

Universität Leipzig
Fakultät für Physik und Geowissenschaften

Diplomarbeit

im Studiengang Meteorologie
zum Thema

**Optische und mikrophysikalische
Charakterisierung anthropogener Partikel
in Südchina (Pearl River Delta) und
Nordchina (Peking) anhand von
Ramanlidar- und
Sonnenphotometermessungen**

zur Erlangung des akademischen Grades

Diplom-Meteorologe

vorgelegt von
Matthias Tesche
im April 2006

eingereicht bei
Prof. G. Tetzlaff und
Prof. J. Heintzenberg

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	5
2	Theoretische und experimentelle Grundlagen	7
2.1	Bestimmung optischer Partikelgrößen	7
2.1.1	Streuprozesse in der Atmosphäre	7
2.1.2	Lidarprinzip und Lidargleichung	8
2.1.3	Mini-Ramanlidar Polly	13
2.1.4	Überlappungsfunktion und Überlappungskorrektur	16
2.1.5	Sonnenphotometer	18
2.2	Bestimmung mikrophysikalischer Partikelgrößen	19
2.2.1	Inversion	20
2.2.2	Bestimmung der Wichtungsfaktoren	22
2.2.3	Inversionsalgorithmus	24
2.2.4	Vorgehensweise im Fall der Messungen in China	26
3	Ergebnisse	31
3.1	Xinken	32
3.1.1	Meteorologische Bedingungen	33
3.1.2	Optische Aerosoleigenschaften	36
3.1.3	Mikrophysikalische Charakterisierung des Aerosols in der Säule .	52
3.2	Peking	59
3.2.1	Meteorologische Bedingungen	60
3.2.2	Optische Aerosoleigenschaften	64
3.2.3	Mikrophysikalische Charakterisierung des Aerosols in der Säule .	72
4	Zusammenfassung	77
A	Abkürzungsverzeichnis	81
B	Symbolverzeichnis	83
	Literatur	85

1 Einleitung

Keine Region der Erde entwickelt sich momentan wirtschaftlich mit einer ähnlichen Geschwindigkeit wie Zentral- und Südostasien. In China führt die marktwirtschaftliche Öffnung des Landes zu einer radikalen Steigerung von Produktion und Nachfrage. Diese innerhalb kürzester Zeit voran getriebene Industrialisierung zeigt schon jetzt eine deutliche Wirkung auf die Umwelt, vor allem auf die Qualität der Luft. Während in der westlichen Hemisphäre von den meisten Staaten anerkannte, international ausgearbeitete Normen zur Regulierung des Ausstoßes von Schadstoffen, Treibhausgasen und Partikeln existieren und eingehalten werden müssen, wird in China auf Maßnahmen verzichtet, die das Wachstum bremsen könnten. Ungefilterte Abgase sorgen für eine hohe Konzentration von Schadstoffen, reaktionsfreudigen Vorläufergasen und Aerosolpartikeln in der Luft. Letztere können je nach Beschaffenheit und Zusammensetzung nicht nur deutliche Auswirkungen auf die menschliche Gesundheit haben, sondern beeinflussen auf verschiedene — zur Zeit noch nicht wissenschaftlich vollständig verstandene — Art und Weise den Strahlungshaushalt der Erde (Houghton et al. 2003; Wang et al. 2002; Huebert et al. 2003; Streets et al. 2003; Cao et al. 2003, 2004; Louie et al. 2005).

Im Gegensatz zu den vom Menschen ausgestoßenen Treibhausgasen,¹ deren anthropogener Treibhauseffekt² zu einer allgemeinen Erwärmung der Erdatmosphäre führt, ist der Einfluss des atmosphärischen Aerosols wesentlich komplexer und schwerer zu fassen. Die Klimawirkung des Aerosols wird in einen direkten und einen indirekten Effekt unterteilt. Der direkte Aerosoleffekt beschreibt die direkte Wechselwirkung der Aerosolpartikel mit der einfallenden Sonnenstrahlung. Der Einfluss der Partikel auf die Wolkenbildung, vor allem die Größenverteilung der Wolkentropfen und die damit einhergehenden Strahlungseigenschaften der Wolke, wird als indirekter Aerosoleffekt bezeichnet.

Die Untersuchung des atmosphärischen Aerosols ist mittlerweile in den Fokus der Wissenschaft gerückt und erlangt auch in der Öffentlichkeit zunehmende Beachtung. Wie von Houghton et al. (2003) dargestellt wurde, weist das gegenwärtige wissenschaftliche Verständnis des Strahlungsantriebs von Aerosolpartikeln — vor allem des indirekten Aerosoleffekts — sehr große Unsicherheiten auf. Um diese Unsicherheiten zu verringern, ist die Kenntnis der globalen Verteilung und des Transports des atmosphärischen Aerosols aus den Quellregionen unerlässlich. Ein wertvolles Hilfsmittel zum Verständnis der sich abspielenden Vorgänge bietet die optische Fernerkundung mit Lidar (*engl.*: Light Detection And Ranging). Dieses Verfahren ermöglicht die Bestimmung zeitlich und räumlich hochaufgelöster Vertikalprofile optischer Parameter, aus denen sich Informationen über die Art, die Konzentration und die vertikale Verteilung von Aerosolpartikeln in der Atmosphäre ableiten lassen. Durch Inversion der optischen Daten lassen

¹Zu den wichtigsten Treibhausgasen zählen Kohlenstoffdioxid (CO₂), Wasserdampf, Methan (CH₄), Distickstoffmonoxid (N₂O) und Ozon (O₃).

²Treibhausgase sind meist für die einfallende kurzwellige Sonnenstrahlung durchlässig, absorbieren aber die von der Erdoberfläche ausgestrahlte langwellige Wärmestrahlung. Diese kann somit nicht in den Weltraum entweichen und führt zu einem Wärmestau in der Atmosphäre. Die Bezeichnung lehnt sich an die Vorgänge in einem Glashaus bzw. Gewächshaus an.

sich außerdem Rückschlüsse auf die mikrophysikalischen Eigenschaften (Volumenkonzentration, effektiver Radius, komplexer Brechungsindex und Einfachstreueralbedo) der vermessenen Partikel ziehen (Müller 1997; Müller et al. 1999a, b).

Neben den am Leibniz-Institut für Troposphärenforschung (IfT) bereits vorhandenen Großgeräten wurde in den letzten Jahren unter studentischer Beteiligung ein kostengünstiges und einfach zu transportierendes kleines Ramanlidar entwickelt. Das Mini-Ramanlidar Polly (**P**ortable **L**idar **S**ystem; Engelmann 2003; Rhone 2004; Althausen et al. 2004) wurde für Messungen in der Grenzschicht konzipiert. Das Gerät liefert bei einer Wellenlänge von $\lambda = 532$ nm vollautomatisch Profile des Partikelrückstreuoeffizienten sowie in der Nacht zusätzlich Profile des Partikelextinktionskoeffizienten. Es ermöglicht aufgrund der unkomplizierten Handhabung einen Dauerbetrieb über viele Tage hinweg und dient der Ergänzung eines fest im Labor installierten Ramanlidars (Mattis et al. 2002) und eines containerbasierten Mehrwellenlängenlidars (Althausen et al. 2000).

Im Rahmen dieser Diplomarbeit werden die Ergebnisse der optischen und mikrophysikalischen Charakterisierung anthropogener Partikel in Süd- und Nordchina vorgestellt. Die Grundlage dazu bilden die Daten zweier Messkampagnen vom 3. Oktober bis 4. November 2004 in Xinken im Delta des Pearl River in der Südchinesischen Provinz Guangdong sowie vom 8. bis 26. Januar 2005 in Peking. Messungen mit dem Mini-Ramanlidar Polly, einem Sonnenphotometer und verschiedenen In-situ-Geräten lieferten einen umfangreichen Datensatz der jeweiligen Aerosolbedingungen. Mit den optischen Ergebnissen der kombinierten Messungen von Ramanlidar und Sonnenphotometer wurde eine Inversion zur Bestimmung der mikrophysikalischen Eigenschaften der vermessenen Partikel durchgeführt.

Diese Arbeit gliedert sich in zwei Teile. In Kapitel 2 wird die Theorie des Ramanlidars und des zur Bestimmung der mikrophysikalischen Partikeleigenschaften verwendeten Inversionsschemas beschrieben. Weiterhin werden die verwendeten Geräte vorgestellt und die Vorgehensweise im Fall der Inversion der gesammelten optischen Daten erläutert. Kapitel 3 befasst sich mit der Auswertung der Messungen hinsichtlich der optischen Eigenschaften des untersuchten Aerosols. Zudem werden die Ergebnisse der mit den gewonnenen optischen Daten durchgeführten Inversionsrechnungen vorgestellt. Das Kapitel unterteilt sich in zwei Abschnitte. Im ersten Teil werden die Ergebnisse der Messungen und Inversionsrechnungen in Xinken gezeigt, der zweite Teil beschäftigt sich mit den Ergebnissen für Peking. Die Arbeit endet mit einer Zusammenfassung der gewonnenen Erkenntnisse in Kapitel 4.

2 Theoretische und experimentelle Grundlagen

Dieses Kapitel erläutert die verwendeten Geräte und die ihnen zugrunde liegende Theorie. Dabei wird insbesondere auf das Funktionsprinzip eines Ramanlidars und die zur Auswertung der mit diesem Gerät gewonnenen Daten notwendigen Gleichungen eingegangen. Zudem wird der zur Untersuchung der mikrophysikalischen Eigenschaften der Aerosolpartikel genutzte Algorithmus zur Inversion der optischen Daten vorgestellt. Um den Inversionsalgorithmus auf die gewonnenen optischen Daten anwenden zu können, mussten diese zunächst aufbereitet werden. Die hierbei verwendete Vorgehensweise wird ebenfalls in diesem Kapitel erklärt.

2.1 Bestimmung optischer Partikelgrößen

Bei den im Rahmen dieser Diplomarbeit durchgeführten Untersuchungen wurden die Messdaten verschiedener Geräte verwendet. Die Rohdaten lieferten das Mini-Ramanlidar Polly des IfT sowie ein Sonnenphotometer des Instituts, das von der Firma Dr. Schulz und Partner GmbH, Buckow, hergestellt wurde.

2.1.1 Streuprozesse in der Atmosphäre

In der Atmosphäre kann Licht an Regen- und Wolkentropfen, Eiskristallen, Partikeln oder Molekülen der Luft gestreut und von diesen Bestandteilen teilweise absorbiert werden. Vor allem die Streuprozesse sind dem menschlichen Auge bekannt. Hydrometeore sind im Vergleich zur Wellenlänge λ des einfallenden Lichts sehr groß ($d \gg \lambda$, mit dem Partikeldurchmesser d) und verursachen durch Lichtbrechung auffällige optische Erscheinungen wie Regenbögen oder Halos. Ihre Wechselwirkung mit einfallendem Licht kann mit den Gesetzen der geometrischen Optik behandelt werden. Die Streuung an Luftmolekülen ist für die blaue Farbe des Himmels verantwortlich. Da die Streuung des Lichts an Partikeln mit $d \ll \lambda$ eine Abhängigkeit zu λ^{-4} aufweist, wird der blaue Anteil des Spektrums aufgrund seiner geringen Wellenlänge am stärksten gestreut. Diese Art der Streuung wird als Rayleighstreuung bezeichnet. Für größere Streuer erreicht der Partikeldurchmesser die Dimension der Wellenlänge des einfallenden Lichts ($d \approx \lambda$). In diesem Fall ist die Streuung etwa proportional zur Inversen der Wellenlänge und wird als Mie-Streuung³ bezeichnet.

In der Atmosphäre finden elastische und inelastische Streuprozesse statt. Im ersten Fall ist die Wellenlänge des gestreuten Lichts gleich der Wellenlänge des einfallenden Lichts, wohingegen im Fall der inelastischen Streuung eine Frequenzverschiebung zwischen einfallendem und gestreutem Licht auftritt. Diese wird dadurch verursacht, dass ein einfallendes Photon eine Veränderung des Vibrations-Rotationszustands des streu-

³Als Mie-Streuung wird die Streuung elektromagnetischer Wellen an kugelförmigen Objekten variabler Größe bezeichnet. Im Fall $d \leq \lambda$ ist die Miestreutheorie näherungsweise auch für Streuer anderer Form gültig.

enden Moleküls bewirkt. Das Molekül kann Energie absorbieren, wodurch es in einen höheren Energiezustand versetzt wird und die Frequenz des gestreuten Photons gesenkt wird. Die Wellenlänge des gestreuten Photons wird zum Roten verschoben und der Prozess als Stokes–Ramanstreuung bezeichnet. Es gilt:

$$\tilde{\nu}_{\text{aus}} = \tilde{\nu}_{\text{ein}} - |\Delta\tilde{\nu}| .$$

Die Frequenz des gestreuten Lichts $\tilde{\nu}_{\text{aus}}$ ist gegenüber der Frequenz des einfallenden Lichts $\tilde{\nu}_{\text{ein}}$ um den Betrag $|\Delta\tilde{\nu}|$ verschoben. Das streuende Molekül kann aber auch Energie an das Photon abgeben und damit sein Energieniveau senken. Die Frequenz des gestreuten Photons wird nun erhöht und die Wellenlänge blauverschoben. Dieser Fall wird Anti–Stokes–Ramanstreuung genannt:

$$\tilde{\nu}_{\text{aus}} = \tilde{\nu}_{\text{ein}} + |\Delta\tilde{\nu}| .$$

Die Frequenzverschiebung $|\Delta\tilde{\nu}|$, die mit einer Veränderung des Rotations– oder Vibrations–Rotations–Niveaus des Streuers einhergeht, ist für das jeweils streuende Molekül charakteristisch und kann berechnet werden:

$$\Delta\tilde{\nu} = \tilde{\nu}_{\text{ein}} - \tilde{\nu}_{\text{aus}} = \frac{\Delta E}{hc_0} . \quad (1)$$

Dabei ist $\tilde{\nu} = 1/\lambda = \nu/c$ die üblicherweise in der Spektroskopie genutzte Wellenzahl des gestreuten Photons in cm^{-1} , ΔE die Differenz zwischen den Energiezuständen des streuenden Moleküls vor und nach der Streuung, h die Planck–Konstante und c_0 die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum. Da die Frequenzverschiebung bei Vibrations–Rotations–Übergängen größer ist als die von reinen Rotationsübergängen, lässt sich für erstere das ramanverschobene Streulicht besser vom rayleighgestreuten Licht trennen. Dieser Effekt wird bei der Detektion von Ramansignalen ausgenutzt.

Im Vergleich zur Rayleighstreuung (elastischer Streuprozess) ist die Intensität der Ramanstreuung um bis zu vier Größenordnungen geringer. Für die Detektion des ramanestreuenden Lichts kann dies ein großes Problem darstellen, insbesondere am Tage, wenn das Hintergrundrauschen (Photonen des Sonnenlichts) die Detektion des schwachen Ramanstreulichts stark behindert bzw. nicht zulässt.

2.1.2 Lidarprinzip und Lidargleichung

Lidar ist ein Verfahren der aktiven Fernerkundung, welches sich die Streuung des Lichts in der Atmosphäre zunutze macht. Es basiert auf der gleichen theoretischen Grundlage wie Radar (*engl.*: Radio Detection And Ranging), verwendet im Vergleich zu dieser Technik allerdings einen anderen Teil des elektromagnetischen Spektrums. Ein Lidar arbeitet mit Strahlung, deren Wellenlänge sich zwischen dem Ultraviolett und dem nahen Infrarot befindet.

Eine Sendeoptik entlässt einen kurzen, energiereichen Laserpuls in die Atmosphäre. In verschiedenen Entfernungen von der Quelle wird das ausgesandte Licht an Molekülen

oder Partikeln gestreut. Das in einem Winkel von 180° direkt zum Ursprung zurückgestreute Licht wird von den Detektoren einer Empfangsoptik zeitaufgelöst registriert. Das resultierende Signal wird in einer Datenerfassungseinheit gespeichert. Die zeitaufgelöste Messung ermöglicht über die Laufzeit t des sich mit der Lichtgeschwindigkeit c fortbewegenden Laserpulses die Bestimmung der Entfernung R des Streuortes vom Lidarsystem:

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

Auf dem Weg zum Streuort und zurück können Photonen absorbiert und gestreut werden. Die Summe aus Absorption und Streuung beschreibt die wirkenden Schwächungsprozesse und wird als Extinktion bezeichnet. Da das Laserlicht mit Molekülen und Partikeln in der Atmosphäre interagiert, müssen der Volumenrückstreukoeffizient β (in $\text{Mm}^{-1}\text{sr}^{-1}$) und der Volumenextinktionskoeffizient α (in Mm^{-1}) in einen Molekül- (Index M) und einen Partikelanteil (Index P) aufgeteilt werden:

$$\alpha(R, \lambda) = \alpha_{\text{M}}(R, \lambda) + \alpha_{\text{P}}(R, \lambda), \quad (3)$$

$$\beta(R, \lambda) = \beta_{\text{M}}(R, \lambda) + \beta_{\text{P}}(R, \lambda). \quad (4)$$

Üblicherweise werden für β und α die kürzeren Begriffe Rückstreukoeffizient und Extinktionskoeffizient genutzt.

Das empfangene Signal wird durch die Lidargleichung beschrieben, welche bei rein elastischer Rückstreuung die folgende Form aufweist:

$$P(R, \lambda_0) = P_0 \frac{E(\lambda_0)O(R)}{R^2} \beta(R, \lambda_0) \exp \left[-2 \int_0^R \alpha(r, \lambda_0) dr \right]. \quad (5)$$

Die aus einer Entfernung R bei einer Wellenlänge λ_0 empfangene Leistung P hängt von der ausgesandten Leistung P_0 , einer wellenlängenabhängigen Systemfunktion $E(\lambda_0)$, dem Reziproken des Quadrats der Entfernung R , dem wellenlängenabhängigen Rückstreukoeffizienten $\beta(R, \lambda_0)$ am Streuort und einem durch die Exponentialfunktion ausgedrückten Transmissionsterm ab. Letzterer beschreibt die Extinktion des Lichts auf dem Weg zum Streuort und zurück. Je nach dem Betrag des Lichtverlusts an die Atmosphäre nimmt der Transmissionsterm Werte zwischen 0 und 1 an. Die Überlappungsfunktion $O(R)$ beschreibt die geometrische Überschneidung des vom Laserstrahl beleuchteten Volumens mit dem Gesichtsfeld des Empfängerteleskops. Für einen Wert von $O(R) = 1$ wird der Laserstrahl vollkommen auf dem Detektor abgebildet. Dies ist üblicherweise ab einer bestimmten Höhe über dem Lidar der Fall. Für die Bereiche darunter muss das Lidarsignal mithilfe der Überlappungsfunktion $O(R) \neq 1$ korrigiert werden. Näheres dazu folgt im Abschnitt 2.1.4. Die Systemfunktion

$$E(\lambda_0) = \frac{c\tau_{\text{P}}}{2} A\eta(\lambda_0) \quad (6)$$

beschreibt die Effizienz der Empfangsoptik und der Detektoren. Sie wird bestimmt durch die Pulsdauer τ_{p} eines sich mit der Lichtgeschwindigkeit c ausbreitenden Laserpulses, die Fläche A des Empfangsteleskops und die Transmission η der Empfangsoptik

bei der Wellenlänge λ_0 . Die Systemfunktion ist durch den Aufbau der Optik bestimmt. Sie ist für das verwendete Lidar charakteristisch und kann berechnet werden. Die Fläche des Empfangsteleskops bestimmt, aus welchem Raumwinkel A/R^2 Signale empfangen werden können. Die starke Entfernungsabhängigkeit des detektierten Signals verursacht einen Dynamikbereich von mehreren Größenordnungen. Zur Verkleinerung des statistischen Fehlers der Messung und um die Datenmenge überschaubar zu halten, werden vor dem Abspeichern die Signale mehrerer Laserpulse aufsummiert.

Für den Fall, dass inelastische Rückstreuung detektiert wird, muss Gleichung (5) aufgrund der Raman-Verschiebung der Wellenlänge (von λ_0 vor der Streuung zu λ_R nach der Streuung) des gestreuten Photons verändert werden. Es gilt nun:

$$P(R, \lambda_R) = P_0 \frac{E(\lambda_R)O(R)}{R^2} \beta_R(R, \lambda_0) \exp \left[-2 \int_0^R [\alpha(r, \lambda_0) + \alpha(r, \lambda_R)] dr \right]. \quad (7)$$

Das ausgesandte Licht wird auf dem Weg zum Streuort bei der Wellenlänge λ_0 und auf dem Rückweg bei der Wellenlänge λ_R geschwächt. Die Rückstreuung ist in diesem Fall reine Ramanstreuung. Deren Rückstreckoeffizient

$$\beta_R(R, \lambda_0) = N_R(R) \frac{d\sigma_R}{d\Omega}(\pi, \lambda_0) \quad (8)$$

ist für die inelastisch streuenden Moleküle aus deren Anzahlkonzentration $N_R(R)$ und ihrem differentiellen Wirkungsquerschnitt $d\sigma_R/d\Omega$ einfach zu berechnen. Letzterer ist für verschiedene Moleküle bekannt. Das Profil der Anzahlkonzentration von Sauerstoff (O_2) und Stickstoff (N_2) kann aus dem Temperatur- und Luftdruckprofil bestimmt werden, welche einem Radiosondenaufstieg oder einem Standardatmosphärenmodell entnommen werden können. Da die Atmosphäre der Erde zum größten Teil aus Stickstoff besteht und dessen Konzentration kaum schwankt, wird in der Regel die Ramanstreuung an Stickstoffmolekülen für die im Folgenden beschriebene Methode der Extinktionsmessung genutzt.

Unter Verwendung von Gleichung (8) ergibt sich aus der Lidargleichung (7) nach Bildung des natürlichen Logarithmus und Ableiten nach R ein Ergebnis für den Gesamt-Extinktionskoeffizienten (Ansmann und Müller 2005):

$$\alpha(R, \lambda_0) + \alpha(R, \lambda_R) = \frac{d}{dR} \ln \left[\frac{N_R(R)}{P(R, \lambda_R)R^2} \right] + \frac{d}{dR} \ln O(R, \lambda_R), \quad (9)$$

und nach Aufspaltung des Extinktionskoeffizienten in einen Molekül- und einen Partikelanteil nach Gleichung (3):

$$\alpha_P(R, \lambda_0) + \alpha_P(R, \lambda_R) = \frac{d}{dR} \ln \left[\frac{N_R(R)}{P(R, \lambda_R)R^2} \right] - \alpha_M(R, \lambda_0) - \alpha_M(R, \lambda_R) + \frac{d}{dR} \ln O(R, \lambda_R). \quad (10)$$

Die spektrale Abhängigkeit der Partikelextinktion wird durch einen Wellenlängenexponenten \hat{a} ausgedrückt. Dieser wird als Ångström-Exponent bezeichnet und nimmt mit

zunehmender Partikelgröße ab. Die Beziehung

$$\frac{\alpha_P(R, \lambda_0)}{\alpha_P(R, \lambda_R)} = \left(\frac{\lambda_R}{\lambda_0} \right)^{\dot{a}(R)} \quad (11)$$

lässt sich zu einer Vereinfachung von Gleichung (10) nutzen:

$$\alpha_P(R, \lambda_0) = \frac{\frac{d}{dR} \ln \left[\frac{N_R}{P(R, \lambda_R) R^2} \right] - \alpha_M(R, \lambda_0) - \alpha_M(R, \lambda_R) + \frac{d}{dR} \ln O(R, \lambda_R)}{1 + \left(\frac{\lambda_0}{\lambda_R} \right)^{\dot{a}(R)}}. \quad (12)$$

Geht man von einer vollständigen Überlappung von Laserstrahl und Empfängersehtfeld aus, verschwindet der Term $\frac{d}{dR} \ln O(R, \lambda_R)$ in Gleichung (12). Diese Formel ermöglicht die direkte Berechnung des Partikelextinktionskoeffizienten aus dem Lidarsignal, ohne die Vorgabe unsicherer Parameter. Die nur vom Zustand der Atmosphäre abhängigen Terme $N_R(R)$, $\alpha_M(R, \lambda_0)$ und $\alpha_M(R, \lambda_R)$ lassen sich mithilfe der Profile von Temperatur und Druck berechnen. Der Ängström-Exponent wird als höhenkonstant angenommen. Die Ungenauigkeit bei einer fehlerhaften Annahme liegt bei etwa 3% (Ansmann et al. 1992). Ein Wert von $\dot{a} \approx 1$ hat sich als guter Ausgangswert erwiesen.

In Gleichung (5) tauchen zwei unbekannte Größen auf: der Rückstreukoeffizient $\beta(R, \lambda_0)$ und der Extinktionskoeffizient $\alpha(R, \lambda_0)$. Beide bestehen nach den Gleichungen (3) und (4) aus einem Partikel- und einem Molekülanteil. Durch die Detektion des frequenzverschobenen Ramansignals lässt sich der Partikelextinktionskoeffizient unabhängig vom Partikelrückstreukoeffizienten bestimmen. Aus den Gleichungen (5) und (7) ergibt sich ein Gleichungssystem, dessen Lösung den Koeffizienten der Partikelrückstreuung ergibt. Dazu müssen keine unsicheren Annahmen gemacht werden. Um die Formel zur Berechnung des Rückstreukoeffizienten zu erhalten, bildet man das Verhältnis aus elastischem und inelastischem Signal in der Messhöhe R und der sogenannten Referenz- oder Kalibrierhöhe R_0 :

$$\frac{P(R_0, \lambda_R) P(R, \lambda_0)}{P(R_0, \lambda_0) P(R, \lambda_R)}. \quad (13)$$

Die Signalintensitäten P ersetzt man durch die entsprechenden Lidargleichungen (5) und (7), und nach Umstellung ergibt sich unter Berücksichtigung der Gleichungen (3) und (4):

$$\begin{aligned} \beta_P(R, \lambda_0) &= -\beta_M(R, \lambda_0) + [\beta_P(R_0, \lambda_0) + \beta_M(R_0, \lambda_0)] \\ &\times \frac{P(R_0, \lambda_R) P(R, \lambda_0) N_R(R)}{P(R_0, \lambda_0) P(R, \lambda_R) N_R(R_0)} \\ &\times \frac{\exp \left[- \int_{R_0}^R [\alpha_P(r, \lambda_R) + \alpha_M(r, \lambda_R)] dr \right]}{\exp \left[- \int_{R_0}^R [\alpha_P(r, \lambda_0) + \alpha_M(r, \lambda_0)] dr \right]}. \end{aligned} \quad (14)$$

Der Betrag der Partikel- und Molekülrückstreuung $\beta_P(R_0, \lambda_0)$ und $\beta_M(R_0, \lambda_0)$ bei der

ausgesandten Wellenlänge λ_0 muss in einer Referenzhöhe R_0 bekannt sein bzw. abgeschätzt werden. Die Referenzhöhe wird dabei derart gewählt, dass die bekannte Molekülstreuung die Partikelstreuung überwiegt und letztere im relativen Vergleich vernachlässigt werden kann. Entsprechende Bedingungen findet man in der unverschmutzten, freien Troposphäre.

Der Fehler für die Bestimmung des Extinktionsprofils wird maßgeblich durch das Signalrauschen bestimmt. Durch eine Erhöhung der zeitlichen Mittelungslänge und der Fenstergröße bei der vertikalen Glättung des Signalprofils kann der relative statistische Fehler vermindert werden. Für Ramanlidarmessungen werden Wellenlängen außerhalb des Absorptionsbereiches atmosphärischer Spurengase verwendet. Standardmäßig durchgeführte Radiosondenaufstiege zur Bestimmung des Druck- und Temperaturprofils liegen meist vor oder werden an der Lidarstation durchgeführt.

Das verwendete Temperaturprofil beeinflusst durch die Veränderung des Temperaturgradienten mit der Höhe das Profil der Luftdichteänderung und damit N_R in den Gleichungen (12) und (14). Unsicherheiten im Dichteprofil können insbesondere bei der Extinktionsbestimmung empfindliche Fehler in Bereichen mit Temperaturinversionen hervorrufen (Ansmann et al. 1992). Unsicherheiten in den Werten von Temperatur und Druck in der Berechnung der Rayleighstreu- und Rückstreukoeffizienten sind dagegen bei einer Wellenlänge von $\lambda = 532$ nm stets gering.

Bei der Mittelung der Signale sollten die zeitlichen und räumlichen Glättungsintervalle mit Bedacht gewählt sein. Durch starke Veränderungen der atmosphärischen Bedingungen kann bei einer Mittelung über einen schlecht gewählten Zeitraum das Resultat verfälscht werden. Vor allem ist darauf zu achten, dass im Mittelungszeitraum keine Wolken auftreten. Darum werden die Rohdaten auf Perioden mit stark inhomogener Rückstreuung gesichtet (*engl.*: cloud screening). Das wolkenbereinigte Signal wird vor der Auswertung auf Entfernung, Dichte und Rayleighstreuung korrigiert.

Da die Signale des am Stickstoff in der Atmosphäre inelastisch gestreuten Lichts etwa drei Größenordnungen kleiner als typische Rayleighsignale und je nach Partikelkonzentration etwa vier bis fünf Größenordnungen kleiner als Signale des Grenzschichtaerosols sind, können Ramansignale am besten unter Abwesenheit störender Hintergrundstrahlung — also in der Nacht — empfangen werden. Ist es nicht möglich, inelastische Streusignale zuverlässig zu empfangen, kann ein Ramanlidar weiterhin als herkömmliches Rückstreulidar genutzt werden. Dann ist eine unabhängige Bestimmung der höhenabhängigen Koeffizienten von Rückstreuung und Extinktion der Partikel jedoch nicht mehr möglich. Statt dessen muss ein Verhältnis der beiden Werte zueinander abgeschätzt werden. Dieses wird als Lidarverhältnis — für Partikel oder Moleküle — bezeichnet:

$$S_P(R, \lambda) = \frac{\alpha_P(R, \lambda)}{\beta_P(R, \lambda)} \quad \text{bzw.} \quad S_M(R, \lambda) = \frac{\alpha_M(R, \lambda)}{\beta_M(R, \lambda)}. \quad (15)$$

Das Molekül-Lidarverhältnis $S_M = 8\pi/3$ sr ist bekannt und höhenkonstant. Anhand von Messungen mit einem Ramanlidar lässt sich in der Nacht das Partikel-Lidarverhältnis bestimmen und daraus — homogene Atmosphärenbedingungen vorausgesetzt — ein Wert für die Auswertung der Messung am Tag abschätzen. Bei einer

Abschätzung ist das Lidarverhältnis aufgrund seiner Höhenabhängigkeit ein starker Unsicherheitsfaktor für die Auswertung von Messungen rein elastischer Rückstreudaten. $S_P(R, \lambda)$ hängt stark von der Art der streuenden Partikel ab, so dass es eine Charakterisierung selbiger ermöglicht, aber innerhalb einer wenig durchmischten Luftsäule auch stark schwanken kann. Das elastische Signal wird mit der so genannten Klett-Methode ausgewertet (Klett 1981; Fernald 1984). Durch Einsetzen des Lidarverhältnisprofils (Gleichung (15)) in Gleichung (5) und anschließender Umformung ergibt sich der Rückstreukoeffizient durch die Lösung einer Bernoullischen Differentialgleichung als (Sasano et al. 1985):

$$\beta_P(R, \lambda_0) = \frac{U(R_0, R, \lambda_0)}{V(R_0, \lambda_0) - 2S_P(R, \lambda_0) \int_{R_0}^R U(R_0, R, \lambda) dz}, \quad (16)$$

mit

$$U(R_0, R, \lambda_0) = R^2 P(R, \lambda_0) \exp \left[-2(S_P(\lambda_0) - S_M) \int_{R_0}^R \beta_M(r, \lambda_0) dr \right]$$

und

$$V(R_0, \lambda_0) = \frac{R_0^2 P(R_0, \lambda_0)}{\beta_P(R_0, \lambda_0) + \beta_M(R_0, \lambda_0)}.$$

Erneut muss für eine Entfernung R_0 ein Referenzwert des Partikelrückstreukoeffizienten $\beta_P(R_0, \lambda_0)$ angenommen werden. Dieser wird, wie bei der Ramanmethode, in eine Höhe mit einer geringen Partikelkonzentration gesetzt, so dass die Partikelrückstreuung gegenüber der Molekülrückstreuung vernachlässigt werden kann. Da das Partikelidarverhältnis als höhenkonstant angenommen wird, stellt es eine Quelle für Fehler von bis zu 100% dar.

2.1.3 Mini-Ramanlidar Polly

Das Mini-Ramanlidar Polly ist ein kostengünstiges, kleines und leicht zu transportierendes Lidarsystem (Althausen et al. 2004). Es ermöglicht die automatische und voneinander unabhängige Messung der Extinktions- und Rückstreukoeffizienten von Partikeln in der Atmosphäre bei einer Wellenlänge von $\lambda = 532$ nm. Dabei nutzt man die Stokes-Vibrations-Rotations-Ramanstreuung an Stickstoffmolekülen in der Atmosphäre. Diese wird im Ramankanal bei einer Wellenlänge von 607 nm detektiert. Das Signal bei dieser Wellenlänge liefert das größtmögliche inelastische Rückstreusignal aus der Atmosphäre bei einem ausreichenden Wellenlängenunterschied zur Anregungswellenlänge. Das Gerät entstand im Rahmen eines Praktikums und zweier Diplomarbeiten (Engelmann 2003; Rhone 2004). Planung, Aufbau und Entwicklung der nötigen Steuerungs- und Auswertungssoftware erfolgten innerhalb von etwa zwei Jahren.

Abbildung 1 zeigt eine Fotografie des Mini-Lidars. Der gesamte Aufbau ist witterungsgeschützt in einem klimatisierten Schrank (0.8 m \times 1.6 m \times 2.0 m) untergebracht. Ein Deckel schützt bei Nichtbetrieb oder Regen die Quarzscheiben im Dach. Ein Regensensor ermöglicht bei beginnendem Niederschlag eine automatische Schließung des Deckels. Sensoren geben Auskunft über die Temperatur im Inneren des Schanks. Für

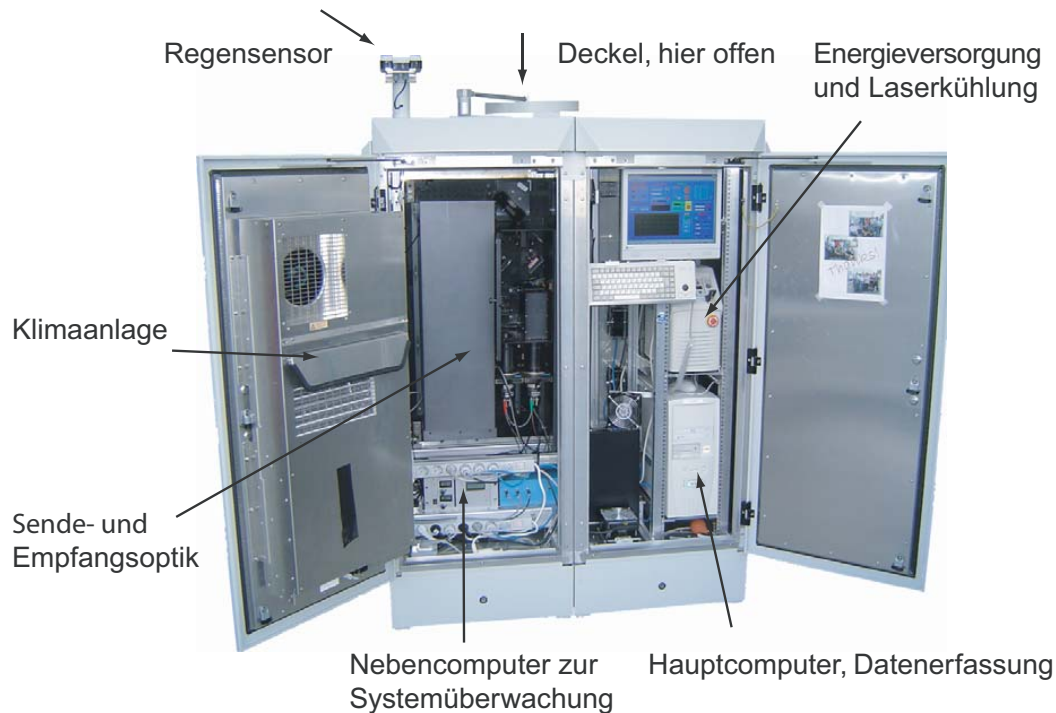


Abbildung 1: Fotografie des Mini-Ramanlidars Polly. Das komplette System ist in einem wetterfesten, klimatisierten Schrank untergebracht und dadurch leicht zu transportieren.

einen zuverlässigen Betrieb des Systems sollte die Innentemperatur stabil gehalten werden. Dies wird durch die Klimaanlage gewährleistet. Seit der Aufnahme der automatischen Messungen im Sommer 2005 liefert das System Daten, die in einer Datenbank abgelegt werden und auf der Homepage des IfT eingesehen werden können (<http://iftwetter.tropos.de:8083/VAP/>). Wenn es die atmosphärischen Bedingungen zulassen, wird täglich ab 0 und 12 UTC (*engl.*: Coordinated Universal Time, koordinierte Weltzeit) für zwei Stunden gemessen.

Das Kernstück des Systems besteht aus einem optischen Tisch der Fläche $0.7 \times 1 \text{ m}^2$, auf dem der Laserkopf, ein Aufweitungsteleskop und die Empfangsoptik fest installiert sind. Durch die feste Anordnung wird die Stabilität des optischen Arrangements beim Transport gesichert und dem Mini-Lidar eine starke Robustheit verliehen. Der optische Tisch ist derart in den klimatisierten Schrank eingebaut, dass der Laserstrahl in einem Zenitwinkel von 5° durch das Dach in die Atmosphäre entlassen wird. Zwei Quarzplatten im Dach schützen die Optik und gewährleisten einen dichten Abschluss des Schanks. Durch eine verlässt der Laserstrahl den Schrank, durch die andere gelangt das rückgestreute Licht in das Empfangsteleskop.

Abbildung 2 zeigt den optischen Aufbau des Systems. Ein frequenzverdoppelter Nd:YAG-Laser⁴ der Firma BigSky (Modell CFR200) emittiert bei einer Wellenlänge von 532 nm mit einer Wiederholrate von 15 Hz Lichtpulse mit einer Energie von

⁴Nd:YAG=Neodym-dotiertes Yttrium-Aluminium-Granat, dient als Lasermaterial

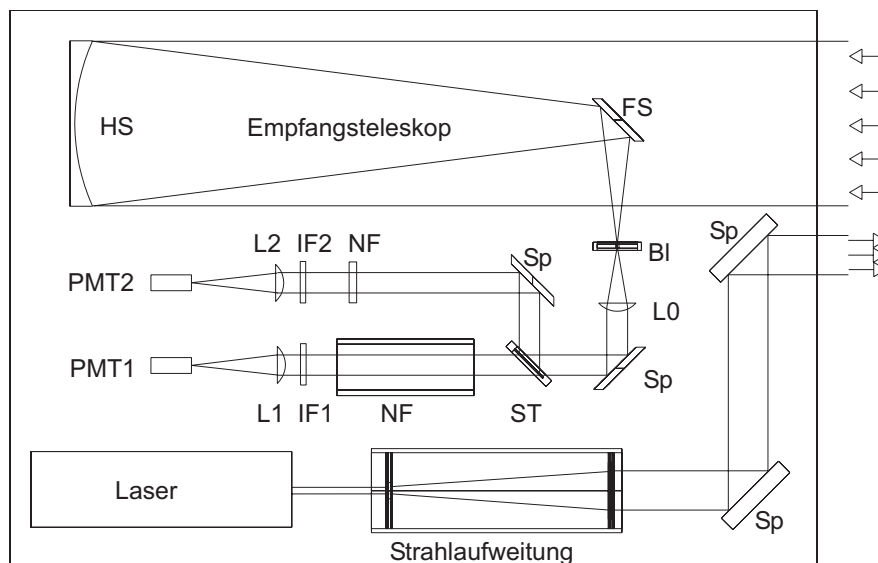


Abbildung 2: Optischer Aufbau des Mini-Ramanlidars und Strahlverlauf; HS – Hauptspiegel, FS – Fangspiegel, Bl – Blende, Sp – Spiegel, L – Linse, ST – Strahlteiler, NF – Neutralfilter, IF – Interferenzfilter, PMT – Photomultiplier.

