilte Zufallszahl mit dem Mittelwert Null und einer Standardabweichung von eins. Ist $\Delta t/\tau_{Lw} \geq 0,5$, so wird

$$\left(\frac{w}{\sigma_w}\right)_{k+1} = r_w \left(\frac{w}{\sigma_w}\right)_k + \frac{\partial \sigma_w}{\partial z} \tau_{Lw} (1 - r_w) + \frac{\sigma_w}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial z} \tau_{Lw} (1 - r_w) + (1 - r_w^2)^{1/2} \zeta \quad (\text{A.21})$$

berechnet, mit der Autokorrelation des Vertikalwindes $r_w = \exp(-\Delta t/\tau_{Lw})$. Erreicht ein Luftvolumen den Boden oder die Obergrenze der Grenzschicht, wird es reflektiert und das Vorzeichen der turbulenten Geschwindigkeit ändert sich (*Wilson und Flesch, 1993*).

A.4.2. Berechnung des Zeitschrittes

Die Simulationen können von FLEXPART auf zwei verschiedene Arten durchgeführt werden, welche vom Anwender eingestellt werden können. Die Berechnung im weniger rechenaufwändigen Modus ist für großräumige Anwendungen ausreichend (*Stohl et al., 1998c*). Die Länge der Berechnungsintervalle wird dabei nicht an die Lagrange'sche Zeitskala τ_L angepasst, sondern es werden konstante Zeitschritte verwendet. Soll Turbulenz genauer beschrieben werden, müssen die Zeitschritte durch τ_L begrenzt werden. Es wird nur die Zeitskala der Vertikalkomponente verwendet, da diese für die Turbulenz ausschlaggebend ist. Der Anwender muss in diesem Fall zwei Konstanten angeben. Die erste, c_{tl} , ist zur Berechnung des Zeitschrittes Δt_i notwendig

$$\Delta t_i = \frac{1}{c_{tl}} \min \left(\tau_{Lw}, \frac{h}{2w}, \frac{0,5}{\partial \sigma_w / \partial z} \right). \quad (\text{A.22})$$

Er wird verwendet, um die Langevin-Gleichungen für die horizontalen turbulenten Windkomponenten zu berechnen. Das Minimum von Δt_i beträgt eine Sekunde. Für die Lösung der Langevin-Gleichung des Vertikalwindes muss der kürzere Zeitschritt $\Delta t_w = \Delta t_i / i_{fine}$ bestimmt werden. Dafür wird die zweite Konstante i_{fine} gebraucht. Es gibt keine Wechselwirkungen zwischen horizontalen und vertikalen Windkomponenten auf einer Zeitskala, die kleiner als Δt_i ist. Mit diesem Verfahren soll sicher gestellt werden, dass Partikel auch in sehr inhomogener Turbulenz gut durchmischt bleiben und zwar mit einem Minimum an Rechenanforderungen.

A.4.3. Parametrisierung der turbulenten Windkomponenten

Für σ_{v_i} und τ_{L_i} wird ein Parametrisierungsschema von *Hanna (1982)* verwendet. Für stabile Bedingungen gilt dabei

$$\sigma_u = 2,0u_* \left(1 - \frac{z}{h}\right) \quad (\text{A.23})$$

und

$$\sigma_w = 1,3u_* \left(1 - \frac{z}{h}\right). \quad (\text{A.24})$$

A. Programmbeschreibung FLEXPART

Hanna (1982) setzt $\sigma_v = \sigma_u$, in FLEXPART wird jedoch $\sigma_v = \sigma_w$ angenommen. Die zugehörigen Lagrange'schen Zeitskalen werden von *Hanna* (1982) als

$$\tau_{L_u} = \tau_{L_v} = 0,07 \frac{h}{\sigma_u} \left(\frac{z}{h} \right)^{1/2} \quad (\text{A.25})$$

und

$$\tau_{L_w} = 0,1 \frac{h}{\sigma_w} \left(\frac{z}{h} \right)^{0,8} \quad (\text{A.26})$$

parametrisiert. In das Programm werden sie als

$$\tau_{L_u} = 0,15 \frac{h}{\sigma_u} \left(\frac{z}{h} \right)^{1/2}, \quad (\text{A.27})$$

$$\tau_{L_v} = 0,07 \frac{h}{\sigma_v} \left(\frac{z}{h} \right)^{1/2} \quad (\text{A.28})$$

und

$$\tau_{L_w} = 0,1 \frac{h}{\sigma_w} \left(\frac{z}{h} \right)^{1/2} \quad (\text{A.29})$$

implementiert. Für instabile Verhältnisse ist eine Fallunterscheidung für τ_{L_w} notwendig. Auch die Zeitskalen der horizontalen Komponenten und die turbulenten Windkomponenten werden anders parametrisiert

$$\sigma_u = \sigma_v = u_* \left(12 + \frac{h}{2|L|} \right)^{1/3}, \quad (\text{A.30})$$

$$\sigma_w = w_* \left[1,2 \left(1 - 0,9 \frac{z}{h} \right) \left(\frac{z}{h} \right)^{2/3} + \left(1,8 - 1,4 \frac{z}{h} \right) u_*^2 \right]^{1/2}. \quad (\text{A.31})$$

