



DIPLOMARBEIT

Mehrwellenlängen–Ramanlidar–Messungen über Leipzig von 2000–2010

zur Erlangung des akademischen Grades

Diplom–Meteorologin

eingereicht im Mai 2011 von

Anja Müller

Gutachter:

Prof. Dr. Andreas Macke - Leibniz–Institut für Troposphärenforschung Leipzig

Dr. habil. Albert Ansmann - Leibniz–Institut für Troposphärenforschung Leipzig

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	3
2	Atmosphärische Aerosole	7
2.1	Entstehung und Lebenslauf von Aerosolpartikeln	7
2.2	Mikrophysikalische Eigenschaften	9
2.3	Optische Eigenschaften	11
2.4	Vertikale Schichtung der Atmosphäre	13
3	Ramanlidar	17
3.1	Aufbau und Prinzip	17
3.2	Lidargleichung	19
3.3	Berechnung optischer Partikeleigenschaften	22
3.3.1	Berechnung des Extinktionskoeffizienten	22
3.3.2	Berechnung des Rückstreuoeffizienten nach der Raman-Methode	23
4	Datenauswertung	25
4.1	Bestimmung der Überlappungsfunktion	25
4.1.1	Vorgehensweise zur Bestimmung einer Überlappungsfunktion . .	26
4.1.2	Anwendung der Überlappungsfunktion	31
4.2	Bestimmung der optischen Eigenschaften	32
4.2.1	Auswerteschemata	32
4.2.2	Fehlerbetrachtung	36
5	Aerosoltransport aus Osteuropa	43
5.1	Fallbeispiele	45
5.1.1	22. August 2002	51
5.1.2	8. Mai 2006	57
5.1.3	6. April 2009	64

5.2 Diskussion des Auftretens von Biomassenverbrennungs-Ereignissen . .	73
6 Statistische Datenanalyse	77
7 Zusammenfassung	85
Literaturverzeichnis	88
Abbildungsverzeichnis	96
Tabellenverzeichnis	99

Kapitel 1

Einleitung

Das Wort Meteorologie verbinden viele Menschen in der heutigen Zeit mit der Wettervorhersage. Dabei liegt der Ursprung im griechischen Wort **μετεωρολογία**. Das Wort **μετεωρος** (meteoros) bedeutet hierbei „in der Schweben“. Aristoteles, einer der bekanntesten und einflussreichsten Philosophen des Altertums, zählte zu den Meteoren alle Körper und Erscheinungen am Himmel, die man für unvorhersehbar, nicht berechenbar und nicht ableitbar aus Naturgesetzen oder Axiomen hielt. Diese Theorie ist in der von Hans Strohm übersetzten Schrift „Meteorologie“ zu finden, in der sich Aristoteles mit den Wetterphänomenen, dem Wasserkreislauf und den Erdbeben auseinandersetzt [Strohm, 1984].

Heute ist es möglich, eben diese „in der Schweben“ liegenden Erscheinungen mittels verschiedener Fernerkundungsverfahren zu erforschen und die hergeleiteten Axiome anzuwenden. In der Wissenschaft werden die in der Luft schwebenden flüssigen und festen Partikel als Aerosolpartikel bezeichnet. Aerosolpartikel spielen eine wichtige Rolle im Strahlungshaushalt der Erde und wirken sich auf das globale Klima aus. Sie beeinflussen die Bildung von Wolken und Niederschlag und können die Gesundheit des Menschen beeinträchtigen. Es ist daher wichtig, sowohl die Verteilung und Konzentration als auch die Größe der Aerosolpartikel zu kennen.

Die Vielfalt der optischen als auch mikrophysikalischen Eigenschaften der Aerosolpartikel kann mit Hilfe eines Lidars¹ charakterisiert werden. Das Lidar ist ein aktives optisches Fernerkundungsmessgerät und ermöglicht die Messung von zeitlich und räumlich hoch aufgelösten Vertikalprofilen der Atmosphäre.

Systematische klimatologische Lidarmessungen mit MARTHA² werden am

¹**L**ight **D**etection **A**nd **R**anging

²**M**ultiwavelength **A**tmospheric **R**aman lidar for **T**emperature, **H**umidity and **A**erosol profiling

Leibniz-Institut für Troposphärenforschung (IfT) seit dem Jahr 2000 im Rahmen von EARLINET³ durchgeführt [*EARLINET-Homepage*, 2011]. Zu den untersuchten optischen Aerosoleigenschaften gehören die extensiven Größen Partikelrückstreu- und -extinktionskoeffizient sowie die intensiven Größen Lidarverhältnis und Ångströmxponent aus der Rückstreuung und der Extinktion. Die extensiven Größen sind von der Anzahl der Aerosolpartikel abhängig und die intensiven Größen geben Auskunft über den Aerosoltyp. Dabei konnten bislang verschiedene Aerosoltypen in Mitteleuropa identifiziert werden. Dazu gehören anthropogene Aerosolpartikel aus lokalen Quellen, Saharastaub, Arktischer Dunst (engl. Arctic Haze) sowie Verschmutzungen aus Osteuropa und Nordamerika [*Mattis et al.*, 2008], die u.a. Waldbrandaerosol aus Kanada und Sibirien beinhalten [*Müller et al.*, 2007a].

Neben diesen interkontinentalen Transporten und den anthropogenen Aerosolpartikeln aus lokalen Quellen spielen für den Aerosolgehalt der Atmosphäre über Leipzig auch die Quellen innerhalb Europas eine wichtige Rolle. *Wandinger et al.* [2004] konnten mit Hilfe der Datensätze verschiedener Standorte in Europa zeigen, dass bei Wetterlagen mit maritimem Einfluss die Verschmutzung (d.h. die optische Dicke des Grenzschichtaerosols) auf dem europäischen Kontinent von West nach Ost kontinuierlich zunimmt. Das bedeutet für den Standort Leipzig, dass die AOD⁴ bei Westanströmung kleine Werte und bei Ostanströmung aufgrund der starken Aerosolquellgebiete in Ost- und Südosteuropa große Werte besitzt. Auch *Preißler* [2008] hat den Einfluss europäischer Quellen untersucht und herausgefunden, dass insbesondere die Quellen in Osteuropa sehr starke Verschmutzungen mit hohen optischen Dicken verursachen. Ein Beispiel ist dazu detailliert in *Birmili et al.* [2008] beschrieben.

Diese Verschmutzungen stammen nicht immer aus fossilen Verbrennungen in Osteuropa, sondern werden teils durch Biomassenverbrennungen verursacht. Zur Biomassenverbrennung zählen alle anthropogenen und natürlich verursachten Brände. Etwa 90% der weltweiten Großflächenbrände werden durch den Menschen verursacht, um Wälder zu säubern oder neue Agrarflächen zu schaffen [*FAO*, 2009]. Dies bestätigt auch die Untersuchung von Wäldern in Russland durch *Mollicone et al.* [2006]. Die meisten Brände in Europa finden in Ländern mit sehr vielen Ackerflächen statt. Dazu gehören vor allem die osteuropäischen Länder wie die Ukraine und das europäische Russland. Etwa 48–73% aller mit MODIS⁵ von 2001–2003 detektierten Brände in diesen Ländern waren auf Agrarflächen [*Korontzi et al.*, 2006].

³European Aerosol Research Lidar NETwork

⁴Aerosol Optische Dicke

⁵MODerate Resolution Imaging Spectroradiometer

In einer Langzeitstudie (6 Jahre) von *Barnaba et al.* [2011] wurde der Einfluss großflächiger Brände auf den Jahreszyklus der AOD nachgewiesen. Demnach sind Mittel- und Osteuropa sowie Skandinavien die am meisten durch Brände beeinflussten Länder in Europa. Darüber hinaus haben sie feststellen können, dass im Frühling (April) und Sommer (Juli) die optische Dicke der Fein-Mode-Partikel ein Maximum aufweist. Die Bimodalität der Partikelgrößenverteilung im Jahreszyklus wird hauptsächlich durch die landwirtschaftlichen Brände angetrieben, die vor der Saat zur Düngung und nach der Ernte zum Roden absichtlich gelegt werden. Im Sommer treten jedoch auch verstärkt natürliche Waldbrände aufgrund von Trockenheit und hohen Temperaturen auf.

Die Biomassenverbrennung gehört zu den wichtigen Quellen von Spurengasen und trägt global gesehen zu einem großen Teil der Partikel im Akkumulations-Mode (Partikeldurchmesser = $0.1 - 2.5 \mu\text{m}$) bei [*Koppmann et al.*, 2005; *Reid et al.*, 2005a,b]. Solche feinen Partikel verteilen sich per Ferntransport auf der gesamten Nordhemisphäre und erhöhen somit in vielen Regionen die Aerosolkonzentration [*Damoah et al.*, 2004; *Müller et al.*, 2005; *Mattis et al.*, 2008]. Die Aerosolpartikel aus der Biomassenverbrennung führen neben dem Saharstaub und den anderen anthropogen verursachten Verschmutzungen zur größten Aerosolbelastung in der freien Troposphäre [*Wandinger et al.*, 2002; *Mattis et al.*, 2003a]. Für die Umwelt bedeutet diese erhöhte Verschmutzung eine Minderung der Luftqualität.

Die Identifizierung der optischen und mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften solcher Biomassenverbrennungen ist sehr schwierig, da die emittierten Aerosolpartikel auf ihrem Weg Größe, Zusammensetzung und Konzentration verändern können. Des Weiteren gibt es neben den aus Biomassenverbrennung stammenden Partikeln auch andere natürliche und anthropogene Aerosolpartikel in der Atmosphäre.

Bislang gibt es nur wenige Studien über Biomassenverbrennungen aus Osteuropa. Schwerpunkt dieser Arbeit war, Aerosolschichten aus Biomassenverbrennungen zu identifizieren und zu analysieren. Dazu werden drei Beispiele vorgestellt. Des Weiteren wurde eine statistische Analyse der Lidardaten aus den Zeitraum 2006–2010 durchgeführt. Dafür wurde der vorhandene Datensatz aus dem Zeitraum 2006–2008 mit dem ausgewerteten Datensatz aus 2009–2010 erweitert und anschließend mit der Messreihe aus dem Zeitraum 2000–2003 verglichen. Dabei sollte untersucht werden, ob sich die optischen Eigenschaften von Aerosolpartikeln über Leipzig verändert haben.

Diese Arbeit ist in sechs Kapitel gegliedert. In Kapitel 2 wird ein allgemeiner Überblick über die Eigenschaften von atmosphärischen Aerosolpartikeln gegeben sowie der Einfluss der vertikalen Schichtung der Atmosphäre auf die Aerosolpartikel dargestellt.

Aufbau und Prinzip eines Lidars und die damit verbundenen theoretischen Grundlagen zur Berechnung der optischen Eigenschaften werden in Kapitel 3 vorgestellt. Anschließend folgt die Datenauswertung mit Bestimmung der Überlappungsfunktionen und der optischen Eigenschaften von Aerosolpartikeln in Kapitel 4. Der Aerosoltransport aus Osteuropa, insbesondere durch Biomassenverbrennung, für drei ausgewählte Beispiele wird in Kapitel 5 dargestellt. In Kapitel 6 werden die optischen Aerosoleigenschaften der Messreihe aus dem Zeitraum 2006–2010 mit der Messreihe aus dem Zeitraum 2000–2003 verglichen.

Kapitel 2

Atmosphärische Aerosole

Atmosphärische Aerosole bestehen aus festen oder flüssigen Teilchen, die in der Luft schweben. Sie nehmen an physikalischen und chemischen Prozessen der Atmosphäre teil, interagieren mit der Biosphäre und wirken auf das Klima und den menschlichen Körper. Die Kenntnis ihrer Größe, Zusammensetzung und Verteilung ist sehr wichtig, um Einflüsse des Aerosols auf den Strahlungshaushalt der Erde sowie auf Wasser- und Spurenstoffkreisläufe zu bestimmen. Dieses Kapitel gibt einen Überblick über die Entstehung und den Lebenslauf der atmosphärischen Aerosolpartikel und beschreibt grundlegende optische und mikrophysikalische Eigenschaften sowie den Einfluss der vertikalen Schichtung der Atmosphäre auf die Aerosolpartikel.

2.1 Entstehung und Lebenslauf von Aerosolpartikeln

Die Entstehung der Aerosolpartikel erfolgt nach zwei grundlegenden Mechanismen, zum einem durch homogene Nukleation, zum anderen durch Dispersion. Bei der homogenen Nukleation entstehen die Aerosolpartikel durch homogene Kondensation übersättigter Dämpfe aus der Gasphase heraus und bei der Dispersion wird Material wie Mineralstaub oder Seesalz von der Erdoberfläche aufgewirbelt [Rödel, 2000, S. 396]. Solche Aerosolpartikel werden direkt (primär) emittiert. Die primären Eigenschaften der Aerosolpartikel bleiben während des Aufenthaltes in der Atmosphäre nicht erhalten, sondern verändern durch eine Vielzahl von Umwandlungsprozessen ihre chemische Zusammensetzung sowie ihre physikalischen und optischen Eigenschaften.

Die durch Vorläufergase in der Luft gebildeten Aerosole werden als Sekundäraerosol

bezeichnet. Abb. 2.1 zeigt einige wichtige Umwandlungsprozesse in der Troposphäre, die Aerosole durchlaufen, bevor sie nach einigen Tagen schließlich als gealtertes Misch-aerosol vorliegen und durch trockene oder nasse Deposition ausgeschieden werden. Zur trockenen Deposition zählen das gravitationsbedingte Absetzen von Partikeln aus der Atmosphäre, das Impaktieren grober Partikel und die Brown'sche Diffusion bei feinen Partikeln. Hingegen werden bei der nassen Deposition die Partikel durch Niederschlag aus der Atmosphäre ausgewaschen [Heintzenberg, 2008b].