120 mJ. Der resultierende Lichtstrahl wird in einem Aufweitungsteleskop um den Faktor 8 auf einen Durchmesser von 56 mm aufgeweitet, was seine Divergenz auf einen Wert von unter 0.5 mrad senkt. Nach der Aufweitung wird der Stahl über zwei Umlenkspiegel in die Atmosphäre reflektiert. Dabei wird die Achse des Laserstrahls so nah wie möglich an die Achse des Empfangsteleskops herangeführt. Eine Anordnung, bei der Sende- und Empfängerachse nicht übereinander liegen wird als biaxial bezeichnet. Diese Anordnung wurde notwendig, da bei einer koaxialen Anordnung der Sendespiegel mit seiner Halterung einen zu großen Bereich der Hauptspiegelfläche des Empfangsteleskops abgeschattet und dadurch dessen Gesichtsfeld enorm verkleinert hätte.

Das zurückgestreute Licht wird von einem Newtonschen Teleskop mit einem Hauptspiegeldurchmesser von $d_s = 200$ mm und einer Brennweite von $f = 800$ mm eingefangen und über einen flachen Umlenkspiegel auf eine Irisblende fokussiert. Diese befindet sich im Brennpunkt des Teleskops und besitzt einen verstellbaren Durchmesser von 1–3 mm, wodurch das Empfängergesichtsfeld zwischen 1.25 und 3.75 mrad variiert werden kann. Das Empfängergesichtsfeld ist ein ausschlaggebendes Kriterium für den Verlauf der Überlappungsfunktion des Systems (siehe Abschnitt 2.1.4). Hinter der Blende wird das Licht durch eine plankonvexe Linse kollimiert und über einen weiteren Umlenkspiegel auf einen Strahlteiler gelenkt. Dieser ist für Licht der Wellenlänge $\lambda = 532$ nm durchlässig und reflektiert Licht mit der Wellenlänge $\lambda = 607$ nm. Hier wird das elastische Signal vom inelastischen Signal getrennt. Nach der Trennung kann die Intensität des jeweiligen Signals durch Neutralfilter gedämpft werden. Neutralfilter sorgen für eine wellenlängenunabhängige Schwächung des Lichts um einen konstanten Wert. Danach passiert das Licht einen Interferenzfilter für die jeweilige Wellenlänge und wird durch eine Linse auf die Detektorflächen fokussiert.

Die Photonen werden von Photomultipliern (*engl.*: Photomultiplier Tube, PMT) des Typs R5600P der Firma Hamamatsu aufgefangen, verstärkt und gezählt. Diese PMT besitzen eine Detektorfläche des Durchmessers 8 mm und weisen eine Quantenausbeute von 7.5% bei 532 nm bzw. 1.2% bei 607 nm auf. Die PMT arbeiten im Photonenzählbetrieb und besitzen einen sehr großen Dynamikbereich. Das Signal der PMT wird von einer Datenerfassungskarte (Modell 7882 von Fast ComTec) mit einer Auflösung von 250 ns erfasst. Das entspricht einer räumlichen Auflösung von 37.5 m. Die maximale Zählrate der Photomultiplier liegt bei 10^7 cps (*engl.*: counts per second, Ereignisse pro Sekunde). Durch eine angemessene Wahl der Neutralfilter wird dafür gesorgt, dass dieser Wert nicht überschritten und ein Übersteuern der Signale in den beiden Messkanälen verhindert wird. Photomultiplier besitzen eine Dunkelzählrate. Das bedeutet, dass sie auch ein Signal abgeben, wenn kein Licht einfällt. Das gemessene Signal muss um den Gesamthintergrund, der aus dem Himmelslicht und dem Detektorrauschen besteht, korrigiert werden. Das Hintergrundsignal wird am Ende des Profils bestimmt, von wo keine rückgestreuten Laser-Photonen erwartet werden.

2.1.4 Überlappungsfunktion und Überlappungskorrektur

In Gleichung (12) zur Bestimmung des Extinktionskoeffizienten ist die Auswirkung einer unvollständigen Überlappung des vom Laserstrahl beleuchteten Volumens mit dem Gesichtsfeld des Empfangsteleskops berücksichtigt. Ohne Kenntnis der Überlappungsfunktion ist demnach keine Bestimmung des Extinktionskoeffizienten in den untersten Bereichen der Atmosphäre möglich. Dies ist um so dramatischer, da es sich dabei um den interessanten Übergangsbereich von lokalen Quellen zum mesoskaligen Aerosoltransport handelt. Auch wird eine Anbindung an Bodenmessungen unmöglich. Ist die Überlappungsfunktion dagegen bekannt, erlaubt Gleichung (12) eine zuverlässige Bestimmung des Extinktionskoeffizienten bis relativ nah an den Boden.

Die Überlappungsfunktion $O(R)$ wird, wie die Systemfunktion $E(\lambda)$ aus Gleichung (6), durch den Aufbau der Optik des Lidars bestimmt und ist für jedes Gerät charakteristisch. Der Überlappungseffekt eines Lidars wird je nach dessen späterer Anwendung gestaltet. Soll z.B. in großen Höhen gemessen werden, ist es wichtig, dass durch die Überlappungsfunktion Signale aus dem unteren Bereich der Atmosphäre unterdrückt oder gar nicht gesehen werden. Der Betrag der Rückstreuensignale überstreicht in der Atmosphäre je nach Höhe mehrere Größenordnungen. Der Empfänger eines Lidars kann maximal Signale von sechs bis acht Größenordnungen detektieren. Die $1/R^2$ -Abhängigkeit des Lidarsignals erweist sich hier als großes Problem. Da Polly für die Messung in der Grenzschicht konzipiert wurde, wurde darauf Wert gelegt, dass sich Laserstrahl und Empfängergesichtsfeld in einer möglichst geringen Höhe überlappen (Engelmann 2003). Dabei müssen die optischen Achsen des Laserstrahls und des Empfangsteleskops bei der biaxialen Anordnung zueinander geneigt sein. Der optimale Winkel, unter dem der Laserstrahl das Gesichtsfeld des Teleskops in möglichst geringer Entfernung betritt und erst in relativ großer Entfernung wieder verlässt, kann berechnet werden. Um einen optimalen Überlappungseffekt zu erzielen, müssen folgende Details beachtet werden:

- Die Divergenz des Laserstrahls muss kleiner sein als das Gesichtsfeld des Empfängerteleskops.
- Die Überlappung findet in um so geringerer Entfernung statt, je größer das Gesichtsfeld des Empfängerteleskops ist. Dabei ist allerdings zu beachten, dass mit einem vergrößerten Gesichtsfeld des Teleskops auch mehr Himmelshintergrundlicht auf die Detektoren gelangt und das Signal verwaschen kann.
- Der Winkel zwischen den Achsen des Laserstrahls und des Teleskops muss so gewählt werden, dass der Strahl das Gesichtsfeld des Teleskops in geringer Entfernung betritt, es aber auch erst in sehr großer Entfernung (außerhalb des Messbereichs) wieder verlässt.
- Je kleiner der Abstand zwischen Teleskop- und Laserstrahlachse, in desto geringerer Entfernung vom Lidar findet die Überlappung bei optimal eingestelltem Winkel statt.

Die Überlappungsfunktion eines Lidars kann durch optische Simulation mit einem Raytracing-Programm ermittelt oder experimentell bestimmt werden (Wandinger und Ansmann 2002). Letzteres ist allerdings nur unter Zuhilfenahme des inelastischen Kanals mit einem Ramanlidar möglich. Dafür wird Gleichung (7) nach der Überlappungsfunktion $O(R)$ umgestellt:

$$O(R) = \frac{P(R, \lambda_R) R^2}{C_0 N_R(R) \frac{d\sigma(\pi, \lambda_0)}{d\Omega} \exp \left[- \int_0^R \alpha(r, \lambda_0) + \alpha(r, \lambda_R) dr \right]}. \quad (17)$$

$C_0 = P_0 E(\lambda_R)$ ist eine Normierungskonstante. Mit der Ramanmethode bestimmt man das Rückstreuprofil. Da dieses aus einem Signalverhältnis berechnet wird, kürzt sich der Überlappungseffekt heraus und der Rückstreukoeffizient kann bis in Bodennähe bestimmt werden. Aus dem Rückstreuprofil wird unter der Annahme eines höhenkonstanten Lidarverhältnisses das Extinktionsprofil bestimmt. Es ist wichtig für die experimentelle Bestimmung des Überlappungseffekts, dass man eine Messung mit einer geringen optischen Dicke für die Berechnung der Überlappungsfunktion wählt. Die optische Dicke τ entspricht dem höhenintegrierten Extinktionskoeffizienten:

$$\tau(\lambda) = \int_0^\infty \alpha(\lambda, r) dr. \quad (18)$$

Für den Fall einer hohen Transmission der Atmosphäre bzw. einer geringen Partikelladung wird der Fehler, der durch die Annahme eines festen Lidarverhältnisses entsteht, minimiert. Aus dem Extinktionsprofil lässt sich der Transmissionsterm in Gleichung (17) bestimmen. Die Konstante in dieser Gleichung wird so gewählt, dass die Überlappungsfunktion in großen Höhen um den Wert Eins schwankt. Ab der Höhe, in der dies der Fall ist, kann der Überlappungseffekt vernachlässigt werden.

Die Überlappungsfunktion wurde sowohl in Xinken (am 3. Oktober 2004, $\tau = 0.206$), als auch in Peking (am 8. Januar 2005, $\tau = 0.058$) experimentell bestimmt. Die dafür

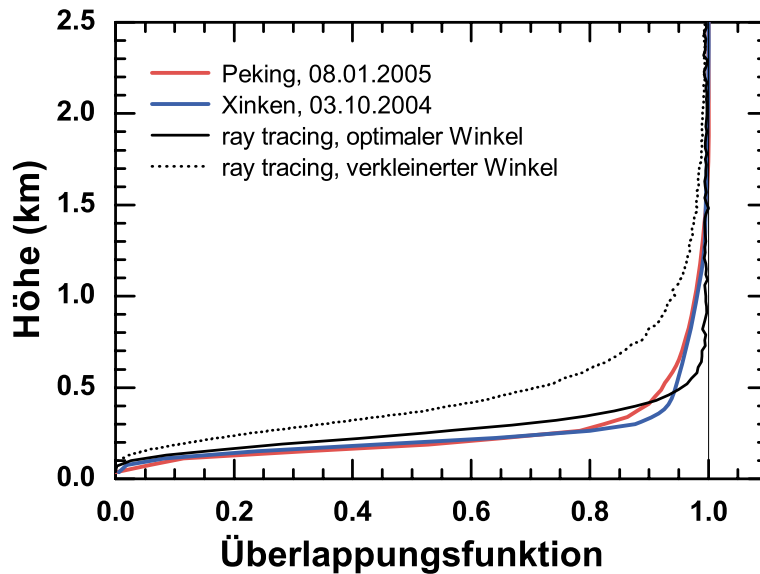


Abbildung 3: Theoretisch und experimentell bestimmte Verläufe der Überlappungsfunktion des Mini-Ramanlidars Polly. Die Kenntnis der Überlappung ermöglicht die Bestimmung des Extinktionskoeffizienten ab einer Höhe von etwa 400 m.

verwendeten Messungen wurden an den Tagen mit der geringsten optischen Dicke τ der jeweiligen Messreihe durchgeführt. Beide Funktionen sind in Abbildung 3 dargestellt. Weiterhin zeigt die Abbildung das Resultat der Ray-tracing-Simulationen für den optimalen Winkel und einen verkleinerten Winkel zwischen den Achsen des Laserstrahls und der Empfangsoptik. Es ist gut zu erkennen, wie stark sich die Wahl dieses Winkels auf den Überlappungseffekt auswirkt. Für eine optimal eingestellte Optik zeigt sich plausible Übereinstimmung zwischen dem theoretisch simulierten und dem experimentell bestimmten Verlauf von $O(R)$. Unterschiede lassen sich mit verschiedenen unbekanntem Faktoren erklären, z. B. dem aktuellen Laserstrahlprofil, der Abschattung durch Optikhalterungen oder der höhenabhängigen Änderung der Detektoreffizienz bei verschiedener geometrischer Ausleuchtung. Für die Auswertung der Messungen in Xinken und Peking wurde die jeweilige, experimentell bestimmte Überlappungsfunktion verwendet. Mit Kenntnis der Überlappungsfunktion ist es nun möglich, das Extinktionsprofil ab einer Höhe von 400–500 m zu bestimmen. Zuvor war eine Bestimmung von α in Höhen unterhalb von 1000 m nicht möglich. Unterhalb von 300–400 m, wo $O(R)$ einen starken Gradienten hat, ist wegen der Beziehung $\Delta\alpha = \frac{1}{O(R)} \frac{d}{dR} O(R)$ und der kleiner werdenden Werte von $O(R)$ keine korrekte Bestimmung des Extinktionskoeffizienten mehr möglich.

2.1.5 Sonnenphotometer

Zur Ergänzung der Lidarmessungen wurde am Tag zusätzlich das von der Firma Dr. Schultz & Partner GmbH, Buckow, hergestellte Sonnenphotometer (SPM, *engl.*: sun photometer) SP1A betrieben. Dieses misst mit einer Auflösung von 30 s die einfallende Sonnenstrahlung in 18 Kanälen im Wellenlängenbereich von 351 bis 1063 nm. Verwirft

man die zehn Kanäle im Absorptionsbereich von Ozon und Wasserdampf, verbleiben acht Kanäle zwischen 380.6 und 1044.1 nm zur Berechnung der optischen Dicke τ der Luftsäule zwischen dem Oberrand der Atmosphäre und dem Empfängerfeld des Sonnenphotometers. Die optische Dicke wird aus der als Spannung detektierten einfallenden Sonnenstrahlung nach dem Lambert–Bouguer–Beer–Gesetz unter Korrektur der Rayleigh–Extinktion berechnet. Die dafür notwendigen Kalibrierkonstanten wurden durch die Methode der Langley–Plot–Analyse nach Messungen im Oktober 2000 auf der Zugspitze in etwa 2600 m Höhe bestimmt (Wagner 2000).

Der Fehler der optischen Dicke ist sowohl wellenlängen– als auch sonnenstandsabhängig. Für den von Spurengasabsorption unbeeinflussten Bereich beträgt die Unsicherheit 0.005 bis 0.01. Eine detaillierte Fehlerbetrachtung für das Gerät ist in Wagner (2000) zu finden.

Die Resultate des SP1A werden regelmäßig mit den Ergebnissen eines Sonnenphotometers vom Typ Cimel CE 318N der Firma Cimel Electronique, Paris, verglichen. Dieses Referenzgerät ist auf dem Dach des IfT–Hauptgebäudes installiert und liefert bei wolkenlosem Himmel vollautomatisch Messdaten für das Aerosol Robotic Network (AERONET, <http://aeronet.gsfc.nasa.gov>, Holben et al. 1998). Die Geräte dieses weltumspannenden Sonnenphotometernetzwerks werden jährlich kalibriert; die Ergebnisse unterliegen einer ständigen Qualitätskontrolle.

2.2 Bestimmung mikrophysikalischer Partikelgrößen

Für die optische Fernerkundung mittels Lidar werden üblicherweise diskrete Wellenlängen im Bereich zwischen etwa 350 nm und 1.1 μm verwendet. Diese Wellenlängen entsprechen etwa der Größe der streuenden Partikel in der Atmosphäre, weshalb die Rückstreu– und Extinktionskoeffizienten sensitiv auf die Größe der streuenden Partikel reagieren. Diese Wechselwirkung kann genutzt werden, um aus den optischen Informationen auf die mikrophysikalischen Eigenschaften der Partikel zu schließen (Müller 1997; Müller et al. 1999b). Die Koeffizienten von Extinktion und Rückstreuung sind durch Integralgleichungen mit den mikrophysikalischen Eigenschaften der streuenden Partikelpopulation verbunden. Das Problem lässt sich in der verallgemeinerten Form einer Fredholmschen Integralgleichung erster Art darstellen:

$$g_p = \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} K_p(r, m)n(r)dr + \epsilon_p^{\text{exp}}. \quad (19)$$

Dabei steht der Laufindex $p = (i, \lambda)$ für die Art (Extinktion α oder Rückstreuung β) und Anzahl (Wellenlänge λ) der optischen Information. Die optischen Daten g_p werden mit dem experimentellen Messfehler ϵ_p^{exp} belegt. Die Anzahlkonzentrationsverteilung der Partikel pro Radiusintervall dr wird durch den Term $n(r)$ beschrieben.⁵ Der geometrische Querschnitt πr^2 des jeweiligen Partikels und seine Extinktions– bzw. Rückstreu–

⁵In der Inversion wird mit der Volumenverteilung $v(r)$ gerechnet, da diese stabilere Ergebnisse liefert.

effizienz $Q_p(r, m)$ bilden die Kernfunktion

$$K_p(r, m) = \pi r^2 Q_p(r, m), \quad (20)$$

die auch als Kerneffizienz bezeichnet wird. Die Streueffizienzen hängen vom Partikelradius r , dem komplexen Brechungsindex m und der Wellenlänge λ des gestreuten Lichts ab und können unter der Annahme, dass es sich um sphärische Streuer handelt, nach der Miestreuthorie berechnet werden (Mie 1908; Bohren und Huffman 1983).

Die Auflösung der Fredholmschen Integralgleichung (19) nach $n(r)$ stellt ein schlecht gestelltes, nichtlineares Problem dar. Das bedeutet, dass die Lösung nicht eindeutig definiert ist und zudem sehr sensitiv auf Störungen in den eingehenden Daten reagiert. Die mathematisch sinnvollen Lösungen müssen nicht unbedingt auch physikalisch sinnvoll sein. Zudem zeigen die Lösungen in der Regel ein äußerst instabiles Verhalten, das nur durch die Einführung sinnvoller Randbedingungen beseitigt werden kann. Eine analytische Lösung des Problems ist nicht möglich. Statt dessen werden numerische Inversionsverfahren angewandt.

2.2.1 Inversion

Am IFT wurde eine Methode entwickelt, mit der aus Lidardaten auf die mikrophysikalischen Eigenschaften (Partikelgrößenverteilung $n(r)$ und komplexer Brechungsindex m) der streuenden Aerosolpartikel geschlossen werden kann. Dabei wird die Methode der Inversion durch Regularisierung verwendet, die in Müller (1997) und Müller et al. (1999a, b) ausführlich beschrieben ist. Hier soll nur ein kurzer Überblick über diese Methode gegeben werden.

Das Ziel der Inversion ist die Bestimmung der unbekanntenen Partikelgrößenverteilung $n(r)$. Aus dieser lassen sich mittlere und integrale Parameter des untersuchten Partikelensembles bestimmen. Das Größenspektrum der Aerosolpartikel in der Atmosphäre kann näherungsweise als eine Kombination von logarithmischen Normalverteilungen (Moden) beschrieben werden.

Da die Eigenschaften der gesuchten Partikelverteilung unter Verwendung möglichst weniger Annahmen gewonnen werden sollen, wird $n(r)$ durch eine Linearkombination sogenannter Basisfunktionen $B_j(r)$ und Wichtungsfaktoren w_j näherungsweise beschrieben:

$$n(r) = \sum_{j=1}^N w_j B_j(r) + \epsilon_p^{\text{math}}(r). \quad (21)$$

Die Abweichung zwischen der tatsächlichen Verteilung $n(r)$ und der durch die Linearkombination konstruierten Verteilung wird durch den mathematisch erzeugten Residuenfehler $\epsilon_p^{\text{math}}(r)$ ausgedrückt. Der Laufindex j bezeichnet die Nummern der verwendeten Basisfunktionen. Deren Anzahl N muss derart gewählt werden, dass eine Partikelverteilung angemessen dargestellt werden kann. Um die natürlichen Gegebenheiten adäquat wiedergeben zu können, sollte der Algorithmus in der Lage sein, mindestens

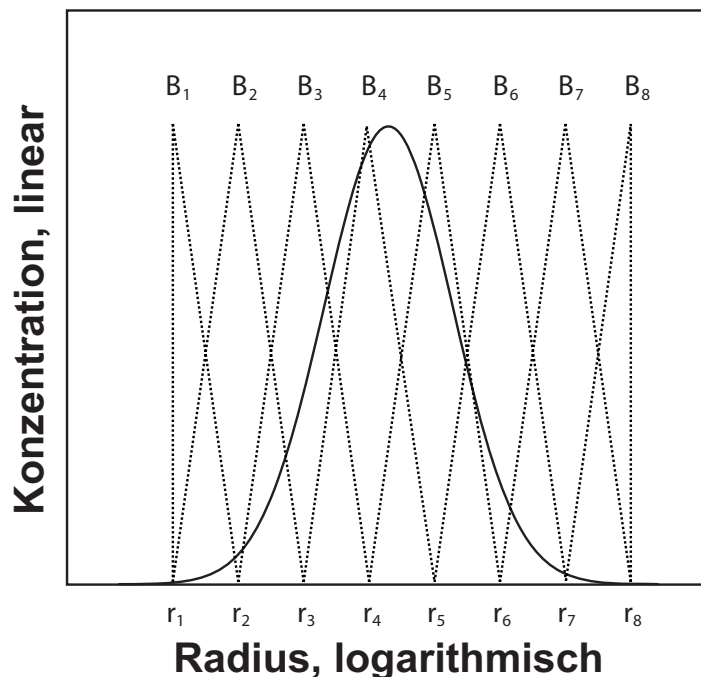


Abbildung 4: Aufteilung der Basisfunktionen über das Inversionsfenster. Acht Basisfunktionen ermöglichen die Darstellung einer bimodalen Verteilung.

bimodale Verteilungen darzustellen. Nimmt man an, dass eine Mode von drei Basisfunktionen näherungsweise reproduziert werden kann, so ergibt sich, unter Verwendung von je einer weiteren Basisfunktion für die Festlegung der unteren (r_{\min}) und oberen Inversionsgrenze (r_{\max}), eine Mindestanzahl von acht Basisfunktionen.

Die Verteilung der Basisfunktionen über das Inversionsfenster ist in Abbildung 4 gezeigt. Als Form der Basisfunktionen wurde die Dreiecksfunktion gewählt. Verwendet man zu wenige Basisfunktionen, kann die vorhandene Struktur der Partikelverteilung eventuell nicht aufgelöst werden. Setzt man die Anzahl der Basisfunktionen zu hoch an, kann die gesamte Inversion instabil werden und ebenfalls keine sinnvollen Ergebnisse mehr liefern. Durch die Radien $r_1 = r_{\min}$ und $r_8 = r_{\max}$ wird das Inversionsfenster begrenzt. Die untere Integrationsgrenze sollte nicht kleiner als $r_{\min} = 0.05 \mu\text{m}$ gewählt werden, da sehr kleine Partikel bei den üblicherweise zur Inversion benutzten Wellenlängen keinen nennenswerten Beitrag zu den gemessenen Streukoeffizienten leisten. Die obere Integrationsgrenze liegt bei maximal $10 \mu\text{m}$, da größere Aerosolpartikel in der Atmosphäre kaum vorkommen und somit ebenfalls nur zu einem sehr geringen Anteil zum detektierten Signal beitragen. Der Abstand der Stützstellen ist aufgrund des großen Bereichs der möglichen Partikelradien logarithmisch äquidistant gewählt. Bei der Rechnung kann der Inversionsbereich nicht als fest angenommen werden. Stattdessen nutzt man ein gleitendes Inversionsfenster mit variabler Fensterbreite zur Erfassung der möglichen Verteilungen. Um die Partikelgrößenverteilung zu erhalten, muss Gleichung (21) gelöst werden. Dazu ist es nötig, die Wichtungsfaktoren w_j zu bestimmen.

2.2.2 Bestimmung der Wichtungsfaktoren

Setzt man Gleichung (21) in Gleichung (19) ein, ergibt sich

$$g_p = \sum_j A_{pj}(m)w_j + \epsilon_p, \quad (22)$$

mit $A_{pj}(m)$ als Produkt der jeweiligen Kernfunktion $K_p(r, m)$ und der Basisfunktion $B_j(r)$:

$$A_{pj}(m) = \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} K_p(r, m)B_j(r)dr. \quad (23)$$

Die Summe aus dem experimentellen und dem mathematischen Fehler ist in $\epsilon_p = \epsilon_p^{\text{exp}} + \epsilon_p^{\text{math}}$ zusammengefasst und beschreibt die Abweichung des in der Inversion genutzten Werts von α oder β vom tatsächlich gemessenen Wert. Geht man nun zur Matrixschreibweise über, ergibt sich nach Zusammenfassung der optischen Daten zum Vektor $\mathbf{g} = [g_p]$, der Wichtungsfaktoren zum Vektor $\mathbf{w} = [w_j]$ und der Fehler zum Vektor $\boldsymbol{\epsilon} = [\epsilon_p]$ die Vektor–Matrix–Gleichung

$$\mathbf{g} = \mathbf{A}\mathbf{w} + \boldsymbol{\epsilon}. \quad (24)$$

Die in Gleichung (24) enthaltene Matrix $\mathbf{A} = [A_{pj}]$ mit den nach Gleichung (23) zu berechnenden Elementen wird als Wichtungsmatrix, Gewichtsmatrix oder Matrix des mittelnden Kerns bezeichnet. Die Lösung für die Wichtungsfaktoren lautet nach Umstellung:

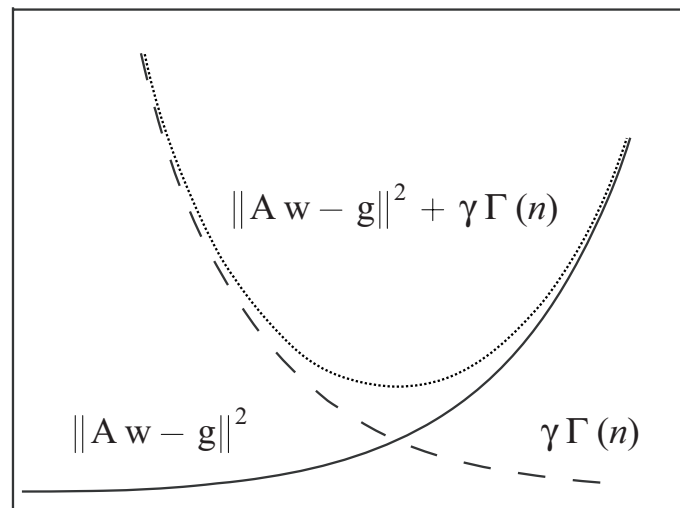
$$\mathbf{w} = \mathbf{A}^{-1}\mathbf{g} + \boldsymbol{\epsilon}' \quad \text{mit} \quad \boldsymbol{\epsilon}' = \mathbf{A}^{-1}\boldsymbol{\epsilon}. \quad (25)$$

Der resultierende Lösungsraum ermöglicht die Reproduktion der optischen Eingangsdaten innerhalb der Fehlergrenzen $\boldsymbol{\epsilon}$, auch wenn der Lösungsraum noch instabile (physikalisch unsinnige) Lösungen enthält. Die Ursache dieser Instabilität liegt in den Elementen von \mathbf{A} und \mathbf{A}^{-1} bzw. deren Eigenwerten (Müller 1997). Durch die Regularisierung wird unter Zuhilfenahme sinnvoller Einschränkungen der Lösungsraum verkleinert. Die instabilen Lösungen, die zwar in der Lage sind, die optischen Eingangsdaten zu rekonstruieren, aber eine oszillierende Partikelgrößenverteilung⁶ ergeben, werden verworfen. Dazu sucht man die Lösungen, für die $\boldsymbol{\epsilon}$ in Gleichung (24) einen vorgegeben Wert des Abstands (definiert durch die einfache euklidische Norm $\|\cdot\|$) zwischen den Vektoren $\mathbf{A}\mathbf{w}$ und \mathbf{g} nicht überschreitet. Diese Vorgehensweise wird als Methode des minimalen Abstands bzw. als Minimalisierungskonzept bezeichnet (Müller 1997). Die Formel für den maximal akzeptierten Abstand e^2 zwischen dem Vektor $\mathbf{A}\mathbf{w}$ und dem Vektor \mathbf{g} der optischen Daten lautet dann unter Berücksichtigung der Forderung nach Glattheit:

$$e^2 \geq \|\boldsymbol{\epsilon}\|^2 = \|\mathbf{A}\mathbf{w} - \mathbf{g}\|^2 + \gamma\Gamma(n). \quad (26)$$

Der Term $\Gamma(n)$ ist ein Maß der Abweichung von der für die invertierte Größenverteilung

⁶Diese Partikelgrößenverteilungen zeigen ein sehr unrealistisches Aussehen mit zahlreichen, ähnlich stark ausgebildeten Moden.



Lagrange - Multiplikator

Abbildung 5: Veranschaulichung des Minimierungsprinzips. Gezeigt ist der Verlauf des Bestrafungsterms $\|\mathbf{A}\mathbf{w} - \mathbf{g}\|^2$ (durchgezogen) und des zweiten Strafterms $\gamma\Gamma(n)$ (gestrichelt), der die Glattheit der Verteilung erzwingt, in Abhängigkeit des Lagrange-Multiplikators. Die gepunktete Linie zeigt die Kombination der beiden Terme, so wie sie in Gleichung (26) zur Geltung kommt. Durch den Minimalisierungsprozess wird der Wert von γ gesucht, für den die gepunktete Kurve ein Minimum besitzt.

$n(r)$ geforderten Glattheit. Der Lagrange-Multiplikator γ kann Werte zwischen 0 und ∞ annehmen und bestimmt die Stärke der Glattheitsforderung (Müller 1997).

Eine anschauliche Darstellung des Minimierungsproblems findet sich in Abbildung 5. Gezeigt ist der Verlauf der Lösung von Gleichung (26) in Abhängigkeit vom Lagrange-Multiplikator. Die Auswahl der Lösung fällt auf den Wert, für den $\|\epsilon\|^2 = \|\mathbf{A}\mathbf{w} - \mathbf{g}\|^2 + \gamma\Gamma(n)$ minimal ist. Für diesen Fall werden störende Oszillationen in der resultierenden Partikelgrößenverteilung $n(r)$ durch den Strafterm $\Gamma(n)$ unterdrückt. Dieser wird durch die Gleichung

$$\Gamma(n) = \mathbf{w}^T \mathbf{H} \mathbf{w} \quad (27)$$

beschrieben. \mathbf{w}^T ist die Transponierte des Vektors \mathbf{w} . Die Matrix \mathbf{H} enthält die Forderung nach Glattheit (Müller 1997). Die Glattheit wird über drei Basisfunktionen des jeweils betrachteten Inversionsfensters gefordert. Dies entspricht der Anzahl an Basisfunktionen, die nötig sind, um einen Mode in der Partikelgrößenverteilung darzustellen.

Die Vorgehensweise bei der Regularisierung kann einfach beschrieben werden. Zuerst bestimmt man aus dem Lösungsraum denjenigen Unterraum, der Lösungen enthält, für die der Abstand zwischen dem Vektor $\mathbf{A}\mathbf{w}$ und dem Vektor \mathbf{g} kleiner als ein vorgegebener Wert ist. Aus diesem Unterraum wird nun die Verteilung $n(r)$ ausgewählt, welche nach dem Maß $\Gamma(n)$ die glatteste ist. Praktisch ergibt sich dadurch eine Abwägung zwischen einer guten Reproduzierbarkeit der optischen Eingangsdaten aus den Ergebnissen und der Unterdrückung der Oszillationen in der Verteilung $n(r)$.

Die Lösung des Minimierungsvorgangs ergibt sich, wenn man die Ungleichung (26) als eine Gleichung schreibt und den Term $\Gamma(n)$ durch Gleichung (27) ausgedrückt (Twomey 1977; Müller 1997). Den Wichtungsfaktor erhält man dann zu:

$$\mathbf{w} = (\mathbf{A}^T \mathbf{A} + \gamma \mathbf{H})^{-1} \mathbf{A}^T \mathbf{g}. \quad (28)$$

Die Regularisierung hat folgenden Effekt: durch die Einführung eines Strafterms $\gamma \mathbf{H}$ werden die Eigenwerte von \mathbf{A}^{-1} aus Gleichung (25) unterdrückt, die zu einer Oszillation der Lösung $n(r)$ führen (Müller 1997). Der Grad der Unterdrückung wird dabei durch den Lagrange-Multiplikator γ bestimmt. Die Matrix $(\mathbf{A}^T \mathbf{A} + \gamma \mathbf{H})^{-1} \mathbf{A}^T$ wählt die geeigneten Wichtungsfaktoren aus und führt dadurch zu einer Stabilisierung der Inversion. Die Inversionsrechnung kann beginnen, wenn man einen geeigneten Wert für den Lagrange-Multiplikator bestimmt hat. Wird der Wert $\gamma = 0$ verwendet, findet keine Glättung statt. Wählt man γ dagegen zu groß, wird die Lösung überglättet. Der Lagrange-Multiplikator muss daher so gewählt werden, dass der gesamte Strafterm in Gleichung (26) ein Minimum besitzt. Für diese Bestimmung wird die Methode der verallgemeinerten Überkreuzvalidierung genutzt, die in Müller (1997) ausführlich erklärt wird.

Durch die verallgemeinerte Überkreuzvalidierung werden die kleinen Eigenwerte von \mathbf{A} verworfen, die in Kombination mit ihren Eigenvektoren nur unwesentlich zur Rekonstruktion der Partikelgrößenverteilung $n(r)$ beitragen, aber eine große Fehlerverstärkung verursachen können. Das entspricht der Bestimmung des minimal noch zur Rekonstruktion der Partikelverteilung nutzbaren Eigenwerts von \mathbf{A} .

2.2.3 Inversionsalgorithmus

Auf Basis der vorgestellten Theorie wurde ein Computerprogramm für die Inversion durch Regularisierung geschrieben (Müller 1997). Dieses erlaubt die Bestimmung mikrophysikalischer Partikeleigenschaften aus Lidarprofilen des Extinktions- und Rückstreuoeffizienten bei mehreren Wellenlängen. Der Benutzer bestimmt in diesem Programm Intervalle und Schritte für die Grenzen des zu verwendenden Inversionsfensters (r_{\min} und r_{\max}) und den Bereich des zu nutzenden Brechungsindexes.

Die Streueffizienzen für die Extinktion und Rückstreuung bei den verwendeten Wellenlängen werden einer, mittels Miestreurechnung erstellten, Datenbank entnommen. Da eine stabile Inversion über die Anzahlkonzentration Datensätze mit 20–40 Werten des Extinktionskoeffizienten erfordert, erfolgt die Inversion über die Volumenverteilung $(4/3)\pi r^3 n(r)$. Eine derartige Inversion weist wesentlich stabilere Eigenschaften auf und kommt daher mit weniger Eingangsdaten aus.

Im Computeralgorithmus wird zudem die Forderung nach einer positiven Lösung umgesetzt. Dafür werden für jede Lösung die Vorzeichen der Wichtungsfaktoren betrachtet. Besitzt eine Verteilung nur positive Wichtungsfaktoren oder treten mehrere Bereiche mit positiven und negativen Wichtungsfaktoren auf, wird die Lösung verworfen. Sinnvolle Lösungen besitzen ein zusammenhängendes Gebiet positiver Wichtungsfaktoren,

das bei kleinen und großen Radien von negativen Wichtungsfaktoren begrenzt wird. Treten in diesem ausschließlich positiven Gebiet Oszillationen auf, handelt es sich dabei um tatsächlich vorhandene Strukturen, z.B. eine bimodale Verteilung. Aus den somit erhaltenen Verteilungen werden die optischen Daten unter Verwendung eines zuvor angegebenen Bereichs des komplexen Brechungsindex zurückgerechnet und mit den Eingangswerten über die mittlere quadratische Abweichung verglichen. Die Lösung wird dann akzeptiert, wenn die Abweichung innerhalb eines vorgegebenen Werts liegt. Dadurch werden den Inversionsergebnissen Werte des komplexen Brechungsindex zugeordnet. Für die Auswertung können alle Lösungen eines Datensatzes nach ihrer Abweichung von den optischen Eingangsdaten sortiert werden. Der Nutzer legt dann fest, welche Lösungen er als akzeptabel zulässt. Über die Lösungen mit der geringsten Abweichung wird gemittelt und eine endgültige Lösung bestimmt. Als Resultat ergibt sich für diese Lösung neben der Anzahlkonzentration n die Oberflächenkonzentration

$$a = 4\pi \int n(r)r^2 dr, \quad (29)$$

die Volumenkonzentration

$$v = \frac{4\pi}{3} \int n(r)r^3 dr \quad (30)$$

und der als oberflächengewichtete mittlere Radius definierte effektive Radius

$$r_{\text{eff}} = \frac{\int n(r)r^3 dr}{\int n(r)r^2 dr} = \frac{3v}{a}. \quad (31)$$

Weiterhin erhält man durch die Inversion den komplexen Brechungsindex m der streuenden Partikel, der in Kombination mit der Partikelgrößenverteilung zu einer sinnvollen Reproduktion der Eingangsdaten führte. Die Einfachstreueralbedo ω (*engl.*: single scattering albedo, beschreibt das Verhältnis von Streuung zu Extinktion und hat einen großen Einfluss auf den Strahlungstransport durch ein Medium) der Partikel kann dann aus den mikrophysikalischen Eigenschaften (Volumenverteilung und komplexer Brechungsindex) mittels Miestreurechnung bestimmt werden.

Zahlreiche Simulationen haben ergeben, dass der Inversionsalgorithmus bei Vorgabe geeigneter optischer Daten stabil funktioniert (Müller 1997; Müller et al. 1999b; Veselovskii et al. 2002). Die beschriebene Inversionsmethode hat sich in der Anwendung auf experimentelle Daten als zuverlässig erwiesen, wie ein Vergleich mit In-situ-Messungen und aus Sonnenphotometermessungen abgeleiteten Partikeleigenschaften zeigt (Wandinger et al. 2002; Müller et al. 2004). Der Algorithmus wurde ferner für die Auswertung der optischen Daten aus Messungen während großer nationaler und internationaler Messkampagnen angewandt. Dadurch wurde die mikrophysikalische Charakterisierung vom Boden abgehobener Aerosolpartikel über Europa (Müller et al. 2000, 2001, 2002a) und Süd- bzw. Südostasien (Müller et al. 2002b, 2003) möglich.

2.2.4 Vorgehensweise im Fall der Messungen in China

Wie zuvor ausgeführt, wurde der Inversionsalgorithmus für eine bestimmte Kombination und Anzahl optischer Eingangsdaten entwickelt. Diese sind der Rückstreukoeffizient bei sechs verschiedenen Wellenlängen und der Extinktionskoeffizient bei zwei Wellenlängen. Weiterführend wurde in Pahlow et al. (2006) die Anwendbarkeit des Inversionsalgorithmus auf veränderte Eingangsdaten untersucht. Es wurden Simulationen durchgeführt, die klären sollten, ob man auch mit anderen Kombinationen der Koeffizienten von Rückstreuung und Extinktion bzw. einer Kombination von Ergebnissen von Messungen mit einem Lidar (Rückstreuung) und einem Sonnenphotometer (Extinktion) akzeptable Inversionsergebnisse erhalten kann.

Dazu wurde die Inversion mit zahlreichen Kombinationen von β und α durchgeführt. Diese variierten von reinen Extinktionsdaten als Eingangswerte (diese lassen sich für die Luftsäule mit einem Sonnenphotometer messen) zu einer Kombination von einem bis drei Rückstreukoeffizienten mit drei bis sechs Extinktionskoeffizienten. Die Simulationen ergaben, dass der Inversionsalgorithmus auch mit veränderten Eingangsdaten gute Ergebnisse liefert. In Pahlow et al. (2006) ist zudem gezeigt, dass die Anzahl Extinktionsdaten erhöht werden muss, wenn die Anzahl an Rückstreudaten verringert wird.