Die Parametrisierung für σ_w ist von *Ryall und Maryon* (1998) und setzt sich aus Ansätzen von *Brost et al.* (1982) und *Hibberd und Sawford* (1994) zusammen. Ist $z/h < 0,1$ und $z - z_0 > -L$, wird

$$\tau_{L_w} = 0,1 \frac{z}{\sigma_w \left[0,55 - 0,38 \frac{(z-z_0)}{L} \right]}, \quad (\text{A.32})$$

bei $z/h < 0,1$ und $z - z_0 < -L$ wird

$$\tau_{L_w} = 0,59 \frac{z}{\sigma_w} \quad (\text{A.33})$$

und bei $z/h > 0,1$ wird

$$\tau_{L_w} = 0,15 \frac{h}{\sigma_w} \left[1 - \exp \left(\frac{-5z}{h} \right) \right] \quad (\text{A.34})$$

eingesetzt. Wiederum andere Parametrisierungen gelten für neutrale Bedingungen

$$\sigma_u = 2,0 u_* \exp \left(-\frac{3fz}{u_*} \right), \quad (\text{A.35})$$

A. Programmbeschreibung FLEXPART

$$\sigma_v = \sigma_w = 1,3u_* \exp\left(-\frac{2fz}{u_*}\right) \quad (\text{A.36})$$

und

$$\tau_{L_u} = \tau_{L_v} = \tau_{L_w} = \frac{0,5z/\sigma_w}{1 + 15fz/u_*}, \quad (\text{A.37})$$

wobei

$$f = 2\Omega \sin\varphi \quad (\text{A.38})$$

der Coriolisparameter ist, mit φ als geographische Breite.

Oberhalb der Grenzschicht gibt es keine passende Turbulenzparametrisierung. Für Rechnungen in der freien Troposphäre wird daher ein konstanter horizontaler Diffusionskoeffizient von $D_h = 50 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ und in der Stratosphäre ein konstanter vertikaler Diffusionskoeffizient von $D_z = 0.1 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ verwendet. Die Diffusionskoeffizienten hängen über die Beziehung

$$\sigma_{v_i} = \sqrt{\frac{D_i}{dt}} \quad (\text{A.39})$$

mit den Geschwindigkeitsskalen zusammen.

A.4.4. Mesoskalige Windschwankungen

Mesoskalige Bewegungen können das Wachstum einer Wolke einzelner Volumina signifikant beschleunigen. Sie sind im Modell aber weder durch die meteorologischen Daten noch durch die Turbulenzparametrisierung berücksichtigt. Um sie wenigstens annähernd einzubeziehen, wird eine unabhängige Langevin-Gleichung für die mesoskaligen Fluktuationen der Windgeschwindigkeit gelöst. Sie basiert auf der Annahme, dass die Varianz des Windes im Skalenbereich des Gitters Informationen für die subskalige Varianz liefert. Als Zeitskala hierfür wird die Hälfte des Intervalls verwendet, in dem die meteorologischen Daten verfügbar sind. Diese Methode beschreibt nicht wirklich mesoskalige Phänomene, ist aber ähnlich den Ensemblemethoden.

A.4.5. Konvektion

Konvektive Transporte laufen in der Vertikalen etwa im Skalenbereich des Berechnungsgitters ab. In der Horizontalen sind sie jedoch subskalig. Sie sind also im horizontalen Feld der Vertikalgeschwindigkeit nicht erkennbar. Dadurch ist es notwendig, die Partikel oder auch Volumina in der gesamten vertikalen Säule neu zu verteilen. Im Modell wird das konvektive Parametrisierungsschema von *Emanuel und Živković Rothmann* (1999) verwendet (*Seibert et al.*, 2002). Dieses Schema basiert auf Temperatur- und Feuchtefeldern. Es berechnet eine Verlagerungsmatrix, die die notwendigen Massenflussinformationen für die Neuverteilung der Partikel beinhaltet, wie Massenflüsse innerhalb der Wolke, Austrag und Eintrag. Diese Matrix ist nicht symmetrisch, da Konvektion durch sehr starken kleinräumigen Aufstieg und eher großräumige Subsidenz charakterisiert ist. Die Partikel in jeder konvektiv aktiven Säule über einer Gitterzelle werden entsprechend der Massenflussmatrix neu verteilt. Ist die Masse einer Modellschicht m_i

und der Massenfluss von der Schicht i zur Schicht j Δm_{ij} , ist die Wahrscheinlichkeit, dass sich ein Partikel aus Schicht i nach Schicht j bewegt $\Delta m_{ij}/m_i$. Ob ein Partikel verlagert wird, wird bestimmt, indem zufällig eine Zahl zwischen 0 und 1 gewählt wird. Diese Zahl gibt außerdem die Position des Partikels in der Zielschicht j an. Nach der konvektiven Verlagerung wird der ausgleichende Subsidenzmassenstrom in eine Vertikalgeschwindigkeit umgewandelt, die die Partikel in der Säule betrifft, die nicht verlagert wurden. Dieses Schema stellt die Durchmischung sicher, die für die Anwendbarkeit der Langevin-Gleichungen (Abschnitt A.4.1) notwendig ist.