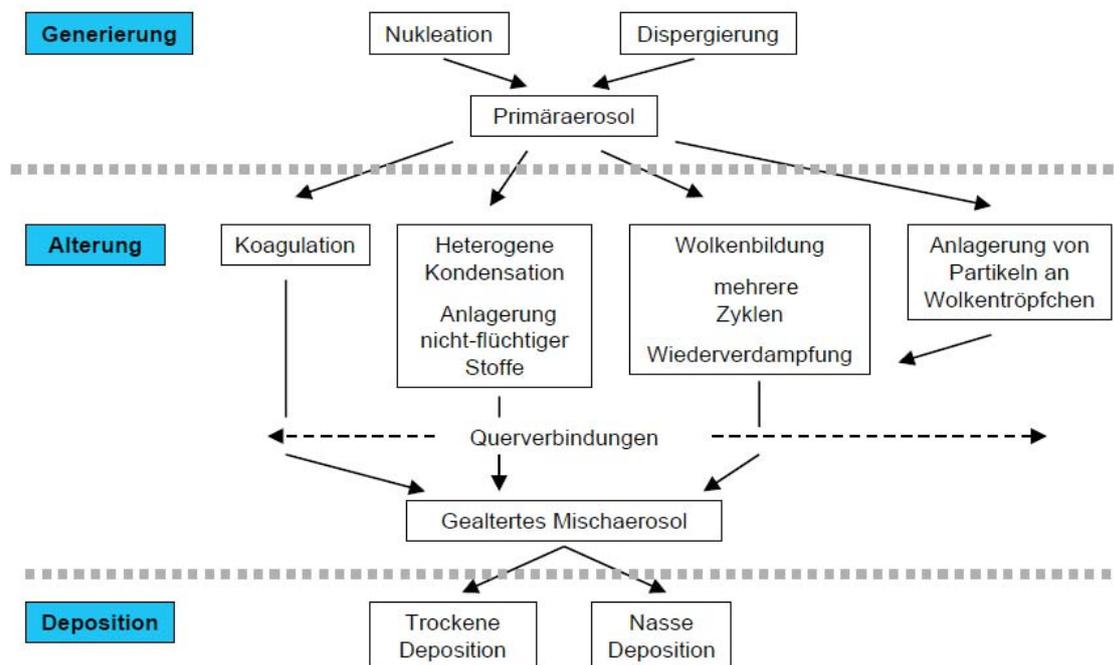


Abbildung 2.1: Umwandlungsprozesse in der Troposphäre, aus der Vorlesung von Dr. R. Tuckermann zu „Atmosphärenchemie“ an der Universität Köln im Wintersemester 2005/2006, <http://www.pci.tu-bs.de/aggericke/PC5-Atmos/Aerosole.pdf>.

Es gibt natürliche und anthropogene Quellen der Aerosolpartikel [Heintzenberg, 2008a]. Zu den wichtigsten natürlichen Quellen gehören aufgewirbelte Mineralien aus Wüstengebieten und Seesalz. Letzteres wird durch Zerplatzen von Wasserbläschen aus den Ozeanen freigesetzt. Waldbrände und Vulkanausbrüche sowie biologisch erzeugte Partikel wie Pollen zählen ebenfalls darunter. Die wichtigste anthropogene Quelle ist die Verbrennung fossiler Brennstoffe. Andere direkte Emissionen werden durch Industrie, Verkehr und Hausbrand verursacht. Global gesehen sind Emissionen von Aerosolparti-

keln wie Seesalz und Bodenstaub die größte natürliche Quelle [Möller, 2003, S. 66]. Ihre Lebensdauer hingegen ist wegen der Größe kürzer als die der feineren, anthropogenen Partikel.

In Mitteleuropa werden folgende Aerosoltypen beobachtet: anthropogene Aerosole aus lokalen Quellen, Saharastaub, Waldbrandaerosol aus Nordamerika und Europa, marine Aerosole aber auch Arktischer Dunst oder Verschmutzungen aus Osteuropa [Mattis *et al.*, 2008]. Die verschiedenen Aerosoltypen stammen entweder aus lokalen Quellen oder werden durch Ferntransport herangeführt. Der Ferntransport erfolgt in den mittleren Breiten hauptsächlich in der freien Troposphäre durch den Wechsel der Luftmassen in Abhängigkeit von den Großwetterlagen. So können Schichten mit unterschiedlichen Aerosoltypen über sehr weite Strecken transportiert werden. Die Charakterisierung der verschiedenen Aerosoltypen erfolgt mit Hilfe meteorologischer Daten und der optischen Eigenschaften der Aerosolpartikel.

Die Aerosolpartikel aus lokalen Quellen werden durch Konvektion in der Grenzschicht transportiert. Befinden sich zusätzlich vertikal ausgedehnte Wolken wie Cumulonimben in der Atmosphäre, können die Aerosolpartikel durch starke Vertikalbewegungen aus der Grenzschicht bis in die obere Troposphäre getragen werden. Eine weitere Möglichkeit, Aerosolpartikel zu transportieren, bieten mesoskalige konvektive Systeme wie Böenfronten. Sie haben eine große horizontale Ausdehnung mit zumeist starken Vertikalwinden und können sowohl die Aufenthaltszeit von Aerosolpartikeln verlängern als auch ihre Eigenschaften transformieren.

Die starke Variabilität der Quellen und Senken sowie die zahlreichen Transportmöglichkeiten und chemischen Umwandlungsprozesse führen zu einer starken räumlichen und zeitlichen Variabilität der Aerosolkonzentration und der Partikeleigenschaften. Dies macht die allgemeine Beschreibung der Aerosoleigenschaften schwieriger. Es ist daher essentiell, umfangreiche Messungen an kontinental und maritim beeinflussten Standorten mit städtischem als auch ländlichem Hintergrund durchzuführen und charakteristische Eigenschaften zu bestimmen und die Variabilität zu quantifizieren.

2.2 Mikrophysikalische Eigenschaften

Der wichtigste Parameter zur Beschreibung der mikrophysikalischen Eigenschaften von Aerosolpartikeln ist der Partikeldurchmesser. Er bewegt sich in einem Größenbereich von 0.001 bis 100 μm . Alle Partikel, die größer als 100 μm sind, können sich wegen der Schwerkraft nur einige Sekunden in der Luft halten und gelten damit nicht als

Aerosolpartikel.

Das Größenspektrum der Aerosole wird über den Partikeldurchmesser d in grobe ($>2.5\ \mu\text{m}$) und feine Partikel ($<2.5\ \mu\text{m}$) unterteilt, wobei die feinen Partikel klassifiziert werden in [Seinfeld und Pandis, 2006, S. 59]:

- Nukleations-Mode mit $d = 0.001 - 0.01\ \mu\text{m}$,
- Aitken-Mode mit $d = 0.01 - 0.1\ \mu\text{m}$,
- Akkumulations-Mode mit $d = 0.1 - 2.5\ \mu\text{m}$.

Der Nukleations-Mode ist der Größenbereich, in dem die Partikelneubildung aus Vorläufergasen stattfindet. Ohne fortlaufende Neubildung dieser Partikel würde es, neben den aus natürlichen Quellen stammenden Partikeln, keine großen Partikel geben [Rödel, 2000, S.404]. Dabei hängt die Größe der Partikel von der aktuellen Übersättigung der kondensierten Dämpfe ab. Im Nukleations-Mode wachsen die Partikel hauptsächlich durch Kondensation an, wohingegen der Aitken- und Akkumulations-Mode durch Koagulation bestimmt wird. Koagulationsprozesse führen zu einer Abnahme der Anzahlkonzentration und einer Erhöhung des Partikeldurchmessers [Wiedensohler, 2007]. Nach oben hin wird das Größenspektrum der Aerosolpartikel durch die groben Partikel begrenzt. Dazu zählen primäre und schrittweise gealterte Aerosole.

Die Größenverteilung der Aerosole kann durch den effektiven Radius beschrieben werden. Der effektive Radius r_{eff} stellt den oberflächengewichteten mittleren Radius eines Partikelensembles dar und ist definiert als

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

wobei r der Partikelradius und n die Partikelanzahldichte ist [Hansen und Travis, 1974]. Mit einer logarithmischen Normalverteilung lässt sich ebenfalls die Größenverteilung der Aerosolpartikel in der Atmosphäre charakterisieren [Heintzenberg und Welch, 1982].

„Die atmosphärische Lebensdauer ist die Durchschnittsdauer, die ein Partikel in der Atmosphäre verbringt“ [Heintzenberg, 2008b]. Sie kann von wenigen Stunden über Tage und Wochen bis mehrere Jahre reichen. Dabei spielen Faktoren wie physikochemische Eigenschaften der Aerosolpartikel und die Höhe, in der sie sich befinden, sowie die aktuelle Wetterlage eine entscheidende Rolle. Sehr große ($d > 10\ \mu\text{m}$) und sehr kleine ($d < 0.01\ \mu\text{m}$) Partikel haben eine Lebensdauer in der Größenordnung

einiger Stunden. Für große Partikel verringert sich die Lebensdauer durch den zunehmenden Einfluss der Sedimentation und für kleine Partikel durch den zunehmenden Einfluss der Koagulation. Für mittelgroße Partikel ist die nasse Deposition durch Niederschlag ein wirksamer Senkenprozess. Die Aerosolpartikel in der Größenordnung von $0.01 < d < 10 \mu\text{m}$ können bis zu mehreren Tagen in der Atmosphäre verweilen [Rödel, 2000, S.409].

In der Grenzschicht ist die Lebensdauer mit weniger als einer Woche relativ kurz, da die Aerosolpartikel nach oben hin die Grenzschicht nicht verlassen können und die Deposition sehr effektiv ist. Jedoch können die Aerosolpartikel in der freien Troposphäre über zwei Wochen [Mattis *et al.*, 2008] und in der Stratosphäre, wie im Falle des Vulkanausbruchs Pinatubo im Juni 1991, bis zu 15 Monaten verweilen. [Ansmann *et al.*, 1997].

2.3 Optische Eigenschaften

Die Wechselwirkung zwischen Aerosolen und der Strahlung¹ in der Atmosphäre ist abhängig von der Größe und der chemischen Zusammensetzung (Brechungsindex) der Aerosolpartikel sowie von der jeweiligen Wellenlänge der Strahlung. Diese Wechselwirkungen sind am effektivsten, wenn die Wellenlänge der Strahlung etwa mit der Größe des Partikels übereinstimmt. Demzufolge wird der Strahlungshaushalt (im solaren Spektralbereich) hauptsächlich von den Akkumulations-Mode-Partikeln beeinflusst.

Zur Charakterisierung der Aerosolpartikel können die optischen Eigenschaften in extensive und intensive Zustandsgrößen unterteilt werden. Die extensiven Größen sind abhängig von der Anzahl der Partikel. Zu ihnen gehören der Extinktionskoeffizient α und der Rückstreuoeffizient β . Die intensiven Größen Lidarverhältnis (s. Gleichung (2.7)) und die Ångströmxponenten (s. Gleichung (2.5), (2.6)) hängen dagegen von der Größe der Partikel und ihrem Brechungsindex ab. Mit Hilfe der intensiven Größen können Aussagen über den Aerosoltyp getroffen werden.

Fällt Strahlung auf ein Aerosolpartikel, so sind Absorption (engl. absorption) und Streuung (engl. scattering) die Folge. Die entsprechenden Koeffizienten werden als Absorptionskoeffizient α_{abs} und totaler Streukoeffizient α_{sca} bezeichnet und ergeben in der Summe den Extinktionskoeffizienten. Die Extinktion ist ein Maß für die Schwächung der Strahlintensität pro Volumen. Der Extinktionskoeffizient α ist von der Höhe z und

¹Die Bezeichnung „Strahlung“ bezieht sich hier auf elektromagnetische Strahlung.

von der Wellenlänge λ der einfallenden Strahlung abhängig:

$$\alpha(z, \lambda) = \alpha_{abs}(z, \lambda) + \alpha_{sca}(z, \lambda). \quad (2.2)$$

Die optische Dicke $\tau(z, \lambda)$ gibt Auskunft darüber, wie stark die einfallende Strahlung in einer bestimmten Schicht geschwächt wird. Sie wird bestimmt aus dem vertikalen Integral zwischen Schichtunter- (z_1) und -obergrenze (z_2) des Extinktionskoeffizienten über die Weglänge:

$$\tau(\lambda) = \int_{z_1}^{z_2} \alpha(z, \lambda) dz. \quad (2.3)$$

Der Rückstreuoeffizient β beschreibt, wie viel Strahlung in Rückwärtsrichtung gestreut wird. Er ist abhängig von der Wellenlänge λ und der Höhe z :

$$\beta(z, \lambda) = \sum_i N_i(z) \frac{d\sigma_{i,sca}}{d\Omega}(\pi, \lambda). \quad (2.4)$$

Hier ist N_i die Anzahl der streuenden Partikel der Spezies i und $d\sigma_{i,sca}(\pi, \lambda)/d\Omega$ der differentielle Rückstreuquerschnitt der Partikel bei der Wellenlänge λ .

Der Ångströmxponent \mathring{a} beschreibt die Wellenlängenabhängigkeit des Partikelextinktionskoeffizienten [*Ångström*, 1964]:

$$\mathring{a}_\alpha = \frac{\ln(\alpha_1/\alpha_2)}{\ln(\lambda_2/\lambda_1)}, \quad (2.5)$$

wobei α_1 und α_2 die Extinktionskoeffizienten bei den Wellenlängen λ_1 und λ_2 sind. Kleine Partikel ergeben im Allgemeinen größere Ångströmxponenten als große Partikel. In dieser Arbeit wird der Ångströmxponent auch aus dem Rückstreuoeffizienten berechnet und zur Charakterisierung des Aerosoltyps verwendet:

$$\mathring{a}_\beta = \frac{\ln(\beta_1/\beta_2)}{\ln(\lambda_2/\lambda_1)}. \quad (2.6)$$

Das Extinktions–zu–Rückstreu–Verhältnis (Lidarverhältnis) L_λ ist abhängig von der Absorption und der Größe der Aerosolpartikel [*Ansmann et al.*, 2002]. Absorbierende Partikel haben ein größeres Lidarverhältnis, da sie eine größere Extinktion besitzen. Ebenfalls besitzen kleine Partikel ein großes Lidarverhältnis. Die Gleichung

$$L_\lambda = \frac{\alpha(z, \lambda)}{\beta(z, \lambda)} \quad (2.7)$$

enthält die Höhe z des angestrahlten Partikels und die Wellenlänge λ des vom Lidar ausgesendeten Lichts.

2.4 Vertikale Schichtung der Atmosphäre

Die vertikale Schichtung der Atmosphäre ist charakterisiert durch die Änderung der Temperatur mit der Höhe. Demnach bezeichnet der Höhenbereich von 0 bis etwa 10 km die Troposphäre und der von 10 bis 50 km die Stratosphäre. Die Troposphäre unterteilt sich in planetare Grenzschicht (PBL von engl. Planetary Boundary Layer) und freie Troposphäre (FT von engl. Free Troposphere).