Für die Inversion der optischen Daten aus den Messungen in Xinken und Peking wurden zwei verschiedene Kombinationen von β und α gewählt. Zuerst wurde die Inversion mit reinen Extinktionsdaten bei fünf Wellenlängen (381, 440, 670, 780 und 1020 nm) durchgeführt. Diese wird im Folgenden als Inversion Typ 1 bezeichnet. Eine Inversion, die sich nur auf Extinktionsdaten stützt, zeigt recht stabile Ergebnisse bezüglich r_{eff} , v , s und n . Daher wurde zur Erleichterung der Auswertung der Inversionsrechnungen mit kombinierten Extinktions- und Rückstreudaten zunächst die Inversion vom Typ 1 durchgeführt. Für die wesentlich zeitaufwendigere Inversion vom Typ 2 ($2 \times \beta$ und $6 \times \alpha$ als Eingangsdaten) wurden die Wellenlängen 381 und 532 nm für β sowie 381, 440, 532, 780, 870 und 1020 nm für α gewählt. Dabei waren drei Probleme zu beachten:

1. Das Sonnenphotometer kann nur am Tag messen, wohingegen zuverlässige Messungen mit dem Lidar eher in der Nacht möglich sind, wenn das Hintergrundsignal gering ist. Die Extinktion kann mit dem Lidar am Tag nicht bestimmt werden.
2. Das Sonnenphotometer dient der Bestimmung der optischen Dicke (des höhenintegrierten Extinktionskoeffizienten); inwiefern kann nun ein mittlerer Extinktionskoeffizient als gültig angenommen werden, wenn eine komplizierte Aerosolschichtung vorliegt?
3. Das Lidar besitzt lediglich einen Kanal bei einer Wellenlänge von 532 nm, allerdings müssen in die Inversion die Rückstreukoeffizienten bei zwei Wellenlängen (381 und 532 nm) eingehen.

Der letzte Punkt soll zuerst geklärt werden. Das Sonnenphotometer bestimmt die optische Dicke der Luftsäule bei verschiedenen Wellenlängen. Daraus lässt sich nach Glei-

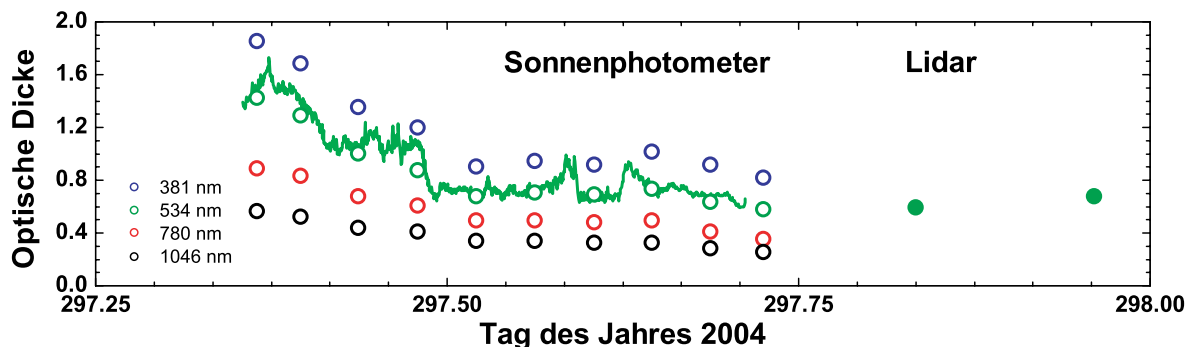


Abbildung 6: Vorgehensweise am Beispiel des 23. Oktobers: Vergleich der optischen Dicke aus Messungen mit dem Sonnenphotometer (leere Kreise, Mittelwert über eine Stunde) und dem Lidar (volle Kreise, Mittelwert über zwei Stunden). Die durchgezogene Linie zeigt die im Abstand von 30 Sekunden mit dem Sonnenphotometer gemessenen optischen Dicken bei einer Wellenlänge von 532 nm. Für die Inversion geeignet sind nur Tage, an denen die optische Dicke zwischen den Messungen mit beiden Geräten wenig variiert und die atmosphärischen Bedingungen konstant bleiben.

chung (11) der Ångström-Exponent der optischen Dicke bzw. des Extinktionskoeffizienten \hat{a}_α für das Verhältnis der Wellenlängen 381 und 532 nm bestimmen. Unter der Annahme $\hat{a}_\alpha = \hat{a}_\beta$ kann aus $\beta(532 \text{ nm}, R)$ das Rückstreuprofil bei der Wellenlänge 381 nm berechnet werden.

Nimmt man an, dass der größte Teil der optischen Dicke durch das Aerosol der Grenzschicht⁷ verursacht wird, lässt sich bei bekannter Grenzschichthöhe aus der optischen Dicke ein mittlerer Extinktionskoeffizient bestimmen. Die Eingangswerte für eine Inversion mit reinen Extinktionsdaten zu bestimmen, ist kein Problem. Für eine Inversion Typ 2 müssen dagegen bestimmte Bedingungen erfüllt sein:

1. Es sollten homogene Verhältnisse zwischen den Messungen mit dem Sonnenphotometer und dem Lidar vorliegen. Zur Beurteilung kann ein Vergleich der optischen Dicke der letzten SPM-Messung mit dem Ergebnis der folgenden Lidarmessung herangezogen werden. Ein Beispiel dazu ist in Abbildung 6 gezeigt. Eine Änderung der atmosphärischen Bedingungen (vor allem der Grenzschichthöhe und der vertikalen Partikelverteilung) kann aus dem zeitlichen Verlauf des extinktions- und entfernungskorrigierten Lidarsignals (später gezeigt in Abbildung 17 (a) und den entsprechenden Abbildungen der folgenden Tage) bestimmt werden. Um Fehler zu vermeiden, sollte allerdings die Zeitdifferenz zwischen den Messungen mit dem SPM und dem Lidar möglichst gering sein.
2. Das mit dem Lidar gemessene Rückstreuprofil sollte innerhalb der Grenzschicht einen möglichst höhenkonstanten Verlauf aufweisen und dann oberhalb der Grenzschicht schnell abnehmen (siehe Abbildung 7 (a)). Diese Bedingung ist bei

⁷Die Oberkante der Grenzschicht ist im Vertikalprofil des Rückstreukoeffizienten an einem starken Gradienten von β zu erkennen.

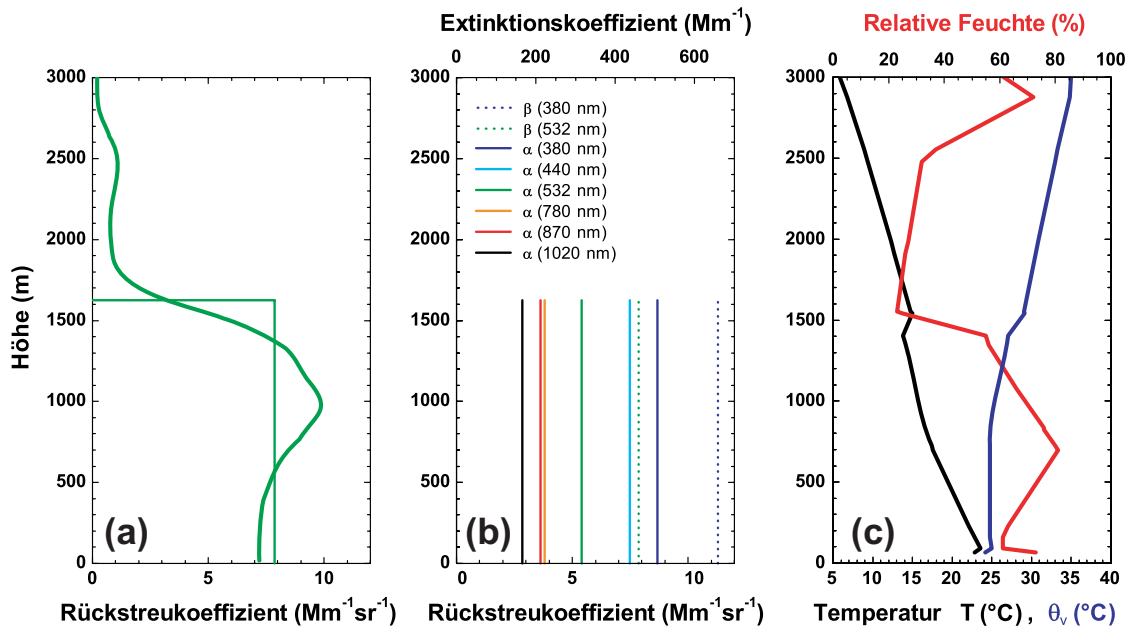


Abbildung 7: Vorgehensweise am Beispiel des 23. Oktobers: (a) Das gemessene Rückstreuprofil zeigt einen relativ höhenkonstanten Rückstreukoeffizienten. Für die Inversion wurde der Mittelwert innerhalb der Grenzschicht verwendet. (b) Die für die Inversion verwendeten Profile bestehen aus Mittelwerten von β (Lidar, Mittelwert von 18:00–20:00 Uhr) und α (Sonnenphotometer, Mittelwert von 17:00–17:06) bei verschiedenen Wellenlängen. (c) Die Radiosonde des Hong Kong Observatory (12 UTC = 20:00 Uhr Ortszeit) zeigt eine feuchte, relativ gut durchmischte Grenzschicht mit einer ähnlichen Höhe, wie sie aus dem Rückstreuprofil des Lidars abgeleitet wurde.

einer gut durchmischten Grenzschicht ohne abgehobene Schichten in der freien Atmosphäre erfüllt. Zu erkennen ist eine gut durchmischte Grenzschicht am Profil der virtuellen potentiellen Temperatur Θ_v aus einem Radiosondenaufstieg.⁸ Für den in Abbildung 7 gezeigten Fall des 23. Oktober kann man davon ausgehen, dass die optische Dicke der Grenzschicht den überwiegenden Teil der optischen Dicke der gesamten Luftsäule ausmachte.

Ist die zweite Bedingung erfüllt, ergibt sich der Extinktionskoeffizient aus dem Quotienten der optischen Dicke aus der Messung mit dem Sonnenphotometer und der Grenzschichthöhe. Wie in Abbildung 7 (b) gezeigt ist, ergeben sich aus der beschriebenen Vorgehensweise Grenzschichtmittelwerte der Koeffizienten von Rückstreuung und Extinktion bei verschiedenen Wellenlängen. Abbildung 7 (a) zeigt die in der Auswertung verwendete Höhenmittelung der Lidarsignale. Dabei wurde die Mittelungshöhe etwa in den Bereich des stärksten Gradienten des Rückstreukoeffizienten gelegt. Im Fall des in den Abbildungen 6 und 7 gezeigten 23. Oktobers sind dies 1625 m.

⁸Im Fall einer gut durchmischten Grenzschicht zeigt die virtuelle potentielle Temperatur einen nahezu höhenkonstanten Verlauf. Oberhalb der Grenzschicht nimmt sie dagegen nach einem Sprung mit der Höhe zu (Stull 1988).

Die Inversion mit den Resultaten der Messungen in Xinken wurde zu Testzwecken außerdem mit veränderten Eingangswerten durchgeführt. Für diese wurde der Rückstreu-
koeffizient bis in eine Höhe oberhalb des Übergangsbereichs gemittelt und die optischen
Dicken der Sonnenphotometermessung durch diese Höhe geteilt. Im gezeigten Fall liegt
die zweite Mittelungshöhe bei 1812 m. Bei dieser Vorgehensweise sinken die Werte al-
ler eingehenden Größen. Da sich die Ergebnisse der Rechnungen mit den verschiedenen
Mittelungshöhen kaum unterscheiden, wird im Weiteren nicht auf die Resultate der
Rechnungen mit der alternativen Mittelungshöhe eingegangen.

Aufgrund der Inversion ist eine genaue Fehlerbetrachtung der resultierenden mikro-
physikalischen Größen in Form der Betrachtung der Fehlerfortpflanzung nicht möglich.
Damit der Fehler des jeweiligen Wertes abgeschätzt werden kann, wurden für jeden
geeigneten Messtag zahlreiche Rechnungen durchgeführt. Zuerst wurde mit den nach
oben beschriebener Methode bestimmten Werten von α bzw. β und α gerechnet. Zu
diesem einzelnen Lauf wurden zehn weitere Rechnungen durchgeführt, wobei die Ein-
gangswerte bei einer Wellenlänge von 381 nm vom Algorithmus um bis zu 20% und die
Eingangswerte bei den anderen Wellenlängen um bis zu 10% — sowohl in positive, als
auch in negative Richtung — variiert wurden. Für die spätere Auswertung der Inversion
der optischen Daten eines Tages wurde für jede Größe (n , a , v , r_{eff} , m und ω) der Mittel-
wert dieser elf Rechnungen gebildet. Die entsprechende Standardabweichung stellt den
jeweiligen Fehler dar. Die Rechnungen mit einer Variation der Eingangswerte führten
meist zu ähnlichen Ergebnissen wie die Inversion des originalen Datensatzes. Es kann
also angenommen werden, dass der Fehler, der durch die verschiedenen Messzeiten von
Lidar und Sonnenphotometer (und den evtl. daraus resultierenden verschiedenen opti-
schen Dicken) entstehen kann, recht gering ausfällt und durch die Standardabweichung
bei oben beschriebener Mittelung erfasst wird.

Der Fehler, der durch die Annahme $\hat{a}_\alpha = \hat{a}_\beta$ entstehen kann, wurde in zusätzli-
chen Rechnungen abgeschätzt. Hierfür wurden schon vor dem Einlesen der jeweili-
gen Datensätze (bevor diese vom Algorithmus variiert wurden) die Eingangswerte von
 $\beta(381 \text{ nm})$ um $\pm 20\%$ variiert. Diese Variation entspricht einem Fehler des Lidarverhält-
nisses $S(381 \text{ nm})$ von $\mp 20\%$ und sollte die Fehler in der Bestimmung von $\beta(381 \text{ nm})$
erfassen. Damit ergeben sich weitere 22 Inversionsergebnisse für jede Größe. Da die Vo-
lumenverteilungen für die Rechnungen mit den um 20% verändertem $\beta(381 \text{ nm})$ zum
Teil wenig realistisch aussehen, kann man annehmen, dass die Inversion mit den nach
den oben gemachten Annahmen bestimmten Eingangswerten ein akzeptables Ergebnis
liefert. Die Resultate der Rechnungen mit den um 20% geänderten $\beta(381 \text{ nm})$ befinden
sich außerdem an der oberen bzw. unteren Fehlergrenze der ungestörten Daten, was
die zuvor erklärte Vorgehensweise unterstützt.

Die Inversion wurde schließlich mit den in Tabelle 1 gezeigten Werten für die untere
und obere Grenze des Inversionsfensters und den komplexen Brechungsindex durchge-
führt. Aus der Verwendung dieser Werte ergeben sich 36400 Einzellösungen, aus denen
die Lösungen mit dem, nach der Methode der verallgemeinerten Überkreuzvalidierung
bestimmten, geringsten Diskrepanzabstand als korrekt angenommen werden. Die Re-
sultate der akzeptierten Einzelinversionen wurden gemittelt. Damit ergibt sich auch

Tabelle 1: Die für die Berechnung der in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse genutzten Bereiche der Inversionsfenstergrenzen und des komplexen Brechungsindexes.

	Minimum	Maximum	Schrittweite
untere Fenstergrenze, r_{\min}	0.02 μm	0.2 μm	0.03 μm
obere Fenstergrenze, r_{\max}	0.5 μm	5.0 μm	0.5 μm
Brechungsindex, Realteil	1.325	1.8	0.025
Brechungsindex, Imaginärteil	0.0	0.05	0.002

für die einzelnen Rechnungen mit den originalen und den variierten Eingangsdaten für jede gesuchte Größe ein Mittelwert und ein dazugehöriger Fehler.

3 Ergebnisse

Die Untersuchung des asiatischen Aerosols ist von großem wissenschaftlichen Interesse, da sich die dort wirkenden Quellen sehr von denen in Europa und Nordamerika unterscheiden. Kohle und Biomasse stellen die primären Energieträger in dieser Region dar und werden unter weitestgehend unkontrollierten Bedingungen verbrannt. Dies führt zu einer sehr hohen Konzentration von stark absorbierenden Rußpartikeln (Huebert et al. 2003; Cao et al. 2003). Von allen asiatischen Staaten liegt die Volksrepublik China deutlich vor Indien an erster Stelle, was den Betrag der Schadstoffemissionen angeht. Besonders besorgniserregend ist der hohe Wert an emittiertem Kohlenstoff aus der Verbrennung von Biomasse und fossilen Brennstoffen (Streets et al. 2003). Die stark absorbierenden Partikel beeinflussen den Strahlungshaushalt der Atmosphäre und durch die Verminderung der am Boden ankommenden Sonnenenergie zudem das Wettergeschehen (Houghton et al. 2003; Xu et al. 2003).

Ein Großteil der bisher erschienenen Veröffentlichungen zu den Eigenschaften des chinesischen Aerosols stützen sich auf Messungen im nördlichen Teil der Volksrepublik China. Diese Arbeiten beschäftigen sich hauptsächlich mit der Untersuchung der chemischen Zusammensetzung der Partikel und deren Größenverteilung (Ning et al. 1996; Shi et al. 2003; Sun et al. 2004). Diese Untersuchungen haben Aussagen zu den wichtigsten Quellen des atmosphärischen Aerosols in den Städten Nordchinas geliefert: aus Vorläufergasen gebildete sekundäre Partikel, Staub, Emissionen von Industrie und Fahrzeugen sowie die Verbrennung von Kohle (Ning et al. 1996). Mit dem regionalen Aerosol-Charakterisierungs-Experiment Asien (ACE-Asia, Huebert et al. 2003) wurde ein internationales Großexperiment in der Region durchgeführt, dessen Agenda — sei es aus politischen, organisatorisch-logistischen oder Interessengründen — allerdings keine ausgiebigen Messungen im Gebiet der Volksrepublik China beinhaltete. Das Messgebiet überdeckte den an China angrenzenden östlichen Teil des Pazifiks. Demnach konnten lediglich aus China herantransportierte Aerosolschichten untersucht werden (Kim et al. 2005). Diese unterliegen allerdings während des Transports einem Alterungsprozess und können in der Regel nicht als repräsentativ für die tatsächlichen Verhältnisse in den Ursprungsgebieten auf dem chinesischen Festland angenommen werden.

Untersuchungen der optischen (Li und Lu 1997; Qiu und Yang 1999; Luo et al. 2001; Alfaro et al. 2003; Chin et al. 2004; Xia et al. 2004) und mikrophysikalischen Eigenschaften (Bergin et al. 2001; Qiu et al. 2004; Kim et al. 2004; Xia et al. 2004) des chinesischen Aerosols sind rar und beschränken sich ebenfalls hauptsächlich auf das Gebiet Nordchinas. Der Schwerpunkt dieser Untersuchungen liegt auf der Ausbreitung von Staubschichten, die aus den in Zentralasien gelegenen Wüsten Taklamakan und Gobi stammen und mit dem Grundstrom nach Osten transportiert werden (Sugimoto et al. 2003; Wang et al. 2004). Diese Veröffentlichungen beschreiben die Verhältnisse am Boden (In-situ-Messungen) oder in einer Luftsäule (Messungen mit Sonnenphotometer oder Satellit). Der Großteil der bisher in China durchgeführten Lidarmessungen beschäftigt sich ebenfalls mit der Beobachtung von Wüstenstaubausschüben (Chen et al. 2001; Shimizu et al. 2004). Die chinesische Wüstenstaub-Saison erstreckt sich von März bis Mai. In dieser Zeit vermessen seit 2001 verschiedene chinesische

Stationen des Asian Dust Network (AD-Net) herantransportierten Wüstenstaub mit Polarisations-Lidargeräten. Diese messen neben der Rückstreuung die Depolarisation des empfangenen im Vergleich zum ausgesandten Licht, wodurch sich große, nicht-sphärische Staubpartikel identifizieren lassen. Messungen der vertikalen Verteilung des atmosphärischen Aerosols, ohne den Fokus auf die Untersuchung von Staubpartikeln zu richten, sind lediglich in Wu et al. (2005) gezeigt.

Im Rahmen der vorliegenden Diplomarbeit werden die Ergebnisse der ersten in China durchgeführten Messungen mit einem Ramanlidar vorgestellt. Dabei werden nicht nur die optischen Eigenschaften der Partikel gezeigt, sondern zudem auch die mittels Inversion der kombinierten Daten von Lidar und Sonnenphotometer ermittelten mikrophysikalischen Eigenschaften der Partikel besprochen.

Die vorgestellten Ergebnisse basieren auf Messkampagnen in Xinken (22.6° N, 113.6° O) und Peking (39.9° N, 116.3° O). Erste Ergebnisse der Messungen in Xinken wurden bereits in Ansmann et al. (2005) gezeigt. In diesem Kapitel wird der dort gegebene Überblick vertieft. Zudem wird auf die Resultate der Messungen in Peking eingegangen. Für beide Messorte wird zunächst auf die meteorologischen Bedingungen während der Messungen eingegangen, bevor die ermittelten optischen und mikrophysikalischen Eigenschaften der vermessenen Aerosolpartikel vorgestellt werden.

3.1 Xinken

Der erste Teil der Auswertung beruht auf Lidar- und Sonnenphotometermessungen in Xinken (22.6° N, 113.6° O) im Zeitraum vom 2. bis zum 31. Oktober (DOY⁹ 276–305). Neben den in den Abschnitten 2.1.3 und 2.1.5 beschriebenen Fernerkundungsgeräten wurden außerdem diverse In-situ-Messgeräte betrieben (Eichler 2006). Xinken liegt im Süden Chinas, am Ufer des Pearl River, etwa 80 km nordwestlich von Hong Kong, 60 km südwestlich von Guangzhou und 50 km westlich von Shenzhen in der Provinz Guangdong. Die genaue Lage der Messstation ist in Abbildung 8 gezeigt. Das Gebiet des Pearl River Delta (PRD) umfasst eine Fläche von etwa 250 km × 250 km und ist eine der am dichtesten besiedelten und industriell am schnellsten wachsenden Regionen Chinas. Dieses rasante Wachstum geht mit einer Zunahme der Schadstoffemission und einer erhöhten Partikelbelastung einher (Streets et al. 2003; Wang et al. 2003; Wu et al. 2005). Die Auswirkung dieser Entwicklung auf die Luftqualität in der Region ist zum Gegenstand aufwendiger Studien geworden (Hong Kong Environmental Protection Department 2002). Die Entwicklung der Region von Hong Kong und des Pearl River Delta ist in Rohlen (2000) beschrieben.

Die Messstation befand sich direkt am Ufer des Pearl River und war umgeben von Bananenplantagen. Die Luft vor Ort wurde nicht nur durch die herantransportierte Verschmutzung aus den relativ nahe gelegenen Großstädten Hong Kong, Guangzhou und Shenzhen, sondern auch durch lokal erzeugte Emissionen belastet. Bei diesen handelt es sich vorwiegend um Produkte der Verbrennung von Biomasse (hauptsächlich

⁹Day of the Year = Tag des Jahres

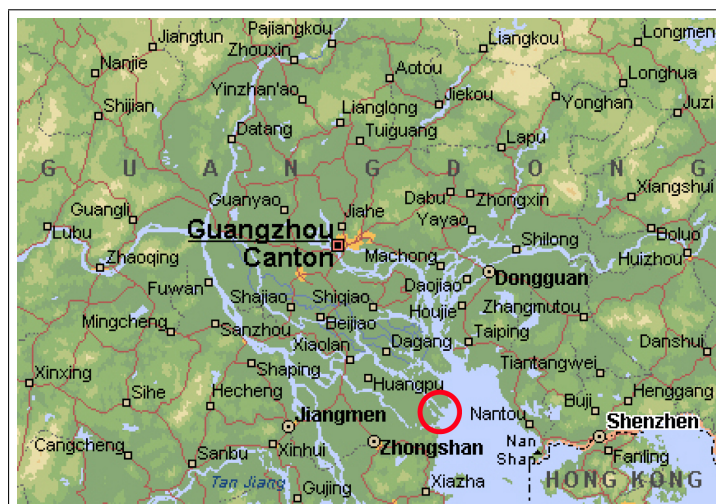


Abbildung 8: Region des Pearl River Delta (PRD). Der rote Kreis zeigt die Lage der Messstation Xinken. Aus Eichler (2006).

Bananenblätter), Küchendunst und die Emissionen vorbeifahrender Dieselschiffe. Als größte lokale Quelle kann — in Abhängigkeit von Windrichtung und -geschwindigkeit — eine etwa 2.5 km nordwestlich der Messstelle gelegene Ö raffinerie angesehen werden (Eichler 2006).

Es liegen 22 Tage mit Messungen des Mini-Ramanlidars und 23 Messtage des Sonnenphotometers vor. An 17 Tagen haben beide Geräte gemessen, so dass ein Vergleich der optischen Dicke am Tag und in der Nacht möglich wurde. Die Messergebnisse von sieben dieser 17 Tage erschienen für eine Inversion geeignet (siehe Abschnitt 3.1.3). Es wurden zweistündige Mittelwerte der nächtlichen Messungen mit dem Ramanlidar gebildet. Von diesen wurde aufgrund der großen Datenmenge nur jeder zweite für die Auswertung verwendet. Damit liegen insgesamt 53 Einzelmessungen vor. Aus den Messungen mit dem Sonnenphotometer wurden einstündige Mittelwerte gebildet. Somit ergeben sich 193 Einzelmessungen der optischen Dicke bei verschiedenen Wellenlängen.

3.1.1 Meteorologische Bedingungen

Aufgrund der subtropischen Lage wird das Wetter im Bereich des PRD durch die asiatische Monsunzirkulation bestimmt (Liljequist 1974; Louie et al. 2005). Sommer und Winter dauern länger als in mittleren Breiten, der Übergang zwischen diesen Jahreszeiten findet dagegen relativ schnell statt. Die Monsunzirkulation ist dadurch charakterisiert, dass aufgrund des Durchgangs der intertropischen Konvergenzzone die Hauptwindrichtung von Südwest im Sommer auf Nordost im Winter dreht. Dementsprechend wird entweder feuchte Tropikluft (Sommer) oder trockene Polarluft (Winter) herangeführt. Das Frühjahr ist geprägt von mäßigem Ostwind und steigenden Temperaturen. Im Sommer bildet sich durch die positive Strahlungsbilanz der Erdoberfläche über dem Kontinent ein ausgeprägtes Tiefdruckgebiet, welches warme und feuchte Luft vom Ozean ins Inland transportiert. Von Mai bis Juni dreht der Wind von Südwest

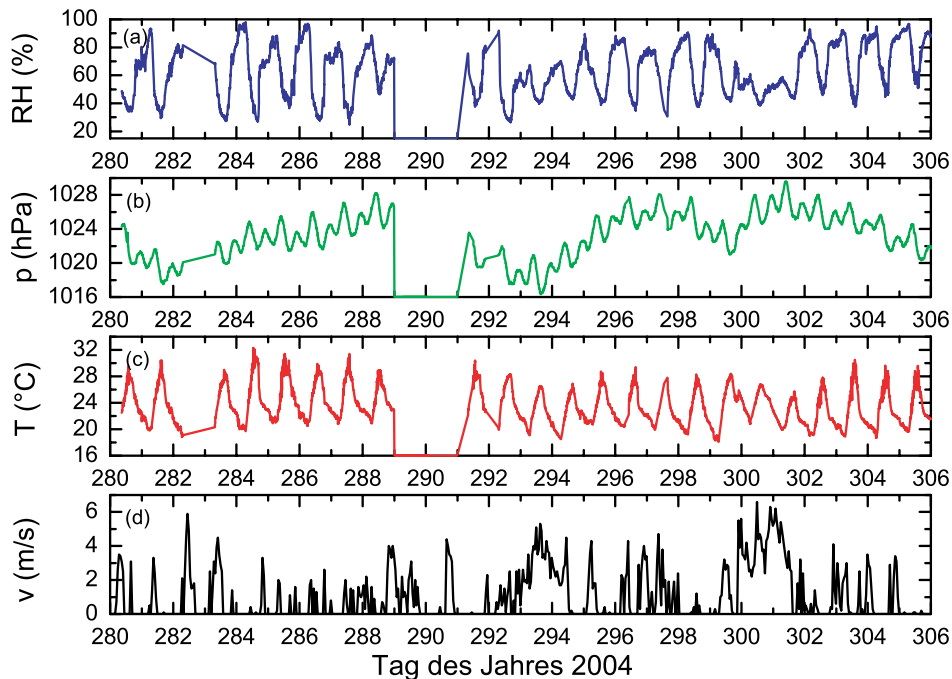


Abbildung 9: Relative Feuchte, Druck, Temperatur und Windgeschwindigkeit (von oben) für den Messzeitraum in Xinken (Eichler 2006). Für die Nacht zum 3. Oktober (DOY 283) und den Zeitraum vom 15. bis 17. Oktober (DOY 289–291) liegen keine Werte von Temperatur, Druck und relativer Feuchte vor.

nach Südost. Der meiste Niederschlag fällt in den Sommermonaten, bevor im Herbst der Betrag des mittleren Winds zunimmt und dieser seine Richtung auf Ost/Nordost dreht. Im Winter kühlt sich der Kontinent durch langwellige Ausstrahlung ab und es entsteht ein Hochdruckgebiet, das trockene Polarluft vom Kontinent nach Süden führt. Der Wind kommt nun aus Nord oder Nordost.

Das Wetter im Oktober 2004 verlief im Einklang mit der obigen Beschreibung. Die täglichen Werte der relativen Feuchte, des Bodendrucks, der Temperatur und der Windgeschwindigkeit sind in Abbildung 9 gezeigt. Die Daten stammen von einer Wetterstation in der Nähe der Messstation. Entsprechend der subtropischen Lage der Station sind deutliche Tagesgänge in der relativen Feuchte, dem Druck und der Temperatur zu sehen. Ein Hochdruckgebiet über dem Festland dominierte das Wettergeschehen im Messzeitraum. Der resultierende Nord- bzw. Nordostwind wies nur geringe Geschwindigkeiten auf, die selten einen Wert von 4 m/s überschritten. Der Monat Oktober war trockener und sonniger als das klimatologische Mittel (Hong Kong Observatory; <http://www.hko.gov.hk/wxinfo/pastwx/mws200410.htm>). Mit 2.3 mm wurden nur etwa 2% der üblichen Niederschlagsmenge für diesen Monat gemessen. Da es zudem aufgrund der Hochdrucklage kaum bewölkt war, waren optimale Voraussetzungen für ungestörte Messungen mit Sonnenphotometer und Lidar gegeben.

Um den 19. Oktober (DOY 293) wirkte sich der Taifun Tokage mit Nordwind und einer mittleren Geschwindigkeit von 4–5 m/s auf das regionale Wettergeschehen aus. In Abbildung 9 ist diese Periode deutlich am Verlauf der Druckkurve zu erkennen. Ein

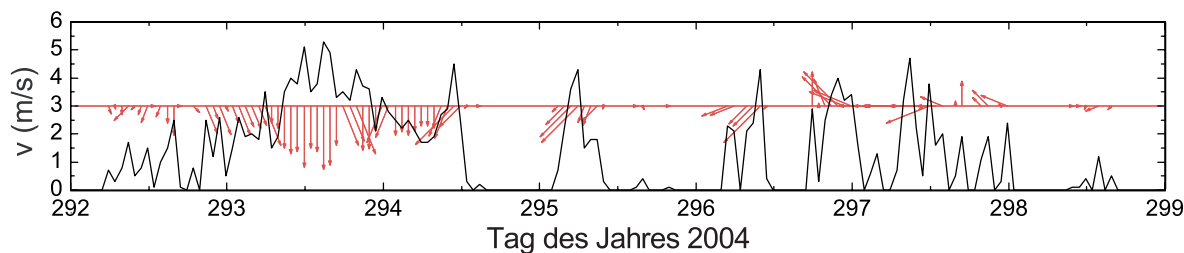


Abbildung 10: Windrichtung und Windgeschwindigkeit für die Woche vom 18. bis 24. Oktober (DOY 292–298).

Ausschnitt der Windverhältnisse während des Auftretens des Taifuns ist in Abbildung 10 gezeigt. In der Nacht zum 19. Oktober nahm die Windgeschwindigkeit deutlich zu. Im Tagesverlauf drehte der Wind nach Nord und gegen Mittag des folgenden Tages nach Nordost.

Mit der fortschreitenden Winddrehung nahm die mittlere Geschwindigkeit wieder ab. Im Anschluss daran sorgten bis zum 25. Oktober geringe Windgeschwindigkeiten, die durch einen geringen Druckgradienten über Südchina verursacht wurden, für die Begünstigung der Ansammlung von Verschmutzung aus regionalen Quellen im Bereich des PRD. In dieser Zeit wurde am Tag der schwache Seewind-Effekt (mit Wind aus Richtung Südwest) durch den ebenfalls schwachen Nordostwind kompensiert. Die daraus resultierende langzeitige Windstille (siehe Abbildung 10, ab DOY 294.5) ermöglichte die Beobachtung der Ausbildung einer vertikal sehr gut durchmischten Grenzschicht mit dem Ramanlidar. Nach dieser Phase verstärkte sich am 26. Oktober der Nordost-Monsun und der Wind drehte unter Geschwindigkeitszunahme erneut nach Norden (siehe Abbildung 9, ab DOY 300). In den folgenden Tagen kühlte es sich leicht ab, allerdings hielt weiterhin sonniges Wetter vor.

Abbildung 11 zeigt typische Rücktrajektorien der in Xinken eingetroffenen Luftmassen. Diese wurden mit dem HYSPLIT Modell (hybrid single-particle Lagrangian integrated trajectories model, Draxler und Rolph 2003) für einen Zeitraum von 144 Stunden berechnet. Die Trajektorien erlauben eine grobe Einschätzung des Ursprungs und der Geschichte der am Messort ankommenden Luftmassen und der damit einhergehenden Aerosoleigenschaften. Lokale Effekte wie die Land-Seewind-Zirkulation können von dem Modell nicht aufgelöst werden. Das Hochdruckgebiet über Südchina führte die Luft in Bodennähe entlang der chinesischen Küste von Nordosten zur Messstation. Dieser Verlauf stimmt mit den in Louie et al. (2005) gefundenen Trajektorien für den Herbst in der Pearl-River-Region überein. In Abbildung 11 (a) ist der Verlauf der Trajektorien für einen Tag mit sehr sauberer Luft dargestellt. Die in Bodennähe ankommende Luft sank erst kurz bevor sie die Messstation erreichte in den Bereich der planetaren Grenzschicht. Diese Luft hat demnach kaum Verschmutzung aus weit entfernten Gebieten enthalten. Die Wirkung lokaler Quellen war in diesem Fall bestimmend für den Aerosolgehalt der vorliegenden Luftmasse. In der Nacht vom 3. zum 4. Oktober (DOY 277–278) wurde mit dem Lidar die geringste optische Dicke der gesamten Messzeit gemessen. Diese Messung wurde für die Bestimmung der Überlappungsfunktion des Mini-Ramanlidars genutzt.

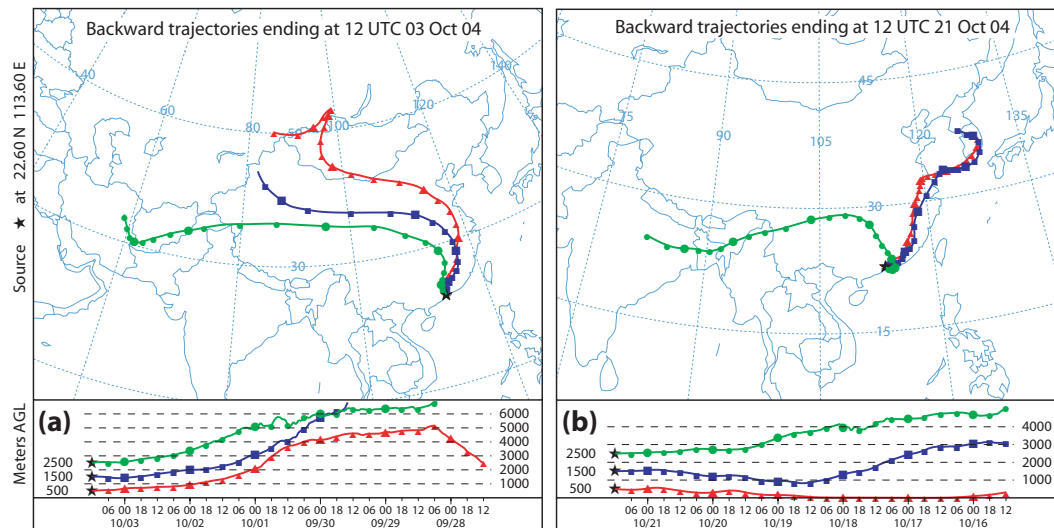


Abbildung 11: Siebentägige Rücktrajektorien, berechnet mit dem HYSPLIT-Modell, für (a) einen Tag mit sauberer Luft (3. Oktober, DOY 277) und (b) einen Tag mit verschmutzter Luft (21. Oktober, DOY 295).

In Abbildung 11 (b) sind die Trajektorien für einen Tag mit stark verschmutzter Luft dargestellt. Luftpakete, die am Messtag in einer Höhe von 500 m und 1500 m eintrafen, befanden sich seit mehreren Tagen im Bereich der planetaren Grenzschicht und führten eine hohe Partikelladung mit sich. Die Kürze der Trajektorien ist ein Indiz dafür, dass die Luftpakete mit geringer Geschwindigkeit bewegt wurden, wodurch die Aufnahme von Partikeln begünstigt wird. Demnach ist es wahrscheinlich, dass die hohe optische Dicke, die am 21. Oktober in Xinken gemessen wurde, nicht nur durch lokale Quellen, sondern auch durch das Heranführen überregionaler Verschmutzung verursacht wurde. Es kann ein hoher Anteil an gealterten Aerosolpartikeln in diesen Luftpaketen angenommen werden.

3.1.2 Optische Aerosoleigenschaften

Übersicht In diesem Abschnitt werden die optischen Eigenschaften des in Xinken gemessenen Aerosols vorgestellt. Zunächst wird ein Überblick über die gesamte Messzeit mit den Verläufen und Mittelwerten der verschiedenen Größen gegeben, bevor die Ergebnisse einzelner, besonders erwähnenswerter Tage beschrieben werden. Bei diesen separat betrachteten Tagen handelt es sich um den 3. Oktober (DOY 277), den 9. Oktober (DOY 283) sowie die Zeiträume vom 11. bis 12. Oktober (DOY 286–287) und vom 19. bis 23. Oktober (DOY 293–297).