A.5. Vorwärts- und Rückwärtsrechnung

Wie schon erwähnt (Abschnitt 3.3.2.3), können die Simulationen von FLEXPART vorwärts oder rückwärts in der Zeit durchgeführt werden. Für die Vorwärtsrechnung werden die Volumina an einer oder mehreren Quellen frei gesetzt. Die Konzentrationen werden entlang des Windes auf einem Gitter berechnet. Für die Rückwärtsrechnung werden Volumina am Empfangsort entlassen. Diese Variante ist effizienter, wenn die Anzahl der Empfangsorte kleiner als die der potentiellen Quellorte ist. Die Ausgabe der Rückwärtsrechnung steht in Beziehung zur Verweildauer der Partikel in den Gitterzellen des Ausgabefeldes. Im Rückwärtsmodus können nur Volumina einer Spezies berechnet werden. Im Vorwärtsmodus ist die Berücksichtigung verschiedener Spezies möglich.

A.6. Entfernungsprozesse

Prozesse, die zur Abnahme der Partikelmasse beitragen und von FLEXPART berücksichtigt werden, sind radioaktiver Zerfall sowie nasse und trockene Deposition. Der atmosphärische Transport ist für alle chemischen Spezies gleich. Jedoch ist jede Spezies durch die oben genannten Effekte unterschiedlich betroffen. Der radioaktive Zerfall einer Spezies und der damit verbundene Massenverlust wird aus der jeweiligen Halbwertszeit berechnet.

Die nasse Deposition entfernt Aerosole und Gase aus der Atmosphäre. Die Auswaschung innerhalb einer Wolke und die unterhalb müssten eigentlich unterschieden werden, werden aber einheitlich betrachtet. Der Auswaschkoeffizient wächst nichtlinear mit der Niederschlagsstärke. Für Schnee und Regen werden jeweils die gleichen Koeffizienten verwendet. Unter Verwendung dieses Auswaschkoeffizienten nimmt die nasse Deposition die Form eines exponentiellen Zerfallsprozesses an.

Die trockene Deposition wird in Form der Depositionsgeschwindigkeit berücksichtigt. Ausfallen und trockene Deposition hängen sehr von der Größe der Volumina der bestimmten Spezies ab. Im Modell wird eine logarithmische Normalverteilung der Größe der Masse angenommen. Die Depositionsgeschwindigkeit wird für verschiedene Größen berechnet und entsprechend ihrem Massenanteil gewichtet. Das gravitative Ausfallen von Partikeln kann nur in den Simulationen korrekt berücksichtigt werden, in denen lediglich eine Spezies berechnet wird.

A.7. Berechnung von Ungenauigkeiten

Die Ungenauigkeit der Ausgabe wird abgeschätzt, indem die Aufenthaltszeiten einzeln für eine bestimmte Anzahl n von Klassen von Volumina berechnet wird. Die Standardabweichung berechnet aus n Abschätzungen der Aufenthaltszeiten geteilt durch \sqrt{n} stellt die Standardabweichung der mittleren Aufenthaltszeit σ dar. Die Anzahl n kann vom Nutzer eingestellt werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Fehlerberechnungen für verschiedene Fälle durchgeführt. Im hier gezeigten Beispiel wurde $n = 20$ gewählt. Es handelt sich um die Berechnung einer Schicht aus der Abendmessung vom 05.07.2001. Das Modellergebnis ist in Abbildung A.2 auf der linken Karte gezeigt. Die dazu gehörende Karte der Fehlerwerte ist rechts abgebildet. Zu beachten ist, dass die logarithmische Skala der beiden Plots voneinander abweicht. Der Minimalwert liegt jeweils bei -2. Der Maximalwert liegt in der Darstellung der Aufenthaltszeit (Abbildung A.2 links) ungefähr bei 3,6 und bei der Standardabweichung (Abbildung A.2 rechts) bei etwa 2,5. Da die Farbgebung und die Muster auf beiden Karten ähnlich sind, besteht etwa ein Unterschied von einer Größenordnung. Die Ungenauigkeit liegt also bei etwa 10 %.

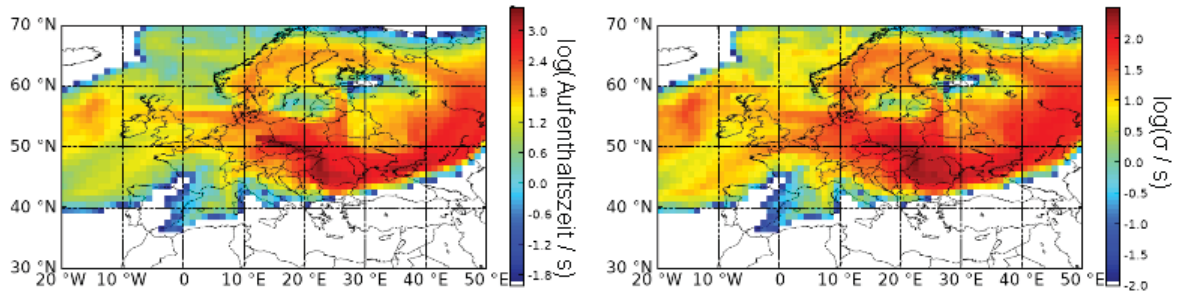


Abb. A.2.: Summe der Aufenthaltszeiten für eine beobachtete Aerosolschicht der Messung vom 05.07.2001 in der Schicht von 0 bis 2000 m über dem Boden (links) und die Standardabweichung σ dieser Werte (rechts).