Die planetare Grenzschicht „ist der Teil der Troposphäre, der direkt durch die Erdoberfläche beeinflusst wird und auf einer Zeitskala von einer Stunde oder weniger auf die Oberflächenkräfte reagiert“ [Stull, 1988, S. 2]. Zu den angesprochenen Oberflächenkräften zählen u.a. die Reibung, die Verdunstung, der Wärmetransport und die Schadstoffemissionen. Die PBL steht in direktem Bodenkontakt. Die Höhe ihrer Oberkante ist in Raum und Zeit sehr variabel. Ihre Ausdehnung reicht von wenigen hundert Metern bis zu einigen tausend Metern. Sie ist eine wichtige Größe bei der Beschreibung der vertikalen Prozesse in der unteren Troposphäre und somit Bestandteil in Luftqualitäts-Modellen. Mit Hilfe von Vertikalprofilen aus Temperatur, Luftfeuchte, Wind und Spurenstoffkonzentrationen kann die Obergrenze der PBL ermittelt werden. Solche Profile kann man zum Beispiel mit einem Lidar messen. Die Messungen bieten eine gute Raum- und Zeitaufösung, können jedoch im Fall von Niederschlag und tiefen Wolken meist nicht durchgeführt werden.

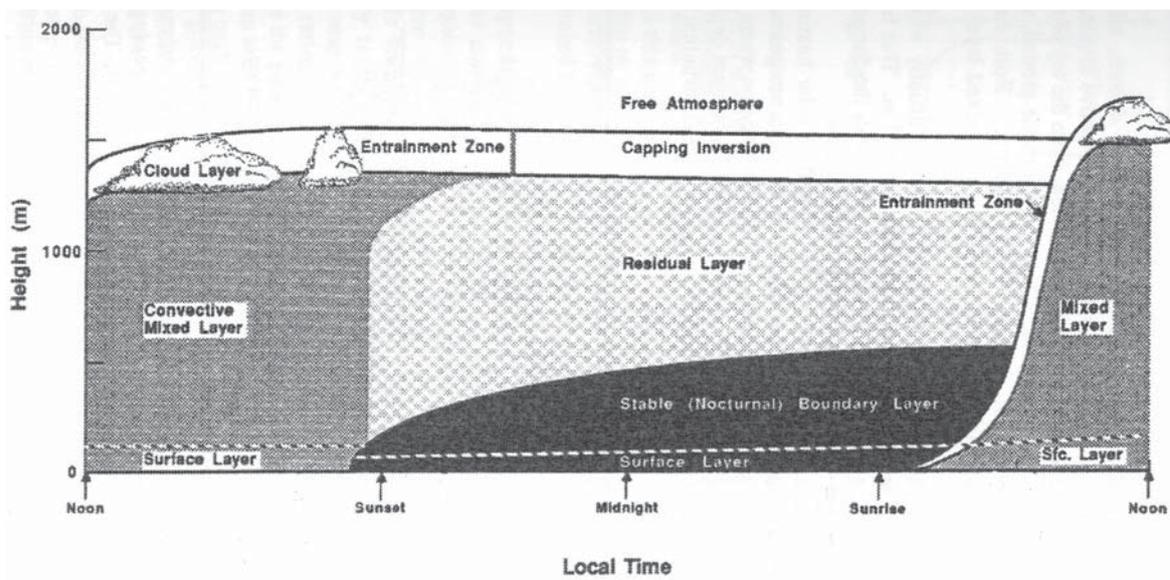


Abbildung 2.2: Typische Grenzschichtentwicklung im Laufe eines Tages, aus Stull [1988].

In Abb. 2.2 ist die typische Grenzschichtentwicklung im Laufe eines Tages dargestellt. Grundsätzlich besteht die Grenzschicht aus der Mischungsschicht (engl. Convective Mixed Layer), der Restschicht (engl. Residual Layer) und der stabilen Grenzschicht (engl. Stable Boundary Layer). Kommt es zur Bildung von Wolken, kann eine weitere Unterteilung in eine Wolkenschicht (engl. Cloud Layer) und eine Schicht unterhalb der Wolken vorgenommen werden. Die ersten 10% der Grenzschicht werden als Bodenschicht (engl. Surface Layer) definiert [Stull, 1988, S. 10]. Die einzelnen Schichten sind unterschiedlich stabil geschichtet. Die potentielle Temperatur wird dabei als Maß für die Stabilität verwendet.

Unmittelbar nach Sonnenaufgang (Abb. 2.2) erwärmt sich die Atmosphäre aufgrund von turbulentem Wärmetransport vom Boden her und löst die nächtliche, stabile Grenzschicht auf. Es kommt zur Bildung einer gut durchmischten Schicht, der Mischungsschicht, die nach oben hin durch die Austausch-Schicht (engl. Entrainment Zone) begrenzt wird. Das Aufwachsen der Mischungsschicht wird vorrangig durch Konvektion angetrieben. Dabei werden Feuchte, Wärme, Impuls und Aerosole gleichmäßig verteilt. Alle aus der freien Troposphäre eingemischten Stoffe verbleiben größtenteils in der stabilen Austausch-Schicht, die wie ein Deckel für die Mischungsschicht wirkt. Dadurch verteilen sich die Aerosolpartikel hauptsächlich in der darunterliegenden Mischungsschicht und weisen eine höhere Anzahlkonzentration auf als in der freien Troposphäre. Die Partikel aus der Mischungsschicht stammen hauptsächlich aus lokalen und regionalen Quellen. Die in der freien Troposphäre vorkommenden Partikel werden meist über Ferntransport advehiert [Wandinger *et al.*, 2004]. Kurz vor Sonnenuntergang bildet sich die stabile nächtliche Grenzschicht aus. Sie hat im Allgemeinen eine geringere Ausdehnung als die Mischungsschicht. Darüber verbleibt der Rest der Mischungsschicht vom Vortag, die nach oben hin durch eine Inversion (engl. Capping Inversion) begrenzt wird. Sie trennt die PBL von der freien Troposphäre. In der stabilen nächtlichen Grenzschicht gibt es fast keine Turbulenzen. Hier gelingt es den Aerosolen nur schwer, sich in der Vertikalen auszubreiten. Sie verteilen sich schneller in der Horizontalen. Mit Sonnenaufgang und zunehmender solarer Einstrahlung lösen sich die stabile Grenzschicht und die Restschicht auf. Falls die solare Einstrahlung aufgrund von Wolken verringert wird, bildet sich die Mischungsschicht ebenfalls nur gering aus und die Restschicht vom Vortag bleibt weiterhin bestehen. Die Grenzschichtentwicklung macht deutlich, dass die Höhe der PBL hauptsächlich von der Intensität der Einstrahlung abhängig ist. Das bedeutet, dass sich im Winter aufgrund von verminderter Einstrahlung eine PBL mit geringerer Höhe entwickelt.

In der unteren Stratosphäre, bis etwa 30 km, können ebenso optische Eigenschaften von Aerosolpartikeln mit Hilfe eines Lidars bestimmt werden [Jäger, 2005; Ansmann *et al.*, 1997, 1998]. Es gibt zwei unterschiedliche Quellen stratosphärischer Aerosolpartikel. Zum einen werden Partikel oder ihre Vorläufergase durch einen kontinuierlichen Massenfluss von der Troposphäre oder der Erdoberfläche eingetragen, so dass eine stationäre stratosphärische Aerosolschicht (Junge-Schicht etwa in 15–25 km Höhe) entsteht. Zum anderen gelangen Partikel direkt oder durch Bildung aus der Gasphase mit anschließender Kondensation, zum Beispiel bei Vulkanausbrüchen und Waldbränden, in die Stratosphäre. Solche Ereignisse bewirken nur für eine bestimmte Zeit eine erhöhte Massenkonzentration und veränderte optische Eigenschaften [Rödel, 2000, S. 428]. Die Kenntnis dieser Änderungen ist wichtig, um Änderungen im Strahlungshaushalt der Erde abschätzen zu können. Die eingetragenen Partikel in der Stratosphäre aus Vulkanausbrüchen und Waldbränden können einen abkühlenden sowie erwärmenden Effekt im Klimasystem verursachen.

Kapitel 3

Ramanlidar

3.1 Aufbau und Prinzip

Ein Lidar-System ist ein aktives optisches Fernerkundungsmessgerät. Als Lichtquelle dient ein gepulster, leistungsstarker Laser. Durch Wechselwirkung der monochromatischen und kohärenten elektromagnetischen Laserstrahlung mit Molekülen und Aerosolpartikeln der Atmosphäre können Zustandsgrößen wie Temperatur, Feuchte und Wind sowie optische Eigenschaften von Wolken und Aerosolen bestimmt werden. Im folgenden wird der Begriff „Licht“ für die vom Laser ausgesendete Strahlung und deren zurückgestreute Anteile verwendet, auch wenn die jeweiligen Wellenlängen nicht im sichtbaren Bereich liegen.

Grundlage dieser Arbeit sind Messungen, die von 2000–2010 am Leibniz-Institut für Troposphärenforschung in Leipzig mit dem Mehrwellenlängenlidar MARTHA durchgeführt wurden. Der schematische Aufbau des Lidars ist in Abb. 3.1 dargestellt.

Das Ramanlidar MARTHA sendet mit einer Frequenz von 30 Hz kurze Laserpulse bei drei Wellenlängen aus. Dabei wird die Wellenlänge 1064 nm direkt durch einen Nd:YAG-Laser (Neodym-dotierter Yttrium-Aluminium-Granat) erzeugt und die Wellenlängen 532 und 355 nm werden durch Frequenzverdopplung und -verdreifung generiert. Der Laserstrahl hat zunächst einen Durchmesser von 10 mm. Er durchläuft ein Aufweitungsteleskop und wird auf einen Durchmesser von 150 mm ausgedehnt. Dies reduziert die Strahldivergenz auf weniger als 0.1 mrad. Anschließend gelangt der Strahl über einen Umlenkspiegel vertikal in die Atmosphäre. Die ausgesendeten Photonen werden an Molekülen und Aerosolpartikeln teilweise absorbiert sowie elastisch oder inelastisch gestreut. Mit Hilfe eines Cassegrain-Teleskops mit 80 cm Durchmesser können die zurückgestreuten Photonen empfangen werden. Das Teleskop befindet

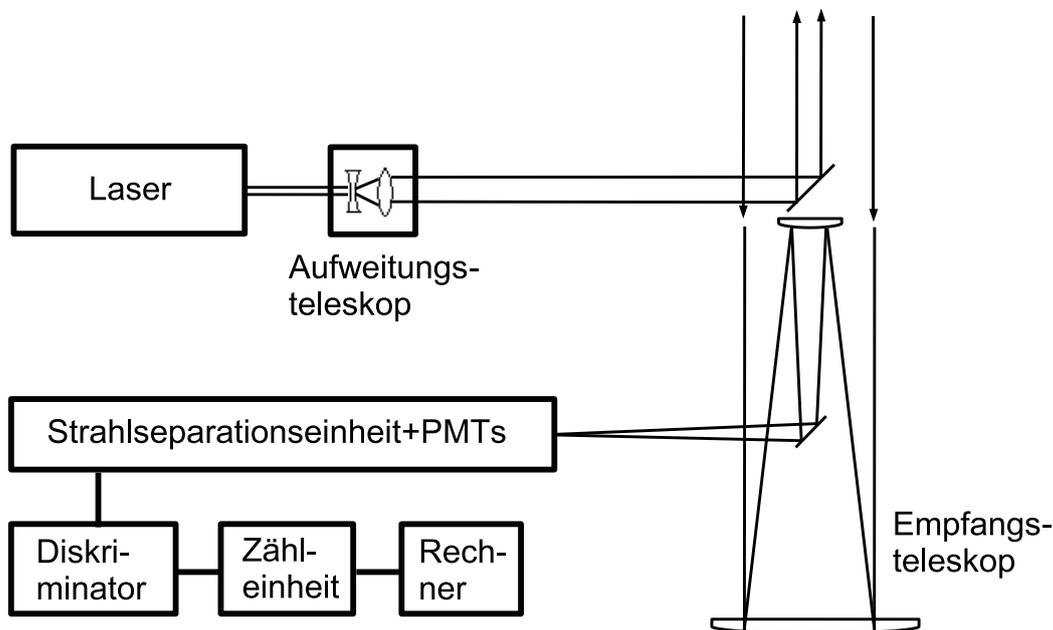


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung des Raman-Lidars MARTHA

sich direkt unterhalb des Laserauslenkspiegels und garantiert somit, dass die optische Achse des Teleskops mit der Ausbreitungsrichtung des Laserstrahls übereinstimmt. Dieser Aufbau wird als „monoaxiales System“ bezeichnet. Das Gesichtsfeld des Empfänger-teleskops ist der Raumwinkelbereich, in dem Licht durch das Teleskop in die Empfänger-optik gelangt. Die Größe des Gesichtsfeldes ist dabei abhängig von der Feldblende, welche das einfallende Licht außerhalb des Gesichtsfeldes abschattet. Für ein großes Gesichtsfeld nimmt die Überlappungsfunktion auch in niedrigen Höhen ein Maximum an (s. Abschnitt 3.2). Für ein kleines Gesichtsfeld hingegen, wie im Falle von MARTHA, ist das Signal-zu-Rausch-Verhältnis am Tag durch das einfallende Licht kleiner, so dass im Vergleich zum großen Gesichtsfeld auch in größeren Höhen Signale gemessen werden können. Das Gesichtsfeld für MARTHA hat einen Durchmesser von 0.5 mrad.

Das Ramanlidar-Prinzip nutzt den Effekt der Wellenlängenverschiebung bei inelastischer Streuung an Molekülen (Raman-Streuung) aus. Das heißt, die rückstreuenden Moleküle nehmen einen Teil der Energie des Photons auf, oder geben Energie ab, so dass es zu einer Frequenzverschiebung der zurückgestreuten Strahlung kommt. Die Frequenzverschiebung wird durch die Art der streuenden Moleküle bestimmt. Bei der

elastischen Streuung (Rayleigh–Streuung) an Molekülen und der Miestreuung an Partikeln bleibt die Wellenlänge der Strahlung nach dem Streuvorgang unverändert.

Aus der spektralen Verteilung, dem Polarisationszustand und der Intensität des zurückgestreuten Lichts lassen sich Kenntnisse über Art und Konzentration der streuenden Elemente gewinnen. Die empfangenen Photonen gelangen über einen weiteren Umlenkspiegel in einen Polychromator (Strahlseparationseinheit) und werden durch dichroitische Strahlteiler und Interferenzfilter spektral separiert. Der Nachweis erfolgt über Photomultiplier (PMT). Damit können einzelne Photonen durch eine Photokathode und einen nachgeschalteten Sekundärelektronenvervielfacher in messbare Spannungspulse umgewandelt werden, die vom Diskriminator in Standardpulse transformiert werden. Ein Zähler registriert die Spannungspulse in einer bestimmten Zeit und summiert diese über mehrere Laserpulse. Mit einem Rechner werden schließlich die empfangenen Signale aufgezeichnet. Das Ergebnis sind elastische Rückstreusignale bei den drei Emissionswellenlängen 355, 532 und 1064 nm und die Ramansignale von Stickstoff bei 387 und 607 nm bzw. von Wasserdampf bei 407 nm.