Die Abbildung 12 zeigt die Zeitreihen der optischen Dicke bei einer Wellenlänge von 532 nm (Polly) bzw. 534 nm (SPM), der Ångström-Exponenten im Wellenlängenbereich 381/502 nm und 502/1046 nm, des Lidarverhältnisses und der Höhe der Dunstschicht¹⁰ für den Zeitraum der Messungen in Xinken. Die optische Dicke τ wurde nachts

¹⁰Befinden sich über der Grenzschicht noch Aerosolpartikel, die für ein deutliches Rückstreusignal sor-

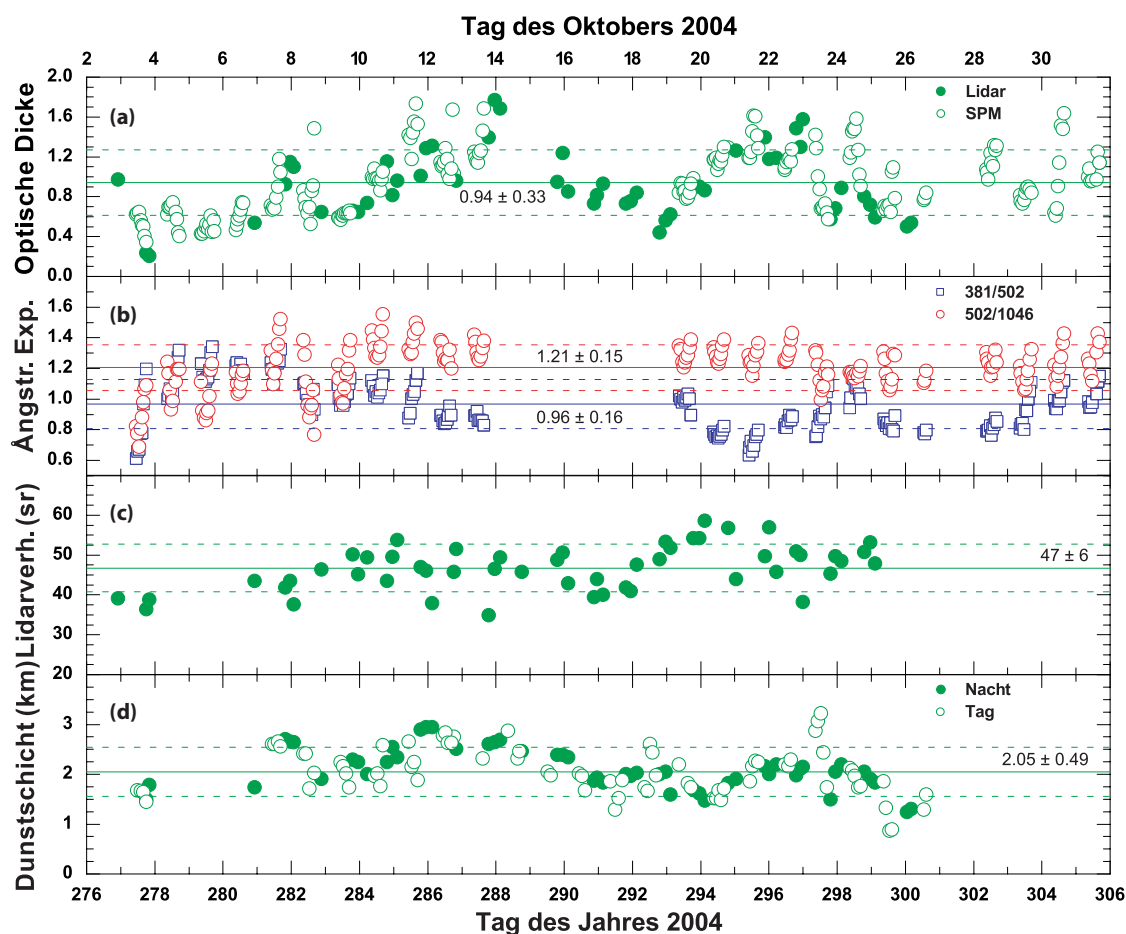


Abbildung 12: Zeitreihen (a) der optischen Dicke, (b) der Ängström-Exponenten im Wellenlängenbereich 381/502 nm und 502/1046 nm, (c) des Lidarverhältnisses und (d) der Höhe der Dunstschicht für den Zeitraum der Messungen vom 2. bis 31. Oktober 2004 (DOY 276–305) in Xinken. Die durchgezogene Linie entspricht dem Mittelwert der jeweiligen Größe, die gestrichelten Linien der Standardabweichung.

(volle Kreise) als das Höhenintegral des Extinktionskoeffizienten (Gleichung (18)) und am Tag (leere Kreise) aus den Messungen des Sonnenphotometers bestimmt. Letzteres ermöglicht durch die spektrale Messung der optischen Dicke die Berechnung der Ängström-Exponenten $\mathring{a}(381/502 \text{ nm})$ und $\mathring{a}(502/1046 \text{ nm})$ nach Gleichung (11). Das Lidarverhältnis S (Gleichung (15)) kann nur nachts bestimmt werden, wenn eine unabhängige Bestimmung von α und β möglich ist. Darum weist diese Zeitreihe relativ wenige Messwerte auf.

gen, bilden diese die Dunstschicht. Im Rückstreuprofil existiert dann eine Region mit einem starken Gradienten von β oberhalb der Höhe der Grenzschicht. Wird die unterste Schicht der Atmosphäre durch Konvektion kräftig durchmischt, kann meist nicht zwischen einer Grenzschicht und einer Dunstschicht unterschieden werden. In der Nacht fällt die Grenzschicht zusammen, wohingegen die Dunstschicht ein weniger dynamisches Verhalten zeigt und mit einer nur gering schwankenden Oberkante über der Grenzschicht verbleibt.

Die optische Dicke beschreibt die Schwächung des einfallenden Sonnenlichts. Diese erfolgt durch Extinktion (Absorption und Streuung) des Lichts an Aerosolpartikeln. Die optische Dicke ermöglicht somit eine Abschätzung der Partikelladung in der Luft. Mit zunehmender Partikelkonzentration nimmt auch der Wert der optischen Dicke zu. Wie in Luo et al. (2001) gezeigt wurde, ist der Wert der optischen Dicke in Südchina in den letzten 30 Jahren rapide gestiegen. Das Lidarverhältnis nimmt mit zunehmender Größe der Partikel ab und steigt mit zunehmendem Absorptionskoeffizienten. Eine Charakterisierung des Aerosols anhand des Lidarverhältnisses allein ist nicht möglich. Werte von $S = 30\text{--}60$ sr stehen im Allgemeinen für anthropogene, wenig absorbierende Partikel. Liegt das Lidarverhältnis im Bereich von $60\text{--}70$ sr, handelt es sich um stark absorbierende Partikel (z.B.: Ruß). Lidarverhältnisse von $S = 20\text{--}30$ sr gelten für sehr große Partikel wie Seesalz (Franke et al. 2001). Der Ångström-Exponent reagiert empfindlich auf die Partikelgrößenverteilung. Die Werte liegen hier zwischen 1 und 3 für Partikel des Akkumulationsmodes ($r = 50\text{--}500$ nm) und streben für grobe Partikel ($r > 500$ nm) gegen 0 (Reid et al. 1999).

In den Verläufen der gezeigten Größen sind deutliche Strukturen zu erkennen. Vom 3. bis zum 14. Oktober (DOY 277–288) stieg der Wert der optischen Dicke von anfangs $\tau = 0.2$ auf $\tau = 1.8$ in der Nacht zum 14. Oktober. In diesem Zeitraum zunehmender optischer Dicke ist mit dem 9. Oktober eine Abschnitt enthalten, in dem diese über mehr als 24 Stunden konstant blieb. Nach dem 14. Oktober verringerte sich die optische Dicke bis zum 19. Oktober (DOY 293) um mehr als 1 auf einen Wert von $\tau = 0.45$. In den nächsten vier Tagen nahm sie wieder zu und fiel am 23. Oktober (DOY 297) innerhalb eines Tages erneut stark ab. In den folgenden Tagen stieg der Wert der optischen Dicke wieder an. Da allerdings keine Lidarmessungen nach dem 26. Oktober vorliegen, kann keine Aussage über die Gegebenheiten in der Nacht getroffen werden. Die Sonnenphotometermessungen wiesen weiterhin sehr große Werte der optischen Dicke um $\tau = 1.2$ auf, zeigten allerdings keinen weiteren Trend. Der Wert der optischen Dicke betrug im Mittel $\tau = 0.94 \pm 0.33$.

Auch in den Kurven der Ångström-Exponenten $\mathring{a}(381/502 \text{ nm})$ und $\mathring{a}(502/1046 \text{ nm})$ lassen sich Strukturen erkennen. In der Zeit bis zum 10. Oktober (DOY 284), in der die optische Dicke relativ geringe Werte aufwies, lagen beide \mathring{a} sehr nahe beieinander und zeigten eine sehr starke Varianz im Verlauf eines Tages. In diesen Tagen gab es außerdem Zeiten, in denen der kurzwellige Ångström-Exponent $\mathring{a}(381/502 \text{ nm})$ größere Werte annahm als der langwellige Ångström-Exponent. Die beiden Größen werden im Weiteren als $\mathring{a}_k = \mathring{a}(381/502 \text{ nm})$ und $\mathring{a}_l = \mathring{a}(502/1046 \text{ nm})$, mit den Indizes k für kurz- und l für langwellig, bezeichnet. Ab dem 10. Oktober war \mathring{a}_l zumeist deutlich größer als \mathring{a}_k . Zudem unterlagen beide Ångström-Exponenten geringeren täglichen Schwankungen, was darauf hindeutet, dass die Art und Größenverteilung der Aerosolpartikel zeitlich wenig variierte. Die Werte im gesamten Messzeitraum betragen $\mathring{a}_l = 0.96 \pm 0.16$ und $\mathring{a}_k = 1.21 \pm 0.15$. Beginnt man die Betrachtung erst ab dem 10. Oktober (ab diesem Tag ist ein deutlicher Unterschied in den Werten von \mathring{a}_k und \mathring{a}_l festzustellen), ergeben sich $\mathring{a}_l = 0.91 \pm 0.12$ und $\mathring{a}_k = 1.26 \pm 0.10$. Beide Exponenten unterscheiden sich in diesem Zeitraum deutlich und die jeweilige Standardabweichung ist wesentlich geringer. Zu bemerken ist noch, dass der langwellige Ångström-Exponent weniger variierte

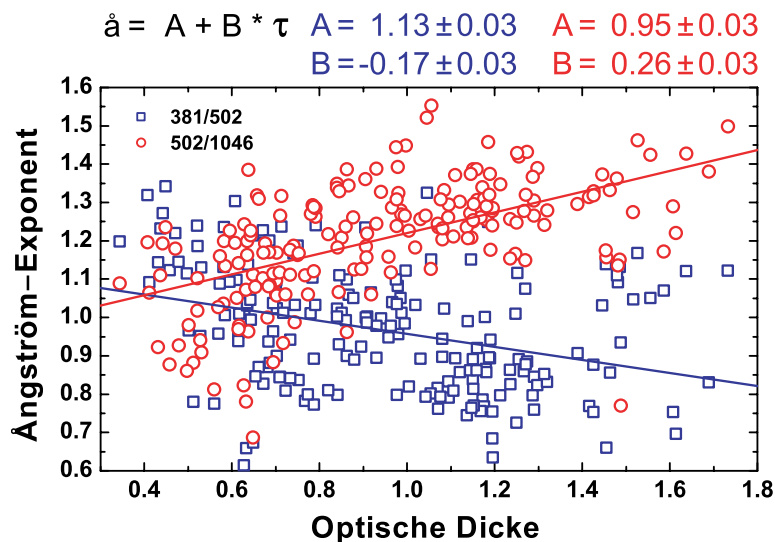


Abbildung 13: Korrelation der Ångström-Exponenten mit der optischen Dicke. \mathring{a}_l ist positiv, \mathring{a}_k dagegen negativ mit τ korreliert. Die optische Dicke wird maßgeblich durch die Konzentration großer Partikel bestimmt.

als der kurzwellige. Die Partikelgrößenverteilung im Bereich der großen Partikel (grober Mode, *engl.*: coarse mode) variierte scheinbar weniger als im Bereich der kleinen Partikel (Akkumulationsmode, *engl.*: accumulation mode). \mathring{a}_k nahm am 21. Oktober (DOY 295) zudem extrem niedrige Werte um 0.7 an, woraus gedeutet werden kann, dass die mittlere Größenverteilung ihr Maximum zu größeren Radien verschoben hatte und die Partikel zu groß waren, um im kurzwelligen (381–502 nm) Bereich deutliche Auswirkungen zu zeigen.

Die Abhängigkeit der Ångström-Exponenten von der optischen Dicke ist in Abbildung 13 gezeigt. Mit zunehmenden Werten von τ stieg \mathring{a}_l an, wohingegen \mathring{a}_k abnahm. Zudem ist zu erkennen, dass bei geringen optischen Dicken die Werte der beiden Ångström-Exponenten nahe beieinander lagen. Dies ist auch in Abbildung 12 für die ersten Mess-tage zu sehen. Die positive Korrelation der optischen Dicke mit \mathring{a}_l deutet darauf hin, dass τ stark von der Anzahl der großen Partikel bestimmt wurde. Nahm die optische Dicke zu, lag das daran, dass die Konzentration großer Partikel zugenommen hatte. Die negative Korrelation der optischen Dicke mit dem kurzwelligen Ångström-Exponent unterstützt diese Vermutung.

Das Lidarverhältnis betrug im Messzeitraum $S = 47 \pm 6$ sr. Es handelte sich demnach vorwiegend um anthropogene Partikel. Bis zum 9. Oktober war das Lidarverhältnis durchweg geringer als der Mittelwert. In den sich anschließenden Tagen bis zum 18. Oktober (DOY 292), in denen die optische Dicke rasant zunahm, lag S größtenteils im Bereich der Standardabweichung. In der Nacht zum 19. Oktober stieg das Lidarverhältnis an und erreichte in den folgenden zwei Nächten mit $S = 57$ sr Werte, die deutlich außerhalb des Bereichs der Standardabweichung liegen und auf stärker absorbierende Partikel hindeuten. In der Nacht zum 25. Oktober (der Taifun Tokage beeinflusste das lokale Wettergeschehen nicht mehr) normalisierten sich die Werte wieder und lagen nun

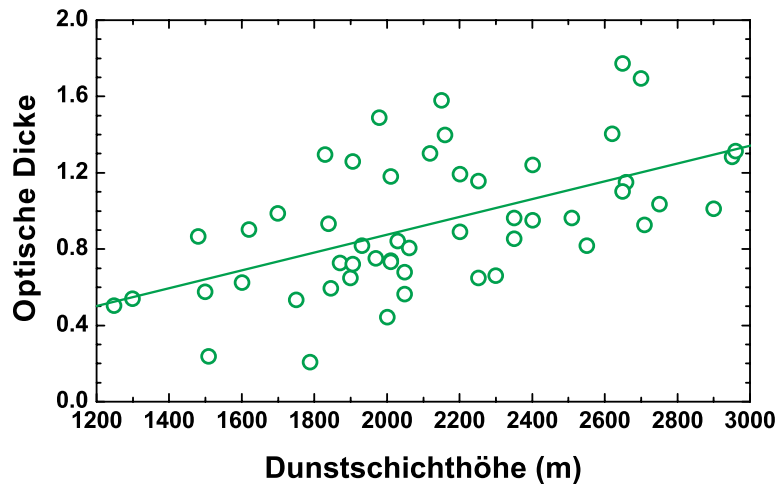


Abbildung 14: Zusammenhang zwischen der Höhe der Dunstschicht und der optischen Dicke der Luftsäule. Je höher sich die Dunstschicht erstreckt, desto größer ist der Wert der optischen Dicke.

hauptsächlich im Toleranzbereich der Standardabweichung leicht über dem Mittelwert.

Abbildung 12 (d) zeigt einen markanten Verlauf der Dunstschichthöhe: eine Zunahme vom Beginn der Messungen bis in die Nacht zum 12. Oktober und dann eine gut erkennbare Abnahme bis zum 19. Oktober, nach dem sich die Höhe der Dunstschicht auf einen relativ konstanten Wert von etwa 2.0 km einpegelte. Bei einem Mittelwert von 2.05 ± 0.46 km entspricht dies also den für den Messzeitraum geltenden Standardverhältnissen. Lediglich am 24. Oktober ergaben sich deutlich vom konstanten Verlauf abweichende Werte von 1.6 km. Diese gingen mit den bereits genannten auffallend großen Werten von S und den deutlich geringen Werten von \hat{a}_k einher. Die Zeiten mit den höchsten Werten der optischen Dicke wiesen zugleich die höchsten Dunstschichtoberkanten auf.

In Abbildung 14 ist zu sehen, dass die optische Dicke mit steigender Dunstschichthöhe zunimmt. Es ist zu vermuten, dass aufgrund der Wetterlage permanent verschmutzte Luft vom Landesinneren zur Messstelle transportiert wurde. Die Dunstschicht war allgemein sehr hoch, was eher einer kontinental als einer maritim beeinflussten Entwicklung entspricht.

In den Zeiten vom 4. bis 6. Oktober (DOY 278–281) und nach dem 27. Oktober (DOY 301) liegen aufgrund von technischen Problemen keine Lidarmessungen vor. Das Sonnenphotometer konnte im Zeitraum vom 14. bis 18. Oktober (DOY 288–292) nicht messen. Damit liegen für den zuvor beschriebenen Zeitraum abnehmender optischer Dicke, der mit dem Zeitraum abnehmender Dunstschichthöhe einhergeht, keine Tagesmessungen der optischen Dicke und der Ångström-Exponenten vor.

Die entsprechenden Radiosondenaufstiege des Hong Kong Observatory, die auch für die Auswertung der Lidarprofile verwendet wurden, zeigen meist eine sehr gut durchmischte Grenzschicht mit einem konstanten Verlauf der virtuellen potentiellen Temperatur und einer relativ konstanten Feuchte. Abbildung 15 zeigt eine positive Korrelation der

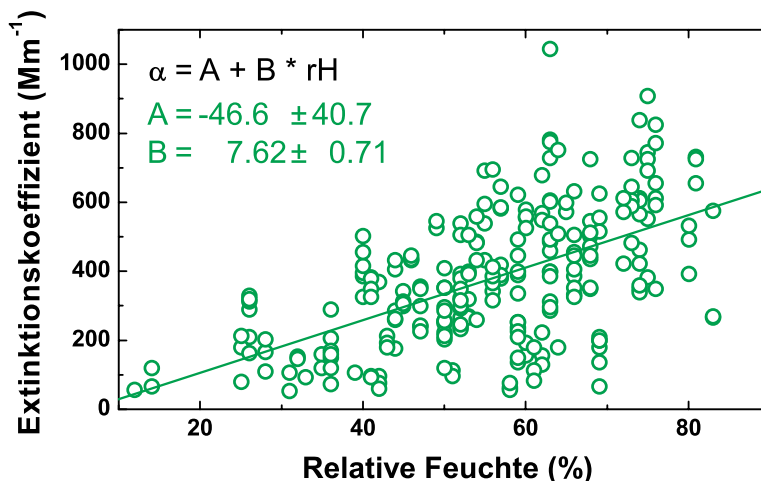


Abbildung 15: Zusammenhang zwischen der relativen Feuchte und dem Extinktionskoeffizienten. Dieser nimmt mit wachsender Feuchte zu.

relativen Feuchte mit dem Extinktionskoeffizienten. Beide Größen wurden dafür höhenaufgelöst verglichen, um die Anzahl der Datenpunkte zu erhöhen und zudem einen größeren Wertebereich abzudecken. Es ist zu sehen, dass der Extinktionskoeffizient bei einer höheren Feuchte größere Werte annimmt. Dies ist auf ein Aufwachsen der Partikel in der feuchten Luft zurückzuführen.

In Ergänzung der Zeitreihen aus Abbildung 12 sind in Abbildung 16 die Histogramme der optischen Dicke, der beiden Ångström-Exponenten und des Lidarverhältnisses dargestellt. Die Darstellung der Häufigkeit des Auftretens bestimmter Werte zusammen mit dem Mittelwert liefert eine gute Übersicht über die Begebenheiten während der Messungen. Es ist zu erkennen, dass der Mittelwert der optischen Dicke, zumindest für die Sonnenphotometermessungen, nicht gleichzeitig der am häufigsten gemessene Wert ist. Es kann demnach trügerisch sein, einen Mittelwert der optischen Dicke anzunehmen, wenn sich eher Phasen geringerer und höherer optischer Dicke abgewechselt haben. Werte der optischen Dicke von $\tau = 0.61$ (Xu et al. 2003) und $\tau = 1.2$ (Wu et al. 2005) wurden in der Literatur für gealterte urbane Luft bzw. extrem verschmutzte Luft angegeben. Der gleiche Effekt ist im Histogramm des kurzwelligen Ångström-Exponenten zu erkennen. Der langwellige Ångström-Exponent und das Lidarverhältnis zeigen dagegen eine gute Übereinstimmung von zeitlichem Mittelwert und am häufigsten gemessenen Wert.

3. Oktober 2004 Der 3. Oktober (DOY 277) war gekennzeichnet durch eine kontinuierliche Abnahme der optischen Dicke, beginnend bei einem Wert von $\tau = 0.97$ in der vorhergehenden Nacht bis zu einem Wert von $\tau = 0.22$ in der abendlichen Lidarmessung. Abbildung 17 zeigt die Messergebnisse dieses Tages. In (a) ist der zeitliche Verlauf des extinktions- und entfernungskorrigierten Signals zu sehen. Es handelt sich dabei um willkürliche Einheiten. Rot steht für ein starkes Signal, blau für ein schwaches. An Tagen, an denen der Wert der optischen Dicke stark geschwankt hat, können sich aufgrund unterschiedlicher Extinktionskorrekturen für unterschiedliche Zeitabschnit-

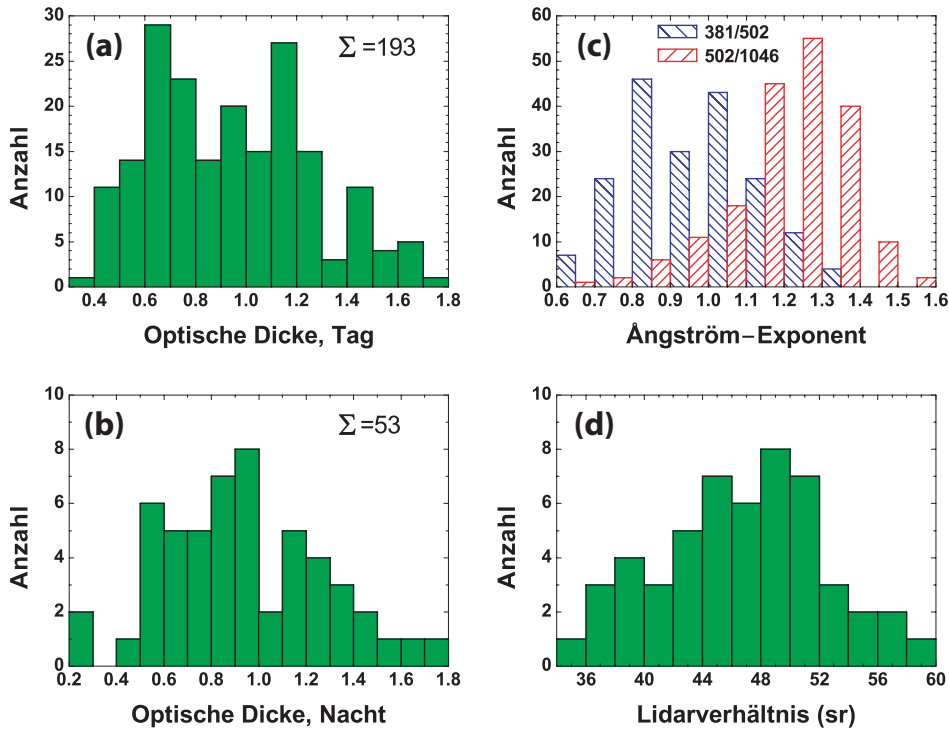


Abbildung 16: Histogramme der optischen Dicke für (a) die Messungen mit SPM und (b) mit Lidar, (c) der Ångström-Exponenten und (d) des Lidarverhältnisses.

te Farbsprünge in den Verläufen des korrigierten Signals ergeben. Die eingezeichnete schwarze Linie markiert die Oberkante der Dunstschicht. Diese wurde durch einen Algorithmus gefunden, der eine automatische Aerosolschichthöhenbestimmung mithilfe der Wavelet-Kovarianz-Transformtechnik ermöglicht (Brooks 2003). Die DOY-Zeiten 0.00, 0.25, 0.50 und 0.75 entsprechen den Uhrzeiten 00:00, 06:00, 12:00 und 18:00 Uhr; die Teilstriche entsprechen einem Abstand von einer Stunde. Teilbild (b) zeigt die Verläufe der Ångström-Exponenten und der optischen Dicke. Die darin eingezeichneten optischen Dicken in der Nacht gehören zu den Lidarmessungen (1), (2) und (3), welche die Mittelwerte der Höhenprofile von β (schwarz), α (blau) und S (rot) in den Zeiträumen 22:24–23:22 Uhr, 18:30–20:00 Uhr und 20:50–22:20 Uhr zeigen. Es ist nur der Höhenbereich des Lidarverhältnisses gezeigt, in dem S einen relativ konstanten Verlauf zeigt. Der entsprechende Mittelwert wird durch die senkrechte rote Linie dargestellt. Die Profile wurden mit einer Fensterlänge von 337.5 m geglättet und über zwei Stunden gemittelt. Die gestrichelte blaue Linie ist das, mittels der Annahme $\alpha = \beta \times \bar{S}$, zum Boden verlängerte Profil des Extinktionskoeffizienten. Dabei wird vorausgesetzt, dass bei einer gut durchmischten Atmosphäre das Lidarverhältnis im untersten Abschnitt der Luftsäule kaum vom mittleren Wert von S in den darüber liegenden Schichten abweicht.

Die drei mittäglichen Sonnenphotometermessung zeigen relativ konstante Werte der optischen Dicke und der Ångström-Exponenten. Letztere nahmen nahezu identische Werte von $\alpha_{k,1} \approx 0.75$ an. Mit der nun rasch abnehmenden optischen Dicke ging eine Zunahme der Beträge der beiden Ångström-Exponenten einher. Im Profil der ersten

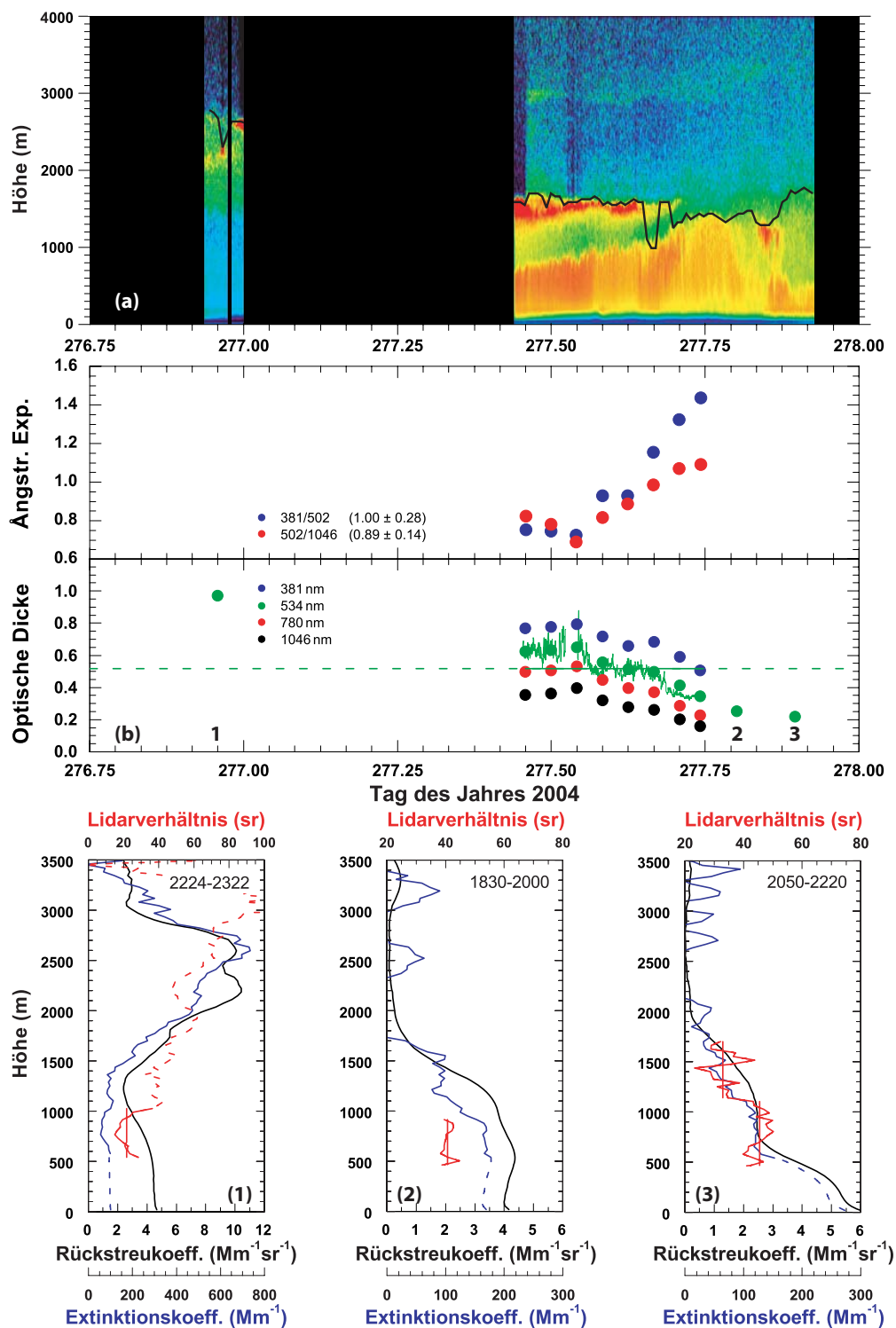


Abbildung 17: (a) Zeitlicher Verlauf des extinktions- und entfernungskorrigierten Signals sowie (b) der Ängström-Exponenten und der optischen Dicke am 3. Oktober 2004 (DOY 277) in Xinken. Die aus den nächtlichen Lidarmessungen bestimmten Vertikalprofile von β (schwarz), α (blau) und S (rot) sind in den unteren Bildern gezeigt. (1) 2.10., 22:24–23:22 Uhr; (2) 3.10., 18:30–20:00 Uhr; (3) 3.10., 20:50–22:20 Uhr.

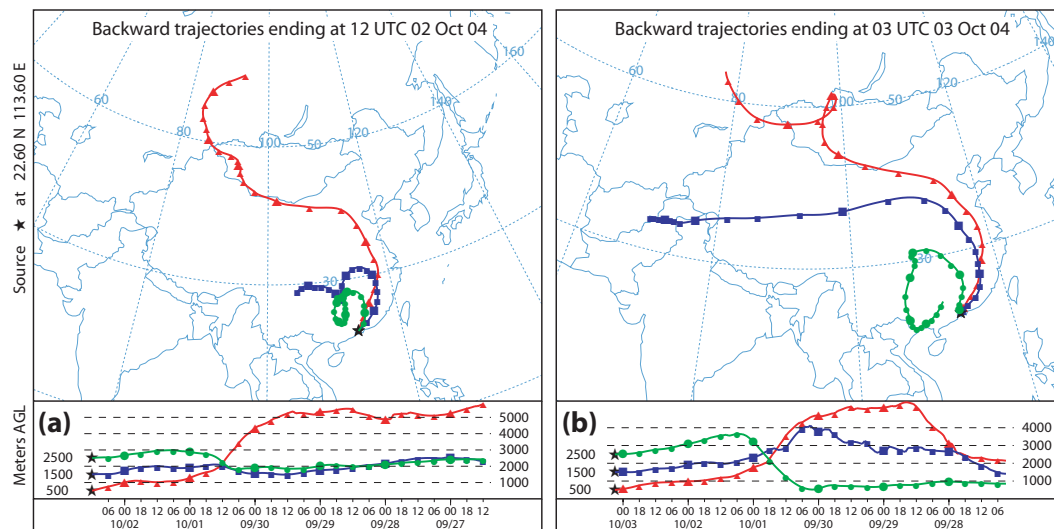


Abbildung 18: Rücktrajektorien für (a) den 2. Oktober (DOY 276) um 20 Uhr Ortszeit und (b) den 3. Oktober (DOY 277) um 11 Uhr Ortszeit (b).

in Xinken durchgeführten Lidarmessung (1) aus der Nacht zum 3. Oktober ist deutlich zu sehen, dass sich über der Grenzschicht eine weitere Aerosolschicht zwischen 1.5–3.0 km Höhe befand. Diese Schicht erreichte maximale Werte von $\beta = 10 \text{ Mm}^{-1}\text{sr}^{-1}$ und $\alpha = 750 \text{ Mm}^{-1}$, welche mehr als doppelt so groß waren wie unterhalb einer Höhe von 1500 m. Die hohe optische Dicke zur Zeit der Messung wurde also hauptsächlich durch diese Schicht bestimmt, in der die Radiosonde eine relative Feuchte von 80% zeigt. Die optische Dicke betrug $\tau \approx 0.14$ für den Bereich <1500 m Höhe und $\tau \approx 0.7$ für die Schicht von 1.5 und 3 km Höhe. Das Lidarverhältnis nahm mit der Höhe von anfangs 20 sr auf bis zu 100 sr zu (gezeigt als rote gestrichelte Linie in Abbildung 17 (1)). Die hohen Werte von S innerhalb der abgehobenen Schicht deuten auf stark absorbierende Partikel hin. In den Lidarmessungen der folgenden Nacht ist diese Schicht verschwunden. Stattdessen erkennt man in Teilbild 17 (2) eine gut durchmischte Grenzschicht bis in eine Höhe von etwa 1.8 km. Die optische Dicke wurde nun fast nur noch durch die Extinktion im Bereich der Grenzschicht bestimmt. Am späteren Abend fiel die Grenzschicht in sich zusammen und erstreckte sich nun nur noch bis in eine Höhe von etwa 700 m.

Die abgehobene Schicht ist ein Indiz dafür, dass die hohe optische Dicke am 2. Oktober und in der ersten Hälfte des 3. Oktobers nicht durch lokale Quellen verursacht wurde, sondern durch herantransportierte, überregionale Verschmutzung. Abbildung 18 zeigt Rücktrajektorien für den Zeitraum der Lidarmessung in der Nacht zum 3. Oktober (Abbildung 18 (a)) und der anschließenden Sonnenphotometermessungen (Abbildung 18 (b)). Während die Trajektorien, die zur Lidarmessung (3) in Abbildung 17 unterhalb von 2000 m gehören, sehr lang sind und erst spät aus größerer Höhe absanken, befanden sich die Luftpakete, die in Höhe der Schmutzschicht eintreffen (blaue und grüne Linie in Abbildung 18 (a)); Lidarmessung (1) in Abbildung 17) seit Tagen in 1500–2500 m Höhe, also vermutlich im oberen Teil der hochverschmutzten kontinentalen Dunstschicht. Aus der Kürze der Trajektorien lässt sich schließen, dass eine lang

anhaltende Aerosolanreicherung stattfinden konnte. Die Sonnenphotometermessungen der Ångström-Exponenten deuten an, dass die abgehobene Schmutzschicht am Nachmittag des 3. Oktobers vollständig verschwunden war. Nach Abzug der Schmutzschicht sank die optische Dicke, die nun fast vollständig durch die Grenzschicht verursacht wurde. Der Anstieg der Werte der Ångström-Exponenten ab Mittag zeigt, dass die nun vorhandenen Partikel wesentlich kleiner waren als zuvor. Am Abend lag der kurzwellige Ångström-Exponent mit einem Wert von $\hat{a}_k = 1.45$ deutlich über dem Mittelwert ($\bar{a}_k = 0.96$) der Zeitreihe. Demnach war die Luft sehr sauber und enthielt eine hohe Anzahl sehr kleiner Partikel. Die für den Messzeitraum sehr hohen Sichtweiten von etwa 14 km bestätigen das. Die gealterten Aerosolpartikel wurden von der neu eingetroffenen Luft verdrängt.

9. Oktober 2004 Der 9. Oktober (DOY 283) fällt durch seine über 24 Stunden kaum schwankende optische Dicke auf. Das Sonnenphotometer hat Werte von $\tau = 0.62 \pm 0.05$ gemessen und auch die Lidarwerte fallen mit $\tau = 0.65, 0.66$ und 0.65 in diesem Bereich. Die Werte der optischen Dicke liegen deutlich unter dem Mittelwert der Zeitreihe, gehören jedoch zu den am häufigsten gemessenen Werten (Abbildung 16). Die Ergebnisse dieses Tages sind in Abbildung 19 gezeigt. Die geringen Schwankungen der optische Dicke deuten sehr homogene atmosphärische Bedingungen und Aerosolverhältnisse an, obwohl die Lidarmessungen sehr starke Aerosoländerungen mit der Höhe erkennen lassen. Die Dunstschicht erstreckte sich nach Sonnenuntergang an beiden Tagen bis 2–2.5 km Höhe. Die Werte des Lidarverhältnisses sind für alle drei Nachtmessungen ähnlich und entsprechen dem Mittelwert der gesamten Messreihe. Die geringe Varianz von S bis zur Oberkante der Dunstschicht zeigt, dass diese sehr gut durchmischt war. Die Profile von β und α bestätigen dies durch ihren verhältnismäßig wenig variierenden Höhenverlauf und auch der konstante Verlauf der virtuellen potentiellen Temperatur unterstützt diese Annahme. Das Feuchteprofil der Radiosonde zeigt einen konstanten Verlauf bis in eine Höhe von 2 km. Die Werte der relativen Feuchte liegen dabei bei maximal 60% im Vergleich zum 3. Oktober weniger hoch. Mithilfe von S lassen sich am Boden Extinktionskoeffizienten von $\alpha = 300\text{--}400 \text{ Mm}^{-1}$ ermitteln, was einer Sichtweite von bis zu 14 km entspricht. Dieser Wert ist sehr hoch, da die Sichtweite in der Zeit der Messkampagne meist deutlich unter 10 km lag. Der 9. Oktober gehört zu den Tagen im Messzeitraum, an denen die Partikelladung der Luft und damit die optische Dicke am geringsten war (siehe auch Abbildung 12).

Die Ergebnisse lassen vermuten, dass sich die atmosphärischen Bedingungen zwischen der letzten SPM-Messung (von 16:54–17:54 Uhr) und der ersten Lidarmessung (von 19:00–21:00 Uhr) kaum geändert haben. Der 9. Oktober ist daher einer der Tage, die für die Inversion der optischen Daten geeignet erschienen. Beide Ångström-Exponenten erreichten um die Mittagszeit ein Minimum, in dem sie ähnliche Werte annahmen, und stiegen gehen Abend wieder an. Im Mittel ergaben sich $\hat{a}_k = 1.04 \pm 0.06$ und $\hat{a}_l = 1.15 \pm 0.14$. Die Trajektorien für diesen Tag legen nahe, dass es sich hier um lokales Aerosol handelte.

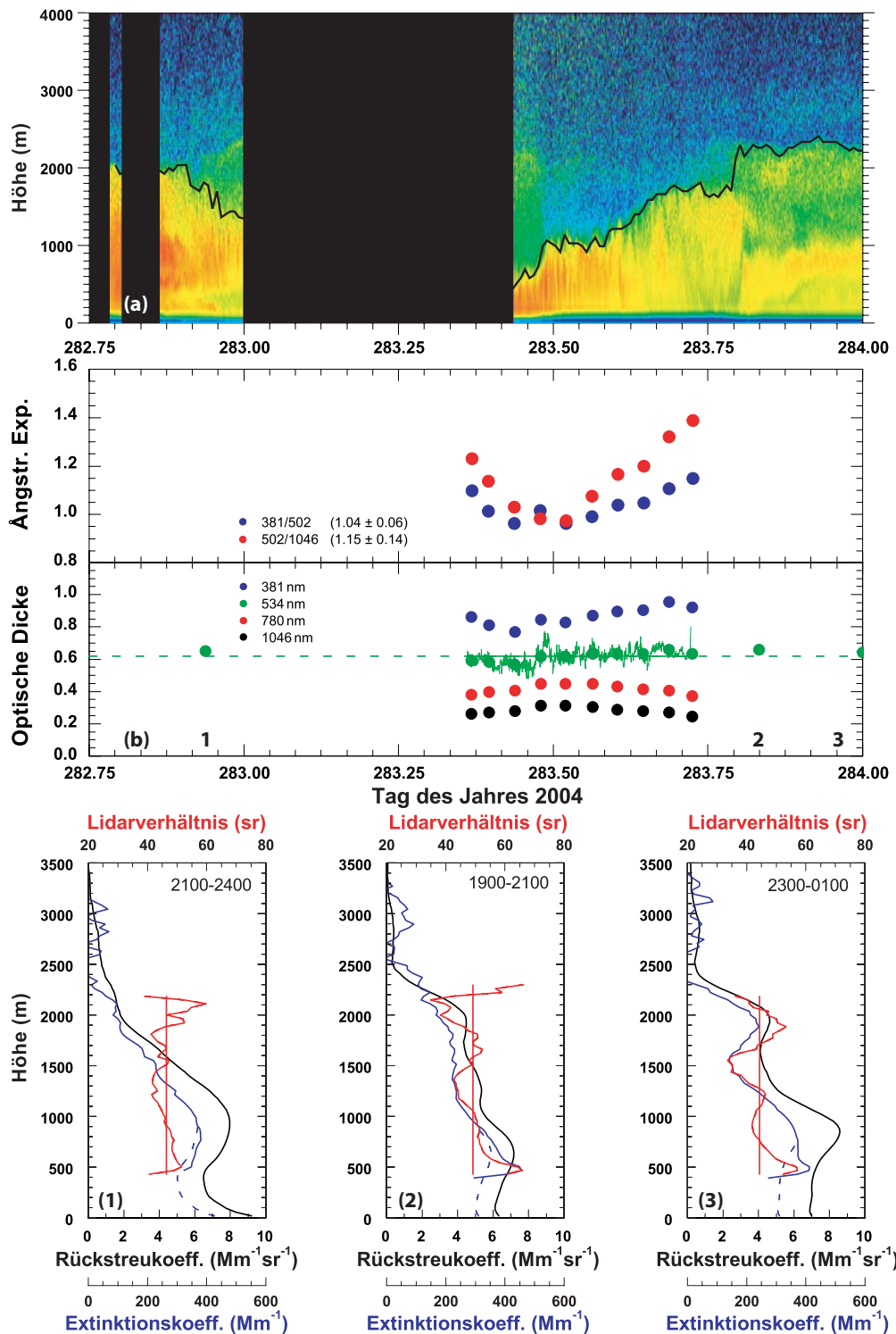


Abbildung 19: Xinken, 9. Oktober 2004. Die Graphen sind analog zu Abbildung 17. (1) 8.10., 21:00–24:00 Uhr; (2) 9.10., 19:00–21:00 Uhr; (3) 9.10., 23:00–01:00 Uhr.