Vergleiche der Fehler mit $n = 5$, $n = 10$ und $n = 100$ zeigen kaum Unterschiede in der jeweils berechneten Standardabweichung. Die Fehlerbetrachtungen in anderen Fällen liefern ähnliche Resultate.

B. Symbolverzeichnis

Symbol	Beschreibung	Einheit	Gleichung
\mathring{a}	Ängströmxponent		2.6
a_i	Driftterme		3.34
A	Fläche der Empfangsoptik	m^2	3.6
AOD	optische Dicke des Aerosols		2.4
b_i	Diffusionsterme		3.34
c	Lichtgeschwindigkeit	m/s	3.1
c_p	spezifische Wärmekapazität	$\text{J}/(\text{kg K})$	3.31
c_{tl}	Konstante zur Berechnung des Zeitschrittes in FLEXPART		A.22
d	Partikeldurchmesser	m	
dW_j	schrittweise Komponenten eines Wiener-Prozesses		3.34
$d\sigma_{j,sca}(\pi, \lambda)/d\Omega$	differentieller Streuquerschnitt	$\text{m}^2 \text{sr}^{-1}$	3.4
$d\sigma_{Ra}/d\Omega(\pi, \lambda_0)$	molekularer differentieller Streuquerschnitt bei der Wellenlänge λ_0 unter einem Streuwinkel π	$\text{m}^2 \text{sr}^{-1}$	3.12
D_h	horizontaler Diffusionskoeffizient	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$	A.39
D_z	vertikaler Diffusionskoeffizient	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$	A.39
f	Coriolisparameter	s^{-1}	A.35
g	Schwerebeschleunigung	m/s^2	A.11
$G(R)$	beschreibt die entfernungsabhängige Messgeometrie, beinhaltet die Überlapp-Funktion	m^{-2}	3.2
h_{mix}	Grenzschichthöhe	m	A.16
H_{env}	einhüllende Grenzschichthöhe	m	A.17
K	beschreibt Leistung und Arbeitsweise des Lidarsystems	m^3	3.2
l	Mischungsweglänge	m	A.8
L	Obukhov-Länge	m	A.7
L_{mol}	Lidarverhältnis aus dem Molekülanteil	sr	3.13
$L_{par}(R, \lambda)$	Lidarverhältnis aus dem Partikelanteil	sr	3.14
n	Partikelanzahldichte; Konzentration	m^{-3}	2.1
$n_{Ra}(R)$	molekulare Anzahldichte	m^{-3}	3.12
N	Brunt-Väisälä-Frequenz	s^{-1}	A.17
$O(R)$	Überlappfunktion		3.3

B. Symbolverzeichnis

Symbol	Beschreibung	Einheit	Gleichung
p	Druck	hPa	3.31
p_h	Druck am Oberrand der Grenzschicht	Pa	3.33
p_s	Bodendruck	Pa	3.33
$P(R, \lambda)$	gemessene Leistung des Lidarsignals	$\text{kg m}^2 \text{s}^{-3}$	3.2
P_0	mittlere Leistung eines einzelnen Laserpulses	$\text{kg m}^2 \text{s}^{-3}$	3.6
Q_H	fühlbarer Wärmestrom	$\text{J}/(\text{m}^2 \text{s})$	A.11
r	Partikelradius	m	2.1
r_{eff}	effektiver Radius; mittlere Größe eines Partikelgemisches	m	2.1
r_w	Autokorrelation des Vertikalwindes		A.21
R	Entfernung des Streuvolumens vom Lidarsystem	m	3.1
R_0	Referenzhöhe	m	3.25
R_L	spezifische Gaskonstante für trockene Luft	$\text{J}/(\text{kg K})$	3.31
Ri_l	Richardson-Zahl		A.14
$S(R, \lambda)$	höhenkorrigiertes Lidarsignal		3.20
t	Zeit	s	3.1
T	Temperatur	K	3.31
$T(R, \lambda)$	Transmissionsterm		3.2
u_*	Schubspannungsgeschwindigkeit	m/s	A.3
u', v', w', θ'	Abweichungen von den mittleren Größen $\bar{u}, \bar{v}, \bar{w}, \bar{\theta}$	m/s	A.3
\mathbf{v}	Windvektor (u, v, w)		3.28
v_t	turbulente Geschwindigkeit	m/s	3.34
V	Windgeschwindigkeit	m/s	A.17
w_*	konvektive Geschwindigkeitsskala	m/s	A.16
\mathbf{X}	Ortsvektor (x, y, z)		3.28
$Y(R, \lambda)$	normalisierter totaler Extinktionskoeffizient	m^{-1}	3.21
z	Höhe	m	2.4
$\alpha(R, \lambda)$	Extinktionskoeffizient	m^{-1}	2.3
$\alpha_{abs}(R, \lambda)$	Absorptionskoeffizient	m^{-1}	2.3
$\alpha_{mol}^{abs}(R, \lambda)$	Koeffizient der Molekülextinktion verursacht durch Absorption	m^{-1}	3.9
$\alpha_{mol}^{sca}(R, \lambda)$	Koeffizient der Molekülextinktion verursacht durch Streuung	m^{-1}	3.9
$\alpha_{par}^{abs}(R, \lambda)$	Koeffizient der Partikelextinktion verursacht durch Absorption	m^{-1}	3.9
$\alpha_{par}^{sca}(R, \lambda)$	Koeffizient der Partikelextinktion verursacht durch Streuung	m^{-1}	3.9
$\alpha_{sca}(R, \lambda)$	totaler Streukoeffizient	m^{-1}	2.3