Die Entfernung R zwischen dem Teleskop und dem streuenden Volumen kann mittels der Lichtgeschwindigkeit c und der Zeit t , die vom Aussenden des Laserpulses bis zum Empfang der Photonen benötigt wird, über die Beziehung

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

berechnet werden. Die räumliche Auflösung der Messung ist abhängig von der zeitlichen Auflösung der detektieren Signale. Bei MARTHA ist sie 60 m.

3.2 Lidargleichung

Die Lidargleichung bildet die Grundlage aller Berechnungen. Die folgenden Betrachtungen sind aus *Wandinger* [2005] entnommen. Die Lidargleichung beschreibt die empfangene Leistung P aus der Entfernung R bei der emittierten Wellenlänge λ_0 :

$$P(R, \lambda_0) = P_0 \frac{O(R)C(\lambda_0)}{R^2} \beta(R, \lambda_0) \exp \left[-2 \int_0^R \alpha(r, \lambda_0) dr \right]. \quad (3.2)$$

Dabei ist:

- P_0 die durchschnittliche Leistung eines einzelnen Laserpulses,
- $O(R)$ die Überlappungsfunktion,

- $C(\lambda_0)$ die Systemkonstante,
- $\beta(R, \lambda_0)$ der Rückstreukoeffizient und
- $\alpha(R, \lambda_0)$ der Extinktionskoeffizient.

$O(R)$ beschreibt die Überlappung zwischen dem Laserstrahl und dem Gesichtsfeld des Detektors. Für einen Wert von $O(R) = 1$ wird der Laserstrahl vollkommen auf dem Detektor abgebildet. Dies wird bei MARTHA in einer Höhe von etwa 4 km erreicht. Für die Bereiche darunter wird der Laserstrahl durch den Sendespiegel zum Teil abgeschattet und die Abbildung durch das Teleskop ist unscharf. Der Term R^{-2} beschreibt, dass nur Signale detektiert werden, die in einen Raumwinkel von

$$\Omega_{Lidar} = \frac{A}{R^2} \quad (3.3)$$

zurückgestreut werden. A stellt dabei die Fläche des Empfangsteleskops dar. Die wellenlängenabhängige Systemfunktion

$$C(\lambda_0) = \frac{c\tau}{2} A\eta(\lambda_0) \quad (3.4)$$

enthält die Effizienz der Empfangsoptik und der Detektoren. Sie ist über die zeitliche Länge des Laserpulses τ , die Fläche des Empfangsteleskops A und durch die Systemeffizienz η bei der Wellenlänge λ_0 definiert.

Der wellenlängenabhängige Rückstreukoeffizient $\beta(R, \lambda)$ am Streuort R mit der Dimension $[\text{m}^{-1}\text{sr}^{-1}]$ ist der Anteil des gestreuten Lichts, der unter einem Winkel von 180° elastisch zurückgestreut wird (s. Abschnitt 2.3). Er setzt sich zusammen aus den an Molekülen (mol) und Partikeln (par) gestreuten Anteilen:

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

Der Exponentialterm $\exp\left[-2\int_0^R \alpha(r, \lambda) dr\right]$ aus der Gleichung (3.2) beschreibt die Schwächung des Lichts auf dem Weg durch die Atmosphäre. Der Faktor 2 steht für den Hin- und Rückweg des Strahls. Der Extinktionskoeffizient $\alpha(R, \lambda)$ mit der Dimension $[\text{m}^{-1}]$ ist ähnlich wie der Rückstreukoeffizient $\beta(R, \lambda)$ über das Produkt der Anzahlkonzentration $N_i(R)$ und den Extinktionsquerschnitt $\sigma_{i,ext}$ für alle Sorten der Streuer i definiert

$$\alpha(R, \lambda) = \sum_i N_i(R) \sigma_{i,ext}(\lambda). \quad (3.6)$$

Dabei wird die Schwächung des Lichts durch Absorption (abs) und Streuung (sca) an Molekülen und Partikeln berücksichtigt. Für die beim Lidar MARTHA verwendeten Wellenlängen kann die Absorption an Molekülen vernachlässigt werden, so dass

$$\alpha(R, \lambda) = \alpha_{mol}^{sca}(R, \lambda) + \alpha_{par}^{sca}(R, \lambda) + \alpha_{par}^{abs}(R, \lambda). \quad (3.7)$$

Für ein vertikal ausgerichtetes Lidar-System, wie MARTHA, ist die Entfernung gleich der Höhe und es gilt in allen Gleichungen $R=z$. Die Molekülextinktion und Molekül-rückstreuung wird für jede Höhe z aus den Profilen der meteorologischen Daten Druck und Temperatur berechnet. Diese können aus Radiosondenaufstiegen, aus den Analysedaten numerischer Wettermodelle oder aus Literaturwerken, zum Beispiel der U.S. Standard-Atmosphäre von 1976 [Kraus, 2004], entnommen werden. In dieser Arbeit werden Radiosondenprofile der Station Lindenberg verwendet, die in 175 km Entfernung nordöstlich vom Lidarstandort Leipzig liegt.

Ein Problem der Lidargleichung (3.2) ist, dass es zwei Unbekannte gibt:

- den Partikelextinktionskoeffizienten und
- den Partikelrückstreukoeffizienten.

Die Ramanlidar-Methode bietet dafür eine Lösung. Hier wird ein zweites, unabhängiges Signal gemessen, welches nicht von der Partikelrückstreuung abhängig ist. Bei der Raman-Methode muss beachtet werden, dass diese meistens nur auf Nachtmessungen angewendet wird, da nur nachts die intensitätsschwachen Raman-Signale ohne störende Hintergrundstrahlung gemessen werden können. Die Lidargleichung für die Ramanrückstreuung lautet:

$$P(R, \lambda_R) = P_0 \frac{O(R)C(\lambda_R)}{R^2} \beta_R(R, \lambda_0) \exp \left[- \int_0^R [\alpha(r, \lambda_0) + \alpha(r, \lambda_R)] dr \right], \quad (3.8)$$

wobei $\beta_R(R, \lambda_0)$ der Rückstreukoeffizient und $\alpha(R, \lambda_0)$ der Extinktionskoeffizient auf dem Weg zum Streuort mit der Laserwellenlänge λ_0 und $\alpha(R, \lambda_R)$ der Extinktionskoeffizient auf dem Weg zurück zum Lidar mit der Wellenlänge λ_R der inelastisch gestreuten Strahlung ist. Die Rückstreuung ist reine Raman-Streuung. Der Rückstreukoeffizient

$$\beta_R(R, \lambda_0) = N_R(R) \frac{d\sigma_R}{d\Omega}(\pi, \lambda_0) \quad (3.9)$$

wird berechnet aus der Anzahlkonzentration $N_R(R)$ der inelastisch streuenden Moleküle und ihrem differentiellen Wirkungsquerschnitt $d\sigma_R(\pi, \lambda_0)/d\Omega$ bei der Wellenlänge λ_0 für den Streuwinkel π . Der differentielle Wirkungsquerschnitt ist für verschiedene

Moleküle bekannt. Im Falle von MARTHA wird Stickstoff benutzt, da die Atmosphäre hauptsächlich aus Stickstoff besteht und dessen Mischungsverhältnis konstant ist.

Das molekulare Lidarverhältnis ist ebenfalls bekannt. Es hängt nicht von der Entfernung ab und ist ein konstanter Faktor

$$L_{mol} \approx \frac{8\pi}{3} \text{ sr.} \quad (3.10)$$

Im Gegensatz dazu hängt das Partikel–Lidarverhältnis (s. Gleichung (2.7)) von den physikochemischen Eigenschaften der Partikel ab.

3.3 Berechnung optischer Partikeleigenschaften

Die Partikelextinktions- und –rückstreukoeffizienten können aus den Signalen des Lidars ermittelt werden. Es gibt verschiedene Möglichkeiten dafür. In *Ansmann und Müller* [2005] finden sich dazu die grundlegenden Verfahren, welche in den folgenden Abschnitten erklärt werden.

3.3.1 Berechnung des Extinktionskoeffizienten

Das Einsetzen des Ramanrückstreukoeffizienten aus Gleichung (3.9) in die Raman–Lidargleichung (3.8) und die anschließende Bildung des natürlichen Logarithmus sowie das Ableiten nach R führen zum Gesamttextinktionskoeffizienten:

$$\alpha(R, \lambda_0) + \alpha(R, \lambda_R) = \frac{d}{dR} \ln \left[\frac{N_R(R)}{P(R, \lambda_R) R^2} \right] + \frac{d}{dR} \ln O(R, \lambda_R). \quad (3.11)$$

Nach Aufspaltung des Extinktionskoeffizienten in Partikel- und Molekülanteil nach Gleichung (3.7) ergibt sich:

$$\begin{aligned} \alpha_{par}(R, \lambda_0) + \alpha_{par}(R, \lambda_R) &= \frac{d}{dR} \ln \left[\frac{N_R(R)}{P(R, \lambda_R) R^2} \right] + \frac{d}{dR} \ln O(R, \lambda_R) \\ &\quad - \alpha_{mol}(R, \lambda_0) - \alpha_{mol}(R, \lambda_R). \end{aligned} \quad (3.12)$$

Mit Hilfe des Ångströmxponenten $\alpha(R)$ wird die spektrale Abhängigkeit der Partikelextinktion ausgedrückt. In die Gleichung (3.12) eingesetzt, erhält man den Partikelextinktionskoeffizienten bei der Wellenlänge λ_0

$$\alpha_{par}(R, \lambda_0) = \frac{\frac{d}{dR} \ln \left[\frac{N_R(R)}{P(R, \lambda_R) R^2} \right] + \frac{d}{dR} \ln O(R, \lambda_R) - \alpha_{mol}(R, \lambda_0) - \alpha_{mol}(R, \lambda_R)}{1 + \left(\frac{\lambda_0}{\lambda_R} \right)^{\hat{\alpha}(R)}}. \quad (3.13)$$

Bei einer vollständigen Überlappung von Laserstrahl und Empfängergesichtsfeld verschwindet der Term $\frac{d}{dR} \ln O(R, \lambda_R)$ und die direkte Berechnung des Extinktionskoeffizienten aus dem Raman-Signal $P(R, \lambda_R)$ ist möglich. Die Parameter $N_R(R)$, $\alpha_{mol}(R, \lambda_0)$ und $\alpha_{mol}(R, \lambda_R)$ sind vom Zustand der Atmosphäre abhängig und können aus Druck- und Temperaturprofilen (s. Abschnitt 3.2) berechnet werden. Beim Ängströmxponenten hingegen wird die Annahme gemacht, er sei höhenkonstant. Die Fehleranalyse zeigt eine Ungenauigkeit von etwa 5% [Ansmann und Müller, 2005]. Der Wert eins dient als Ausgangswert und hat sich für den Standort Leipzig bestätigt [Müller et al., 2007a].

3.3.2 Berechnung des Rückstreukoeffizienten nach der Raman-Methode

Die Berechnung des Partikelrückstreukoeffizienten erfolgt mit dem elastischen und dem Raman-Rückstreusignal. Dazu wird ein Gleichungssystem aus Gleichung (3.2) und Gleichung (3.8) aufgestellt. Um den Partikelrückstreukoeffizienten zu erhalten, wird das Verhältnis aus elastischem und inelastischem Signal in der Messhöhe R und der Referenzhöhe R_0 gebildet:

$$\frac{P(R_0, \lambda_R)P(R, \lambda_0)}{P(R_0, \lambda_0)P(R, \lambda_R)}. \quad (3.14)$$

Nach Einsetzen der dazugehörigen Lidargleichungen unter Berücksichtigung der Partikel- und Molekülanteile folgt:

$$\begin{aligned} \beta_{par}(R, \lambda_0) &= -\beta_{mol}(R, \lambda_0) + \beta_{par}(R_0, \lambda_0) + \beta_{mol}(R_0, \lambda_0) \\ &\times \frac{P(R_0, \lambda_R)P(R, \lambda_0)}{P(R_0, \lambda_0)P(R, \lambda_R)} \frac{N_R(R)}{N_R(R_0)} \\ &\times \frac{\exp \left[-2 \int_{R_0}^R [\alpha_{par}(r, \lambda_R) + \alpha_{mol}(r, \lambda_R)] dr \right]}{\exp \left[-2 \int_{R_0}^R [\alpha_{par}(r, \lambda_0) + \alpha_{mol}(r, \lambda_0)] dr \right]}. \end{aligned} \quad (3.15)$$

Der Partikelrückstreukoeffizient nach der Raman-Methode kann ohne Überlappungsfunktion bestimmt werden, wenn die Signalkanäle so justiert sind, dass die Überlappungsfunktion des Kanals für die elastisch gestreute Wellenlänge $O(R, \lambda_0)$ gleich der Überlappungsfunktion des Kanals der Raman-Wellenlänge $O(R, \lambda_R)$ ist. Somit kürzen sich die Überlappungsfunktionen bei der Bildung des Signalverhältnisses heraus. Unter dieser Voraussetzung ist die Berechnung des Rückstreukoeffizienten in geringer Entfernung vom Lidar möglich. Für die Bestimmung der Partikel- und Molekülrückstreuung

$\beta_{par}(R_0, \lambda_0)$ und $\beta_{mol}(R_0, \lambda_0)$ bei der ausgesandten Wellenlänge λ_0 muss die sogenannte Referenz- oder Kalibrierhöhe R_0 bekannt sein oder abgeschätzt werden. Sie wird so gewählt, dass der Partikelrückstreukoeffizient vernachlässigbar im Vergleich zur bekannten Molekülrückstreuung ist. Solche Bedingungen sind meistens in einer unverschmutzten freien Troposphäre vorzufinden. Sollte dies nicht der Fall sein, kann die Referenzhöhe in die Stratosphäre gesetzt werden.