11. und 12. Oktober 2004 Am 11. und 12. Oktober (DOY 285–286) wurden optische Dicken von $\tau = 0.97\text{--}1.73$ gemessen. Die Ergebnisse dieses Zeitraumes sind in Abbildung 20 gezeigt. Am 11. Oktober betrug die optische Dicke $\tau = 1.46 \pm 0.21$. Die Sichtweite lag an diesem Tag deutlich unter einem Kilometer. Bei relativen Feuchten von bis zu 90% lag das PRD unter einer Dunstglocke. Beide Ångström-Exponenten nahmen im Verlauf dieses Tages zu, was zu der Annahme führt, dass eine beachtliche Menge neuer Partikel am Messort entstanden war. In Abbildung 20 (a) ist zu sehen, wie am 11. Oktober ab 10:00 Uhr die Partikelladung offensichtlich vom Boden her zunahm. Nach Aufwachen wurden die Partikel im Laufe des 11. Oktobers in zunehmendem Maße optisch aktiv. Die in Abbildung 21) gezeigten schwachen Windgeschwindigkeiten sind ein Indiz dafür, dass die gemessene Verschmutzung nicht herangeführt wurde, sondern aus lokalen Quellen stammte. Weiterhin ist in dieser Abbildung der Verlauf der relativen Feuchte gezeigt. Die hohe relative Feuchte von über 95% am Morgen des 12. Oktobers führte zu einem Beschlagen der Quarzscheiben des Lidars, was sich im Verlauf des Signals (Abbildung 20 (a) um DOY 286.25) zeigt. Durch eine Verlängerung der Mittelungszeit auf drei Stunden war es dennoch möglich, die gesuchten Höhenprofile zu bestimmen.

Der 12. Oktober zeigt einen konstanten Verlauf der optischen Dicke und der Ångström-Exponenten. Die Dunstglocke erreichte in der Nacht zum 12. Oktober eine Höhe von 3 km (Abbildung 20, Lidarmessungen (3) und (4)). Dieser Wert gehört zu den höchsten im Messzeitraum. Die Sichtweite stieg am 12. Oktober auf bis zu 10 km. Die in Abbildung 21 gezeigte, an beiden Tage herrschende Windstille ermöglichte ein Verweilen der Dunstglocke über der Region. Bei der hier vorliegenden Verschmutzung handelt es sich demnach wie am 9. Oktober um Verschmutzung aus lokalen Quellen.

Die Vertikalprofile der Lidarmessungen sind in Abbildung 20 (1–5) dargestellt. Am frühen Morgen des 12. Oktobers (Abbildung 20 (4)) bildete sich eine bodennahe Schicht mit Extinktionskoeffizienten von bis zu 1200 Mm^{-1} aus. Das Lidarverhältnis zeigt mit Werten von $S = 30\text{--}35$ sr große Partikel an. Es darf vermutet werden, dass in dieser Nacht viele Fabriken ihre Schadstoffe ungefiltert in die Atmosphäre abgegeben haben. Allerdings ist zu bedenken, dass auch die relative Feuchte im Verlauf dieser Nacht auf Werte $>90\%$ zunahm. Das Feuchtwachstum der Partikel kann ebenfalls zu einer starken Zunahme des Extinktionskoeffizienten führen.

19. bis 24. Oktober 2004 Als letztes soll nun eine sehr lange, fünftägige Phase vom 19. bis 23. Oktober (DOY 293–297) betrachtet werden. In diesen fünf Tagen wurde durchgängig mit Sonnenphotometer und Lidar gemessen. Die Struktur der in Abbildung 22 gezeigten Rückstreuprofile lässt erkennen, dass alle Tage für eine Inversion der optischen Daten geeignet waren. Weiterhin war an einigen dieser Tage, vor allem aber am 23. und 24. Oktober, eine lehrbuchmäßige Grenzschichtentwicklung zu beobachten.

Betrachtet man Abbildung 22 (b), fällt eine deutliche Symmetrie auf. Die Tagesmittelwerte der optischen Dicke und der Dunstschichthöhe stiegen bis zum 21. Oktober an und fielen daraufhin bis zum 24. Oktober wieder ab. Ein gegenläufiger Verlauf

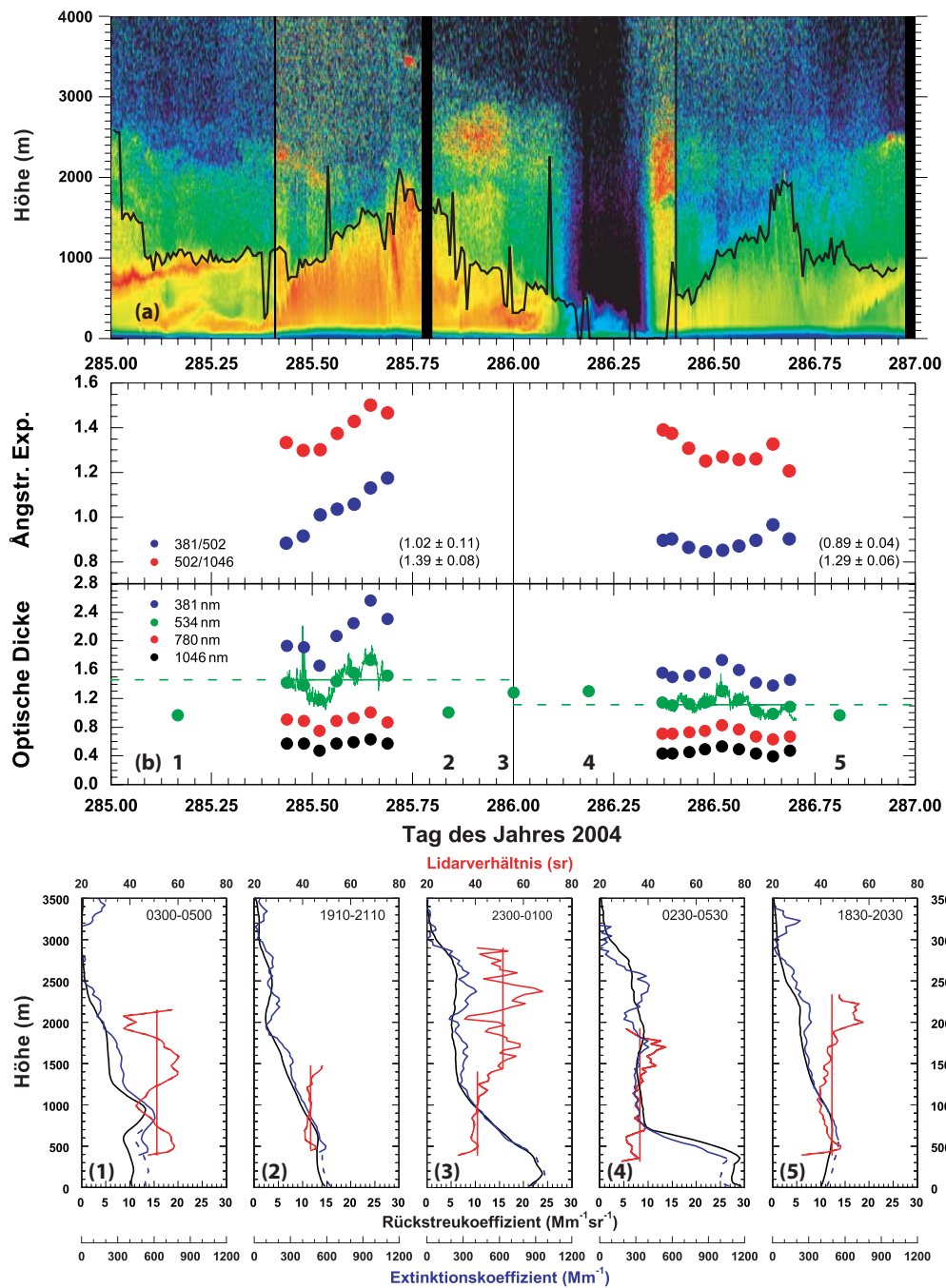


Abbildung 20: Xinken, 11. und 12. Oktober 2004. Die Graphen sind analog zu Abbildung 17. (1) 11.10., 03:00–05:00 Uhr; (2) 11.10., 19:10–21:10 Uhr; (3) 11.10., 23:00–01:00 Uhr; (4) 12.10., 02:30–05:30 Uhr; (5) 12.10., 18:30–20:30 Uhr.

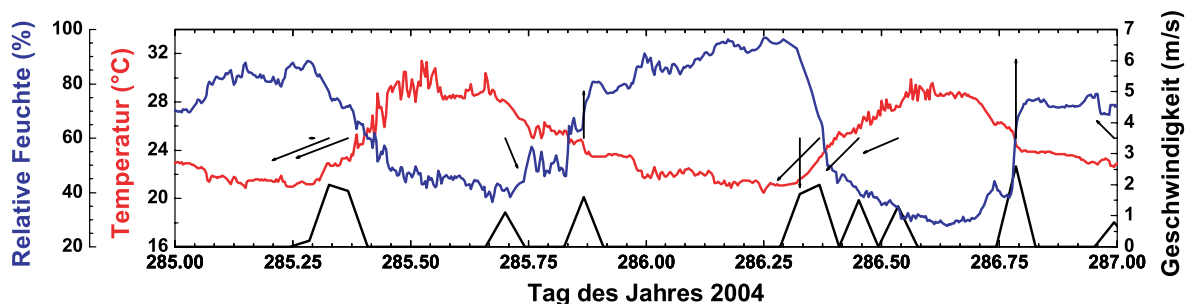


Abbildung 21: Temperatur (rote Linie), relative Feuchte (blaue Linie), Windgeschwindigkeit (schwarze Linie) und Windrichtung (schwarze Pfeile) für den 11. und 12. Oktober.

ist beim kurzwelligen Ångström-Exponenten zu erkennen, wohingegen der langwellige Ångström-Exponent kaum variiert. Letzteres lässt darauf schließen, dass im Verlauf dieser fünf Tage stets ein konstanter Hintergrund aus Partikeln des groben Modes (Straßenstaub, Produkte der Verbrennung von Biomasse) präsent war. Die Partikel im Bereich des Akkumulationsmodes wuchsen dagegen auf und wurden gegen Ende des betrachteten Zeitraums durch neue Partikel ersetzt. Der gegenläufige Verlauf von τ und α_k verdeutlicht die in Abbildung 13 gezeigte negative Korrelation dieser beiden Größen. Sowohl die Ångström-Exponenten, als auch die optische Dicke zeigen einen sehr konstanten Tagesverlauf, schwanken aber von Tag zu Tag. Die auftretende Veränderung der optischen Dicke ist in den Lidarprofilen (Abbildung 22 (1)–(6)) zu erkennen, die sehr verschiedene Verläufe von α und β zeigen. Die Maximalwerte der optischen Dicke traten am 21. Oktober mit einstündigen Mittelwerten von $\tau \approx 1.6$ auf. Diese hohen optischen Dicken gingen einher mit einer stark reduzierten Sichtweite von unter einem Kilometer. Zu sehen ist zudem auch eine Veränderung der Werte des Lidarverhältnisses. Während dieses am Anfang der Phase sehr hohe Werte von $S \approx 55$ sr aufwies (stark absorbierende kleine Partikel), fiel es im Verlauf des 21. Oktobers auf Werte von $S \approx 40$ sr (weniger absorbierende, größere Partikel).

In den Lidarprofilen ist nun zudem die Höhe der Dunstschicht (aus dem Verlauf des Rückstreuprofiles abgeschätzt) zum Zeitpunkt der jeweiligen Messung eingezeichnet. Innerhalb des betrachteten Zeitraumes ist ein deutlicher Verlauf der Dunstschichthöhe zu erkennen, der entsprechend der positiven Korrelation aus Abbildung 14 mit dem Verlauf der Mittelwerte der optischen Dicke übereinstimmt. Die maximale Dunstschichthöhe von 2.2 km wurde am Abend des 21. Oktobers erreicht. Die in Abbildung 10 für diesen Tag zu erkennende langzeitige Windstille hat die Ausbildung der hohen Dunstschicht und der damit einhergehenden hohen optischen Dicken begünstigt.

Grenzschichtentwicklung am 23. und 24. Oktober 2004 Im Verlauf des 23. und 24. Oktobers fanden sehr markante Entwicklungen der planetaren Grenzschicht statt. Diese sind in Abbildung 23 gezeigt. Am 23. Oktober hatte der Taifun Tokage die Region verlassen. Die sich anschließende geringe Windgeschwindigkeit ermöglichte lehrbuchhafte Grenzschichtentwicklungen (Stull 1988). Der in Abbildung 23 gezeigte Verlauf des extinktions- und entfernungskorrigierten Signals enthält neben der mit der Wavelet-

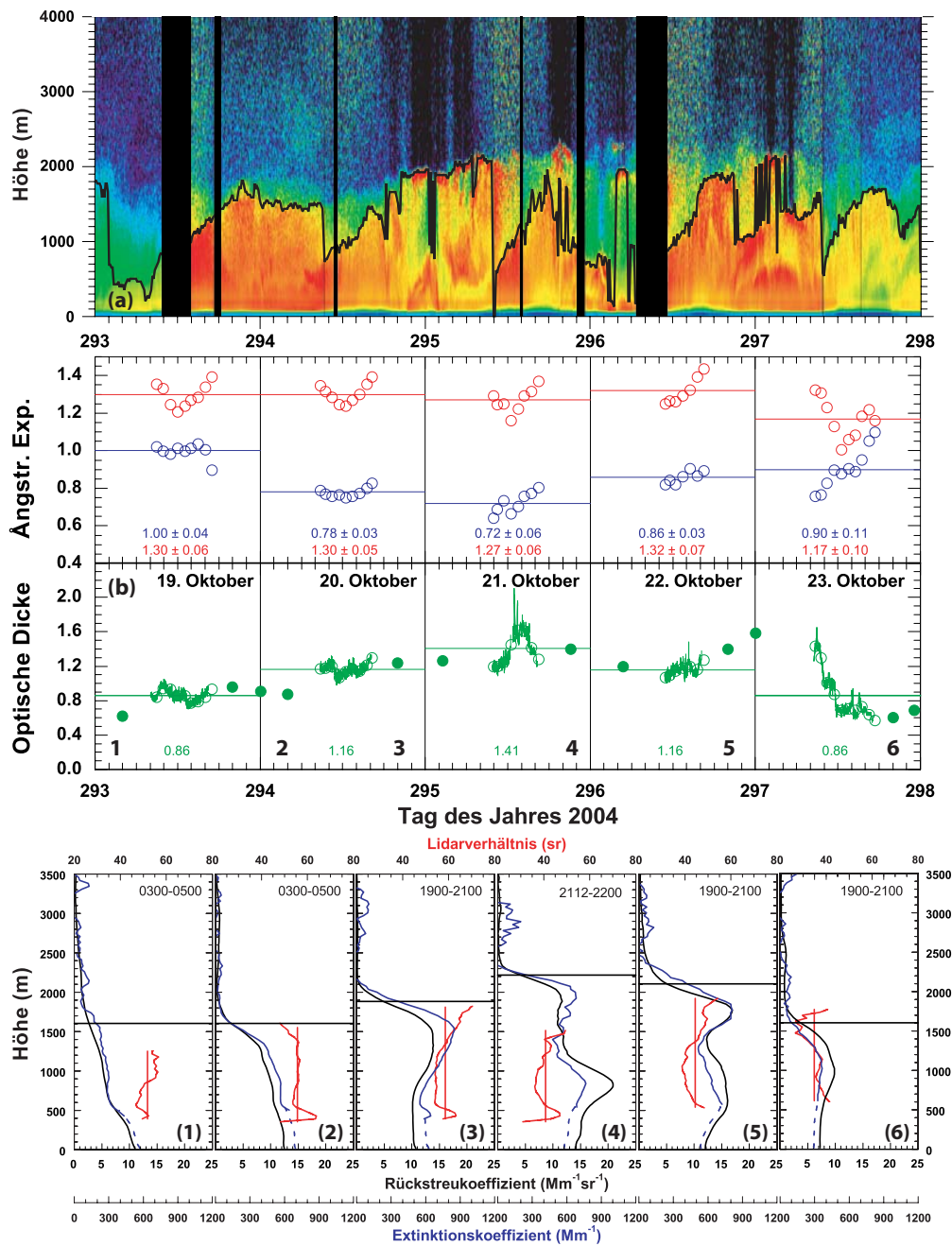


Abbildung 22: Xinken, 19. bis 24. Oktober 2004. Die Graphen sind analog zu Abbildung 17. In den Profilen der Lidarmessungen sind nun die jeweiligen Dunstschichthöhen eingezeichnet. (1) 19.10., 03:00–05:00 Uhr; (2) 20.10., 03:00–05:00 Uhr; (3) 20.10., 19:00–21:00 Uhr; (4) 21.10., 21:12–22:00 Uhr; (5) 22.10., 19:00–21:00 Uhr; (6) 23.10., 19:00–21:00 Uhr.

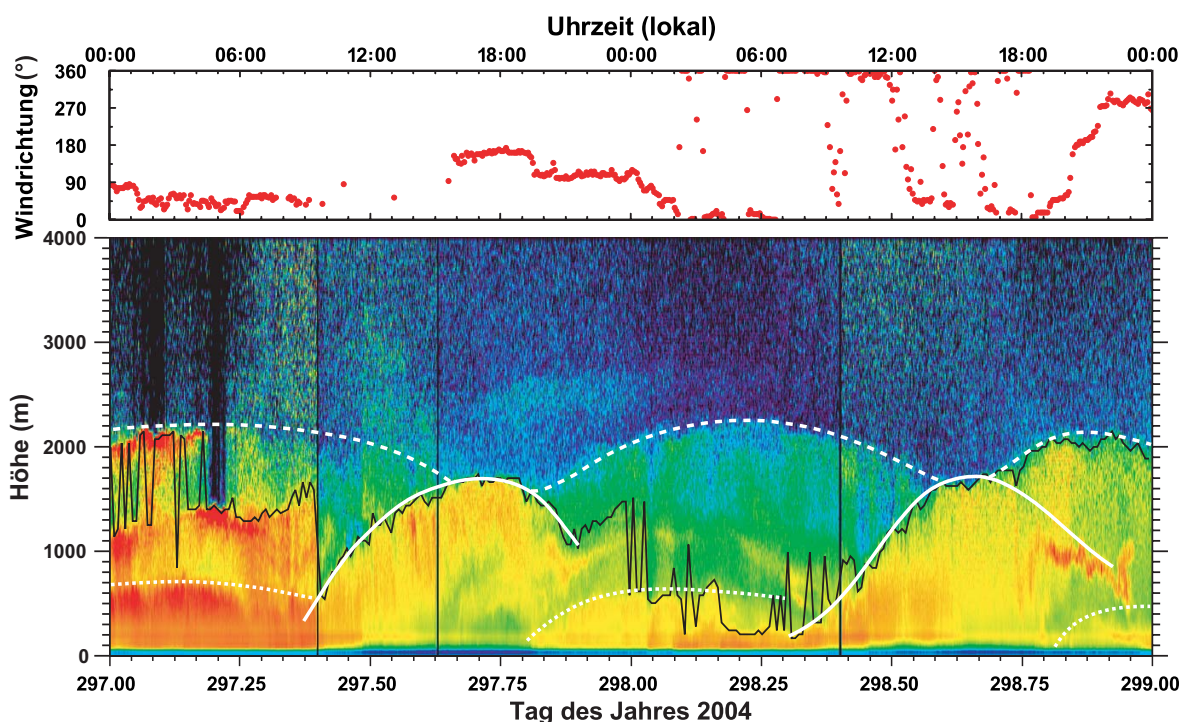


Abbildung 23: Grenzschichtentwicklung am 23. und 24. Oktober 2004. Gezeigt ist der Verlauf der Windrichtung sowie des extinktions- und entfernungskorrigierten Signals vom 23.10., 00:00 Uhr bis zum 25.10., 00:00 Uhr Ortszeit. Die schwarze Linie markiert die mit der Wavelet-Kovarianz-Transformmethode automatisch bestimmte Oberkante der Grenzschicht. Die weiße durchgezogene Linie zeigt den per Auge bestimmten Verlauf der Grenzschicht, die weiße, lang gestrichelte Linie zeigt die auf gleiche Weise bestimmte Oberkante der Dunstschicht und die weiße, kurz gestrichelte Linie zeigt die Oberkante der nächtlichen Grenzschicht, die sich jeweils ab 19:00 Uhr bildet.

Kovarianz-Transformmethode (*engl.*: wavelet covariance transform, Brooks 2003) automatisch bestimmten Grenzschichthöhe (schwarze Linie) die Höhe der Grenzschicht (weiße durchgezogene Linie), der Dunstschicht (weiße, lang gestrichelte Linie) und der nächtlichen Grenzschicht (weiße, kurz gestrichelte Linie), wie sie per Auge bestimmt wurden. Der Algorithmus zur automatischen Bestimmung der Grenzschichthöhe sucht nach dem stärksten Gradienten im Höhenverlauf des empfangenen Signals. Wie man in Abbildung 23 sehen kann, springt das Ergebnis dabei nachts zwischen den Werten der per Auge bestimmten Oberkanten der Grenzschicht und der Dunstschicht hin und her. Die subjektiv bestimmten Verläufe beider Schichten stimmen sehr gut mit der Theorie überein (Stull 1988). In der Nacht liegt die Grenzschichthöhe bei etwa 700 m. Mit Tagesanbruch liefert die Sonnenstrahlung Energie, die die unteren Luftschichten erwärmt und Konvektion auslöst. Diese lässt die Oberkante der Grenzschicht aufsteigen und führt zu einer raschen Durchmischung der Grenzschicht, was im Lidarsignal an einer gleichmäßigen Verteilung der Aerosolpartikel zu sehen ist (von 10:00–18:00 Uhr). Ab 19:00 Uhr beginnt sich eine nächtliche Grenzschicht zu entwickeln, die recht schnell eine konstante Höhe von 600 m erreicht. Darüber verbleibt die auch als Restschicht (*engl.*:

residual layer) bezeichnete Dunstschicht. Der Vorgang wiederholt sich bei Anbruch des nächsten Tages.

Mit einsetzender Grenzschichtentwicklung nimmt das Signal in Bodennähe ab, da die Partikel nach oben gemischt werden und somit bei gleich bleibender optischer Dicke der Extinktionskoeffizient am Boden sinkt. Am 23. Oktober wurde dieser Effekt durch die gleichzeitige Abnahme der optischen Dicke verstärkt. Da die optische Dicke ab der Mitte dieses Tages einen nahezu konstanten Wert von $\tau \approx 0.60$ aufwies, ist in den verschiedenen Messungen (vor und nach 10:00 Uhr, erkennbar durch eine Lücke in der Verlaufsdarstellung des korrigierten Signals) eine unterschiedliche Extinktionskorrektur angewandt worden ($\tau = 1.20$ vor 10:00 Uhr und $\tau = 0.60$ nach 10:00 Uhr). Dementsprechend kommt es zu einem Sprung im Verlauf der automatisch bestimmten Grenzschichthöhe. Mit Einsetzen der Grenzschichtentwicklung, die durch die geringen Windgeschwindigkeiten nach Abzug des Taifuns Tokage begünstigt wurde, stimmt die automatisch gefundene Grenzschichthöhe mit der subjektiv ermittelten überein. Erst mit dem Zusammenfallen der Grenzschicht gegen 21:00 Uhr zeigen die Kurven wieder einen voneinander abweichenden Verlauf. Die automatisch bestimmte Grenzschichthöhe fällt erst später auf die per Auge bestimmten Werte. Über der zusammengefallenen Grenzschicht, die nun wieder größere Extinktionskoeffizienten aufweist, verbleibt die Dunstschicht bis in eine Höhe von 2200 m.

Der zur Zeit noch nicht ausgereifte Algorithmus zur Bestimmung der Grenzschichthöhe, der im Rahmen einer Diplomarbeit verbessert werden soll, zeigt deutliche Schwächen, wenn mehr als ein Bereich mit einem starken Abfall des Signals existiert. In diesem Fall springt das Ergebnis zwischen den verschiedenen Bereichen hin und her und es ergeben sich Strukturen wie in den Abschnitten DOY 297.00–297.20 und DOY 298.00–298.40 in Abbildung 23. Diese Schwäche des Algorithmus ist auch in den zuvor gezeigten Verläufen des höhenaufgelösten Signals zu erkennen.

Der zusätzlich gezeigte Verlauf der Windrichtung lässt — zumindest am 23. Oktober — einen deutlichen Tagesgang erkennen. Demnach kommt der Wind am Tag von Süden (Meer) und in der Nacht von Norden (Festland). Die geringe Windgeschwindigkeit am 24. Oktober erhöht den Fehler in der Bestimmung der Windrichtung, so dass die Resultate dieses Tages nicht als zuverlässig angenommen werden können. Mit dem Seewind am Tag des 23. Oktobers verstärkte sich der marine Einfluss und die Höhe der Dunst-/Grenzschicht nahm ab. Gleichzeitig nahm wie zuvor besprochen die optische Dicke ab (Abbildung 22). Saubere Luft wurde vom Meer zur Messstation transportiert. In der Nacht drehte der Wind nach Nord. Der Landwind ging einher mit einer raschen Zunahme der optischen Dicke (in Abbildung 12 zu erkennen) und führte verschmutzte Luft vom Inland heran. Die Dunstschicht zeigte sich nun wieder deutlich kontinental beeinflusst und lag höher als am Tage.

3.1.3 Mikrophysikalische Charakterisierung des Aerosols in der Säule

Nach den in Abschnitt 2.2.4 vorgestellten Kriterien wurden für die Messungen in Xinken sieben Tage als für eine Inversion der optischen Daten geeignet eingeschätzt.

Tabelle 2: Tage und Zeiten (in Ortszeit) der für die Inversion verwendeten Messungen von SPM (einstündiger Mittelwert) und Lidar (zweistündiger Mittelwert) in Xinken mit den jeweiligen Mittelwerten der optischen Dicke $\bar{\tau}$ bei der Wellenlänge von $\lambda \approx 532$ nm. \bar{t} entspricht der Mitte des jeweiligen Messintervalls, $\Delta\bar{\tau}$ ist die Differenz der optischen Dicken der Messungen von SPM und Lidar, die mit einem Zeitabstand von $\Delta\bar{t}$ durchgeführt wurden.

Messtag	SPM		Lidar		$\Delta\bar{t}$	$\Delta\bar{\tau}$
	\bar{t}	$\bar{\tau}$	\bar{t}	$\bar{\tau}$		
3. Oktober	17:50	0.34	19:00	0.25	+1 h 10 min	-0.10
9. Oktober	17:24	0.63	20:00	0.60	+2 h 36 min	-0.03
19. Oktober	17:00	0.93	20:00	0.96	+3 h 00 min	+0.03
20. Oktober	16:18	1.30	20:00	1.24	+3 h 42 min	-0.06
21. Oktober	09:55	1.19	02:30	1.26	-7 h 25 min	+0.07
22. Oktober	16:30	1.27	20:00	1.40	+3 h 30 min	+0.13
23. Oktober	17:00	0.57	20:00	0.60	+3 h 00 min	+0.03

Für alle diese Tage wurde zunächst die Inversion Typ 1 (Inversion mit reinen Extinktionsdaten) durchgeführt, da diese wesentlich stabilere, wenn auch weniger aussagekräftige Ergebnisse liefert. Zudem konnte somit die Anwendbarkeit des Inversionsschemas auf die gewonnenen optischen Daten getestet werden. Die anschließende Vorgehensweise für die Rechnungen der Inversion Typ 2 (Inversion mit $2 \times \beta$ und $6 \times \alpha$ als Eingangswerte) wurde ausführlich im Abschnitt 2.2.4 vorgestellt. Die optischen Daten aller ausgewählten Tage wurden im vorherigen Abschnitt 3.1.2 gezeigt.

Tabelle 2 gibt einen Überblick über die Tage, für die eine Inversion durchgeführt wurde. Sie enthält die optischen Dicken der Messungen von SPM und Lidar, die für die Inversion vom Typ 2 kombiniert werden mussten. In die Inversion Typ 1 gingen nur die durch die Dunstschichthöhe geteilten optischen Dicken des Sonnenphotometers bei den fünf verwendeten Wellenlängen ein. Der Unterschied in der optischen Dicke $\Delta\bar{\tau}$ und der zeitliche Abstand $\Delta\bar{t}$ zwischen den Messungen mit SPM und Lidar ermöglicht eine Abschätzung der Güte der Resultate. Für große $\Delta\bar{\tau}$ bzw. $\Delta\bar{t}$ ist eine starke Abweichung des Inversionsergebnisse von den In-situ-Ergebnissen wenig verwunderlich. Als Resultat ergeben sich für die Inversion Typ 1 zuverlässige Ergebnisse der Volumenkonzentration und des effektiven Radius der Aerosolpartikel. Die Inversion Typ 2 ermöglicht zudem eine zuverlässige Bestimmung der Anzahl- und Oberflächenkonzentration, des komplexen Brechungsindex und der Einfachstreueralbedo. Die Werte der Volumenkonzentration, des effektiven Radius und, wenn ermittelbar, der Einfachstreueralbedo wurden mit zeitgleich¹¹ durchgeführten In-situ-Messungen (Eichler 2006) verglichen.

¹¹Es wurde über die Ergebnisse aller In-situ-Messungen gemittelt, die im Zeitraum vom Beginn des Mittelungszeitraums der SPM-Messungen bis zum Ende des Mittelungszeitraums der Lidarmessungen stattfanden.

Aus den In-situ-Messungen am Boden wurden die chemischen Bestandteile sowie die Größenverteilungen der Aerosolpartikel bestimmt. Die Ergebnisse wurden verwendet, um die vorliegenden Partikel zu rekonstruieren und im Anschluss durch Miestreurechnung ihre optischen Eigenschaften zu bestimmen. Zwei verschiedene Arten des Mischungszustands der Partikel wurden angenommen. Dabei wird in Modell 1 vorausgesetzt, dass der Kern der Aerosolpartikel aus Ruß, also stark absorbierendem Material, besteht und dieser von einer Hülle aus Wasser und nichtabsorbierenden Substanzen, die einfallendes Licht lediglich streuen, umschlossen ist. Für die verschiedenen Substanzen wurden individuelle komplexe Brechungsindizes angenommen. Der resultierende Wert des Brechungsindex ergab sich aus einer, entsprechend der Volumenanteile der verschiedenen Substanzen gewichteten Kombination der individuellen Werte. Modell 2 geht dagegen von zwei Partikeltypen aus. Zum einen sind dies reine Kohlenstoffpartikel (Ruß) und zum anderen eine homogene Mischung aus Kohlenstoff, Wasser und nichtabsorbierenden Substanzen (Cheng et al. 2005; Eichler 2006).

Die Resultate der Inversion wurden mit den Ergebnissen der In-situ-Messungen und den Ergebnissen dieser beiden Modelle verglichen. Das Modell 1 verwendet den Mittelwert der chemischen Daten¹². Dadurch wird für jeden Zeitraum, in dem eine Partikelgrößenverteilung¹³ bestimmt wurde, eine Streurechnung ermöglicht. Diese ergibt die Koeffizienten von Rückstreuung, Absorption und Extinktion bei verschiedenen Wellenlängen, woraus sich die jeweilige Einfachstreueralbedo berechnen lässt. Das Modell 2 benötigt die genaue Kenntnis der Konzentration der verschiedenen chemischen Bestandteile der Aerosolpartikel in unterschiedlichen Größenbereichen und ist daher nur dann anwendbar, wenn im entsprechenden Zeitraum die Ergebnisse einer MOUDI-Messung vorliegen. Aus diesem Grund ergibt sich nur ein Tag, an dem die Inversionsergebnisse mit den Resultaten dieses Modells verglichen werden können. Die jeweils gemessene Partikelgrößenverteilung wurde in eine Volumenverteilung umgerechnet und ebenfalls mit den Ergebnissen der Inversion verglichen.

Abbildung 24 zeigt den Vergleich der effektiven Radien aus den Inversionsrechnungen und den am Boden durchgeführten In-situ-Messungen. Die effektiven Radien wurden mit beiden Inversionstypen berechnet. Zur Berechnung des effektiven Radius aus den In-situ-Werten wurde Gleichung (31) verwendet. Der Inversionsalgorithmus berechnet den effektiven Radius aus jedem individuellen Ergebnis von a und v . Über die akzeptierten Werte wird am Ende gemittelt. In Abbildung 24 ist zudem das Ergebnis gezeigt, das sich ergibt, wenn man erst die Werte der Oberflächen- und Volumenkonzentrationen mittelt und dann aus diesen den effektiven Radius berechnet (rote Quadrate). Das Ergebnis dieser Vorgehensweise befindet sich zwar immer im Fehlerbereich der tatsächlich verwendeten Resultate, allerdings ergeben sich systematisch kleinere Werte. Die Ergebnisse der Inversion vom Typ 1 (schwarze Kreise) liegen bis auf den 20. und 21. Oktober (DOY 294 und 295) ebenfalls im Toleranzbereich der akzeptierten Resultate der Inver-

¹²Hierbei handelt es sich um den Mittelwert der Konzentration von schwarzem Kohlenstoff (*engl.*: black carbon, BC), Wasser und nichtabsorbierendem Material aus mehreren Messungen mit einem Micro-Orifice Uniform Deposit Impactor (MOUDI).

¹³Die Bestimmung eines Partikelspektrums mit einem Twin Differential Mobility Particle Sizer (TDMPS) dauert etwa 15 Minuten.

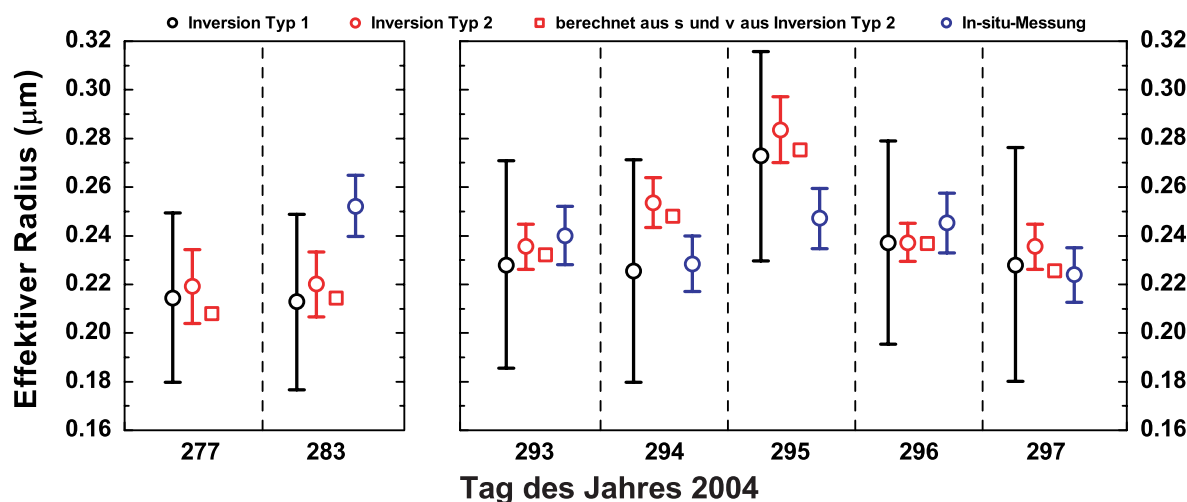


Abbildung 24: Effektiver Radius aus den Inversionsrechnungen und aus In-situ-Messungen am Boden.

sion Typ 2 (rote Kreise), weisen aber einen wesentlich größeren Fehler auf als diese. Hier wird deutlich, dass die Verwendung von Rückstreudaten zu einer Verbesserung des Ergebnisses führt. Die Ursache der Abweichung der Ergebnisse am 20. und 21. Oktober liegt wahrscheinlich an einer schlechten Kombinierbarkeit der Messungen von SPM und Lidar. Dies kann für den 21. Oktober durch den großen zeitlichen Abstand zwischen beiden Messungen erklärt werden. Generell wird, auch ohne die großen Fehler der Inversion Typ 1 einzubeziehen, eine gute Übereinstimmung der effektiven Radien aus beiden Inversionsmethoden gefunden. Es ist aber zu erkennen, dass die effektiven Radien, die mittels Inversion Typ 1 bestimmt wurden, systematisch kleiner sind als die Resultate der Inversion Typ 2. Dennoch können die r_{eff} aus der Inversion Typ 1 als zuverlässig angenommen werden. Für die später folgende Auswertung der Ergebnisse der Messungen in Peking ist eine derartige Einschätzung von großer Bedeutung, da für diese Messungen weniger günstige Verhältnisse vorlagen und sich nur wenige Tage für eine Inversion vom Typ 2 eigneten. Die Inversionsergebnisse der in Xinken gewonnenen optischen Daten der Luftsäule zeigen für den effektiven Radius eine sehr gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen der am Boden durchgeführten In-situ-Messungen.

Für den zuvor ausführlich besprochenen Zeitraum vom 19. bis 23. Oktober wurden vergleichsweise große Partikel mit effektiven Radien von $r_{\text{eff}} = 0.22\text{--}0.28 \mu\text{m}$ gefunden. Diese Radien sind auch im Vergleich zu Ergebnissen aus Messungen in Europa ($r_{\text{eff}} = 0.15 \mu\text{m}$, Müller et al. 2002a) und der INDOEX-Kampagne ($r_{\text{eff}} = 0.20 \mu\text{m}$, Müller et al. 2003) relativ groß. Die großen Partikelradien lassen auf einen hohen Anteil an groben Partikeln wie z.B. Straßenstaub, resultierend aus der regen Bautätigkeit in der Region, schließen. In Anbetracht der Tatsache, dass die In-situ-Messungen am Boden nur einen Punkt betrachten, Lidar und SPM dagegen die ganze Säule, und die jeweiligen Messungen zudem zeitlich verschoben sind, fällt der Vergleich der Ergebnisse bemerkenswert gut aus. Die vorliegenden Luftmassen an den betrachteten Tagen waren sehr gut durchmischt. Zudem waren die Aerosolverhältnisse der einzelnen Tage

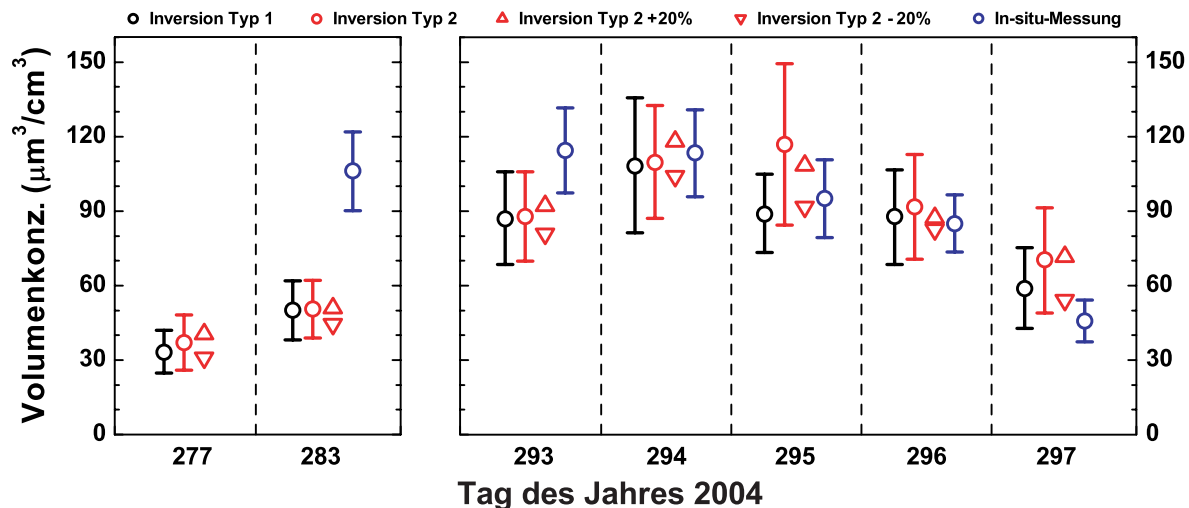


Abbildung 25: Volumenkonzentration aus den Inversionsrechnungen und den In-situ-Messungen am Boden.

sehr konstant, was gut an den Ängström-Exponenten und den Lidarverhältnissen in Abbildung 22 zu erkennen ist.