B. Symbolverzeichnis

Symbol	Beschreibung	Einheit	Gleichung
$\beta(R, \lambda)$	Rückstreuoeffizient	$\text{m}^{-1} \text{sr}^{-1}$	3.4
$\beta_{mol}(R, \lambda)$	Koeffizient der Molekülrückstreuung	$\text{m}^{-1} \text{sr}^{-1}$	3.5
$\beta_{par}(R, \lambda)$	Koeffizient der Partikelrückstreuung	$\text{m}^{-1} \text{sr}^{-1}$	3.5
ζ	normalverteilte Zufallszahl		A.20
η	Systemeffizienz		3.6
θ	potentielle Temperatur	K	3.31
θ_*	Temperaturskala	K	A.9
θ_v	virtuelle potentielle Temperatur	K	A.13
κ	von-Kármán-Konstante: 0,4		A.7
λ	Wellenlänge	m	2.6
λ_0	Wellenlänge des ausgesendeten Lidarimpulses	m	3.11
λ_{Ra}	Wellenlänge des inelastisch gestreuten Signals	m	3.11
ρ	Luftdichte	kg/m^3	A.5
σ_i	Standardabweichung		2.2
$\sigma_{j,ext}(\lambda)$	Extinktionsquerschnitt	m^2	3.8
σ_u, σ_v	Standardabweichungen der horizontalen Windkomponenten	m/s	A.23
σ_w	Standardabweichung der vertikalen Windkomponente	m/s	A.18
σ_z	Modelltopographie	m	A.17
τ	Schubspannung	$\text{kg}/(\text{m s}^2)$	A.5
τ_{L_u}, τ_{L_v}	Lagrange'sche Zeitskala der Autokorrelationen der Horizontalgeschwindigkeiten	s	A.25
τ_{L_w}	Lagrange'sche Zeitskala der Autokorrelation der Vertikalgeschwindigkeit	s	A.18
Ψ_h	Stabilitätskorrektionsfunktionen für Wärme		A.10
Ψ_m	Stabilitätskorrektionsfunktionen für Impuls		A.7
ω	Einzelstrealbedo		2.5
Ω	Rotationsgeschwindigkeit der Erde	s^{-1}	A.38

C. Abkürzungsverzeichnis

EARLINET	European Aerosol Research LIdar NETwork
FT	Freie Troposphäre
IfT	Institut für Troposphärenforschung
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change
PBL	Planetary Boundary Layer

D. Literaturverzeichnis

- AMIRIDIS, V., BALIS, D. S., KAZADZIS, S., BAIS, A., GIANNAKAKI, E., PAPAYANNIS, A., and ZEREFOS, C. Four-year aerosol observations with a Raman lidar at Thessaloniki, Greece, in the framework of European Aerosol Research Lidar Network (EARLINET). *Journal of Geophysical Research*, **110**, D21203, 1–12, 2005. [12, 13, 66]
- ÅNGSTRÖM, A. The parameters of atmospheric turbidity. *Tellus*, **16**, 64–75, 1964. [11]
- ANSMANN, A. and MÜLLER, D. *Lidar: Range resolved optical remote sensing of the atmosphere*, chapter 4: Lidar and Atmospheric Aerosol Particles, pages 105–138. Springer Science+Business Media Inc., New York, 2005. ISBN 0 387 40075 3. [20, 21]
- ANSMANN, A., WAGNER, F., MÜLLER, D., ALTHAUSEN, D., HERBER, A., VON HOYNINGEN-HUENE, W., and WANDINGER, U. European pollution outbreaks during ACE 2: Optical particle properties inferred from multiwavelength lidar and star-sun photometry. *Journal of Geophysical Research*, **107**, AAC8, 1–14, 2002. [12]
- ANSMANN, A., TESCHE, M., ALTHAUSEN, D., MÜLLER, D., SEIFERT, P., FREUDENTHALER, V., HEESE, B., WIEGNER, M., PISANI, G., KNIPPERTZ, P., and DUBOVIK, O. Influence of Saharan dust on cloud glaciation in southern Morocco during the Saharan Mineral Dust Experiment. *Journal of Geophysical Research*, **113**, D04210, 1–16, 2008. [67]
- BALIS, D. S., AMIRIDIS, V., ZEREFOS, C., GERASOPOULOS, E., ANDREAE, M., ZANIS, P., KAZANTZIDIS, A., KAZADZIS, S., and PAPAYANNIS, A. Raman lidar and sunphotometric measurements of aerosol optical properties over Thessaloniki, Greece during a biomass burning episode. *Atmospheric Environment*, **37**, 4529–4538, 2003. [13]
- BALTENSPERGER, U. and NYEKI, S. *Physical and chemical properties of aerosols*, chapter 7: Atmospheric aerosols, pages 280–329. Blackie Academic & Professional, an imprint of Thomson Science, London, 1st edition, 1998. ISBN 0 7514 0402 0. [4, 8]
- BIRMILI, W., SCHEPANSKI, K., ANSMANN, A., SPINDLER, G., TEGEN, I., WEHNER, B., NOWAK, A., REIMER, E., MATTIS, I., MÜLLER, K., BRÜGGEMANN, E., GNAUK, T., HERRMANN, H., WIEDENSOHLER, A., ALTHAUSEN, D., SCHLADITZ, A., TUCH, T., and LÖSCHAU, G. A case of extreme particulate matter concentrations over Central Europe caused by dust emitted over the southern Ukraine. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **8**, 997–1016, 2008. [67]