Kapitel 4

Datenauswertung

4.1 Bestimmung der Überlappungsfunktion

Die Überlappungsfunktion spielt eine wichtige Rolle bei der Bestimmung des Extinktionskoeffizienten und wird in Gleichung (3.13) berücksichtigt. In einem monoaxialen Lidaraufbau verursacht der Sendespiegel eine Abschattung im Gesichtsfeld des Empfangsteleskops und die Abbildung auf die Fotokathode wird für den Nahbereich unscharf (s. Kapitel 3.1). Das bedeutet, es können nur Extinktionsprofile für solche Höhen berechnet werden, für die die Überlappung vollständig ist ($O(R) = 1$) oder wenn die Form der Überlappungsfunktion bekannt ist und die gemessenen Raman-Signale vor der Extinktionsberechnung entsprechend korrigiert werden. Eine unbekannte Überlappungsfunktion stellt die größte Unsicherheit der Extinktionsberechnung dar.

Die Überlappungsfunktion $O(R)$ aus Gleichung (3.2) wird durch den Aufbau der Optik des Lidars bestimmt und ist für jedes Gerät spezifisch. Diese Arbeit bezieht sich ausschließlich auf die Daten des Ramanlidars MARTHA. Es wird für große Entfernungen, das heißt für Vertikalprofilmessungen bis in die untere Stratosphäre, eingesetzt. Um auch sehr geringe Signale aus diesen Höhen messen zu können, ist MARTHA mit einem relativ großen Teleskopspiegel ausgestattet. Lidarsysteme mit großen Teleskopen haben in der Regel eine Überlappungsfunktion, die erst in einigen hundert Metern bis Kilometern komplett ist. Mit kleineren Teleskopen können auch geringere Überlappungshöhen erreicht werden. Daher werden oft zwei Teleskope in einem Lidarsystem verwendet, eins für den Nahbereich und ein großes für die freie Troposphäre bis untere Stratosphäre. Ein Nahfeld-Teleskop für MARTHA wird derzeit konzipiert.

Die Bestimmung der Überlappungsfunktion eines Lidars kann theoretisch durch Strahlverfolgungsmodelle (engl. ray tracing) oder experimentell erfolgen [*Wandinger*

und Ansmann, 2002]. Die experimentelle Methode hat den Vorteil, dass die genauen Spezifikationen der optischen Bauteile nicht bekannt sein müssen. Als Ausgangsgleichung dient die Gleichung (3.8), die nach $O(R)$ umgestellt wird:

$$O(R) = \frac{P(R, \lambda_R)R^2}{P_0C(\lambda_R)\beta(R, \lambda)\exp\left[-\int_0^R [\alpha(r, \lambda_0) + \alpha(r, \lambda_R)] dr\right]}. \quad (4.1)$$

Der Faktor $P_0C(\lambda_R)$ ist eine Normierungskonstante und wird so gewählt, dass die Überlappungsfunktion in großen Höhen den Wert eins annimmt. Die Terme $\alpha(R, \lambda_0)$ und $\alpha(R, \lambda_R)$ werden aus dem gemessenen Profil des Raman-Rückstreukoeffizienten und einem angenommenen Profil des Lidarverhältnisses abgeschätzt. Das Raman-Rückstreuprofil ist unbeeinflusst von der Überlappungsfunktion (s. Abschnitt 3.3.2). Der Einfluss des abgeschätzten Lidarverhältnisses ist umso größer, je größer die optische Dicke der Aerosolschichten im Überlappungsbereich ist. Es sollten daher für die experimentelle Bestimmung nur Messungen unter sauberen atmosphärischen Bedingungen (mit kleiner optischer Dicke) verwendet werden.

4.1.1 Vorgehensweise zur Bestimmung einer Überlappungsfunktion

Für die Bestimmung der Überlappungsfunktionen wurden Messungen aus dem Zeitraum 2009 bis 2010 gesucht, die die folgenden Kriterien erfüllen.

- Es sollte eine Nachtmessung sein, so dass die Raman-Signale vorhanden sind.
- Die planetare Grenzschicht sollte eine niedrige Obergrenze besitzen.
- Die optische Dicke sollte gering sein, so dass nur wenige Aerosolpartikel in der Atmosphäre sind.
- Der Himmel sollte wolkenlos oder nur mit Cirren bedeckt sein.

Solche Messungen können mit Hilfe von „Quicklooks“¹ und AERONET²-Daten identifiziert werden [AERONET-Homepage, 2011]. Sie treten häufig in Wintermonaten unter stabil geschichteten atmosphärischen Bedingungen auf.

Quicklooks sind Abbildungen, die aus dem entfernungskorrigierten Signal bei 1064 nm bestimmt werden. Die Art der Darstellung liefert Informationen über die

¹Zeit-Höhenschnitte eines elastischen Rückstreusignals

²AERosol RObotic NETwork

vertikale Verteilung der Aerosolschichten in der Atmosphäre und deren zeitliche Entwicklung. In Abb. 4.1 sind zwei Beispiele für Quicklooks dargestellt, die den oben genannten Kriterien (saubere Atmosphäre) entsprechen. Blaue Farben stellen Höhenbereiche mit wenig Aerosolpartikeln dar und rote Farben kennzeichnen höhere Aerosolkonzentrationen, wie sie in der PBL an verschmutzten Tagen zu finden sind.

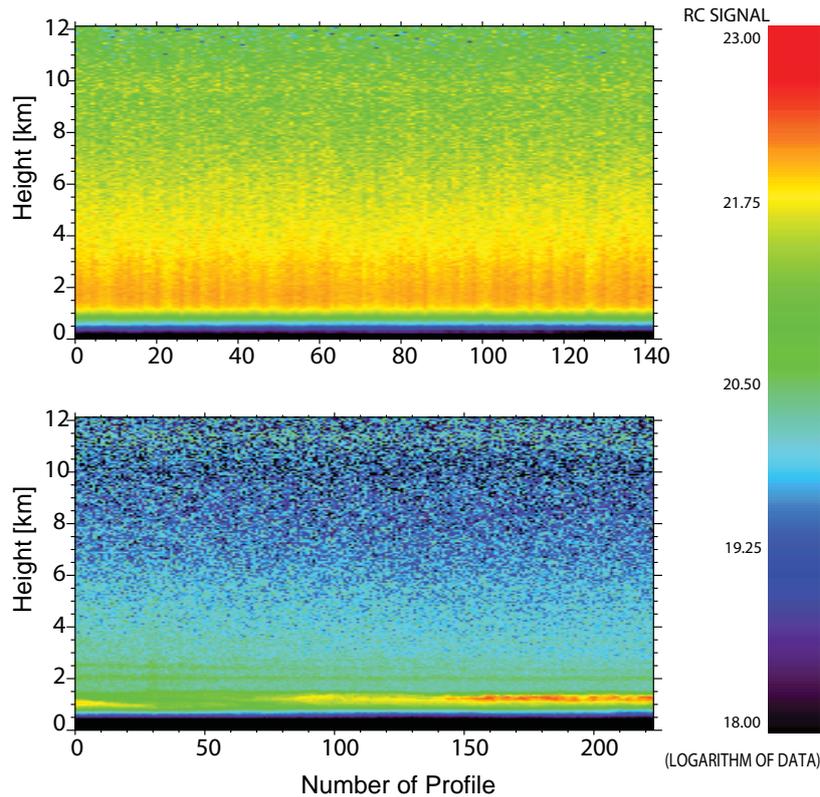


Abbildung 4.1: Entfernungskorrigiertes (RC von engl. range corrected) Signal bei 1064 nm über Leipzig für den 12.01.2009, 16:52-18:03 UTC (oben) und den 19.10.2009, 17:19-19:12 UTC (unten). Die vertikale Auflösung beträgt 60 m und die zeitliche Auflösung 30 s.

AERONET ist ein Netzwerk von Sonnenphotometern. Das Netzwerk liefert vollautomatisch Messdaten der optischen Dicke der Atmosphäre. Die Geräte werden jährlich kalibriert und die Ergebnisse der gemessenen Daten werden ständig einer Qualitätskontrolle unterzogen. Solch ein Sonnenphotometer befindet sich auf dem Dach des IfT-Hauptgebäudes und liefert zusätzliche Informationen für die Auswertung der Lidardaten. Die AOD wird für unterschiedliche Wellenlängen im Bereich von 340 bis 1640 nm gemessen und liegt als Datensatz in drei verschiedenen Stufen vor: Level 1.0

(ohne Qualitätskontrolle), Level 1.5 (Wolken entfernt), Level 2.0 (wie Level 1.5 mit qualitätsgesicherter Kalibration). Für die Identifizierung niedriger AOD werden Daten des Levels 1.5 verwendet. Die optische Dicke bei der Wellenlänge 500 nm sollte hierfür Werte kleiner als 0.1 aufweisen.

Zunächst wurden für jeden der Tage mit $AOD < 0.1$ die Raman-Rückstreuprofile berechnet. Messungen mit einem maximalen Rückstreukoeffizienten von mehr als $1 \text{ Mm}^{-1}\text{sr}^{-1}$ wurden als zu stark verschmutzt deklariert und nicht weiter verwendet. Für die verbleibenden fünf Fälle wurden Überlappungsfunktionen gemäß Gleichung (4.1) für verschiedene Lidarverhältnisse von 20 bis 70 sr berechnet. Unterscheiden sich die Überlappungsfunktionen aller Lidarverhältnisse nicht mehr als 5% voneinander, ist die ermittelte Überlappungsfunktion von der Unsicherheit der Lidarverhältnis-Annahme nahezu unbeeinflusst. In Abb. 4.2 ist die Variation der Überlappungsfunktion an zwei Beispielen dargestellt. Es wird deutlich, dass für die Messung vom 12.01.2009 (s. Abb. 4.2a,b) eine Überlappungsfunktion erstellt werden kann. Hingegen im Fall vom 19.10.2009 (s. Abb. 4.2c,d) die berechnete Überlappungsfunktion mit einer großen Unsicherheit belastet ist. Hier wird ebenso ersichtlich, dass die Unsicherheit der Überlappungsfunktion für die Kanäle im sichtbaren Bereich (532 nm) kleiner als für die UV-Kanäle (355 nm) ist, weil eine fehlerhafte Annahme des Lidarverhältnisses die Auswertung der Lidarsignale im UV stärker beeinflusst als im sichtbaren Spektralbereich [Wallenhauer, 1998]. Für die folgenden Schritte wird das Profil der Überlappungsfunktion genutzt, welches mit einem Lidarverhältnis von 50 sr berechnet wurde. Dies ist ein typischer Wert für den urbanen Standort Leipzig.

Nach der Überprüfung der Sensitivität auf die Lidarverhältnis-Annahme erfolgt die Glättung der Überlappungsfunktion. Dadurch soll das Rauschen in der Überlappungsfunktion verringert werden, da es für die weitere Berechnungen der Extinktion eine große Fehlerquelle darstellt. Die Glättung erfolgt mit einem gleitenden Mittel mit Fensterbreiten von fünf bzw. elf Datenpunkten.

Abb. 4.3 zeigt die geglätteten Überlappungsprofile bei der Wellenlänge 355 nm vom 12.01.2009 sowie deren Ableitungen. Die mit fünf Datenpunkten (schwarz) geglättete Überlappungsfunktion wurde für den unteren Bereich ausgewählt. Ab etwa 2.6 km schneiden sich die geglätteten Überlappungsfunktionen, so dass für die Bereiche darüber die mit elf Datenpunkten (grau) geglättete Überlappungsfunktion verwendet wird. Mit Hilfe der Ableitungen können Datenpunkte aufgespürt werden, die für die spätere Extinktionsbestimmung einen größeren Fehler zur Folge hätten (s. Gleichung (3.13)). Die Übergangshöhe von der 5-Punkt- zur 11-Punkt-Glättung wird so

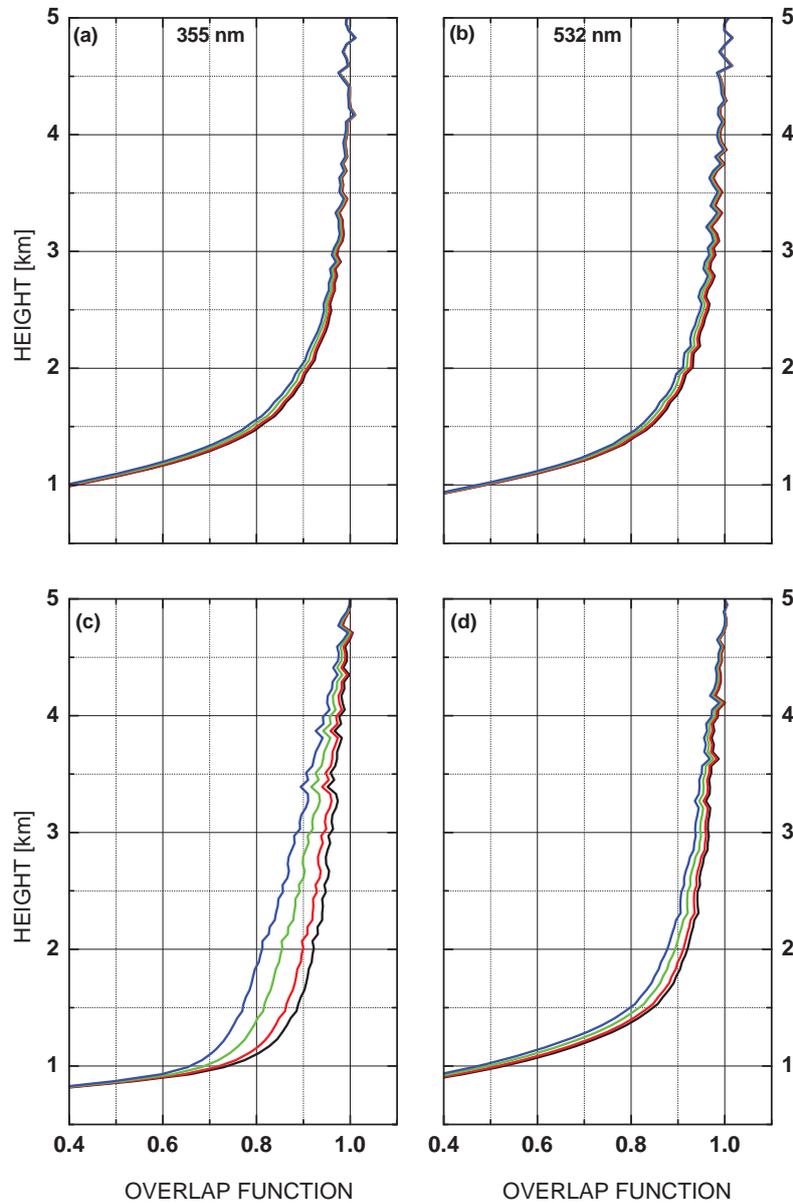


Abbildung 4.2: Variation der Überlappungsfunktion für verschiedene Lidarverhältnisse bei den Wellenlängen 355 (links) und 532 nm (rechts), schwarz: 20 sr, rot: 30 sr, grün: 50 sr, blau: 70 sr. Oben: Profile für die Überlappungsfunktionen vom 12.01.2009, 16:52-18:03 UTC. Unten: Profile für die Überlappungsfunktionen vom 19.10.2009, 17:19-19:12 UTC. In allen Fällen beträgt die vertikale Auflösung 60 m.

gewählt, dass es keine Sprünge im zusammengesetzten Profil der Ableitung gibt. So werden letztlich auch Sprünge in den berechneten Extinktionsprofilen vermieden.