Abbildung 25 zeigt die Volumenkonzentrationen, die mittels Inversion berechnet und mit den In-situ-Geräten am Boden gemessen wurden. Zur Abschätzung des Fehlers sind nun auch die Ergebnisse der Inversionsrechnungen gezeigt, die mit einem um 20% veränderten Wert von $\beta(381 \text{ nm})$ gestartet wurden. Die Werte der Volumenkonzentration schwanken zwischen $v \approx 35 \mu\text{m}^3/\text{cm}^3$ für die sauberen Verhältnisse am Abend des 3. Oktobers und $v \approx 60\text{--}110 \mu\text{m}^3/\text{cm}^3$ für den Zeitraum vom 19. bis 23. Oktober, an dem die Dunstglocke über dem PRD lag. Auch hier zeigt sich eine gute Übereinstimmung der Ergebnisse der verschiedenen Methoden. Das ist nach den Resultaten der effektiven Radien allerdings wenig verwunderlich, da diese aus der Anzahl- und der Volumenkonzentration berechnet werden. Bei einer guten Übereinstimmung von r_{eff} sollte also auch eine gute Übereinstimmung der verschiedenen Konzentrationen vorliegen.

In Ergänzung zu Abbildung 25 sind in Abbildung 26 die Volumenverteilungen aus Inversion und In-situ-Messung gezeigt. Entsprechend der guten Übereinstimmung der Volumenkonzentrationen zeigt auch der Vergleich der Volumenverteilungen eine gute Übereinstimmung. Die mittels Inversion bestimmten Volumenverteilungen zeigen keine Partikel mit $r < 50 \text{ nm}$ aufgrund der Festlegung der unteren Grenze des Inversionsfensters (siehe Tabelle 1). Stattdessen zeigen die mittels Inversion bestimmten Volumenverteilungen eine relativ hohe Konzentration großer Partikel. Auch hier ist zu sehen, dass die Verwendung von Rückstreudaten in der Inversion Typ 2 eine bessere Übereinstimmung mit den tatsächlich gemessenen Verteilungen ergibt. Die Ergebnisse der Inversion vom Typ 1 zeigen fälschlicherweise ein zweites Maximum bei einem Radius von etwa 800 nm. Die Verteilungen der In-situ-Messungen zeigen eine systematische Verschiebung zu größeren Modenradien. Dies lässt sich auch damit erklären, dass am Boden eine höhere Konzentration von Staub und marinen Partikeln vorlag als in der Säule.

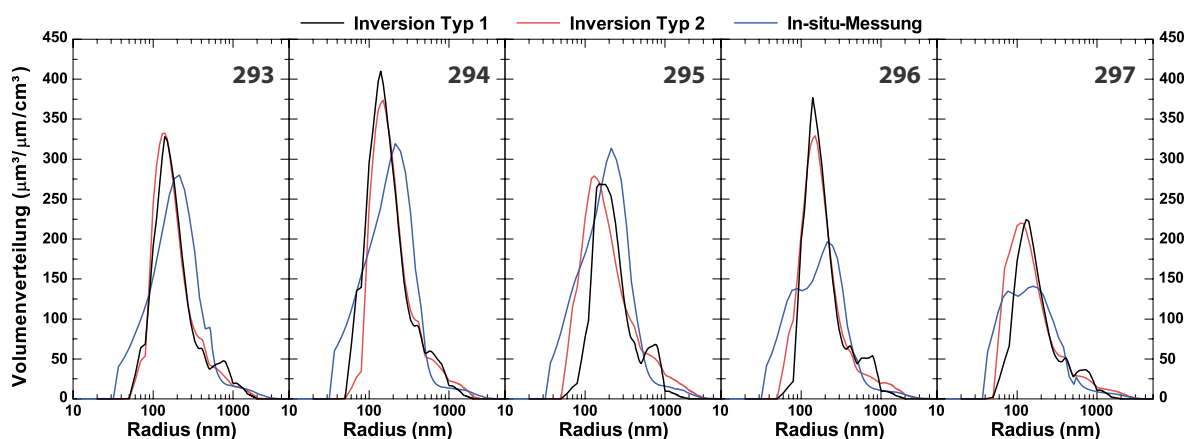


Abbildung 26: Volumenverteilungen aus Inversion und In-situ-Messung im Zeitraum vom 19. bis 23. Oktober (DOY 293–297).

Abbildung 27 zeigt die ermittelten Werte der Einfachstreueralbedo. Zu sehen sind die Resultate der Miestreurechnungen unter Verwendung der Ergebnisse der verschiedenen Varianten der Inversion Typ 2 und der In-situ-Messungen. Für die Inversion Typ 2 ergibt sich die Einfachstreueralbedo als Mittelwert der 11 ungestörten Rechnungen. Deren Standardabweichung bestimmt den Fehlerbalken. Um die Fehler in der Bestimmung der Rückstreuoeffizienten bei der Wellenlänge $\lambda = 381 \text{ nm}$ abzuschätzen, wurde die in Abschnitt 2.2.4 beschriebene Störungsrechnung durchgeführt. Die Ergebnisse der Inversionsrechnungen mit den um 20% variierten $\beta(381 \text{ nm})$ liegen deutlich im Bereich der Fehlerbalken der ungestörten Rechnung. Die Werte von $\bar{\omega} = 0.76 \pm 0.03$ sind für alle Tage sehr gering, was auf stark absorbierende Partikel mit einem hohen Kohlenstoffanteil schließen lässt (Cao et al. 2003).

Am 3. Oktober, an dem die saubersten Atmosphärenverhältnisse der Messkampagne auftraten, wurde auch der höchste Wert der Einfachstreueralbedo gefunden. Die an den



Abbildung 27: Einfachstreueralbedo aus den Inversionsrechnungen und aus den auf In-situ-Messungen basierenden Miestreurechnungen.

Tabelle 3: Vergleich der Inversionsergebnisse mit den Resultaten der In-situ-Messungen für den 23. Oktober 2004.

	Inversion		In-situ-Messung und Modell 1
	Typ 2	Typ 1	
$r_{\text{eff}} [\mu\text{m}]$	0.235 ± 0.082	0.228 ± 0.048	0.224 ± 0.011
$v [\mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}]$	70 ± 21	59 ± 16	46 ± 7
$a [\mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}]$	930 ± 250	770 ± 120	610 ± 60
$n [\text{cm}^{-3}]$	6082 ± 3673	3620 ± 1480	–
m_{real}	1.58 ± 0.12	1.59 ± 0.15	$1.48/1.80^a$
m_{imag}	0.021 ± 0.015	0.014 ± 0.012	$0.00/0.54^a$
ω	0.78 ± 0.13	–	0.84

^a Der erste Wert bezieht sich auf die Hülle, der zweite Wert auf den Kern (Ruß) der modellierten Partikel. Im Verlauf der Miestreurechnung ergab sich ein, von der Partikelgrößenverteilung abhängiger, resultierender komplexer Brechungsindex entsprechend der Volumenanteile der verschiedenen Bestandteile.

anderen Tagen aufgetretenen Werte von $\omega < 0.8$ sind sehr gering und liegen teilweise deutlich unter bisher gefundenen Werten für verschmutzte asiatische Aerosolpartikel (Müller et al. 2002b; Bergin et al. 2001; Anderson et al. 2003; Kim et al. 2005; Eck et al. 2005). Die auf den Bodenmessungen basierenden Miestreurechnungen führten zu deutlich höheren Werten von $\omega \approx 0.85$.

Eine Ursache für die großen Unterschiede liegt in den unterschiedlichen komplexen Brechungsindizes, die in den Miestreurechnungen der Inversionsdaten und der In-situ-Daten verwendet wurden. In dem auf In-situ-Messungen aufbauenden Modell 1 wurden Aerosolpartikel aus Substanzen mit unterschiedlichen Brechungsindizes konstruiert. Entsprechend der jeweiligen Volumenkonzentration wurden der Brechungsindex von Ruß (bildet den Kern des Partikels, für alle Tage wurde ein konstanter Wert von $m = 1.80 + 0.54i$ verwendet) und der von nichtabsorbierenden Substanzen (bilden die Hülle des Partikels, als Beispiel ergab sich am 23. Oktober ein Wert von $m = 1.48 + 0.00i$) während der Miestreurechnung zu einem resultierenden Brechungsindex kombiniert. Dieser schwankt in Abhängigkeit von den jeweils verwendeten Partikelgrößenverteilungen, wodurch ein exakter Vergleich mit dem entsprechenden Ergebnis der Inversionsrechnungen nicht möglich ist. Die Inversion der optischen Daten des 23. Oktobers führte zu einem mittleren Wert des komplexen Brechungsindex von $m = 1.58 + 0.02i$. Die Ergebnisse von Inversionsrechnung und In-situ-Messung sowie den anschließenden Miestreurechnungen für den 23. Oktober sind in Tabelle 3 gezeigt.

Ein Vergleich der Mittelwerte der Resultate von Inversion und In-situ-Messung ist in Tabelle 4 gezeigt. Es ist zu erkennen, dass die Ergebnisse der Inversion Typ 2 im Vergleich zu denen der Inversion Typ 1 zwar mit einem größeren Fehler behaftet sind, aber der Mittelwert deutlich näher an den Ergebnissen der In-situ-Messungen liegt. Der größere Fehler entsteht dadurch, dass die Inversion schnell zu instabilen Lösungen neigt, sobald man Rückstreudaten als Eingangswerte verwendet (Müller et al. 1999b; Veselovskii et al. 2002). Der Fehler einer falschen Bestimmung des Rückstreuoeffizienten

Tabelle 4: Vergleich der Inversionsergebnisse mit den Resultaten der In-situ-Messungen; Mittelwert für die Tage der Messungen in Xinken, für die optische Daten invertiert wurden. Die Darstellung ist analog zu Tabelle 3.

	Inversion		In-situ-Messung und Modell 1
	Typ 2	Typ 1	
$r_{\text{eff}} [\mu\text{m}]$	0.241 ± 0.068	0.231 ± 0.042	0.240 ± 0.012
$v [\mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}]$	81 ± 20	73 ± 17	93 ± 14
$a [\mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}]$	1010 ± 200	970 ± 130	1160 ± 120
$n [\text{cm}^{-3}]$	4870 ± 2630	4520 ± 1874	–
m_{real}	1.57 ± 0.11	1.60 ± 0.13	1.43/1.80
m_{imag}	0.022 ± 0.015	0.015 ± 0.013	0.00/0.54
ω	0.77 ± 0.12	–	0.84

enten bei einer Wellenlänge von $\lambda = 381$ nm kann nicht für die Abweichung zu den aus den In-situ-Messungen abgeleiteten Daten verantwortlich gemacht werden. Wie zuvor gezeigt wurde, liegen die Resultate der gestörten Rechnungen deutlich im Bereich des Fehlers der ungestörten Rechnungen.

3.2 Peking

Nach Beendigung der PRD-Messkampagne wurden die in Xinken eingesetzten Geräte nach Peking (39.9° N, 116.3° O) im Nordosten der Volksrepublik China transportiert. Dort fanden nach einer dreimonatigen Pause vom 7. bis 24. Januar 2005 weitere Messungen mit dem Ramanlidar, dem Sonnenphotometer und den In-situ-Instrumenten statt. Die Resultate dieser Kampagne werden im nun folgenden zweiten Teil der Auswertung vorgestellt.

Die Stadtprovinz Peking liegt am nordwestlichen Rand der dicht bevölkerten Nordchinesischen Tiefebene und ist im Norden und Westen von den Bergen des Mongolischen Plateaus umgeben. Die Bevölkerung der rasant wachsenden Stadt wird auf 14 Millionen Einwohner geschätzt, diese Zahl ändert sich aber ständig. Das Aerosol in den Städten Nordchinas setzt sich aus sekundären Partikeln, die sich aus den Emissionen von Fahrzeugen und Industrie bilden, den Produkten von industrieller Verbrennung und Heizung (Hausbrand) sowie Staub zusammen (Ning et al. 1996; Sun et al. 2004). Bei letzterem handelt es sich sowohl um Mineralstaub, der aus den westlich Pekings gelegenen Wüsten Gobi und Taklamakan herantransportiert wird (Sugimoto et al. 2003; Shimizu et al. 2004), als auch um Straßenstaub und Staub, der aus der regen Bautätigkeit auf dem Gebiet der Stadt resultiert. Kohle stellt den wichtigsten Energieträger in China dar. Dementsprechend stellt die Kohleverbrennung — vor allem in der Zeit der langen Heizperiode von Mitte Oktober bis Mitte März (Streets et al. 2003) — die wichtigste Quelle des atmosphärischen Aerosols in den Städten Nordchinas dar. Aufgrund der in den letzten Jahren steigenden Anzahl von Fahrzeugen im Stadtgebiet ist der Anteil der aus Verkehrsabgasen entstandenen Partikel stark gestiegen (Sun et al. 2004;

Shi et al. 2003). Als eine Konsequenz ist auch in Nordchina ein Anstieg der optischen Dicke zu beobachten (Qiu und Yang 1999; Luo et al. 2001).

Seit etwa 1990 wurden Maßnahmen zur Verbesserung der Luftqualität in Peking angestrengt. Dazu gehörten die Verbrennung schwefelarmer Kohle, das Ersetzen von Kohle durch Erdgas, die Einführung von unverbleitem Kraftstoff und die Umsiedlung der Schwerindustrie weg vom Gebiet der Stadt (Sun et al. 2004). Wüstenstaub und die Produkte der Verbrennung von Kohle sind typisch für das Aerosol in Peking und führen dazu, das sich dieses stark von den Verhältnissen in westlichen Städten unterscheidet (Shi et al. 2003).

Die Messstation befand sich auf dem Gelände der Peking University (PKU). Diese liegt etwa sieben Kilometer nordwestlich des Stadtzentrums¹⁴ in der Nähe der Vierten Ringstraße.¹⁵ Es wurde an 10 Tagen mit dem Ramanlidar und an 13 Tagen mit dem Sonnenphotometer gemessen. Zeitgleiche Messungen liegen an acht Tagen vor. Da für Peking nicht so viele Messtage wie für Xinken zur Verfügung stehen, wurde für die Auswertung der Messungen in Peking jeder zweistündige Mittelwert der nächtlichen Lidarmessungen verwendet. Somit ergeben sich 54 Einzelmessungen mit dem Lidar. Dazu werden 77 einstündige Mittelwerte der Messung mit dem Sonnenphotometer betrachtet.

Nachfolgend wird analog zur Auswertung der Messungen in Xinken vorgegangen. Nach der Beschreibung der meteorologischen Verhältnisse während der Messkampagne folgt ein Überblick über die Ergebnisse, bevor einzelne Zeitabschnitte genauer betrachtet werden. Das Kapitel schließt mit den Resultaten der auch hier durchgeführten Inversionsrechnungen.

3.2.1 Meteorologische Bedingungen

Das Klima in Peking ist sehr kontinental geprägt. Die kalten und trockenen Winter dauern von Ende November bis Mitte März. Die Luft wird in dieser Zeit meist über Sibirien und das Mongolische Plateau von Norden bzw. Nordwesten herangeführt, wobei recht hohe Windgeschwindigkeiten auftreten können. Der Frühling (März bis Mai) äußert sich in steigenden Temperaturen und vereinzelt Schauern. In diese Zeit fällt die Staubsaison, in der Staubfahnen aus den Wüsten Gobi und Taklamakan bis nach Peking transportiert werden (Sugimoto et al. 2003; Shimizu et al. 2004). Die Sommer sind dagegen heiß und feucht. Der Südostmonsun sorgt dafür, dass etwa 70% der jährlichen Niederschlagssumme in den Sommermonaten fallen. In dieser Jahreszeit nimmt die sonst sehr geringen Luftfeuchte deutlich zu. Der Herbst von September bis Anfang November ist gekennzeichnet durch moderate Temperaturen, wenig Regen und geringe Windgeschwindigkeiten.

¹⁴In einer Megacity wie Peking existiert kein eigentliches Zentrum. Mit Stadtzentrum ist hier der historische Kern, also die verbotene Stadt, gemeint.

¹⁵Aufgrund der ringförmigen Struktur der Stadt ist dies die üblicherweise verwendete Form der Entfernungsangabe. Zur Zeit wird die Fünfte Ringstraße fertiggestellt.

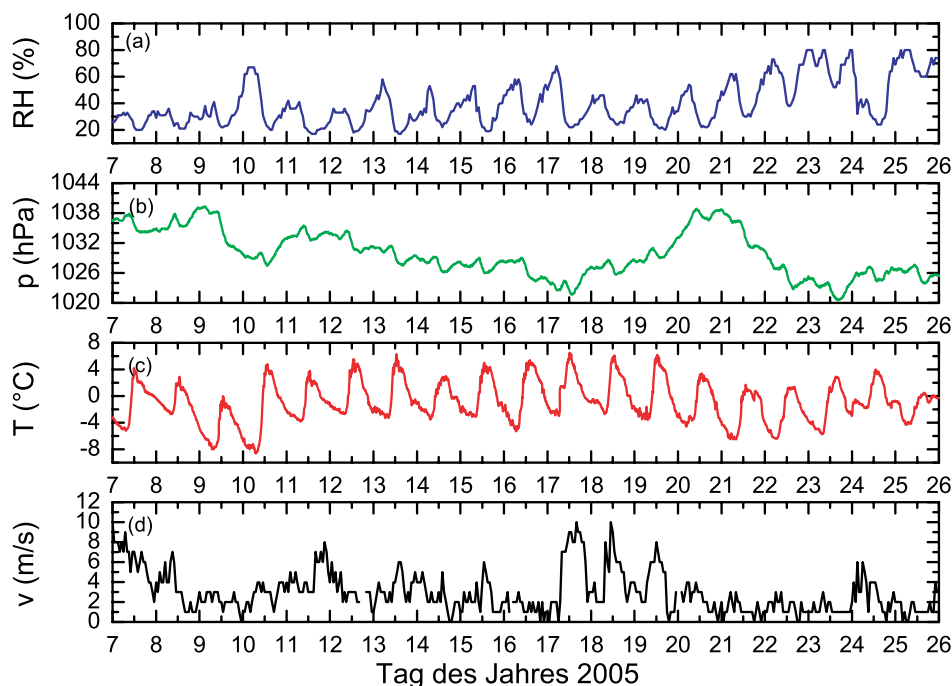


Abbildung 28: Relative Feuchte, Druck, Temperatur und Windgeschwindigkeit (von oben) für den Messzeitraum in Peking.

Die Verhältnisse im Januar 2005 entsprechen denen eines typischen Winters in Peking. Mit einer Durchschnittstemperatur von -3 °C war der Januar des Jahres 2005 jedoch etwas zu warm (klimatologisches Mittel: -4.3 °C ; Quelle: www.hko.gov.hk/wxinfo/climat/world/eng/asia/china/beijing_e.htm). Die Verläufe von relativer Feuchte, reduziertem Luftdruck, Temperatur und Windgeschwindigkeit sind in Abbildung 28 gezeigt. Temperatur und Druck wurden direkt an der Messstation bestimmt. Die weiteren Daten stammen vom Flughafen Peking (www.wunderground.com/global/stations/54511.html). Ein Vergleich der Temperatur- und Druckdaten dieser beiden Stationen zeigt eine sehr gute Übereinstimmung. Demnach können die Messwerte des Flughafens für das Stadtgebiet als gültig angesehen werden. Wie schon in Xinken waren die meteorologischen Verhältnisse auch während dieser Messperiode relativ konstant. Die relative Feuchte lag im Mittel zwischen 20% und 40% und erreichte mit den nächtlichen Tiefsttemperaturen Maximalwerte von 60%. Die auch für die Auswertung der Lidardaten verwendeten Radiosondenaufstiege der Station Peking Flughafen (Stationscode: ZBAA; Quelle: weather.uwyo.edu/upperair/sounding.html) zeigen in allen Höhen sehr trockene Luft. Niederschlag ist in der gesamten Messzeit nicht gefallen (im klimatologischen Mittel für Peking fällt im Januar an weniger als einem Tag Niederschlag), so dass auch in Peking optimale Verhältnisse für Messungen mit Lidar und SPM vorlagen. Der Wind wehte mit mäßiger Geschwindigkeit vorwiegend aus nördlichen Richtungen (Windrichtungen nicht dargestellt) und führte damit trockene und kalte kontinentale Luft heran. Lediglich am 7.–8., 11.–12. und vom 17.–20. Januar lagen die Windgeschwindigkeiten deutlich über dem Mittelwert der Messkampagne von 3 m/s .

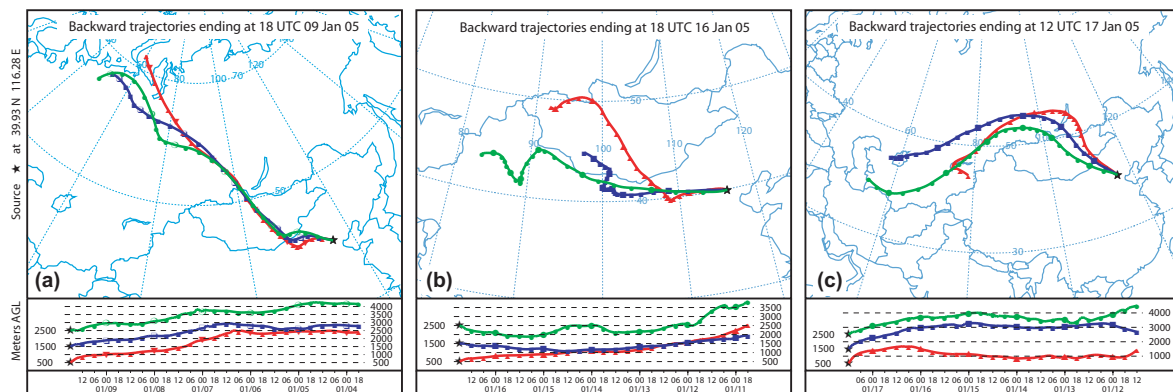


Abbildung 29: Trajektorien der in Peking ankommenden Luftmassen. Nach Xia et al. (2005) können den gezeigten Trajektorienverläufen folgende Aerosolbedingungen zugeordnet werden: (a) Dunst, (b) Wüstenstaub und (c) Hintergrundaerosol.

Abbildung 29 zeigt typische Trajektorien der in Peking ankommenden Luftmassen. In Xia et al. (2005) wurden bestimmte Trajektorienverläufe in Verbindung mit den meteorologischen Verhältnissen und gemessenen Aerosolgrößenverteilungen in Peking untersucht. Die Autoren unterscheiden vier verschiedene Aerosolgegebenheiten: Dunst (Abbildung 29 (a)), Hintergrundaerosol (Abbildung 29 (b)), Staub (Abbildung 29 (c)) und leichten Nebel (das entsprechende Trajektorienmuster ist während der Messkampagne nicht aufgetreten). Die in Xia et al. (2005) aufgestellte Einteilung bezieht sich auf eine Zeitperiode im Frühling, wohingegen die hier besprochene Messperiode in den Winter fällt. Die Ergebnisse der Auswertung zeigen jedoch, dass die in Xia et al. (2005) vorgestellte Einteilung der Trajektorienverläufe in verschiedene Gruppen auch im Winter Gültigkeit zu besitzen scheint.

Wird eine in Peking eintreffende Luftmasse über den östlichen Teil der Mongolei von Nordwesten herangeführt (Abbildung 29 (c)), ist die enthaltene Aerosolladung sehr gering. Dies entspricht einem Hintergrundaerosol; eine unter solchen Anströmungsbedingungen auftretende hohe Aerosolladung ist demnach sehr wahrscheinlich auf regionale Verschmutzung zurückzuführen. Werden die Luftpakete über den südlichen Teil der Mongolei geführt, überqueren sie das Gebiet der Wüste Gobi und nehmen dort Staubpartikel auf, die nun nach Osten transportiert werden (Abbildung 29 (b)). In diesem Fall ist Wüstenstaub in Peking präsent. Vor allem in den Frühlingsmonaten März bis Mai stellt Mineralstaub einen dominanten Aerosoltyp — nicht nur in Peking, sondern in ganz Ostasien (Shimizu et al. 2004) — dar. Der Verlauf der Trajektorien der Dunstage weist einen Knick auf. Die eigentlich aus Nordwesten kommenden Luftpakete erreichen Peking aus Westen bzw. Südwesten und nehmen bei der Überquerung der im Süden von Peking gelegenen Industriegebiete anthropogenes Aerosol auf.

Abbildung 30 zeigt Aufnahmen der zu den in Abbildung 29 gezeigten Trajektorien gehörenden Sichtverhältnisse. Die Bilder entstanden morgens nach Start der Sonnenphotometermessung. Meist war dies gegen 8 Uhr Ortszeit. Das Sonnenphotometer befand sich auf dem Dach eines Gebäudes auf dem Gelände der PKU. Gezeigt ist der Blick nach Norden. Ein Foto vom 17. Januar liegt nicht vor. Die Trajektorien des 25. Januars

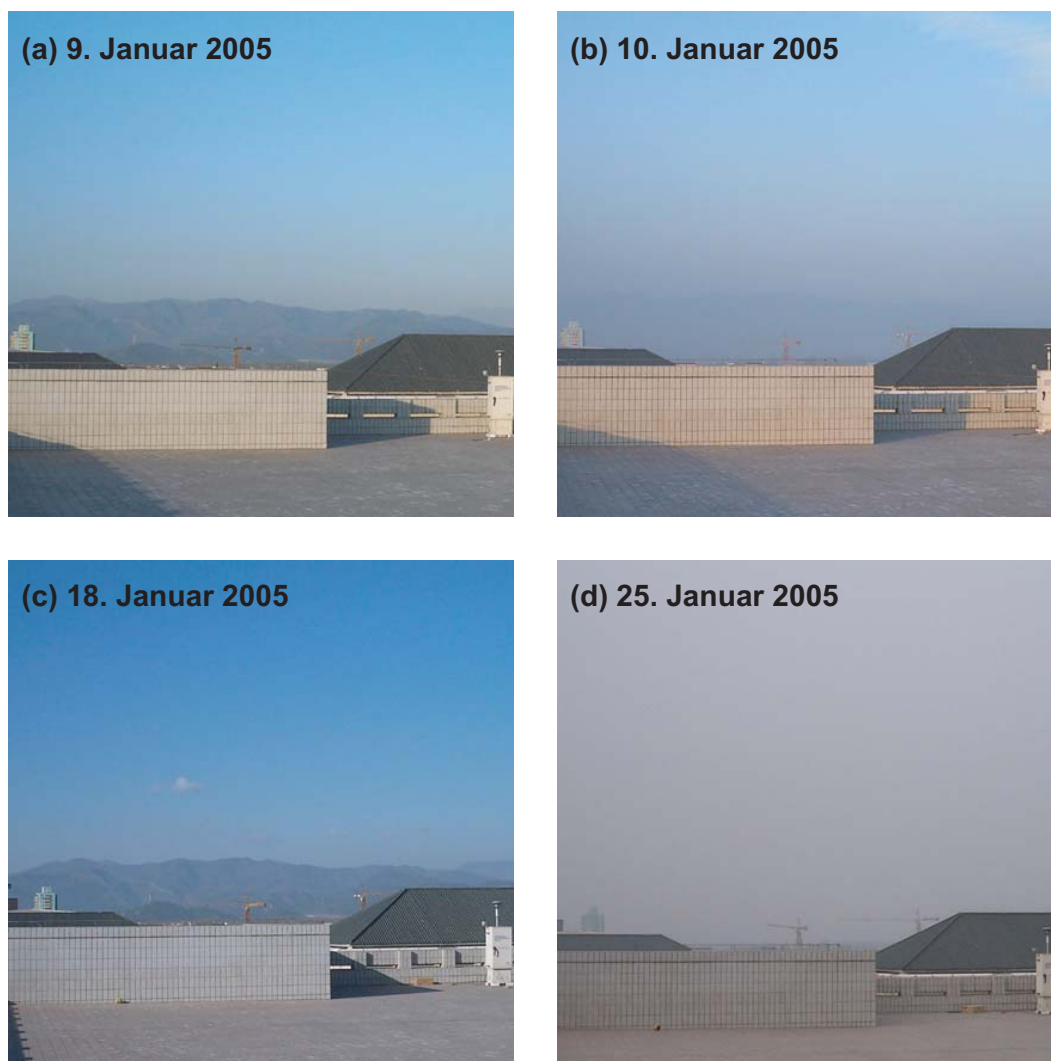


Abbildung 30: Sichtverhältnisse in Peking entsprechend der in Abbildung 29 vorgestellten Trajektorienmuster. Gezeigt ist der Blick nach Norden. Alle Fotos entstanden morgens nach dem Start der Sonnenphotometermessungen. (a) Dunst (eine deutliche Dunstschicht ist über den Bergen zu erkennen); (b) Hintergrund mit Verschmutzung aus lokalen Quellen; (c) Hintergrund, sauber und (d) Wüstenstaub.

zeigen allerdings einen ähnlichen Verlauf und auch die Sichtverhältnisse an diesem Tag waren denen vom 17. Januar sehr ähnlich.

Saubere Verhältnisse (18. Januar, Hintergrund ohne Verschmutzung) sind in Teilbild 30 (c) gezeigt. Die im Norden von Peking gelegenen Jundu-Berge sind deutlich zu erkennen. In Teilbild (a) (9. Januar, Dunst) ist eine bräunliche Dunstschicht über der Bergkette zu erkennen, wohingegen in (b) (10. Januar, Hintergrund mit Verschmutzung) die Berge nicht mehr zu sehen sind. Am 25. Januar (Staub) sank die Sichtweite so weit, dass auch die sonst gut sichtbaren Kräne und das Gebäude am linken Bildrand (in etwa 1 km Entfernung) in Teilbild (d) nur zu erahnen sind.

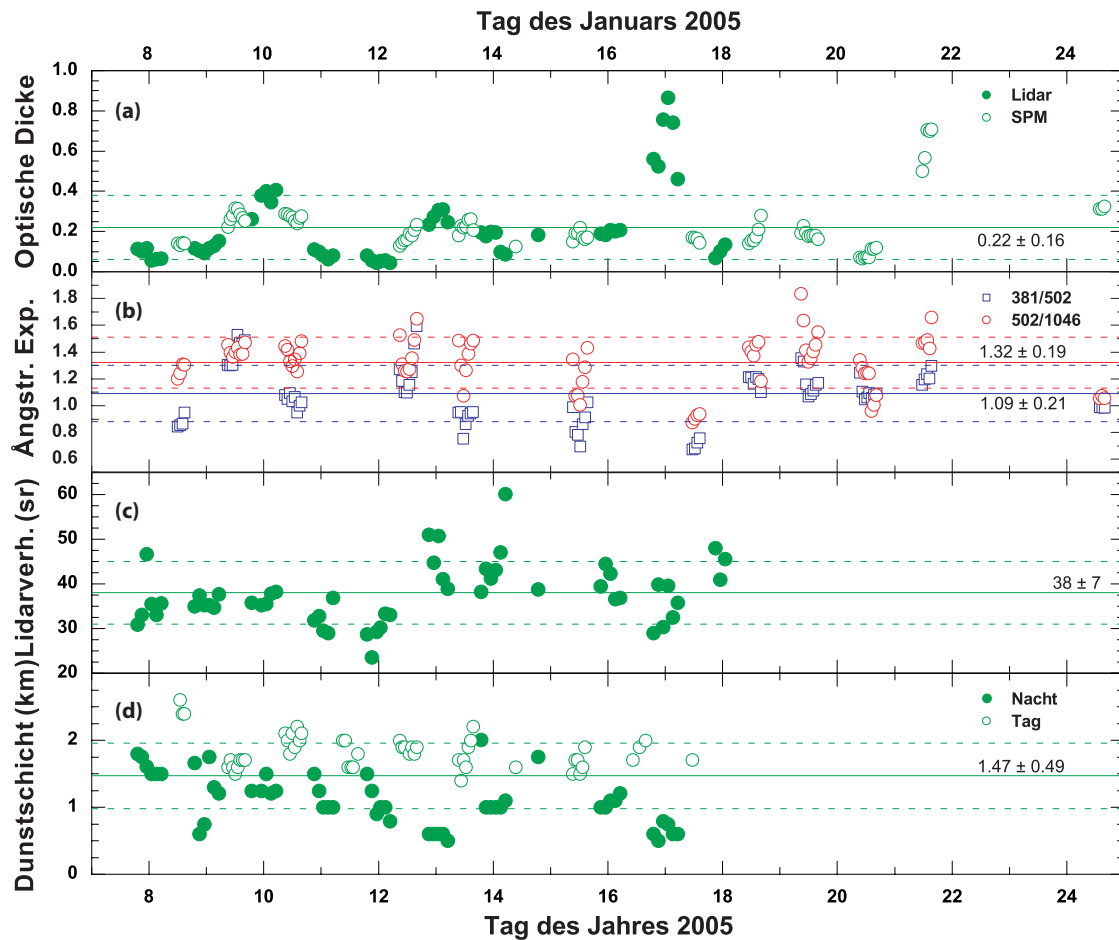


Abbildung 31: Zeitreihen (a) der optischen Dicke, (b) der Ångström-Exponenten im Wellenlängenbereich 381/502 nm und 502/1046 nm, (c) des Lidarverhältnisses und (d) der Höhe der Dunstschicht für den Zeitraum der Messungen vom 7. bis 25. Januar 2005 (DOY 7–25) in Peking. Die durchgezogene Linie entspricht dem Mittelwert der jeweiligen Größe, die gestrichelten Linien der Standardabweichung.

3.2.2 Optische Aerosoleigenschaften

Übersicht Abbildung 31 zeigt die Verläufe und mittleren Werte der optischen Dicke, der Ångström-Exponenten, des Lidarverhältnisses und der Dunstschichthöhe für die Messungen in Peking im Januar 2005. Im Gegensatz zu den Messungen in Xinken ist die optische Dicke wesentlich geringer. Der Januar stellt den Monat mit den geringsten Werten von τ in Peking dar (Li und Lu 1997; Qiu und Yang 1999; Eck et al. 2005). Der Mittelwert von $\tau = 0.22 \pm 0.16$ liegt deutlich unter dem in Xinken gefundenen Mittelwert. Zudem wird dieser Wert durch zwei Phasen mit besonders hoher optischer Dicke (die Nacht zum 17. Januar und der 21. Januar) angehoben. Diese zwei Phasen sorgen für die große Standardabweichung. Am 22. und 23. Januar muss die optische Dicke ähnlich hoch oder höher als am 21. Januar gewesen sein. An diesen Tagen war das Sonnenphotometer nicht in der Lage, die Sonne zu finden und deren Lauf automatisch zu folgen. Demnach liegen keine Werte der optischen Dicke vor. Der Mittelwert der op-

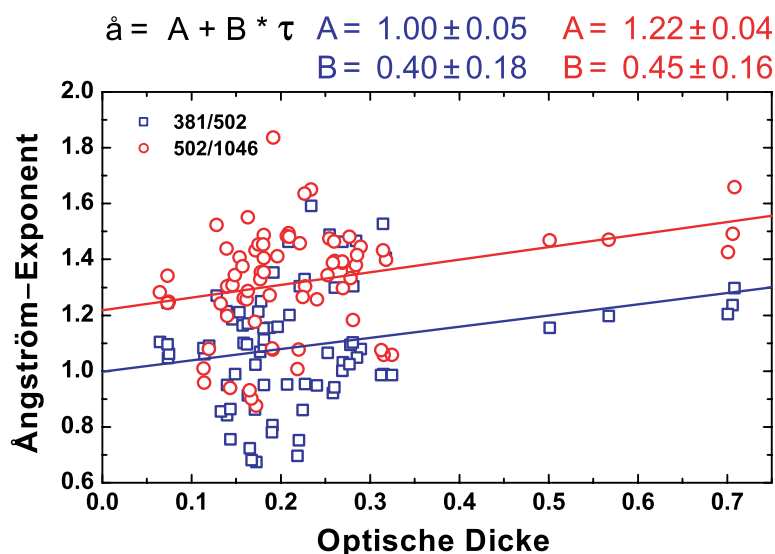


Abbildung 32: Korrelation der Ångström-Exponenten mit der optischen Dicke. \hat{a}_i und \hat{a}_k sind positiv mit τ korreliert.

tischen Dicke im Januar für den Zeitraum 1980–1994 liegt bei $\tau = 0.31$ (Qiu und Yang 1999). In Eck et al. (2005) werden Ergebnisse der optischen Dicke bei der Wellenlänge $\lambda = 500$ nm für den Januar 2003 gezeigt. Der Mittelwert liegt bei $\tau = 0.42$, aber der Verlauf der optischen Dicke zeigt, dass auch hier der Mittelwert durch einzelne Fälle mit einer extrem hohen optischen Dicke von $\tau \approx 1.5$ – 2 angehoben wird. Einhergehende geringe Werte der Ångström-Exponenten lassen vermuten, dass bereits im Januar vereinzelt Wüstenstaub nach Peking transportiert wird.

Die Ångström-Exponenten sind für beide Wellenlängenbereiche größer als in Xinken und betragen im Mittel $\hat{a}_k = 1.09 \pm 0.21$ und $\hat{a}_i = 1.32 \pm 0.19$. Bis auf den 9., den 17. und den 24. Januar entsprachen die täglichen Verhältnisse gut dem Mittelwert. Die genannten Tage fallen dadurch auf, dass die Ångström-Exponenten beider Wellenlängenbereiche nahe beieinander lagen. Am 9. Januar waren sie relativ groß, was auf verhältnismäßig kleine Partikel schließen lässt, wohingegen sie an den beiden anderen Tagen — vor allem am 17. Januar — unter dem Durchschnitt lagen. An diesen Tagen lagen demnach verhältnismäßig große Partikel vor. Die Phasen 9. und 10. Januar, 12. und 13. Januar sowie der 17. Januar werden später genauer untersucht.

Abbildung 32 zeigt die Korrelation zwischen der optischen Dicke und den Ångström-Exponenten. Auch hier ist ein Unterschied zu den Messungen in Xinken zu erkennen. Beide Ångström-Exponenten sind positiv mit der optischen Dicke korreliert. Im Gegensatz zu den Verhältnissen in Xinken wurde die Zunahme der optischen Dicke in Peking auch durch eine Zunahme der Konzentration relativ kleiner Partikel verursacht. Weitere Korrelationen wurden nicht gefunden.