D. Literaturverzeichnis

- BROST, R. A., WYNGAARD, J. C., and LENSCHOW, D. H. Marine stratocumulus layers. Part II: Turbulent budgets. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **39**, 818–836, 1982. [82]
- BÖSENBERG, J. Chapter 2, Executive summary. EARLINET: A European Aerosol Research Lidar Network to Establish an Aerosol Climatology., pages 6–31, 2003. URL http://www.earlinet.org/index.php?id=earlinet_fp5. [56]
- BUSINGER, J. A., WYNGAARD, J. C., IZUMI, Y., and BRADLEY, E. F. Flux-profile relationships in the atmospheric surface layer. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **28**, 181–189, 1971. [77]
- CISL, FNL-Datensatz. ds083.2 home page, Juli 2008. URL <http://dss.ucar.edu/datasets/ds083.2/>. [40, 75]
- CLRTAP-Homepage. Convention on Long-range Transboundary Air Pollution, Januar 2008. URL <http://www.unece.org/env/lrtap/welcome.html>. [31]
- COLBECK, I. *Physical and chemical properties of aerosols*, chapter 1: Introduction to aerosol science, pages 1–30. Blackie Academic & Professional, an imprint of Thomson Science, London, 1st edition, 1998. ISBN 0 7514 0402 0. [14]
- DE TOMASI, F., TAFURO, A. M., and PERRONE, M. R. Height and seasonal dependence of aerosol optical properties over southeast Italy. *Journal of Geophysical Research*, **111**, D10203, 1–13, 2006. [12, 13, 66]
- Digital Elevation Model. USGS Geographic Data Download, April 2008. URL <http://edc2.usgs.gov/geodata/index.php>. [76]
- EARLINET-Homepage. A European aerosol research lidar network to establish an aerosol climatology: EARLINET, Oktober 2008. URL http://www.earlinet.org/index.php?id=earlinet_homepage. [5]
- EMANUEL, K. A. and ŽIVKOVIĆ ROTHMANN, M. Development and evaluation of a convection scheme for use in climate models. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **56**, 1766–1782, 1999. [83]
- EMEP-Datenbank. Emissions as Used in EMEP Models, September 2008. URL <http://www.emep-emissions.at/emission-data-webdab/emissions-used-in-emep-models/>. [31]
- EMEP-Homepage. Convention on Long-range Transboundary Air Pollution. Steering Body to the Cooperative Programme for Monitoring and Evaluation of the Long-range Transmission of Air Pollutants in Europe (EMEP), Januar 2008. URL <http://www.unece.org/env/emep/welcome.html>. [31]

D. Literaturverzeichnis

- EMEP-Modellbeschreibung. Transboundary acidification, eutrophication and ground level ozone in Europe; PART I: Unified EMEP model description; introduction, Januar 2008.
URL <http://www.emep.int/UniDoc/node4.html>. [31]
- FOKEN, T. *Angewandte Meteorologie*. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 2003. ISBN 3-540-00322-3. [25, 76, 77]
- GFS-Beschreibung. The GFS Atmospheric Model, Dezember 2007.
URL <http://wwwt.emc.ncep.noaa.gov/gmb/moorthi/gam.html>. [75]
- HANNA, S. R. *Atmospheric Turbulence and Air Pollution Modelling*, chapter „Applications in air pollution modelling“, page 275. D. Reidel Publishing Company, Dordrecht, Holland, 1982. ISBN 978 9027713650. [81, 82]
- HANSEN, J. E. and TRAVIS, L. D. Light scattering in planetary atmospheres. *Space Science Reviews*, **16**, 527–610, 1974. [9]
- HEINTZENBERG, J. and WELCH, R. M. Retrieval of aerosol size distribution from angular scattering functions: effects of particle composition and shape. *Applied Optics*, **21**, 822–830, 1982. [9]
- HIBBERD, M. F. and SAWFORD, B. L. A saline laboratory model of the planetary convective boundary layer. *Boundary Layer Meteorology*, **67**, 229–250, 1994. [82]
- HITSCHFELD, W. and BORDAN, J. Errors inherent in the Radar measurement of rainfall at attenuating wavelength. *Journal of Meteorology*, **11**, 58–67, 1954. [21]
- HYSPLIT-Modell. Air Resource Laboratory. HYSPLIT model, September 2008.
URL <http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html>. [56]
- IPCC-Bericht. Climate Change 2007 – Synthesis report, Juli 2007.
URL http://www.ipcc.ch/pdf/assessment-report/ar4/syr/ar4_syr.pdf. [4]
- KLETT, J. D. Stable analytical inversion solution for processing lidar returns. *Applied Optics*, **20**, 211–220, 1981. [21, 22]
- KOLGOTIN, A. and MÜLLER, D. Theory of inversion with two-dimensional regularization: profiles of microphysical particle properties derived from multiwavelength lidar measurements. *Applied Optics*, **47**, 4472–4490, 2008. [28]
- LEGG, B. J. and RAUPACH, M. R. Markov-chain simulation of particle dispersion in inhomogeneous flows: The mean drift velocity induced by a gradient in Eulerian velocity variance. *Boundary Layer Meteorology*, **24**, 3–13, 1982. [37]
- MATTHIAS, V. and BÖSENBERG, J. Aerosol climatology for the planetary boundary layer derived from regular lidar measurements. **63**, 221–245, 2002. [12, 68]