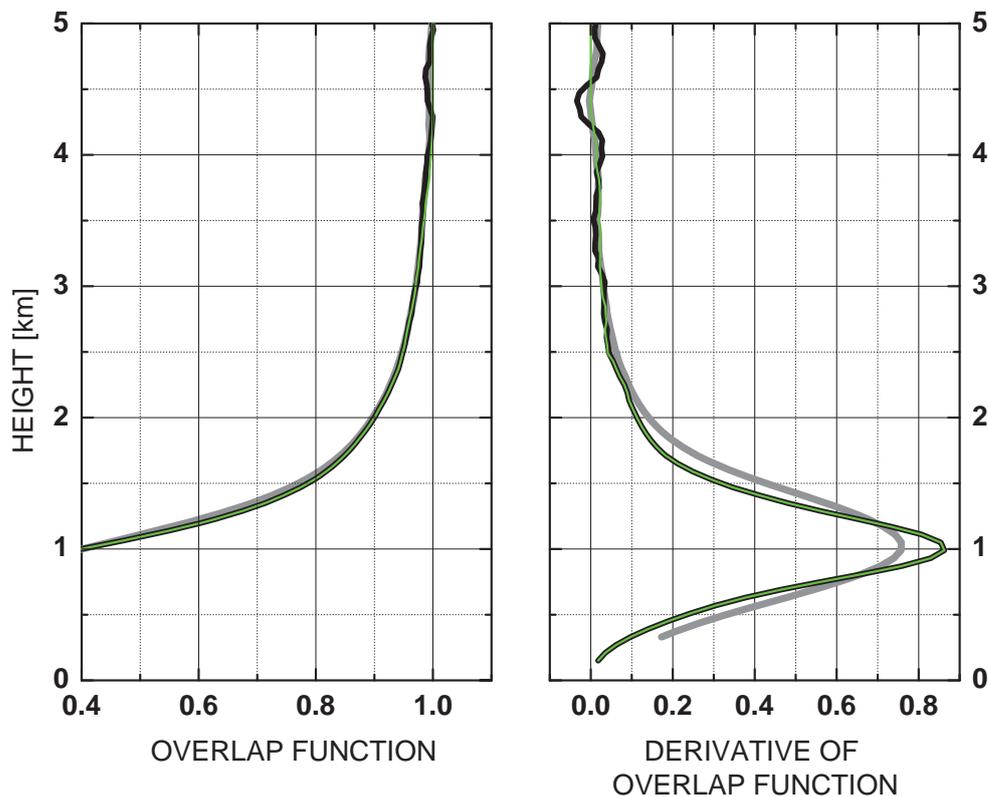


Abbildung 4.3: Geglättetes Überlappungsprofil für 355 nm (links) und Ableitung des Überlappungsprofils für 355 nm (rechts) für die Messung vom 12.01.2009, 16:52-18:03 UTC; schwarz: Mittelung über fünf Datenpunkte, grau: Mittelung über elf Datenpunkte, grün: endgültig zusammengesetzte Überlappungsfunktion.

Für den Zeitraum von Juni 2008 bis Juli 2010 wurden aus vier Messungen für die Wellenlängen 355 und 532 nm insgesamt sieben Überlappungsfunktionen ermittelt: 12.01.2009, 07.12.2009, 17.06.2010 (nur für 532 nm) und 28.06.2010. Die Überlappungsfunktion vom 17.06.2010 konnte nicht für 355 nm bestimmt werden, da das elastische Signal bei 355 nm für diese Messung fehlerhaft war.

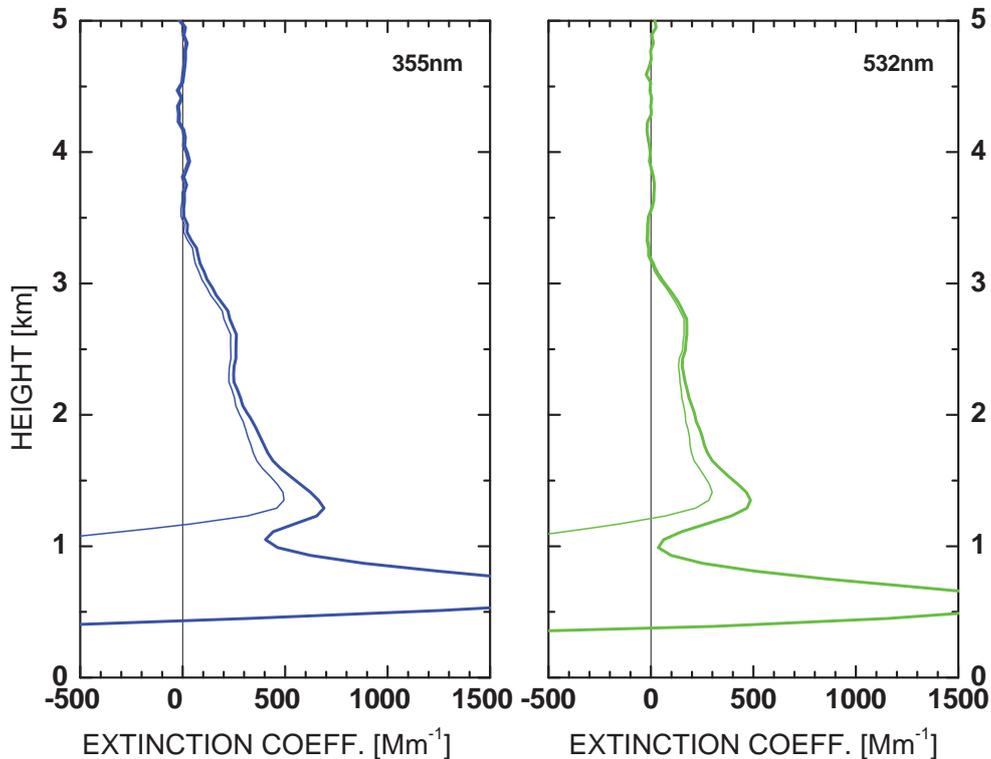


Abbildung 4.4: Partikelextinktionskoeffizient (Leipzig, 06.04.2009, 20:39-21:34 UTC) bestimmt aus dem Raman-Signal von Stickstoff mit der Überlappungsfunktion (dicke Linie) vom 28.06.2009 (355 nm) und 17.06.2010 (532 nm) und ohne Überlappungsfunktion (dünne Linie) für die beiden Wellenlängen 355 (blau) und 532 nm (grün). In allen Fällen beträgt die vertikale Auflösung 660 m.

4.1.2 Anwendung der Überlappungsfunktion

Die Anwendung der Überlappungsfunktion zur Berechnung des Partikelextinktionskoeffizienten ist in Abb. 4.4 am Beispiel der Messung vom 06.04.2009 dargestellt. Hierfür wurden die Überlappungsfunktionen vom 28.06.2010 (355 nm) und vom 17.06.2010 (532 nm) angewendet. Am 06.04.2009 wurde am IfT in Leipzig eine Aerosolschicht beobachtet, die durch Biomassenverbrennung in Osteuropa verursacht wurde (s. Abschnitt 5.1.3). Abb. 4.4 verdeutlicht den Einfluss der Überlappungsfunktion auf die Berechnung des Partikelextinktionskoeffizienten. Der systematische Fehler, der bei der Extinktionsberechnung ohne Überlappungskorrektur auftritt, nimmt zum Boden hin stark zu. Unterhalb von 1.2 km wird das Extinktionsprofil ohne Korrektur sogar nega-

tiv. Oberhalb von 2.5 km ist der Einfluss der Überlappungskorrektur auf die Bestimmung der Extinktionskoeffizienten gering. Zwischen 1.2 und 2.5 km können die Extinktionskoeffizienten mit Hilfe der Überlappungsfunktion recht gut korrigiert werden. Bei der Auswertung des gesamten Zeitraums hat sich gezeigt, dass selbst mit Überlappungskorrektur die Berechnung der Extinktionsprofile unterhalb von einem Kilometer (also dort, wo die Ableitung der Überlappungsfunktion ihr Maximum hat (s. Abb. 4.3)) nicht möglich sind, da geringe Unterschiede in der Justage des Laserstrahls in diesem Höhenbereich einen sehr großen Einfluss auf die Form der Überlappungsfunktionen haben. Im Allgemeinen weicht die Form der Überlappungsfunktion der aktuellen Messung von den vorher experimentell bestimmten Überlappungsfunktionen im Höhenbereich unter 1 km sehr stark ab.

4.2 Bestimmung der optischen Eigenschaften

4.2.1 Auswerteschemata

Die Raman-Methode kann nur auf Nachtmessungen mit MARTHA angewendet werden (s. Abschnitt 3.2). Idealerweise herrschen keine tiefen Wolken, so dass Signale auch in großen Entfernungen mit hohem Signal-zu-Rausch-Verhältnis gemessen werden können. Die Signale werden zunächst über einen Zeitraum von mindestens einer Stunde gemittelt. Da Veränderungen in den atmosphärischen Bedingungen zu falschen Ergebnissen führen können, sollte der Mittelungszeitraum so gewählt sein, dass nicht über zeitlich inhomogene Bereiche gemittelt wird. Treten trotzdem Wolken auf, werden diese aus dem Mittelungszeitraum entfernt. In Abb. 4.5 ist die schematische Auswertung der optischen Eigenschaften von Aerosolpartikeln dargestellt. Mit MARTHA können folgende Profile bestimmt werden:

- der Rückstreuoeffizient bei den Wellenlängen 355, 532 und 1064 nm,
- der Extinktionskoeffizient bei den Wellenlängen 355 und 532 nm,
- das Lidarverhältnis bei den Wellenlängen 355 und 532 nm,
- der Ängströmxponent aus der Rückstreuung bei 355 und 532 nm sowie bei 532 und 1064 nm und aus der Extinktion bei 355 und 532 nm.

Die hellen Kästchen stellen Zwischenprodukte dar, die mit einer Glättungslänge von 660 m berechnet werden und die dunklen Kästchen sind die endgültigen Profile, bei

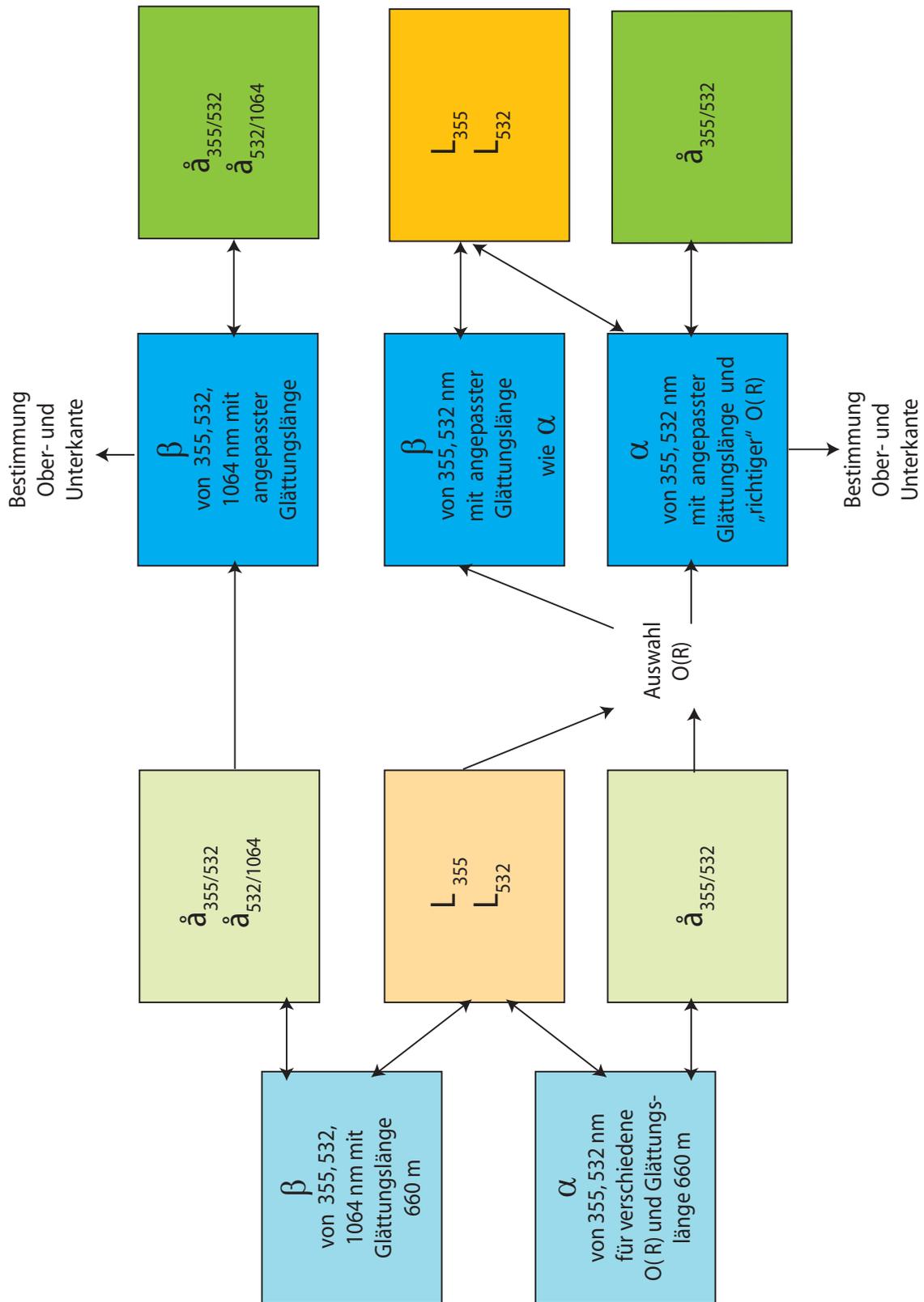


Abbildung 4.5: Schematische Darstellung der Auswertung der optischen Eigenschaften.

denen die Glättungslängen optimiert werden. Die Produkte in den hellen Kästchen dienen zur Vorauswahl der Überlappungsfunktion und zur Überprüfung des angenommenen Rückstreu–Kalibrierwerts.