Das mittlere Lidarverhältnis von $S = 38 \pm 7$ sr war im Vergleich zu den Messungen in Xinken kleiner, allerdings erstreckten sich die gefundenen Werte von $S = 25$ – 60 sr über einen größeren Bereich als in Xinken. Das kleinere Lidarverhältnis in Verbin-

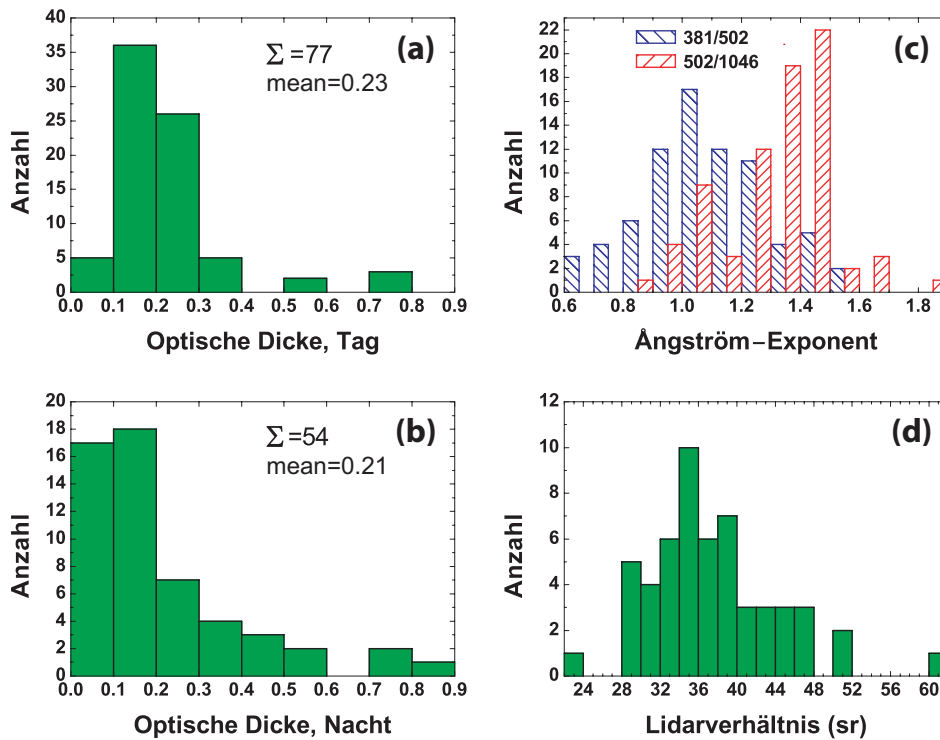


Abbildung 33: Histogramme der optischen Dicke für (a) die Messungen mit SPM und (b) mit Lidar, (c) der Ångström-Exponenten und (d) des Lidarverhältnisses.

Die hohen Ångström-Exponenten deuten darauf hin, dass die Partikel in Peking im Mittel weniger absorbierend waren als in Xinken. Ein Grund könnte in der vorliegenden Anströmung liegen. Da der Wind die meiste Zeit aus nördlichen Richtungen wehte und sich die Messstation im nordwestlichen Teil der Stadt befand, sich die großen Industriegebiete der Stadt allerdings im Süden befinden, war der Einfluss der lokalen Verschmutzung eher gering. Stattdessen traf hauptsächlich relativ saubere und unbeeinflusste Luft aus der Mongolischen Hochebene ein.

Die Höhe der Dunstschicht betrug im Mittel 1.5 ± 0.5 km. Am Tag wurden üblicherweise Höhen von etwa 2 km erreicht. In der Nacht kam es vor, dass die Dunstschicht bis auf eine Höhe von 500 m zusammenfiel. Die Höhe der Oberkante der Dunstschicht zeigt in der Nacht eine stärkere Variation als am Tag.

Die zur Zeitserie gehörigen Histogramme der optischen Dicke, der Ångström-Exponenten und des Lidarverhältnisses sind in Abbildung 33 gezeigt. Der am häufigsten aufgetretene Wert stimmt meist mit dem jeweiligen Mittelwert der Zeitreihe überein. Lediglich die nächtlichen optischen Dicken (Abbildung 33 (b)) zeigen eine Abweichung. Die Mittelwerte von τ der Tages- und Nachtmessungen stimmen gut überein, allerdings zeigen die nächtlichen Lidarmessungen eine sehr hohe Anzahl (etwa 65%) von Werten unter dem Mittel der Zeitreihe. Diese Tendenz ist auch in Abbildung 31 (a) deutlich zu erkennen. Diese Verschiebung der Werte der optischen Dicke ist womöglich auf das gesteigerte Verkehrsaufkommen am Tag zurückzuführen.

9. und 10. Januar 2005 Der 9. und der 10. Januar fallen durch sehr konstante optische Dicken der täglichen Sonnenphotometermessungen auf. Die Resultate der Messungen sind in Abbildung 34 gezeigt. Die Tageswerte von τ und auch die Lidarverhältnisse entsprechen etwa den Mittelwerten der Zeitreihe. Auch die Ångström-Exponenten am 10. Januar entsprechen sehr gut dem Mittelwert. Am 9. Januar ist ein Zunahme der optischen Dicke in den Morgenstunden zu erkennen. Diese wurde durch relativ kleine Partikel verursacht. Wie zuvor erwähnt, ist diesem Tag entsprechend des Verlaufs der Trajektorien der Aerosolzustand Dunst zuzuordnen. Der Wind drehte im Verlauf des Tages nach Süden und begünstigte den Herantransport neu entstandener Partikel aus den südlich von Peking gelegenen Industriegebieten und dem Gebiet der Stadt. Wie die Lidarmessungen der Morgenstunden des 9. Januars zeigen (Abbildung 34 (1) und (2)), trafen diese Partikel in einer abgehobenen Schicht am Messort ein. Der Extinktionskoeffizient erreichte innerhalb dieser Schicht Werte von bis zu 150 Mm^{-1} , das entspricht mehr als dem Vierfachen der Werte vor Eintreffen der Schicht. Im Verlauf des Tages sank diese Schicht nach unten ab (Abbildung 34 (3) und (4)) und verschwand schließlich in den Morgenstunden des 10. Januars. Das Absinken der Schmutzschicht und die Zunahme der optischen Dicke sind sehr gut im Verlauf des extinktions- und höhenkorrigierten Signals zu erkennen (Abbildung 34 (a)).

Der 10. Januar entspricht einem typischen Tag der Messungen in Peking. Die optische Dicke, die Ångström-Exponenten und die Lidarverhältnisse entsprechen den Mittelwerten der gewonnenen Zeitreihe. Lediglich die Höhe der Dunstschicht weist höhere Werte auf, als dies im Mittel der Fall war. Geschuldet ist dies einer ausgeprägten Grenzschichtentwicklung, die in Abbildung 34 (a) deutlich zu erkennen ist. Die Trajektorienanalyse (für die Zeiten 08:00 Uhr, 14:00 Uhr und 20:00 Uhr Ortszeit) dieses Tages deutet auf Hintergrundaerosol hin. Die relativ hohe optische Dicke führt jedoch zu der Vermutung, dass noch kein Luftmassenwechsel stattgefunden hatte und noch Partikel vom Vortag vorhanden waren. Der relativ niedrige Wert von α_k lässt vermuten, dass eine große Anzahl gealterter anthropogener Partikel vorlag. Gegen Abend dieses Tages nahm die optische Dicke dann stark ab und die entsprechenden Lidarmessungen zeigen, dass die am Tag zuvor herantransportierte Schmutzschicht nun verschwunden war (Abbildung 34 (5)).

12. und 13. Januar 2005 Auch die Trajektorien des 12. und 13. Januars lassen auf Hintergrundaerosol schließen. Die Ergebnisse der Messungen dieser Tage sind in Abbildung 35 gezeigt. Zu Beginn des 12. Januars war der Wert der optischen Dicke noch sehr gering. In der Nacht zuvor sorgten Windgeschwindigkeiten von $>6 \text{ km/h}$ offensichtlich dafür, dass die lokale Verschmutzung wegtransportiert und durch saubere Luft aus Norden ersetzt wurde (siehe auch Abbildung 28 (d)). Mit Beginn des Tages nahm die Windgeschwindigkeit ab, was eine Ansammlung lokalen Aerosols begünstigte. Als Konsequenz stieg die optische Dicke im Verlauf des Tages an. Auch die Ångström-Exponenten zeigen einen markanten Tagesgang, der im Messzeitraum häufiger beobachtet wurde. Demnach lagen um die Mittagszeit deutlich mehr große Partikel vor, als dies in den Morgen- und Abendstunden der Fall war.

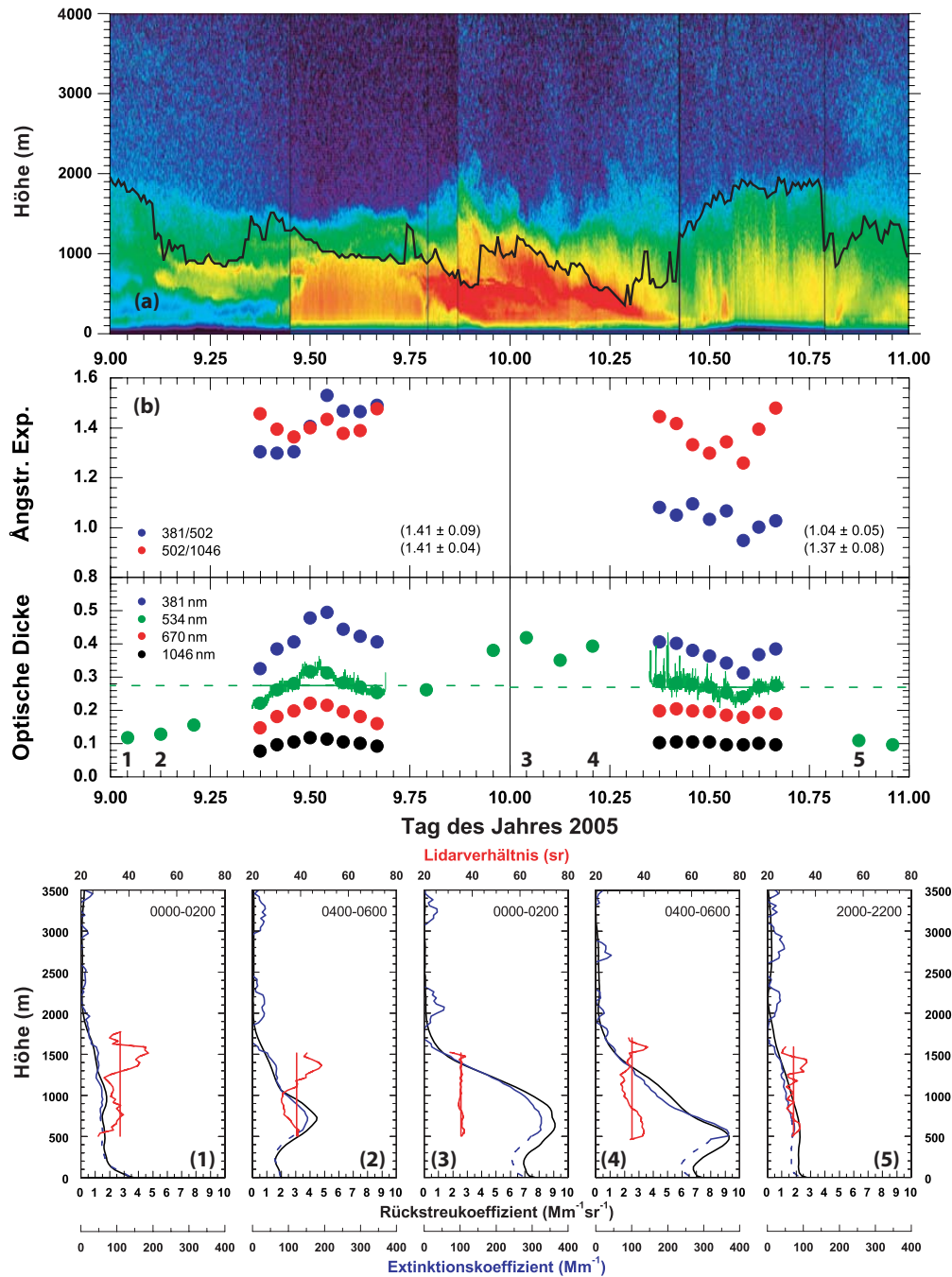


Abbildung 34: Peking, 9. und 10. Januar 2005. Die Graphen sind analog zu Abbildung 17. (1) 9.01., 00:00–02:00 Uhr; (2) 9.01., 04:00–06:00 Uhr; (3) 10.01., 00:00–02:00 Uhr; (4) 10.01., 04:00–06:00 Uhr; (5) 10.01., 20:00–22:00 Uhr.

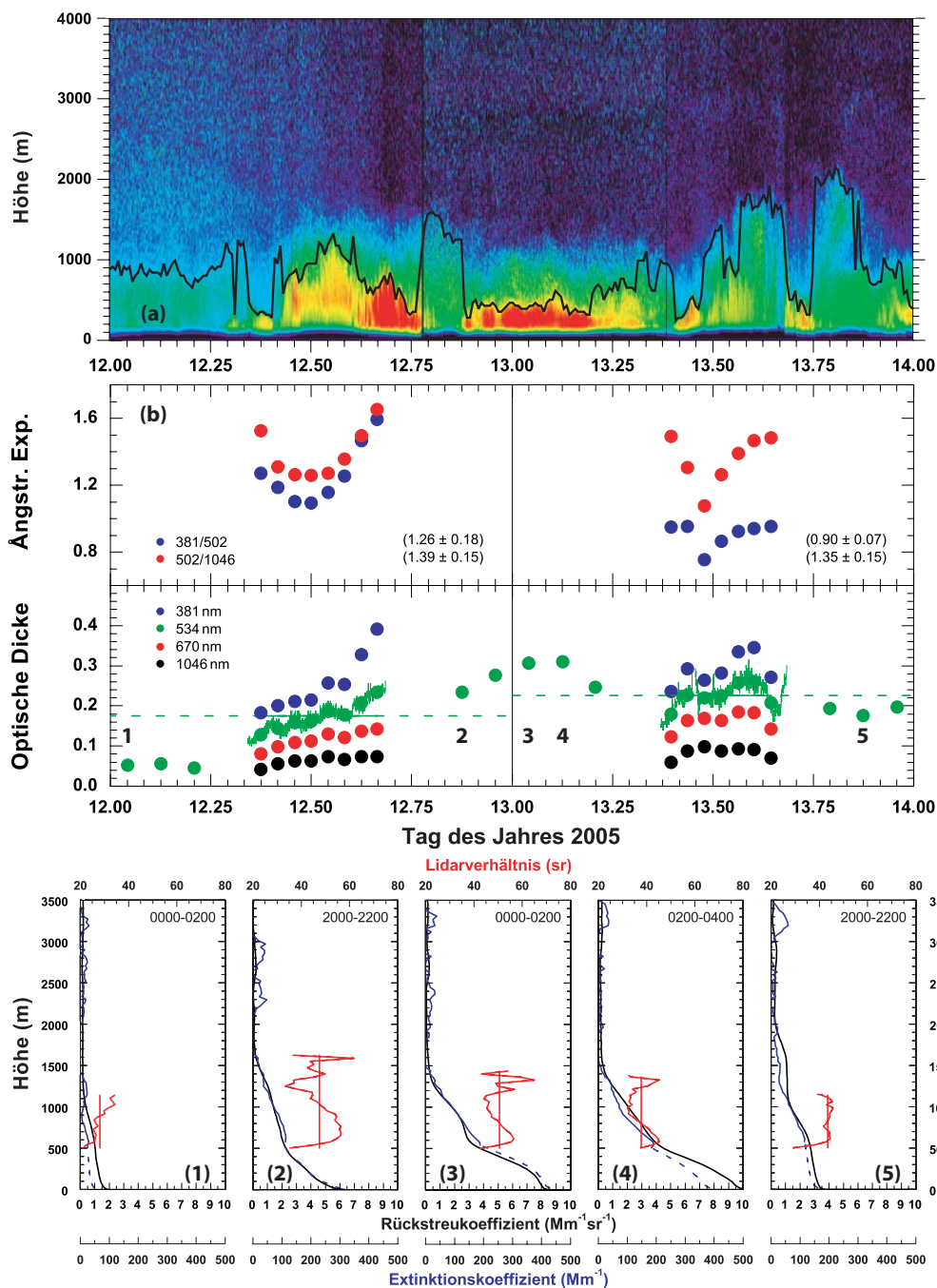


Abbildung 35: Peking, 12. und 13. Januar 2005. Die Graphen sind analog zu Abbildung 17. (1) 21.01., 00:00–02:00 Uhr; (2) 12.01., 20:00–22:00 Uhr; (3) 13.01., 00:00–02:00 Uhr; (4) 13.01., 02:00–04:00 Uhr; (5) 13.01., 20:00–22:00 Uhr.

In der Nacht zum 13. Januar sorgte die niedrige Grenzschicht mit einer Höhe von etwa 500 m für eine sehr hohe Aerosolkonzentration in Bodennähe. Die nächtliche Zunahme der Aerosolkonzentration am Boden ist in einer Zunahme des Extinktionskoeffizienten in den Lidarmessungen dieser Nacht (Abbildung 35 (2), (3) und (4)) zu erkennen. Der Extinktionskoeffizient erreichte Werte von bis zu 500 Mm^{-1} bei einer optischen Dicke von $\tau \approx 0.3$. Im Verlauf des 13. Januars blieb die optische Dicke konstant, nachdem mit Tagesanbruch die Durchmischung der Atmosphäre für eine Abnahme der Aerosolkonzentration am Boden sorgte. Am Abend waren die Partikel besser in der Säule verteilt, so dass bei einer ähnlichen optischen Dicke wie am Abend zuvor die Extinktionskoeffizienten am Boden wesentlich kleinere Werte um 200 Mm^{-1} annahmen. Auch für diesen Tag ist in Abbildung 35 (a) eine deutliche, wenn auch durchbrochene Grenzschichtentwicklung zu erkennen.

17. Januar 2005 Die Trajektorien am Morgen des 17. Januars zeigen einen Verlauf, der dem Muster Wüstenstaub zugeordnet werden kann. Obwohl der Januar außerhalb der chinesischen Wüstenstaubsaison liegt, zeigen die Messergebnisse in Abbildung 36, dass es sich hier wahrscheinlich um das Eintreffen einer Staubschicht handelte. Die Indizien, die neben den Verläufen der Trajektorien für ein solches Ereignis sprechen, sind deutlich. Zunächst wurde in der Nacht zum 17. Januar die höchste optische Dicke des gesamten Messzeitraums beobachtet. Die Lidarprofile dieser Nacht (siehe Abbildung 36 (1), (2), (3) und (4)) zeigen dementsprechend hohe Extinktionskoeffizienten von bis zu 800 Mm^{-1} . Am Höhenverlauf von β und α ist zu erkennen, dass in einer Höhe von 500 m eine Schicht in das Sichtfeld des Lidars eintrat und im weiteren Verlauf der Nacht zum Boden sank. Weiterhin zeigen die Profile sehr geringe Lidarverhältnisse von 30–40 sr, ein Zeichen für relativ große Partikel.

Mit Tagesanbruch nahm die Windgeschwindigkeit rasch auf Werte von bis zu 10 m/s zu (vergleiche auch Abbildung 28 (d)) und sorgte für einen schnellen Abtransport der Staubfahne. Die optische Dicke am Tag war demnach wesentlich geringer als in der vorhergehenden Nacht. Die anfangs sehr geringen und dann steigenden Ångström-Exponenten sind allerdings ein Indiz dafür, dass noch immer eine große Anzahl relativ großer Partikel vorlag. Die Konzentration kleinerer Partikel nahm erst im Verlauf des Tages zu.

An diesem Tag musste die Blitzlampe des Lasers gewechselt werden. Darum zeigt Abbildung 36 kaum Ergebnisse am Tag. Die Lidarmessungen mussten zudem nach dem 17. Januar aufgrund von Systemproblemen eingestellt werden. Die letzten als zuverlässig anzusehenden Messungen zeigen eine deutliche Abnahme der optischen Dicke im Verlauf des Tages. Der Extinktionskoeffizient am Boden war auf einen Wert von 100 Mm^{-1} gesunken und das Lidarverhältnis wieder angestiegen. Das Foto vom nächsten Morgen (Abbildung 30 (c)) zeigt eine merkliche Besserung der Sichtverhältnisse.

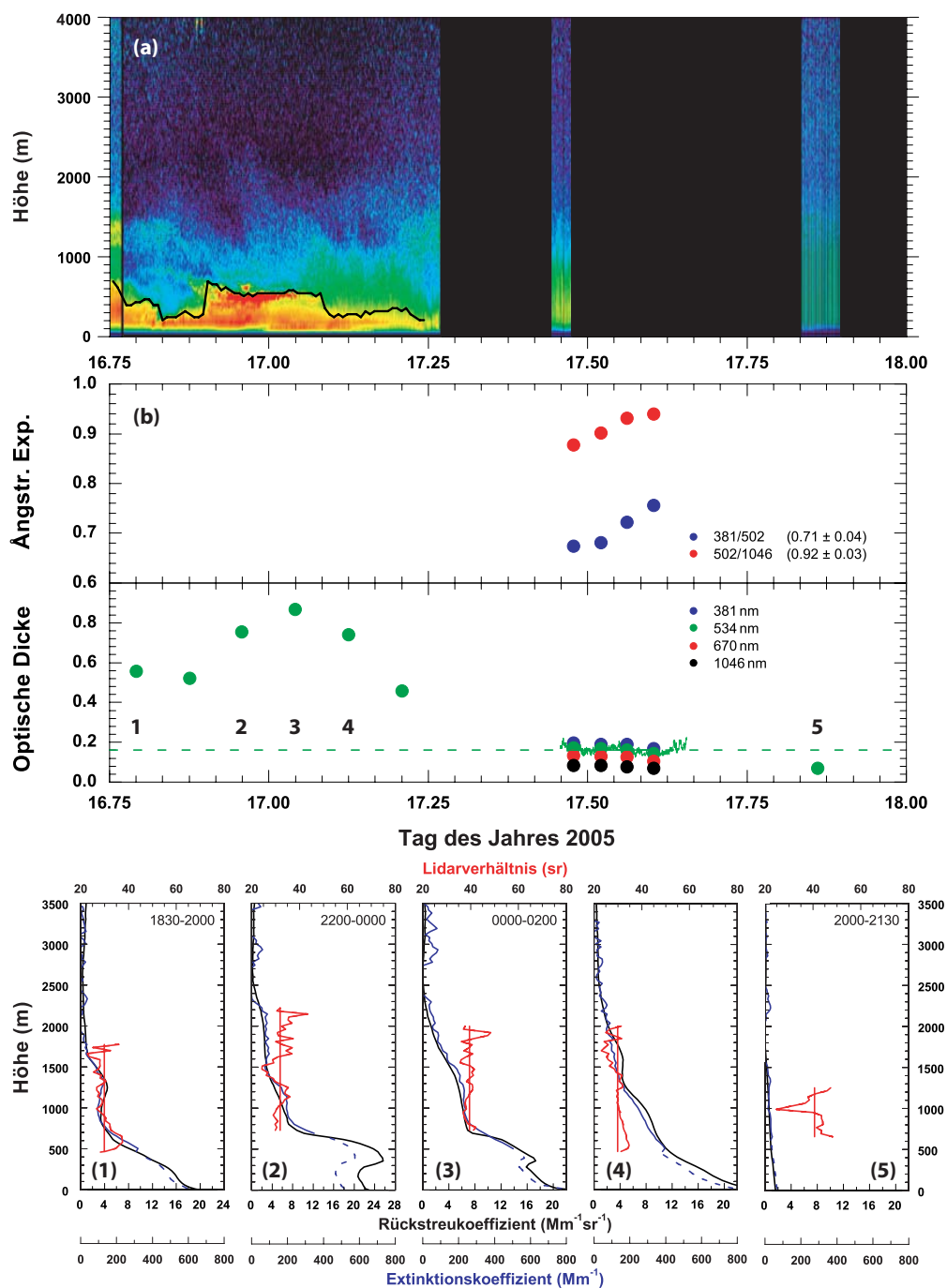


Abbildung 36: Peking, 17. Januar 2005. Die Graphen sind analog zu Abbildung 17. (1) 16.01., 18:30–20:00 Uhr; (2) 16.01., 22:00–00:00 Uhr; (3) 17.01., 00:00–02:00 Uhr; (4) 17.01., 02:00–04:00 Uhr; (5) 17.01., 20:00–21:30 Uhr.

Tabelle 5: Tage und Zeiten der für die Inversion vom Typ 2 verwendeten Messungen von SPM und Lidar in Peking. Die Darstellung ist analog zu Tabelle 2.

Messtag	SPM		Lidar		$\Delta\bar{t}$	$\Delta\bar{\tau}$
	\bar{t}	$\bar{\tau}$	\bar{t}	$\bar{\tau}$		
8. Januar	14:55	0.14	19:00	0.12	+4 h 05 min	-0.02
10. Januar	10:00	0.28	01:00	0.40	-9 h 00 min	+0.12
13. Januar	15:30	0.21	19:00	0.19	+4 h 05 min	-0.02
16. Januar	10:26	0.28	03:00	0.21	-7 h 26 min	-0.07

3.2.3 Mikrophysikalische Charakterisierung des Aerosols in der Säule

Auch die Ergebnisse der Messungen in Peking wurden als Eingangswerte für eine Inversion der optischen Daten verwendet. Aufgrund der geringeren Anzahl von Messtagen und der variablen Bedingungen eigneten sich nur zwei Messtage für eine ausführliche Inversion vom Typ 2. Für zwei weitere Tage wurde testweise die Inversion Typ 2 ohne die zwanzigprozentige Variation von $\beta(381 \text{ nm})$ durchgeführt. Die Zeiten und optischen Dicken der für diese Rechnungen verwendeten Messungen sind in Tabelle 5 gezeigt.

Da keine gleichzeitigen Messungen von Lidar/SPM und den In-situ-Geräten vorliegen, können die Resultate dieser Inversionsrechnungen nicht mit In-situ-Daten verglichen werden. Die für die Konstruktion der in den Miemodellrechnungen verwendeten Partikel benötigten chemischen Daten und Partikelgrößenverteilungen wurden erst ab dem Abend des 17. Januars bestimmt (Meier 2006) — ab dem Zeitpunkt also, an dem die Messungen mit dem Lidar beendet werden mussten.

Für die in Tabelle 6 gezeigten Messtage wurde die Inversion vom Typ 1 mit den Sonnenphotometerdaten durchgeführt. Wie an den Ergebnissen der Inversionsrechnungen

Tabelle 6: Tage und Zeiten der für die Inversion vom Typ 1 verwendeten Messungen des SPM mit der jeweiligen optischen Dicke bei einer Wellenlänge von 532 nm.

Messtag	Mittelungszeit	Optische Dicke
8. Januar	11:30–15:00	0.139 ± 0.011
10. Januar	08:30–16:30	0.270 ± 0.025
13. Januar	09:00–16:00	0.226 ± 0.034
15. Januar	09:00–16:00	0.171 ± 0.023
18. Januar	10:30–16:30	0.182 ± 0.054
19. Januar	08:30–16:30	0.173 ± 0.021
20. Januar	09:00–14:00	0.071 ± 0.008
	14:00–17:00	0.115 ± 0.013
21. Januar	11:00–13:00	0.534 ± 0.041
	13:00–16:00	0.705 ± 0.046
24. Januar	13:30–16:30	0.306 ± 0.023

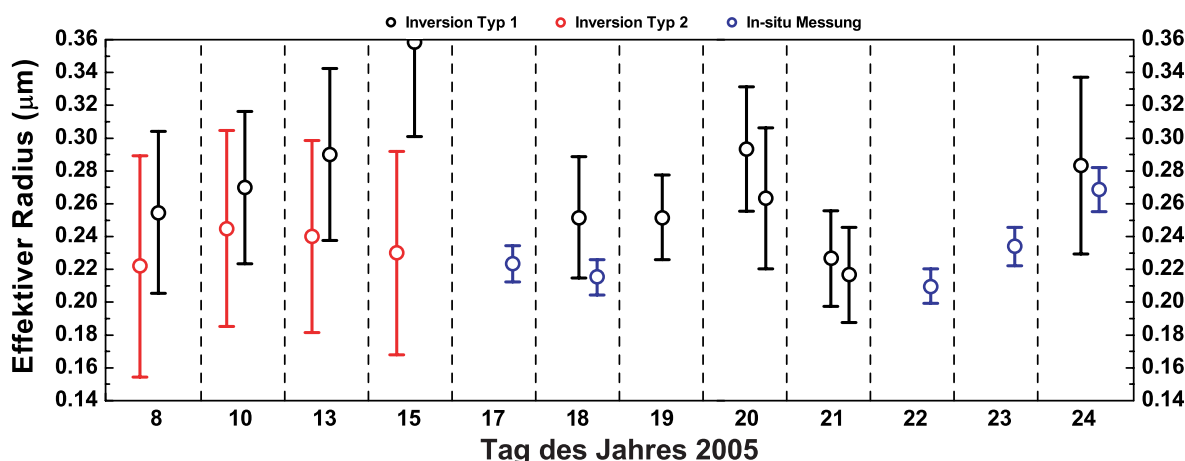


Abbildung 37: Effektiver Radius aus den Inversionsrechnungen und aus In-situ-Messungen am Boden.

mit den optischen Daten der Messungen in Xinken zu sehen war, liefert dieser Inversionstyp zuverlässige Ergebnisse für den effektiven Radius. Damit wurde zumindest ein Vergleich dieser Größe mit den Ergebnissen der am 17., 18., 22., 23. und 24. Januar durchgeführten In-situ-Messungen möglich. Der Vergleich ist in Abbildung 37 gezeigt.

Es ist zu erkennen, dass die Qualität der Inversionsergebnisse für Peking im Gegensatz zu den günstigeren Verhältnissen in Xinken abgenommen hat. Die Fehlerbalken der effektiven Radien der beiden Inversionstypen sind nun nahezu identisch, wohingegen für die Ergebnisse in Xinken die Fehler der Inversion vom Typ 2 deutlich geringer waren. Der Vergleich der Inversionstypen zeigt eine im Rahmen der Fehlerbalken liegende Übereinstimmung der Resultate. Ein direkter Vergleich der Inversionsergebnisse (Typ 1) mit den Resultaten der In-situ-Messungen ist lediglich für den 18. und den 24. Januar möglich. An diesen Tagen liegt eine im Rahmen der Fehlerbalken gute Übereinstimmung der Ergebnisse vor. Da die Inversion vom Typ 1 an den vorliegenden Vergleichstagen (8., 10., 13. und 15. Januar in Abbildung 37) systematisch größere effektive Radien ermittelt, als die Inversion vom Typ 2, ist anzunehmen, dass auch letztere im Fall vorhandener Lidardaten an den späteren Tagen eine gute Übereinstimmung der Ergebnisse mit den In-situ-Messungen ergeben hätte.

Die In-situ-Messungen begannen am Abend des 17. Januars, etwa zur Zeit der letzten Lidarmessung. Der am Morgen dieses Tages aufgetretene Staub war zu dieser Zeit bereits durch saubere Luft verdrängt worden. Das Inversionsergebnis für den 17. Januar führt im Gegensatz zum In-situ-Wert zu sehr großen Partikeln mit einem effektiven Radius von $0,42 \pm 0,07 \mu\text{m}$. Dieses Ergebnis ist nicht in Abbildung 37 gezeigt, da es weit außerhalb des dort abgebildeten Bereichs liegt.

In Tabelle 7 sind die Ergebnisse der verschiedenen Inversionsrechnungen und der In-situ-Messungen gezeigt. Die Ergebnisse basieren auf Messungen zu unterschiedlichen Zeiten, zu denen sehr verschiedene Aerosolbedingungen vorlagen. Bei den Resultaten der Inversion Typ 2 handelt es sich um die Mittelwerte der Ergebnisse der in Tabelle 5 genannten Tage. Die Mittelwerte der Ergebnisse der in Tabelle 6 gezeigten Tage

Tabelle 7: Vergleich der Inversionsergebnisse mit den Resultaten der In-situ-Messungen; Mittelwert für die Tage der Messungen in Peking, für die optische Daten invertiert wurden. Die Darstellung ist analog zu Tabelle 3.

	Inversion		In-situ-Messung und Modell 1
	Typ 2 ^a	Typ 1 ^b	
$r_{\text{eff}} [\mu\text{m}]$	0.23 ± 0.06	0.27 ± 0.04	0.23 ± 0.01
$v [\mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}]$	25 ± 7	29 ± 6	28/210 ^c
$a [\mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}]$	330 ± 60	340 ± 45	340/2850 ^c
$n [\text{cm}^{-3}]$	1690 ± 690	1360 ± 390	–
m_{real}	1.62 ± 0.11	1.58 ± 0.11	1.53/1.80
m_{imag}	0.019 ± 0.012	0.015 ± 0.013	0.00/0.54
ω	0.78 ± 0.11	–	0.69

^a Gemittelt wurde über die Ergebnisse der in Tabelle 5 gezeigten Tage.

^b Gemittelt wurde über die Ergebnisse der in Tabelle 6 gezeigten Tage.

^c Der erste Wert ist der Mittelwert über der Ergebnisse des 17., 18. und 24. Januars, der zweite Wert ist der Mittelwert der Ergebnisse des 22. und 23. Januars. Die Mittelwerte über alle Tage sind $v = 101 \mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$ und $a = 1344 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$.

bilden die Werte der Inversion Typ 1. In-situ-Ergebnisse liegen für den 17., 18., 22., 23. und 24. Januar vor (siehe auch Abbildung 37). Die Mittelwerte der Resultate der In-situ-Messungen sind ebenfalls in Tabelle 7 gezeigt. Für die Oberflächen- und Volumenkonzentration sind zwei Mittelwerte angegeben. Diese beschreiben die mittleren Verhältnisse am 17., 18. und 24. Januar (an diesen Tagen entsprach die optische Dicke etwa dem Mittelwert der Zeitreihe) bzw. am 22. und 23. Januar. An den letztgenannten Tagen wurden sehr hohe optische Dicken beobachtet, so dass Messungen mit dem Sonnenphotometer nicht möglich waren (siehe Abbildung 31) und demzufolge keine Inversionsrechnungen zum Vergleich vorliegen. Die In-situ-Messungen zeigen für die Tage mit stark verschmutzter Luft Werte von $v = 180 \mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$ und $a = 2550 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$ (am 22. Januar) bzw. von $v = 250 \mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$ und $a = 3140 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$ (am 23. Januar). Im Vergleich dazu waren die Oberflächen- und Volumenkonzentrationen an den anderen drei Tagen um etwa eine Größenordnung geringer. Der Mittelwert für diese Tage mit vergleichsweise unverschmutzter Luft stimmt gut mit den Ergebnissen der Inversionsrechnungen überein. Die in Tabelle 7 gezeigten Werte der In-situ-Ergebnisse für den effektiven Radius und die Einfachstrealbedo entsprechen dem Mittelwert der Ergebnisse aller fünf Messtage. Die Mittelwerte des effektiven Radius aus den Inversionsrechnungen und den In-situ-Messungen zeigen eine gute Übereinstimmung.

In Qiu et al. (2004) sind Werte des Imaginärteils des komplexen Brechungsindex für den Zeitraum 1993–2001 vorgestellt. Der Mittelwert des Winters liegt hier bei $m_{\text{imag}} = 0.026$, der des gesamten Jahres bei $m_{\text{imag}} = 0.023$. Das Inversionsergebnis liegt bei $m_{\text{imag}} = 0.019 \pm 0.012$.

Auch wenn keine zeitgleichen Messungen stattfanden, ist in Abbildung 38 die Zeitreihe für die Einfachstrealbedo — bestimmt durch die Inversionsrechnung vom Typ 2 und den auf In-situ-Messungen basierenden Miestreumodellrechnungen (Meier 2006)

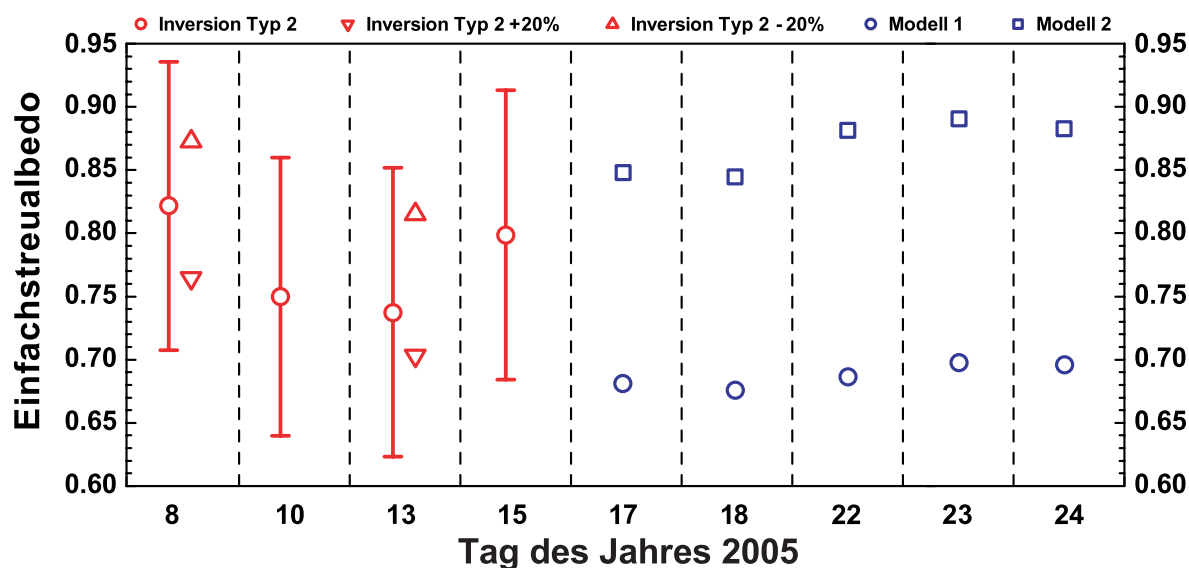


Abbildung 38: Einfachstreualbedo aus den Inversionsrechnungen und aus den auf In-situ-Messungen basierenden Miestreurechnungen.

— gezeigt. Aufgrund der großen Spanne der Ergebnisse und Fehlerbalken ist hier allerdings keine objektive Beurteilung möglich. Der mittels Inversionsrechnungen bestimmte mittlere Wert der Einfachstreualbedo von $\omega = 0.78 \pm 0.11$ stimmt gut mit Werten von $\omega = 0.82$ (Mittelwert über die Winter 1993–2001, abgeleitet aus Pyrhelimeter- und Pyranometermessungen (Qiu et al. 2004)) und $\omega = 0.81 \pm 0.08$ (Mittelwert im Juni 1999, abgeleitet aus kombinierten Messungen mit einem Nephelometer und einem Partikel-Ruß-Absorptionsphotometer (PSAP), ebenfalls auf dem Gelände der PKU, Bergin et al. 2001) bisheriger Messungen in Peking überein. Der Unterschied der Ergebnisse der beiden Miestreumodelle ist im Gegensatz zum gezeigten Ergebnis in Xinken sehr groß und entspricht etwa dem Fehlerbalken der Inversionsergebnisse. Die Werte der Einfachstreualbedo der Inversion und des Modells 2 (extern und intern gemischte Partikel) stimmen besser mit den in der Literatur gefundenen Resultaten überein, als die Ergebnisse des Modells 1 (siehe Abbildung 38).

Tabelle 8 zeigt einen aus den vorliegenden Veröffentlichungen entnommenen Vergleich von Werten der Einfachstreualbedo im asiatischen Raum. Die in Peking und Xinken gefundenen Ergebnisse der Einfachstreualbedo liegen teilweise deutlich unter den in Tabelle 8 gezeigten Werten und weisen zudem einen großen Fehlerbalken auf. Diesbezüglich ist zu beachten, dass die Fehlerbalken der der Literatur entnommenen Ergebnisse sehr gering sind. Im Fall der Ergebnisse für Peking ist zu erkennen, dass die Werte der verschiedenen Veröffentlichungen stärkere Unterschiede aufweisen, als es die Standardabweichung der individuellen Ergebnisse zulassen würde.

Die in Tabelle 8 gezeigten Vergleichswerte wurden mit dem in dieser Arbeit verwendeten Inversionsalgorithmus aus optischen Daten bestimmt. Dabei beschreibt $\omega = 0.90 \pm 0.06$ die Einfachstreualbedo von stark verschmutzten Aerosolschichten, die vom indischen Subkontinent zu den Malediven transportiert wurden (Müller et al. 2003) und $\omega = 0.95 \pm 0.06$ die Einfachstreualbedo von vom europäischen Kontinent herantransportier-

Tabelle 8: Resultate der Einfachstreueralbedo aus verschiedenen Beobachtungen verschmutzter Aerosolpartikel im asiatischen Raum. Zudem sind mit dem in dieser Arbeit vorgestellten Inversionsschema bestimmte Ergebnisse bisheriger Messungen gezeigt.