D. Literaturverzeichnis

- MATTIS, I. WP4, Compilation of trajectory data. EARLINET: A European Aerosol Research Lidar Network to Establish an Aerosol Climatology., pages 61–64, 2003. URL http://www.earlinet.org/index.php?id=earlinet_fp5. [6, 12, 13, 66, 69, 70]
- MATTIS, I., ANSMANN, A., ALTHAUSEN, D., JAENISCH, V., WANDINGER, U., MÜLLER, D., ARSHINOV, Y. F., BOBROVNIKOV, S. M., and SERIKOV, I. B. Relative-humidity profiling in the troposphere with a Raman lidar. *Applied Optics*, **41**, 6451–6462, 2002. [16, 17]
- MATTIS, I., ANSMANN, A., MÜLLER, D., WANDINGER, U., and ALTHAUSEN, D. Multiyear aerosol observations with dual-wavelength Raman lidar in the framework of EARLINET. *Journal of Geophysical Research*, **109**, D13203, 1–15, 2004. [11, 12, 69]
- MATTIS, I., MÜLLER, D., ANSMANN, A., WANDINGER, U., PREISSLER, J., SEIFERT, P., and TESCHE, M. Ten years of multiwavelength Raman lidar observations of free-tropospheric aerosol layers over central Europe: Geometrical properties and annual cycle. *Journal of Geophysical Research*, **113**, D20202, 1–19, 2008. [6, 25, 56, 57, 59]
- MERRILL, J. T., BLECK, R., and BOUDRA, D. Techniques of Lagrangian trajectory analysis in isentropic coordinates. *Monthly Weather Review*, **114**, 571–581, 1986. [35]
- MÜLLER, D., WANDINGER, U., and ANSMANN, A. Microphysical particle parameters from extinction and backscatter lidar data by inversion with regularization: theory. *Applied Optics*, **38**, 2346–2357, 1999. [5]
- MÜLLER, D., FRANKE, K., WAGNER, F., ALTHAUSEN, D., ANSMANN, A., and HEINTZENBERG, J. Vertical profiling of optical and physical particle properties over the tropical Indian Ocean with six-wavelength lidar. 1. Seasonal cycle. *Journal of Geophysical Research*, **106**, 28567–28575, 2001a. [69]
- MÜLLER, D., MATTIS, I., WANDINGER, U., ANSMANN, A., ALTHAUSEN, D., DUBOVIK, O., ECKHARDT, S., and STOHL, A. Saharan dust over a central European EARLINET-AERONET site: Combined observations with Raman lidar and Sun photometer. *Journal of Geophysical Research*, **108**, AAC1, 1–17, 2003. [27]
- MÜLLER, D., MATTIS, I., WANDINGER, U., ANSMANN, A., and ALTHAUSEN, D. Raman lidar observations of aged Siberian and Canadian forest fire smoke in the free troposphere over Germany in 2003: Microphysical particle characterization. *Journal of Geophysical Research*, **110**, D17201, 1–16, 2005. [13]
- MÜLLER, D., ANSMANN, A., MATTIS, I., TESCHE, M., WANDINGER, U., ALTHAUSEN, D., and PISANI, G. Aerosol-type-dependent lidar ratios observed with Raman lidar. *Journal of Geophysical Research*, **112**, D16202, 1–11, 2007. [6, 12, 69]