Bei der Auswertung der optischen Eigenschaften für die hellen Kästchen in Abb. 4.5 wird zunächst der Rückstreukoeffizient bei den drei Wellenlängen 355, 532 und 1064 nm anhand klimatologischer Mittelwerte in der Stratosphäre kalibriert. Die Unsicherheit einer fehlerhaften Annahme des Referenzwerts beträgt in der PBL und in der FT etwa 20% [Pappalardo *et al.*, 2004]. Anschließend werden die Profile der Ångströmexponenten berechnet. Sie dienen zur Qualitätskontrolle der Rückstreu–Profile. Aus der Literatur ist bekannt, dass die Werte im Mittel zwischen 0 und 2 sein sollten. Für die Streuung zum Beispiel an Eiskristallen mit $d > 10 \mu\text{m}$ (in Cirren) [Wang und Sassen, 2002] erhält man kleine Ångströmexponenten von etwa 0. Kleine Partikel, die anthropogen verursacht werden, haben dagegen im Mittel einen größeren Ångströmexponenten von 1.3 bis zu 1.9 [Müller *et al.*, 2007a].

Für den Extinktionskoeffizienten bei den Wellenlängen 355 und 532 nm wird nach der Überlappungsfunktion gesucht, die am besten zur aktuellen Justage des Lidars passt. Dazu werden die Lidarverhältnisse und die Ångströmexponenten bei den Wellenlängen 355 und 532 nm mit den verschiedenen Überlappungsfunktionen berechnet. In einer gut durchmischten PBL sollten intensive Parameter wie das Lidarverhältnis und die Ångströmexponenten nicht mit der Höhe variieren. Mit dieser Annahme wird diejenige Überlappungsfunktion als die „am besten passende“ für weitere Auswertungen verwendet, für die die Lidarverhältnis– und Ångströmexponentenprofile in der PBL möglichst konstant mit der Höhe sind.

Sind die Ausgangsparameter Extinktions– und Rückstreukoeffizient für die Glättungslänge 660 m bestimmt, können im nächsten Schritt (dunkle Kästchen) die optimalen Glättungslängen für die jeweiligen Profile und die daraus abgeleiteten Parameter wie Lidarverhältnis und Ångströmexponenten ermittelt werden. Die vertikale Glättung der Signalprofile ist ein wichtiger Bestandteil bei der Datenauswertung. Durch variable vertikale Glättungslängen beim Extinktions– und Rückstreukoeffizient wird das Verhältnis zwischen statistischen Fehler und vertikaler Auflösung optimiert. Dabei wird angestrebt, den statistischen Fehler in der Grenzschicht kleiner als 10% zu halten und in der freien Troposphäre kleiner als 20%. Für den Rückstreukoeffizienten kann in der Grenzschicht meistens eine Glättungslänge von 60 m und in der freien Troposphäre eine Glättungslänge von 660 bis 2460 m angenommen werden. Für den Extinktionskoeffizienten müssen größere Glättungslängen verwendet werden. Hier ist das Rauschen

größer als beim Rückstreukoeffizienten. Übliche Glättungslängen sind von der Grenzschicht ausgehend: 660, 1260, 1860 oder 2460 und 4020 m. Beim Übergang von einer Glättung zur nächsten wird darauf geachtet, dass keine künstlichen Sprünge im Profil entstehen.

Abb. 4.6 zeigt am Beispiel der Messung vom 06.04.2009, welche Punkte geeignete Glättungsübergänge darstellen. Zunächst werden die Schnittpunkte zwischen zwei verschiedenen Glättungslängen gesucht. Dabei sollte darauf geachtet werden, dass die vorhandenen Aerosolschichten durch die nächst höhere Glättung möglichst erhalten bleiben, jedoch das statistische Rauschen weitestgehend unterdrückt wird. Sind die Schnittpunkte zwischen den Extinktionsprofilen der verschiedenen Glättungslängen bekannt, so kann das zusammengesetzte Profil bestimmt werden.

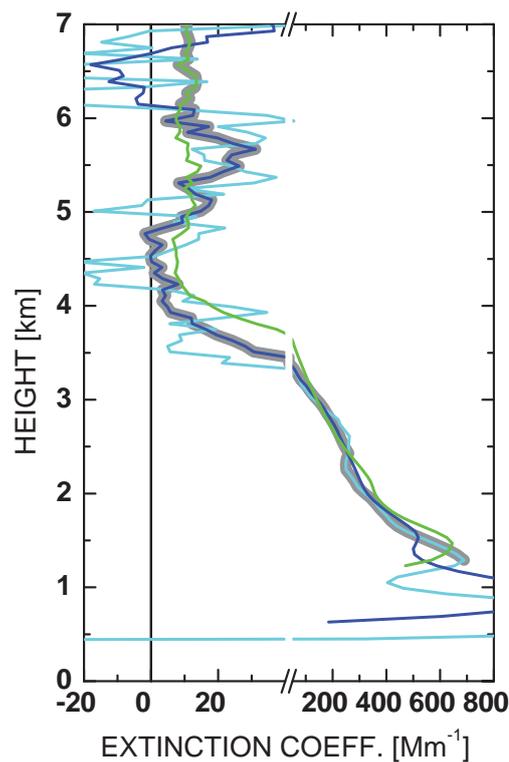


Abbildung 4.6: Profile des Extinktionskoeffizienten für die Glättungslängen 660 (türkis), 1260 (blau) und 2460 m (grün) und das zusammengesetzte Extinktionsprofil (grau hinterlegt) bei der Wellenlänge 355 nm, Leipzig, 06.04.2009, 20:39-21:34 UTC.

Zum Schluss werden noch die Ober- und Unterkanten aller ermittelten Profile festgelegt, so dass möglichst nur Profile mit realen Verhältnissen dargestellt werden, bei denen systematische Einflüsse klein und statistische Fehler möglichst gering sind. Nur diese Profilausschnitte werden für weitere Untersuchungen benutzt und so auch in die EARLINET-Datenbank eingespeist.

4.2.2 Fehlerbetrachtung

Die Ergebnisse der in Abschnitt 4.2.1 beschriebenen Datenauswertung sind mit Unsicherheiten behaftet. Eine Fehlerquelle stellt das statistische Signalrauschen dar. Die Größe wird über die Poissonstatistik bestimmt [*Schönwiese, 2006*]. Ebenso treten bei der Bestimmung der Extinktions- und Rückstreukoeffizienten systematische Fehler auf. Diese werden durch die mit Unsicherheiten behafteten atmosphärischen Eingabeparameter verursacht. Dazu gehören u.a. die aus Radiosondendaten gewonnenen Temperatur- und Druckprofile, der Referenzwert $\beta_{par}(R_0)$ und die verwendeten Überlappungsfunktionen.

Bei der Wahl der Radiosondendaten sollte darauf geachtet werden, dass die atmosphärischen Bedingungen am Aufstiegsort Lindenberg mit denen am Messort Leipzig übereinstimmen. Im Falle von Frontdurchgängen oder beim Übergang von Tief- zu Hochdruckwetterlagen können sich die Temperaturprofile benachbarter Standorte stark unterscheiden. Die Temperatur und der Druck werden zur Bestimmung der molekularen Extinktions- und Rückstreukoeffizienten genutzt. Der Temperaturgradient geht über die Gleichung (3.13) zur Bestimmung des Extinktionskoeffizienten ein, so dass sich für die Extinktionsprofile und die daraus ermittelten Profile für das Lidarverhältnis und den Ångströmxponenten eine große Unsicherheit ergibt. Auf die Bestimmung des Rückstreukoeffizienten hat das Temperaturprofil nur wenig Einfluss.

Der Einfluss des Referenzwerts auf den Rückstreukoeffizienten ist in Abb. 4.7 für einen verschmutzten (04.06.2009) und einen sauberen Tag (12.01.2009) dargestellt. Hierzu wurden die Referenzwerte bei den Wellenlängen 355, 532 und 1064 nm um den Wert $10^{-2} \text{ Mm}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ variiert. Es ist normalerweise unrealistisch, alle drei Wellenlängen mit demselben Wert zu verändern. Jedoch soll verdeutlicht werden, wie sich solch eine Variation, die typisch für die Wellenlänge 355 nm ist, auf das Rückstreuprofil auswirkt. Abb. 4.7 zeigt für den Tag mit sauberer Atmosphäre, dass der systematische Fehler für die Wellenlänge 355 nm stark zunimmt.

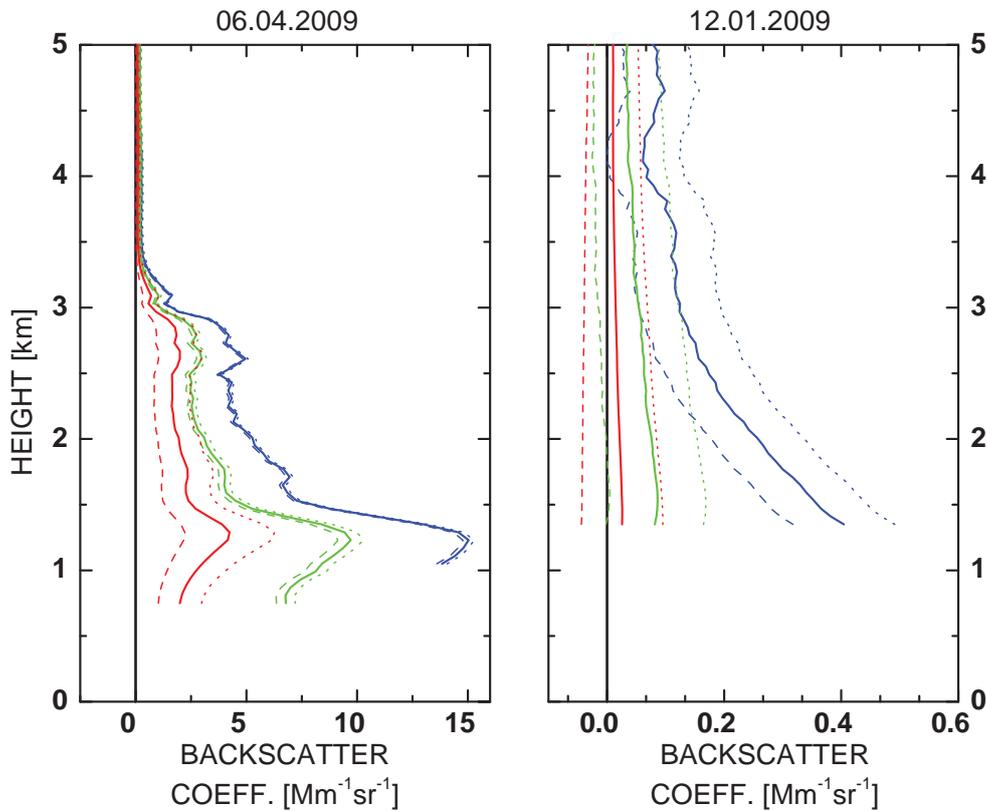


Abbildung 4.7: Einfluss des Referenzwerts $\beta_{par}(R_0)$ auf die Messung vom 06.04.2009 (links) und 12.01.2009 (rechts). Die durchgezogene Kurve steht für $\beta_{par}(R_0) = 0$, die gestrichelte Kurve für $\beta_{par}(R_0) = -10^{-2}$ und die gepunktete Kurve für $\beta_{par}(R_0) = 10^{-2}$. Die Farben kennzeichnen die Wellenlängen 355 (blau), 532 (grün) und 1064 nm (rot).

In Tabelle 4.1 sind die absoluten und relativen Fehler für die Fälle mit verschmutzter (Fall 1) und sauberer Atmosphäre (Fall 2), sowohl für die PBL (1–3 km) als auch für die freie Troposphäre (3–10 km) angegeben. Der Fall mit verschmutzter Atmosphäre zeigt, dass der relative Fehler in der PBL mit zunehmender Wellenlänge (355, 532, 1064 nm) auf das siebenfache (2%, 7%, 48%) anwächst. Für den Fall mit sauberer Atmosphäre ist der relative Fehler um ein Vielfaches größer (36%, 109%, 305%). Grund hierfür ist, dass der Partikelrückstreuoeffizient im Falle einer verschmutzten Atmosphäre eine Größenordnung höher liegt als im Falle einer sauberen Atmosphäre. Der absolute Fehler für den Fall mit verschmutzter Atmosphäre in der PBL ist ebenfalls sehr viel höher (0.14, 0.27, 1.04 $\text{Mm}^{-1}\text{sr}^{-1}$) als für den Fall mit sauberer Atmosphäre (0.08, 0.08, 0.06 $\text{Mm}^{-1}\text{sr}^{-1}$), jedoch liegen die Fehler bei den drei Wellenlängen für

Tabelle 4.1: Einfluss des Referenzwerts $\beta_{par}(R_0)$ im Fall 1 vom 06.04.2009 (verschmutzte Atmosphäre) und im Fall 2 vom 12.01.2009 (saubere Atmosphäre). Der Referenzwert wurde für die Wellenlängen 355, 532 und 1064 nm um den Wert $10^{-2} \text{ Mm}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ variiert.

	Planetare Grenzschicht (1–3 km)			Freie Troposphäre (3–10 km)		
	Mittelwert $\text{Mm}^{-1} \text{sr}^{-1}$	abs. Fehler $\text{Mm}^{-1} \text{sr}^{-1}$	rel. Fehler %	Mittelwert $\text{Mm}^{-1} \text{sr}^{-1}$	abs. Fehler $\text{Mm}^{-1} \text{sr}^{-1}$	rel. Fehler %
Fall 1						
β_{355}	6.45	0.14	2	0.34	0.05	15
β_{532}	3.99	0.27	7	0.22	0.05	24
β_{1064}	2.14	1.04	48	0.11	0.07	66
Fall 2						
β_{355}	0.20	0.08	36	0.07	0.05	68
β_{532}	0.07	0.08	108	0.03	0.05	167
β_{1064}	0.02	0.06	305	0.01	0.04	412

die saubere Messung sehr eng zusammen. Die nah beieinander liegenden absoluten Fehler werden durch die geringe Anzahlkonzentration der Aerosolpartikel verursacht und die dementsprechend viel zu große Verschiebung des Referenzwerts. In der freien Troposphäre ist der absolute Fehler für den Fall mit verschmutzter (0.05 , 0.05 , $0.07 \text{ Mm}^{-1} \text{sr}^{-1}$) und sauberer Atmosphäre (0.05 , 0.05 , $0.04 \text{ Mm}^{-1} \text{sr}^{-1}$) fast identisch, da in beiden Fällen eine geringe Aerosolanzahlkonzentration vorhanden ist. Der relative Fehler des sauberen Falles (68%, 167%, 412%) ist im Gegensatz zum verschmutzten Fall (15%, 24%, 66%) um ein vierfaches größer.