Ort	Zeit	ω	λ	Quelle
Xinken, Südchina	Oktober 2004	0.78 ± 0.13	532 nm	diese Arbeit
Peking, Nordchina	Januar 2005	0.78 ± 0.11	532 nm	diese Arbeit
Xinken, Südchina	Oktober 2004	0.84 ± 0.01	532 nm	Eichler (2006)
Peking, Nordchina	Januar 2005	0.69 ± 0.01	532 nm	Meier (2006), Modell 1
Peking, Nordchina	Januar 2005	0.87 ± 0.02	532 nm	Meier (2006), Modell 2
Peking, Nordchina	Juni 1999	0.81 ± 0.08	550 nm	Bergin et al. (2001)
Peking, Nordchina	Frühling 2001	0.88 ± 0.04	500 nm	Xia et al. (2005)
Peking, Nordchina	Juni 2003	0.88 ± 0.01	550 nm	Eck et al. (2005)
Peking, Nordchina	Winter 1993–2001	0.82		Qiu et al. (2004)
Linan, China	November 1999	0.95 ± 0.03	500 nm	Xu et al. (2003)
Gelbes Meer	Frühling 2001	0.88 ± 0.03	550 nm	Anderson et al. (2003)
Gosan, Südkorea	November 2001	0.88 ± 0.02	550 nm	Kim et al. (2005)
mittels Inversion bestimmte Ergebnisse anderer Regionen zum Vergleich				
Malediven	März 2000	0.90 ± 0.06	532 nm	Müller et al. (2003)
Portugal	Juni/Juli 1997	0.95 ± 0.06	532 nm	Müller et al. (2002a)

ten Schmutzfahnen an der Atlantikküste Portugals (Müller et al. 2002a). Die für das chinesische Aerosol gefundenen Werte der Einfachstreueralbedo liegen weit unter diesen Ergebnissen und verdeutlichen die starke absorbierende Wirkung dieser Partikel. Derart geringe Werte der Einfachstreueralbedo stehen für Aerosolpartikel, die den Strahlungshaushalt der Erde merklich beeinflussen. Durch ihren Strahlungsantrieb verursachen sie eine Erwärmung der unteren Luftschichten. Die daraus resultierende Stabilisierung kann das lokale Wettergeschehen beeinflussen.

4 Zusammenfassung

Diese Arbeit beschäftigte sich mit der Auswertung von kombinierten Messungen mit einem Ramanlidar und einem Sonnenphotometer in verschiedenen Regionen Chinas. Die Messungen fanden in Xinken im subtropisch geprägten Süden des Landes (Oktober 2004) und in Peking im kontinental geprägten Norden Chinas (Januar 2005) statt. Die gesammelten Daten ermöglichten eine Untersuchung der optischen Partikeleigenschaften verschiedener Aerosoltypen. Ein Überblick über die Ergebnisse der Messungen in Xinken wurde in Ansmann et al. (2005) gegeben. Im ersten Teil dieser Arbeit wurden die dort gewonnenen Erkenntnisse vertieft. Im zweiten Teil wurden die ersten Ramanlidarmessungen des Aerosols innerhalb einer chinesischen Großstadt ausgewertet. Die gewonnenen optischen Partikeleigenschaften (in Form der Koeffizienten von Rückstreuung und Extinktion) ausgewählter Tage wurden für weiterführende Inversionsrechnungen verwendet (Müller et al. 1999b; Pahlow et al. 2006). Diese ermöglichten die Bestimmung der Volumenkonzentration, des effektiven Radius und der Einfachstreueralbedo des jeweils vorliegenden Partikelensembles. In Xinken war zudem ein Vergleich dieser Größen mit zeitgleich durchgeführten In-situ-Messungen am Boden möglich.

Äußerst unterschiedliche Aerosolverhältnisse wurden vorgefunden. Diese reichten von Fällen mit anthropogen kaum beeinflusstem Hintergrundaerosol (Peking, bei nordwestlicher Anströmung aus der Mongolischen Hochebene) über klare Tage mit geringer bis moderater anthropogener Aerosolbelastung (Peking) und Situationen mit mäßigen Wüstenstaubausbrüchen (Peking) bis hin zu massiven und wohl gesundheitsschädlichen Aerosol-Smogzuständen (PRD).

Die wichtigsten Aerosolquellen im Bereich des PRD sind die Verbrennung fossiler Brennstoffe und Biomasse (Industrie und Hausbrand), der Straßenverkehr sowie die regen Bautätigkeiten. Die geringen Windgeschwindigkeiten im Messzeitraum förderten die Anreicherung der Luft mit lokal emittierten Aerosolpartikeln. Die Verwendung von Biomasse als Brennstoff führt zu einer relativ hohen Konzentration grober Partikel.

In Xinken wurde ein sehr hoher Grad an anthropogener Verschmutzung festgestellt. Die Werte der optischen Dicke bei einer Wellenlänge von $\lambda \approx 532$ nm erstreckten sich von 0.21 bis 1.77 bei einem Mittelwert von 0.94 ± 0.33 . Mittlere Ångström-Exponenten von 0.97 ± 0.16 für den Wellenlängenbereich 380–502 nm und von 1.20 ± 0.15 für den Wellenlängenbereich 502–1044 nm deuten auf einen hohen Anteil relativ großer Partikel hin. Zunehmende Werte der optischen Dicke wurden durch eine steigende Konzentration großer Partikel verursacht.

Bei ungünstiger Wetterlage bildete sich oftmals eine ausgeprägte Dunstglocke aus, die für mehrere Tage über der Region lag. Die Sichtweite reduzierte sich dabei teilweise auf unter 2 km. Bei entsprechender Anströmung war zu beobachten, dass Aerosol aus dem Landesinneren herantransportiert wurde. Dieser Effekt war deutlicher zu erkennen als der Effekt der Land-Seewindzirkulation. Eine marine Grenzschicht mit einer eher geringen optischen Dicke und sehr großen Partikeln wurde am Messort trotz der Lage

an der Südküste Chinas nicht beobachtet. Der Transport von Schmutz aus anderen Regionen zur Messstelle überlagerte diesen Effekt deutlich.

An Tagen mit einer geringen Windgeschwindigkeit war eine sehr ausgeprägte Grenzschichtentwicklung zu beobachten. Am späten Nachmittag fiel diese Grenzschicht zusammen und es bildete sich nach Sonnenuntergang eine nächtliche Grenzschicht mit einer verbleibenden Dunstschicht darüber. Diese Dunstschicht erstreckte sich im Mittel bis in eine Höhe von 2 km und zeigte nur sehr geringe tägliche Schwankungen.

Die mithilfe von Inversionsrechnungen ermittelten effektiven Partikelradien betragen 0.21 bis 0.28 μm . Der für anthropogene Partikel innerhalb einer vom Kontinent zur Küste Portugals transportierten Schmutzfahne gefundene Wert des effektiven Radius liegt bei $r_{\text{eff}} \approx 0.15 \pm 0.06 \mu\text{m}$ (ACE-2, Müller et al. 2002a). Dieser Wert ist deutlich geringer als die Ergebnisse der Inversionsrechnungen der in Xinken gesammelten optischen Daten. Die in Xinken ermittelten Ergebnisse für die Partikel innerhalb der Säule stimmen sehr gut mit den In-situ-Werten der Bodenmessungen überein. Die Inversionsrechnungen und die Bodenmessungen ergaben Volumenkonzentrationen von 30–120 $\mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$ mit einem Mittelwert von $v = 80 \pm 20 \mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$ (typische Werte für Leipzig liegen unter 20 $\mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$ am Boden). Die Werte der Einfachstreueralbedo lagen zwischen 0.74 und 0.83 mit einem Mittelwert von $\omega = 0.78 \pm 0.13$. Dieser Wert liegt deutlich unter den bisher gefundenen Ergebnissen der Einfachstreueralbedo für die Region Ostasien.

In Peking wurden im Vergleich zu Xinken relativ saubere Verhältnisse gefunden. Laut Qiu und Yang (1999) und Eck et al. (2005) zeigt der jährliche Verlauf der optischen Dicke in Peking ein Minimum im Januar. Für den Messzeitraum wurden Werte zwischen 0.04 und 0.87 mit einem Mittelwert von 0.22 ± 0.16 gefunden. Dieser Wert stimmt mit dem Mittelwert für Januar aus Langzeitmessungen gut überein. Die Ångström-Exponenten betragen im Mittel $\hat{a}_k = 1.09 \pm 0.21$ und $\hat{a}_1 = 1.32 \pm 0.19$. Die individuellen Werte in Verbindung mit den Rücktrajektorien der entsprechenden Zeiträume ließen auf eine hohe Konzentration kleiner Partikel schließen, wenn die Luft vom Gebiet der Stadt zur Messstelle herangeführt wurde. Bei nordwestlicher Anströmung wurden sehr saubere Verhältnisse gefunden. In diesem Fall wird anthropogen unbeeinflusstes Aerosol aus der Mongolischen Hochebene in die Stadt geführt.

Die Hauptquellen des Aerosols in Peking liegen ebenfalls in der Verbrennung von Biomasse und fossilen Brennstoffen, den Emissionen des stark gestiegenen Straßenverkehrs und der regen Bautätigkeit im Gebiet der Stadt. Eine weitere wichtige Quelle sind die Wüsten Zentralasiens. Mineralstaubausbrüche erreichen Peking vorwiegend im Frühjahr, in der Zeit von März bis Mai. Allerdings wurde auch im besprochenen Messzeitraum ein Tag gefunden, an dem Mineralstaub als dominierender Anteil des lokalen Aerosols anhand der geringen Werte der Ångström-Exponenten und des Lidarverhältnisses identifiziert werden konnte.

Die optische Dicke in Peking wird im Gegensatz zu den Verhältnissen in Xinken nicht nur durch gealterte grobe Partikel verursacht. Vielmehr zeigt sich hier die gleichzeitige Wirkung der Zunahme der Konzentration relativ kleiner und relativ großer Partikel.

Für Peking konnten nur wenige Inversionsrechnungen durchgeführt werden. Die Werte des effektiven Radius liegen in Peking für die Inversion kombinierter Extinktions- und Rückstreudaten zwischen 0.22 und 0.25 μm . Werte der Einfachstreueralbedo lagen zwischen 0.74 und 0.82, bei einem Mittelwert von 0.78 ± 0.11 .

Die vorgestellten Ergebnisse stellen lediglich einen Ausschnitt der in China vorliegenden Verhältnisse dar. Für eine ausführliche Charakterisierung des chinesischen Aerosols sind längerfristig weitere Untersuchungen — vorzugsweise in Form eines umfangreichen und länger dauernden Großexperimentes in der Art von ACE-Asia oder INDOEX — notwendig. Chinas führende Rolle als Schadstoffemittent im Gebiet Ostasiens (Streets et al. 2003) unterstreicht die Notwendigkeit der genauen Kenntnis der optischen, chemischen und mikrophysikalischen Partikeleigenschaften und der damit verbundenen Klimabeeinflussung.

A Abkürzungsverzeichnis

ACE-2	North Atlantic Regional Aerosol Characterization Experiment 2
ACE-Asia	Regional Aerosol Characterization Experiment – Asia
AERONET	Aerosol Robotic Network
AD-Net	Asian Dust Network
BC	black carbon
cps	counts per second
DOY	day of the year
HYSPLIT	hybrid single-particle Lagrangian integrated trajectories model
IfT	Leibniz-Institut für Troposphärenforschung
INDOEX	Indian Ocean Experiment
Lidar	Light Detection and Ranging
MOUDI	Micro-Orifice Uniform Deposit Impactor
Nd:YAG	Neodym-dotiertes Yttrium-Aluminium-Granat
PKU	Peking University
Polly	Portable Raman Lidar System
PMT	Photomultiplier Tube
PRD	Pearl River Delta
PSAP	particle soot absorption photometer
Radar	Radio Detection and Ranging
SPM	Sun photometer oder Sonnenphotometer
TDMPS	Twin Differential Mobility Particle Sizer
UTC	Coordinated Universal Time
ZBAA	Identifikationscode der Wetterstation Peking Flughafen

B Symbolverzeichnis

a	Oberflächenkonzentration des Partikelensembles
A	Fläche des Empfangsteleskops
\mathbf{A}	Gewichtsmatrix
\mathring{a}	Ångström-Exponent
\mathring{a}_k	kurzwelliger Ångström-Exponent
\mathring{a}_l	langwelliger Ångström-Exponent
\mathring{a}_α	Ångström-Exponent der Extinktion
\mathring{a}_β	Ångström-Exponent der Rückstreuung
α	Volumenextinktionskoeffizient
α_M	Volumenextinktionskoeffizient der Moleküle
α_P	Volumenextinktionskoeffizient der Partikel
B	Basisfunktion
β	Volumenrückstreukoeffizient
β_M	Volumenrückstreukoeffizient der Moleküle
β_P	Volumenrückstreukoeffizient der Partikel
β_R	Volumenrückstreukoeffizient reiner Ramanstreuung
c	Lichtgeschwindigkeit
c_0	Lichtgeschwindigkeit im Vakuum
C_0	Normierungskonstante
d	Partikeldurchmesser
d_S	Empfangsspiegeldurchmesser
ΔE	Energiedifferenz zwischen den Vibrations-Rotations-Zuständen eines Moleküls
Δt	Zeitunterschied zwischen zwei Messungen
$\Delta \tau$	Unterschied in der optischen Dicke zwischen zwei Messungen
$d\sigma_R/d\Omega$	differentieller Wirkungsquerschnitt der ramanstreuenden Moleküle
e^2	maximal akzeptierter Abstand zwischen den Vektoren $\mathbf{A}\mathbf{w}$ und \mathbf{g}
E	Systemfunktion
ϵ	Summe aus experimentellem und mathematischem Fehler
ϵ^{exp}	experimenteller Messfehler
ϵ^{math}	mathematischer Residuenfehler
ϵ	Vektor der Fehler ϵ
η	Transmission
f	Brennweite
g	verallgemeinerte Form der optischen Daten α und β
\mathbf{g}	Vektor der optischen Daten
γ	Lagrange-Multiplikator
Γ	Bestrafungsterm, enthält die Forderung nach Glattheit
h	Planck-Konstante
\mathbf{H}	Matrix, enthält die Forderung nach Glattheit

i	Laufindex
j	Laufindex
K	Kernfunktion
λ	Wellenlänge
λ_0	ausgesandte Wellenlänge
λ_R	Ramanwellenlänge
m	komplexer Brechungsindex
m_{imag}	Imaginärteil des komplexen Brechungsindexes
m_{real}	Realteil des komplexen Brechungsindexes
n	Anzahlkonzentration des Partikelensembles
N_R	Anzahlkonzentration der ramanstreuenden Moleküle
ν	Frequenz
$\tilde{\nu}$	Wellenzahl
$\tilde{\nu}_{\text{aus}}$	Wellenzahl des gestreuten Lichts
$\tilde{\nu}_{\text{ein}}$	Wellenzahl des einfallenden Lichts
O	Überlappungsfunktion
ω	Einfachstreueralbedo
$\bar{\omega}$	Mittelwert der Einfachstreueralbedo
p	Laufindex
P	Leistung
P_0	ausgesandte Leistung
π	Kreiszahl
Q	Streueffizienz
r	Partikelradius
r_{eff}	effektiver Radius
r_{max}	obere Inversionsgrenze
r_{min}	untere Inversionsgrenze
R	Entfernung
R_0	Referenzhöhe
S	Lidarverhältnis
\bar{S}	mittleres Lidarverhältnis
S_M	Lidarverhältnis der Moleküle
S_P	Lidarverhältnis der Partikel
t	Zeit
\bar{t}	mittlere Zeit einer Messung
τ	optische Dicke
$\bar{\tau}$	mittlere optische Dicke einer Messung
τ_p	Pulsdauer
Θ_v	virtuelle potentielle Temperatur
U	Faktor einer Bernoullischen Differentialgleichung
v	Volumenkonzentration des Partikelensembles
V	Faktor einer Bernoullischen Differentialgleichung
w	Wichtungsfaktor
\mathbf{w}	Vektor der Wichtungsfaktoren

Literatur

- Alfaro et al. 2003**, ALFARO, S. C. ; GOMES, L. ; RAJOT, J. L. ; LAFON, S. ; GAUDICHET, A. ; CHATENET, B. ; MAILLE, M. ; CAUTENET, G. ; LASSERRE, F. ; CACHIER, H. ; ZHANG, X. Y.: Chemical and optical characterization of aerosols measured in spring 2002 at the ACE–Asia supersite, Zhenbeitai, China. In: *J. Geophys. Res.* 108 (2003). – DOI 10.1029/2002JD003214
- Althausen et al. 2000**, ALTHAUSEN, D. ; MÜLLER, D. ; ANSMANN, A. ; WANDINGER, U. ; HUBE, H. ; CLAUDER, E. ; ZÖRNER, S.: Scanning 6–wavelength 11–channel aerosol lidar. In: *J. Atmos. and Oceanic Technol.* 17 (2000), S. 1469–1482
- Althausen et al. 2004**, ALTHAUSEN, D. ; ENGELMANN, R. ; RHONE, P. ; BAARS, H.: Portable Raman lidar for determination of particle backscatter and extinction coefficients. In: *Reviewed and Revised Papers Presented at the 22nd ILRC* (2004), S. 83–86
- Anderson et al. 2003**, ANDERSON, T. L. ; MASONIS, S. J. ; COVERT, D. S. ; AHLQUIST, N. C. ; HOWELL, S. G. ; CLARKE, A. D. ; MCNAUGHTON, C. S.: Variability of aerosol optical properties derived from in situ aircraft measurements during ACE–Asia. In: *J. Geophys. Res.* 108 (2003). – DOI 10.1029/2002JD003247
- Ansmann et al. 1992**, ANSMANN, A. ; RIEBESELL, M. ; WANDINGER, U. ; WEITKAMP, C. ; VOSS, E. ; LAHMANN, W. ; MICHAELIS, W.: Combined Raman elastic–backscatter LIDAR for vertical profiling of moisture, aerosol extinction, backscatter, and LIDAR ratio. In: *Appl. Phys.* 55 (1992), S. 18–28
- Ansmann et al. 2005**, ANSMANN, A. ; ENGELMANN, R. ; ALTHAUSEN, D. ; WANDINGER, U. ; HU, M. ; ZHANG, Y.: High aerosol load over the Pearl River Delta, China, observed with Raman lidar and Sun photometer. In: *Geophys. Res. Lett.* 32 (2005). – DOI 10.1029/2005GL023094
- Ansmann und Müller 2005**, ANSMANN, A. ; MÜLLER, D.: Lidar and Atmospheric Aerosol Particles. In: *Weitkamp, C. (Hrsg.): LIDAR: Range–Resolved Optical Remote Sensing of the Atmosphere*. Springer series in optical sciences (2005), S. 105–142
- Bergin et al. 2001**, BERGIN, M. H. ; CASS, G. R. ; XU, J. ; FANG, C. ; ZENG, L. M. ; YU, T. ; SALMON, L. G. ; KIANG, C. S. ; TANG, X. Y. ; ZHANG, Y. H. ; CHAMEIDES, W. L.: Aerosol radiative, physical, and chemical properties in Beijing during June 1999. In: *J. Geophys. Res.* 106 (2001), S. 17969 – 17980
- Bohren und Huffman 1983**, BOHREN, C. F. ; HUFFMAN, D. R.: *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. John Wiley, New York, 1983. – 544 S.
- Brooks 2003**, BROOKS, I. M.: Finding boundary layer top: application of a wavelet covariance transform to lidar backscatter profiles. In: *J. Atmos. and Oceanic Technol.* 20 (2003), S. 1092–1105

- Cao et al. 2003**, CAO, J. J. ; LEE, S. C. ; HO, K. F. ; ZHANG, X. Y. ; ZOU, S. C. ; FUNG, K. ; CHOW, J. C. ; WATSON, J. G.: Characteristics of carbonaceous aerosol in Pearl River Delta Region, China during 2001 winter period. In: *Atmospheric Environment* 37 (2003), S. 151–1460
- Cao et al. 2004**, CAO, J. J. ; LEE, S. C. ; HO, K. F. ; ZOU, S. C. ; FUNG, K. ; LI, Y. ; WATSON, J. G. ; CHOW, J. C.: Spatial and seasonal variations of atmospheric organic carbon and elemental carbon in Pearl River Delta Region, China. In: *Atmospheric Environment* 38 (2004), S. 4447–4456
- Chen et al. 2001**, CHEN, Y. ; QUAN, H. ; DONG, X. ; SUGIMOTO, N. ; MATSUI, I. ; SHIMIZU, A.: Continuous measurement of dust aerosols with a dual-polarization lidar in Beijing. In: *Proceeding of Nagasaki workshop 2001 on Aerosol Cloud Radiation Interaction and Asian Lidar Network, Nov. 27–29, 2001, Nagasaki, 2001*
- Cheng et al. 2005**, CHENG, Y.-F. ; EICHLER, H. ; WIEDENSOHLER, A. ; HEINTZENBERG, J. ; ZHANG, Y.-H. ; HU, M. ; HERRMANN, H. ; ZENG, L.-M. ; LIU, S. ; GNAUK, T. ; BRÜGGEMANN, E. ; HE, L.-Y.: The mixing state of black carbon and non-absorbing aerosol components derived from in situ particle optical properties at Xinken in Pearl River Delta of China. In: *J. Geophys. Res.* (2005, eingereicht)
- Chin et al. 2004**, CHIN, M. ; CHU, A. ; LEVY, R. ; REMER, L. ; KAUFMAN, Y. ; HOLBEN, B. ; ECK, T. ; GINOUX, P. ; GAO, Q.: Aerosol distribution on the Northern Hemisphere during ACE-Asia: Results from global model, satellite observations, and Sun photometer measurements. In: *J. Geophys. Res.* 109 (2004). – DOI 10.1029/2004JD004829
- Draxler und Rolph 2003**, DRAXLER, R. R. ; ROLPH, G. D.: *HYSPLIT (Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory)*. Model access via NOAA ARL READY Website: <http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html>, (2003)
- Eck et al. 2005**, ECK ET AL., T. F.: Columnar aerosol optical properties at AERONET sites in central eastern Asia and aerosol transport to the tropical mid-Pacific. In: *J. Geophys. Res.* 110 (2005). – DOI 10.1029/2004JD005274
- Eichler 2006**, EICHLER, H.: *Hygroscopic Behaviour and Simulation of the Particle Extinction of the Aerosol in South East China at Ambient Conditions*, Universität Leipzig, Diplomarbeit, März 2006. – 114 S.
- Engelmann 2003**, ENGELMANN, R.: *Entwicklung eines Mini-Ramanlidar und Aufbau einer kombinierten Sende- und Empfangseinheit für ein Doppler-Wind-Lidar*, Universität Leipzig, Diplomarbeit, September 2003. – 57 S.
- Fernald 1984**, FERNALD, F. G.: Analysis of atmospheric lidar observations: some comments. In: *Appl. Opt.* 23 (1984), S. 652–653
- Franke et al. 2001**, FRANKE, K. ; ANSMANN, A. ; MÜLLER, D. ; ALTHAUSEN, D.: One-year observations of particle lidar ratio over the tropical Indian Ocean with Raman lidar. In: *Geophys. Res. Lett.* 28 (2001), S. 4559–4562

- Holben et al. 1998**, HOLBEN, B. N. ; ECK, T. F. ; SLUTSKER, I. ; TARRÉ, D. ; BUIS, J. P. ; SETZER, A. ; VERMOTE, E. ; REAGAN, J. A. ; KAUFMAN, Y. J. ; NAKAJIMA, T. ; LAVENU, F. ; JANKOWIAK, I. ; SMIRNOV, A.: AERONET — A federated instrument network and data archive for aerosol characterization. In: *Remote Sens. Environm.* 66 (1998), S. 1–16
- Hong Kong Environmental Protection Department 2002**, HONG KONG ENVIRONMENTAL PROTECTION DEPARTMENT: *Study of Air Quality in the Pearl River Delta Region. Final Report, Agreement No. CE 106/98.* www.epd.gov.hk/epd/english/environmentinhk/air/studyrrpts/study_pearl.html, 2002
- Houghton et al. 2003**, HOUGHTON, J. T. ; DING, Y. ; GRIGGS, D. J. ; NOGUER, M. ; VAN DER LINDEN, P. J.: *IPCC – Intergovernmental Panel on Climate Change, Climate Change 2001: The Scientific Basis, Summary for Policymakers.* <http://www.ipcc.ch/pub/spm22-01.pdf>, 2003
- Huebert et al. 2003**, HUEBERT, B. J. ; BATES, T. ; RUSSELL, P. B. ; SHI, G. ; KIM, Y. J. ; KAWAMURA, K. ; CARMICHAEL, G. ; NAKAJIMA, T.: An overview of ACE–Asia: Strategies for quantifying the relationships between Asian aerosols and their climatic impacts. In: *J. Geophys. Res.* 108 (2003). – DOI 10.1029/2003JD003550
- Kim et al. 2004**, KIM, D.-H. ; SOHN, B.-J. ; NAKAJIMA, T. ; TAKAMURA, T. ; TAKEMURA, T. ; CHOI, B. C. ; YOON, S.-C.: Aerosol optical properties over East Asia determined from ground–based sky radiation measurements. In: *J. Geophys. Res.* 109 (2004). – DOI 10.1029/2003JD003387
- Kim et al. 2005**, KIM, S.-W. ; YOON, S.-C. ; JEFFERSON, A. ; OGREN, J. A. ; DUTTON, E. G. ; WON, J.-G. ; GHIM, Y. S. ; LEE, B.-I. ; HAN, J.-S.: Aerosol optical, chemical and physical properties at Gosan, Korea during Asian dust and pollution episodes in 2001. In: *Atmospheric Environment* 39 (2005), S. 39–50
- Klett 1981**, KLETT, J. D.: Stable analytical inversion solution for processing lidar returns. In: *Appl. Opt.* 20 (1981), S. 211–220
- Li und Lu 1997**, LI, F. ; LU, D.: Features of aerosol optical depth with visibility grade over Beijing. In: *Atmospheric Environment* 31 (1997), S. 3413–3419
- Liljequist 1974**, LILJEQUIST, G. H.: *Allgemeine Meteorologie.* F. Vieweg & Sohn, Braunschweig, 1974. – 412 S.
- Louie et al. 2005**, LOUIE, P. K. K. ; WATSON, J. G. ; CHOW, J. C. ; CHEN, A. ; SIN, D. W. M. ; LAU, A. K. H.: Seasonal characteristics and regional transport of PM_{2.5} in Hong Kong. In: *Atmospheric Environment* 39 (2005), S. 1695–1710
- Luo et al. 2001**, LUO, Y. ; LU, D. ; ZHOU, X. ; LI, W. ; HE, Q.: Characteristics of the spatial distribution and yearly variation of aerosol optical depth over China in last 30 years. In: *J. Geophys. Res.* 106 (2001), S. 14501–14513

- Mattis et al. 2002**, MATTIS, I. ; ANSMANN, A. ; ALTHAUSEN, D. ; JAENISCH, V. ; WANDINGER, U. ; MÜLLER, D. ; ARSHINOV, Y. F. ; BOBROVNIKOV, S. M. ; SERIKOV, I. B.: Relative-humidity profiling in the troposphere with a Raman lidar. In: *Appl. Opt.* 41 (2002), S. 6451–6462
- Meier 2006**, MEIER, J.: *Untersuchung des hygroskopischen Partikelwachstums und seiner Auswirkungen auf die optischen Eigenschaften des urbanen Aerosols in Peking/China*, Universität Leipzig, Diplomarbeit, April 2006. – 124 S.
- Mie 1908**, MIE, G.: Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen. In: *Annalen der Physik* 25 (1908), S. 377–447
- Müller 1997**, MÜLLER, D.: *Entwicklung eines Inversionsalgorithmus zur Bestimmung mikrophysikalischer Partikelparameter des atmosphärischen Aerosols*, Universität Leipzig, Dissertation, 1997. – 99 S.
- Müller et al. 1999a**, MÜLLER, D. ; WANDINGER, U. ; ANSMANN, A.: Microphysical particle parameters from extinction and backscatter lidar data by inversion with regularization: Theory. In: *Appl. Opt.* 38 (1999), S. 2346–2357
- Müller et al. 1999b**, MÜLLER, D. ; WANDINGER, U. ; ANSMANN, A.: Microphysical particle parameters from extinction and backscatter lidar data by inversion with regularization: Simulation. In: *Appl. Opt.* 38 (1999), S. 2358–2366
- Müller et al. 2000**, MÜLLER, D. ; WAGNER, F. ; WANDINGER, U. ; ANSMANN, A. ; WENDISCH, M. ; ALTHAUSEN, D. ; VON HOYNINGEN-HUENE, W.: Microphysical particle parameters from extinction and backscatter lidar data by inversion with regularization: Experiment. In: *Appl. Opt.* 39 (2000), S. 1879–1890
- Müller et al. 2001**, MÜLLER, D. ; WANDINGER, U. ; ALTHAUSEN, D. ; FIEBIG, M.: Comprehensive particle characterization from three-wavelength Raman-lidar observations: Case study. In: *Appl. Opt.* 40 (2001), S. 4863–4869
- Müller et al. 2002a**, MÜLLER, D. ; ANSMANN, A. ; WAGNER, F. ; FRANKE, K. ; ALTHAUSEN, D.: European pollution outbreaks during ACE-2: Microphysical particle properties and single-scattering albedo inferred from multiwavelength lidar observations. In: *J. Geophys. Res.* 107 (2002). – DOI 10.1029/2001JD001110
- Müller et al. 2002b**, MÜLLER, D. ; WAGNER, F. ; ALTHAUSEN, D. ; WANDINGER, U. ; ANSMANN, A.: Physical properties of the Indian aerosol plume derived from six-wavelength lidar observations on 25 March 1999 of the Indian Ocean Experiment. In: *Geophys. Res. Lett.* 27 (2002), S. 1403–1406
- Müller et al. 2003**, MÜLLER, D. ; FRANKE, K. ; ANSMANN, A. ; ALTHAUSEN, D. ; WAGNER, F.: Indo-Asian pollution during INDOEX: Microphysical particle properties and single-scattering albedo inferred from multiwavelength lidar observations. In: *J. Geophys. Res.* 108 (2003). – DOI 10.1029/2003JD003538

- Müller et al. 2004**, MÜLLER, D. ; MATTIS, I. ; ANSMANN, A. ; WEHNER, B. ; ALTHAUSEN, D. ; WANDINGER, U. ; DUBOVİK, O.: Closure study on optical and microphysical properties of a mixed urban and Arctic haze air mass observed with Raman lidar and sun photometer. In: *J. Geophys. Res.* 108 (2004). – DOI 10.1029/2003JD004200
- Ning et al. 1996**, NING, D. ; ZHONG, L. ; CHUNG, Y.: Aerosol size distribution and elemental composition in urban areas of northern China. In: *Atmospheric Environment* 30 (1996), S. 2355–2362
- Pahlow et al. 2006**, PAHLOW, M. ; MÜLLER, D. ; TESCHE, M. ; EICHLER, H. ; FEINGOLD, G. ; EBERHARD, W. L. ; CHENG, Y.-F.: Retrieval of aerosol properties from combined multiwavelength lidar and sun photometer measurements: Simulations. In: *Appl. Opt.* (2006, akzeptiert)
- Qiu und Yang 1999**, QIU, J. ; YANG, L.: Variation characteristics of atmospheric aerosol optical depth and visibility in North China during 1980–1994. In: *Atmospheric Environment* 34 (1999), S. 603–609
- Qiu et al. 2004**, QIU, J. ; YANG, L. ; ZHANG, X.: Characteristics of the imaginary part and single-scattering albedo of urban aerosols in northern China. In: *Tellus* 56B (2004), S. 276–284
- Reid et al. 1999**, REID, J. S. ; HOBBS, P. V. ; RANGNO, A. L. ; HEGG, D. A.: Relationships between cloud droplet effective radius, liquid water content, and droplet concentration for warm clouds in Brazil embedded in biomass smoke. In: *J. Geophys. Res.* 104 (1999), S. 6145–6154
- Rhone 2004**, RHONE, P.: *Development of the Data Acquisition and Analysis Systems for a Portable Raman Lidar and a Doppler Wind Lidar*, Universität Leipzig, Diplomarbeit, Juni 2004. – 72 S.
- Rohlen 2000**, ROHLEN, T. P.: *Hong Kong and the Pearl River Delta: One Country, Two Systems in the Emerging Metropolitan Context*. <http://fsi.stanford.edu/publications/11897/>, Juli 2000
- Sasano et al. 1985**, SASANO, Y. ; BROWELL, E. V. ; ISMAIL, S.: Error caused by using a constant extinction/backscattering ratio in the lidar solution. In: *Appl. Opt.* 24 (1985), S. 3929–3932
- Shi et al. 2003**, SHI, Z. ; SHAO, L. ; JONES, T. P. ; WHITTAKER, A. G. ; LU, S. ; BÉRUBÉ, K. A. ; HE, T. ; RICHARDS, R. J.: Characterization of airborne individual particles collected in an urban area, a satellite city and a clear air area in Beijing, 2001. In: *Atmospheric Environment* 37 (2003), S. 4097–4108
- Shimizu et al. 2004**, SHIMIZU, A. ; SUGIMOTO, N. ; MATSUI, I. ; ARAO, K. ; UNO, I. ; MURAMAYA, T. ; KAGAWA, N. ; AOKI, K. ; UCHIYAMA, A. ; YAMAZAKI, A.: Continuous observations of Asian dust and other aerosols by polarization lidars

- in China and Japan during ACE–Asia. In: *J. Geophys. Res.* 109 (2004). – DOI 10.1029/2002JD003253
- Streets et al. 2003**, STREETS, D. G. ; BOND, T. C. ; CARMICHAEL, G. R. ; FERNANDES, D. ; FU, Q. ; HE, D. ; KLIMONT, Z. ; NELSON, S. M. ; TSAI, N. Y. ; WANG, M. Q. ; WOO, J.-H. ; YARBER, K. F.: An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000. In: *J. Geophys. Res.* 108 (2003). – DOI 10.1029/2002JD003093
- Stull 1988**, STULL, R. B.: *An Introduction to Boundary Layer Meteorology*. Kluwer Academic Publishers, 1988. – 684 S.
- Sugimoto et al. 2003**, SUGIMOTO, N. ; UNO, I. ; NISHIKAWA, M. ; SHIMIZU, A. ; MATSUI, I. ; DONG, X. ; CHEN, Y. ; QUAN, H.: Record heavy Asian dust in Beijing in 2002: Observations and model analysis of recent events. In: *Geophys. Res. Lett.* 30 (2003). – DOI 10.1029/2002GL016349
- Sun et al. 2004**, SUN, Y. ; ZHUANG, G. ; WANG, Y. ; HAN, L. ; GUO, J. ; DAN, M. ; ZHANG, W. ; WANG, Z. ; HAO, Z.: The air–borne particulate pollution in Beijing — concentration, composition, distribution and sources. In: *Atmospheric Environment* 38 (2004), S. 5991–6004
- Twomey 1977**, TWOMEY, S.: *Introduction to the Mathematics of Inversion in Remote Sensing and Indirect Measurements*. Elsevier, Amsterdam, 1977. – 237 S.
- Veselovskii et al. 2002**, VESELOVSKII, I. ; KOLGOTIN, A. ; GRIAZNOV, V. ; MÜLLER, D. ; WANDINGER, U. ; WHITEMAN, D. N.: Inversion with regularization for the retrieval of tropospheric aerosol parameters from multiwavelength Raman lidar sounding. In: *Appl. Opt.* 41 (2002), S. 3685–3699
- Wagner 2000**, WAGNER, F.: *Kombinierte Mehrwellenlängen–Lidar–Photometer–Messungen von optischen und physikalischen Partikelparametern während ACE–2*, Universität Leipzig, Dissertation, 2000. – 117 S.
- Wandinger und Ansmann 2002**, WANDINGER, U. ; ANSMANN, A.: Experimental determination of the lidar overlap profile with Raman lidar. In: *Appl. Opt.* 41 (2002), S. 511–514
- Wandinger et al. 2002**, WANDINGER, U. ; MÜLLER, D. ; BÖCKMANN, C. ; ALTHAUSEN, D. ; MATTHIAS, V. ; BÖSENBERG, J. ; WEISS, V. ; FIEBIG, M. ; WENDISCH, M. ; STOHL, A. ; ANSMANN, A.: Optical and microphysical characterization of biomassburning and industrial pollution aerosols from multiwavelength lidar and aircraft measurements. In: *J. Geophys. Res.* 107 (2002). – DOI 10.1029/2000JD000202
- Wang et al. 2004**, WANG, J. ; XIA, X. ; WANG, P. ; CHRISTOPHER, S.: Diurnal variability of dust aerosol optical thickness and Ångström exponent over dust source regions in China. In: *J. Geophys. Res.* 31 (2004). – DOI 10.1029/2004GL019580

- Wang et al. 2003**, WANG, T. ; POON, C. N. ; KWOK, Y. H. ; LI, Y. S.: Characterizing the temporal variability and emission patterns of pollution plumes in the Pearl River Delta of China. In: *Atmospheric Environment* 37 (2003), S. 3539–3550
- Wang et al. 2002**, WANG, X.-M. ; SHENG, G.-Y. ; FU, J.-M. ; CHAN, C.-Y. ; LEE, S.-C. ; CHAN, L. Y. ; WANG, Z.-S.: Urban roadside aromatic hydrocarbons in three cities of the Pearl River Delta, People's Republic of China. In: *Atmospheric Environment* 36 (2002), S. 5141–5148
- Wu et al. 2005**, WU, D. ; TIE, X. ; LI, C. ; YING, Z. ; LAU, A. ; HUANG, J. ; DENG, X. ; BI, X.: An extremely low visibility event over the Guangzhou region: A case study. In: *Atmospheric Environment* 39 (2005), S. 6568–6577
- Xia et al. 2004**, XIA, X. ; CHEN, H. ; WANG, P.: Aerosol properties in a Chinese semiarid region. In: *Atmospheric Environment* 38 (2004), S. 4571–4581
- Xia et al. 2005**, XIA, X. ; CHEN, H. ; WANG, P. ; ZONG, X. ; QIU, J. ; GOULOUB, P.: Aerosol properties and their spatial and temporal variations over North China in spring 2001. In: *Tellus* 57B (2005), S. 28–39
- Xu et al. 2003**, XU, J. ; BERGIN, M. H. ; GREENWALD, R.: Direct aerosol radiative forcing in the Yangtze delta region of China: Observation and model estimation. In: *J. Geophys. Res.* 108 (2003). – DOI 10.1029/2002JD002550

Danksagung

Diese Arbeit entstand am Leibniz-Institut für Troposphärenforschung e. V. in Leipzig in der Arbeitsgruppe Lidar der Abteilung Physik unter der Betreuung von Herrn Dr. Albert Ansmann. Mein Dank gilt ihm und Herrn Dr. Detlef Müller für das dieser Arbeit entgegengebrachte Interesse und die zahlreichen Diskussionen, Anmerkungen und Erklärungen.

Mein Dank gilt zudem Frau Dr. Ulla Wandinger für die sorgfältige Durchsicht des Manuskripts und die entsprechenden Verbesserungsvorschläge.

Ich danke allen Kollegen der Lidargruppe und der Abteilung Physik für die angenehme Arbeitsatmosphäre und die stete Hilfsbereitschaft bei kleinen Fragen und Problemen.

Ich möchte mich auch bei meinen Kommilitonen für eine schöne Studienzeit bedanken. Erwähnt seien hier besonders Patric Seifert und Holger Baars für ihre Hilfe bei den in dieser Arbeit gezeigten bunten Bildern; sowie Jessica Meier, Heike Eichler und Cheng Yafang für die Bereitstellung der Ergebnisse der in dieser Arbeit verwendeten Bodenmessungen und die vielen erkenntnisreichen Diskussionen.

Ich danke Herrn Prof. Jost Heintzenberg und Herrn Prof. Gerd Tetzlaff für die Übernahme der Begutachtung dieser Arbeit.

Ganz besonders möchte ich meinen Eltern und Großeltern für ihre moralische und finanzielle Unterstützung danken.

Allen hier nicht explizit erwähnten Personen, die zu einem Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben, möchte ich ebenfalls für ihre Hilfe danken.

Hiermit versichere ich, dass ich die vorgelegte Diplomarbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Matthias Tesche,
Leipzig im April 2006

Ich erkläre mich damit einverstanden, diese Arbeit bei positiver Bewertung der Bibliothek zur Verfügung zu stellen.

Matthias Tesche,
Leipzig im April 2006