D. Literaturverzeichnis

- PANDIS, S. N., WEXLER, A. S., and SEINFELD, J. H. Dynamics of tropospheric aerosols. *Journal of Physical Chemistry*, **99**, 9646–9659, 1995. [14]
- PETTERSSSEN, S. *Weather analysis and forecasting*. McGraw-Hill Book Company, Inc., New York, 1940. ISBN 978 0070496859. [74, 79]
- REYNOLDS, O. On the dynamical theory of turbulent incompressible viscous fluids and the determination of the criterion. *Philosophical Transactions of the Royal Society A*, **186**, 123–161, 1894. [76]
- RYALL, D. B. and MARYON, R. H. Validation of the UK met. office’s NAME model against the ETEX dataset. *Atmospheric Environment*, **32**, 4265–4276, 1998. [82]
- SASANO, Y., BROWELL, E. V., and ISMAIL, S. Error caused by using a constant extinction/backscattering ratio in the lidar solution. *Applied Optics*, **24**, 3929–3932, 1985. [21, 22]
- SCHOTLAND, R. M., SASSEN, K., and STONE, R. Observations by lidar of linear depolarization ratios for hydrometeors. *Journal of Applied Meteorology*, **10**, 1011–1017, 1971. [27]
- SEIBERT, P., KRÜGER, B. C., and FRANK, A. Parametrisation of convective mixing in a Lagrangian particle dispersion model. Proceedings of the 5th GLOREAM Workshop, Wengen, Switzerland, (September 24-26, 2001), 2002. [83]
- SHAW, G. E. Inversion of optical scattering and spectral extinction measurements to recover aerosol size spectra. *Applied Optics*, **18**, 988–993, 1979. [5]
- STOHL, A. Computation, accuracy and applications of trajectories - a review and bibliography. *Atmospheric Environment*, **32**, 947–966, 1998a. [34]
- STOHL, A. and KOFFI, N. E. Evaluation of trajectories calculated from ECMWF data against constant volume balloon flight during ETEX. *Atmospheric Environment*, **32**, 4151–4156, 1998d. [75]
- STOHL, A. and SEIBERT, P. Accuracy of trajectories as determined from the conservation of meteorological tracers. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, **124**, 1465–1484, 1998b. [34, 36]
- STOHL, A. and THOMSON, D. J. A density correction for Lagrangian particle dispersion models. *Boundary Layer Meteorology*, **90**, 155–167, 1999. [80]
- STOHL, A., WOTAWA, G., SEIBERT, P., and KROMP-KOLB, H. Interpolation errors in wind fields as a function of spatial and temporal resolution and their impact on different types of kinematic trajectories. *Journal of Applied Meteorology*, **34**, 2149–2165, 1995. [35, 36, 74]

D. Literaturverzeichnis

- STOHL, A., HITTENBERGER, M., and WOTAWA, G. Validation of the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART against large-scale tracer experiment data. *Atmospheric Environment*, **32**, 4245–4264, 1998c. [37, 81]
- STOHL, A., ECKHARDT, S., FORSTER, C., JAMES, P., SPICHTINGER, N., and SEIBERT, P. A replacement for simple back trajectory calculations in the interpretation of atmospheric trace substance measurements. *Atmospheric Environment*, **36**, 4635–4648, 2002a. [35, 36]
- STOHL, A., ECKHARDT, S., FORSTER, C., JAMES, P., and SPICHTINGER, N. On the pathways and timescales of intercontinental air pollution transport. *Journal of Geophysical Research*, **107**, ACH6, 1–17, 2002b. [39]
- STOHL, A., FORSTER, C., FRANK, A., SEIBERT, P., and WOTAWA, G. Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **5**, 2461–2474, 2005. [38, 39, 76, 77]
- THOMSON, D. J. Criteria for the selection of stochastic models of particle trajectories in turbulent flows. *Journal of Fluid Mechanics*, **180**, 529–556, 1987. [37]
- ULIASZ, M. *Environmental Modeling 2*, chapter 4: Lagrangian Particle Dispersion Modelling in Mesoscale Application, pages 71–102. Computational Mechanics Publications, Southampton Boston, 1994. ISBN 978 1853121814. [79]
- VESTRENG, V. and OTHERS,. Emission data reported to the LRTAP Convention and NEC directive (Present state of emission data, ECE/EB.AIR/GE.1/2007/14). Inventory Reviews 2006 and 2007, 2006, 2007.
URL <http://webdab.emep.int/>. [31]
- VOGELEZANG, D. H. P. and HOLTSLAG, A. A. M. Evaluation and model impacts of alternative boundary-layer height formulations. *Boundary Layer Meteorology*, **81**, 245–269, 1996. [78]
- WALLENHAUER, S. Bestimmung spektraler Streukoeffizienten des atmosphärischen Aerosols aus Lidarmessungen. Diplomarbeit, Universität Leipzig, Fakultät für Physik und Geowissenschaften, 1998. [22]
- WANDINGER, U. *Lidar: Range resolved optical remote sensing of the atmosphere*, chapter 1: Introduction to Lidar, pages 1–18. Springer Science+Business Media Inc., New York, 2005. ISBN 0 387 40075 3. [16, 17]
- WANDINGER, U. and ANSMANN, A. Experimental determination of the lidar overlap profile with Raman lidar. *Applied Optics*, **41**, 511–514, 2002a. [18]
- WANDINGER, U., MATTIS, I., TESCHE, M., ANSMANN, A., BÖSENBERG, J., CHAIKOVSKI, A., FREUDENTHALER, V., KOMGUEM, L., LINNÉ, H., MATTHIAS, V., PELON, J., SAUVAGE, L., SOBOLEWSKI, P., VAUGHAN, G., and WIEGNER, M. Air

D. Literaturverzeichnis

- mass modification over Europe: EARLINET aerosol observations from Wales to Belarus. *Journal of Geophysical Research*, **109**, D24205, 1–12, 2004. [5, 11, 67]
- Wikipedia: Polare stereographische Projektion. Bild: Stereographic projection in 3d.png, Juli 2008.
URL http://de.wikipedia.org/w/index.php?title=Bild:Stereographic_projection_in_3D.png&filetimestamp=20080113025955. [80]
- WILSON, J. D. and FLESCHE, T. K. Flow boundaries in random-flight dispersion models: Enforcing the well-mixed condition. *Journal of Applied Meteorology*, **32**, 1695–1707, 1993. [81]