Der Einfluss der Überlappungsfunktionen auf den Extintionskoeffizienten sowie auf das Lidarverhältnis und den Ångströmexponenten ist in Abb. 4.8 am Beispiel der Messung vom 06.04.2009 dargestellt. Für Höhen bis etwa ein Kilometer können keine gültigen Profile für die abgebildeten optischen Eigenschaften ermittelt werden (s. Abschnitt 4.1.2). Hier liegen die relativen Fehler weit über 100%. Oberhalb von einem bis etwa drei Kilometer wird sichtbar, dass sich die Profile für die unterschiedlichen Überlappungsfunktionen immer mehr annähern. Dabei variieren die Profile der intensiven

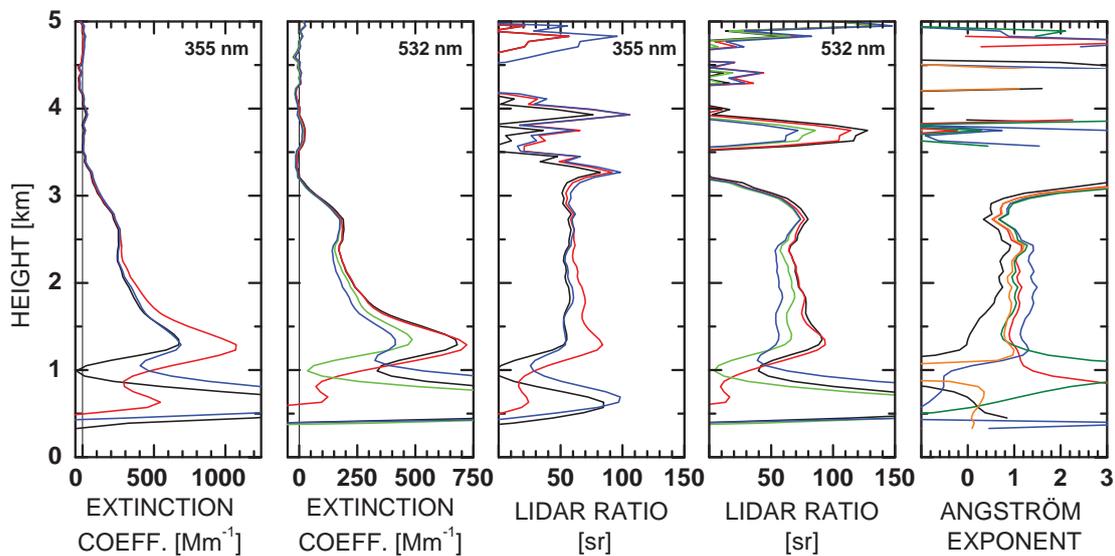


Abbildung 4.8: Einfluss der verschiedenen Überlappungsfunktionen (s. Abschnitt 4.1.2) auf den Extinktionskoeffizienten sowie auf das Lidarverhältnis und den Ångströmxponenten bei den Wellenlängen 355 und 532 nm für die Messung vom 06.04.2009, 20:39-21:34 UTC. Die verschiedenen Farben stehen für die unterschiedlichen Überlappungsfunktionen, schwarz: 07.12.2009, rot: 12.01.2009, grün: 17.06.2010, blau: 28.06.2010, dunkelgrün: \hat{a}_α mit 28.06.2010 (355 nm) und 17.06.2010 (532 nm), orange: \hat{a}_α mit 07.12.2009 (355 nm) und 17.06.2010 (532 nm). In allen Fällen beträgt die vertikale Auflösung 660 m.

Größen Lidarverhältnis und Ångströmxponent mit der Höhe kaum. Das bedeutet, dass sich hier eine Aerosolschicht befindet und diese charakterisiert werden kann. Um eine geeignete Überlappungsfunktion zu ermitteln, wird der Mittelwert und die dazugehörige Standardabweichung über die annähernd konstant bleibenden Profile der intensiven Größen berechnet. Die Profile, die einen relativ kleinen Fehler für die gewählte Schicht aufweisen, können schließlich weiter verwendet werden. In diesem Falle sind die Überlappungsfunktionen vom 28.06.2010 (355 nm) und 17.06.2010 (532 nm) am geeignetsten. Aus der Variabilität der Extinktionskoeffizienten kann der systematische Fehler für die Aerosolschicht im Bereich von 1–3 km ermittelt werden. Tabelle 4.2 zeigt die absoluten und relativen Fehler für die optischen Eigenschaften, die von der Wahl der Überlappungsfunktion herrühren. Die Extinktionskoeffizienten bei den Wellenlängen 355 und 532 nm haben einen relativen Fehler von 13% und 15%. Der

Tabelle 4.2: Einfluss der Überlappungsfunktion in der planetaren Grenzschicht am Beispiel der Messung vom 06.04.2009.

	Mittelwert (1–3 km)	absoluter Fehler	relativer Fehler
α_{355}	360 Mm ⁻¹	46 Mm ⁻¹	13%
α_{532}	248 Mm ⁻¹	36 Mm ⁻¹	15%
L_{355}	59 sr	6 sr	10%
L_{532}	67 sr	8 sr	12%
\hat{a}_α	0.91	0.25	27%

Fehler des Lidarverhältnisses ist dagegen 3% geringer. Für den Ångströmexponenten ergibt sich ein Fehler von 27%.

Abb. 4.9 zeigt die Variabilität des Extinktions- und Rückstreukoeffizienten für die Zeiträume zwischen 2006 und 2008, 2009 und 2010 und den Gesamtzeitraum 2006–2010 für die Höhenbereiche in der planetaren Grenzschicht (1–2 km) und der freien Troposphäre (2–5 km). Die Daten der beiden Teil-Zeiträume wurden von zwei unterschiedlichen Personen ausgewertet. Die Auswahl der „richtigen“ Überlappungsfunktion und des Referenzwertes ist zwar teilweise durch objektive Grenzwerte wie negative Extinktions- und Rückstreuwerte eingeschränkt, jedoch verbleibt für die auswertende Person immer ein Spielraum um die „richtigen“ Eingabeparameter zu definieren. Die Ergebnisse der Untersuchung solcher subjektiven Einflüsse auf die berechneten Extinktions- und Rückstreuprofile sind in Abb. 4.9 dargestellt.

In der Grenzschicht sind die Mittelwerte des Rückstreukoeffizienten für den Zeitraum von 2006–2008 im Gegensatz zum Messzeitraum von 2009–2010 geringfügig kleiner, jedoch für die freie Troposphäre größer. Dieser Trend ist nicht auf subjektive Einflüsse zurückzuführen, da die systematische Wahl eines anderen Referenzwertes in beiden Höhenbereichen den gleichen Trend verursachen würde. Daher ist zu vermuten, dass die größeren Rückstreuwerte in der freien Troposphäre im Zeitraum 2006–2008 aufgrund von öfter auftretenden Aerosolschichten in 2006–2008 zu Stande kamen. Dieser Befund wird gestützt durch den gleichen Trend in den Extinktionswerten.

Für die Auswertung des Extinktionskoeffizienten können ebenfalls systematische Einflüsse bei der Wahl der Überlappungsfunktionen ausgeschlossen werden. Hier standen im Zeitraum von 2006 bis 2008 etwa 20–30 Werte und im Zeitraum von 2009 bis

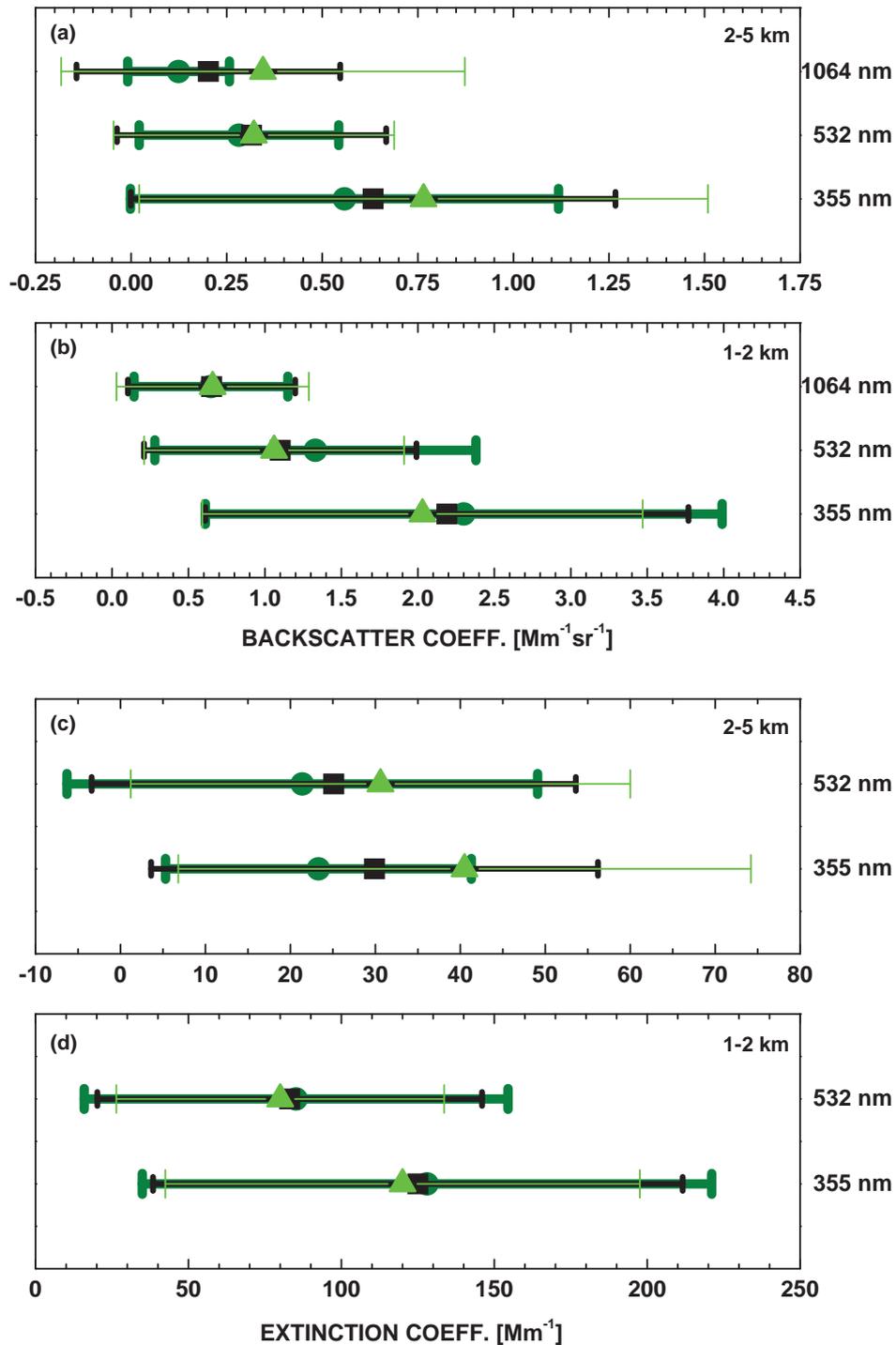


Abbildung 4.9: Variabilität des Partikelrückstreu- (oben) und -extinktionskoeffizienten (unten) in den Schichten von 1–2 und 2–5 km für Messungen am IfT aus dem Zeitraum 2006–2008 (grün), 2009–2010 (dunkelgrün) und dem Gesamtzeitraum von 2006–2010 (schwarz). Die Symbole geben den Mittelwert und die Fehlerbalken die Standardabweichung an.

2010 etwa 50 Werte zur Verfügung. Es ist ersichtlich, dass die Mittelwerte der Extinktionskoeffizienten (355 und 532 nm) für die beiden Zeiträume in der Grenzschicht nur gering voneinander abweichen (8 und 5 Mm^{-1}). Für die freie Troposphäre dagegen liegen die Werte höher (17 und 9 Mm^{-1}). Eine systematische Abweichung aufgrund einer subjektiv anders gewählten Überlappungsfunktion würde sich jedoch am stärksten im Höhenbereich 1–2 km bemerkbar machen. Tatsächlich sind hier die Abweichungen aber viel geringer als in der freien Troposphäre.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass sich kein systematischer Einfluss der auswertenden Person auf die berechneten Profile feststellen lässt. Alle Unterschiede zwischen den beiden betrachteten Zeiträumen sind auf die atmosphärische Variabilität zurückzuführen.

Kapitel 5

Aerosoltransport aus Osteuropa

In Osteuropa verursachen neben veralteten Industrieanlagen und Heizkraftwerken, welche größtenteils fossile Brennstoffe nutzen, auch Biomassenverbrennungen starke Verschmutzungen, die bei entsprechender Windrichtung (Ost) nach Leipzig transportiert werden können [Wandinger *et al.*, 2004; Preißler, 2008; Spindler *et al.*, 2010]. Diese Verschmutzungen machen sich durch hohe optische Dicken und verminderter Luftqualität bemerkbar.

Zu den Biomassenverbrennungen zählen alle natürlichen und anthropogen verursachten Brände, die Feld- und Waldbrände beinhalten. Dazu untersuchten *Mollicone et al.* [2006] die Anomalie meteorologischer Parameter wie Temperatur und Niederschlag sowie die Häufigkeit der Waldbrände in menschlich beeinflussten und nicht beeinflussten Wäldern des europäischen Russlands. Sie stellten fest, dass etwa 87% der Brände in den Wäldern Russlands durch den Menschen verursacht wurden. Die meisten Brände in Europa werden jedoch in Ländern mit sehr vielen Ackerflächen beobachtet. Dies konnten *Korontzi et al.* [2006] in ihrer Studie bestätigen. Sie zeigten, dass in den osteuropäischen Ländern wie die Ukraine und das europäische Russland etwa 48–73% aller mit MODIS von 2001–2003 detektierten Brände auf Agrarflächen stattfanden. Bei der Biomassenverbrennung werden größtenteils Aerosolpartikel im Akkumulations-Mode ($d = 0.1 - 2.5 \mu\text{m}$) emittiert [Koppmann *et al.*, 2005; Reid *et al.*, 2005a,b].

Das Ausmaß großflächiger Brände wird vor allem im Frühling (April) und Sommer (Juli) sichtbar. Dies konnten *Barnaba et al.* [2011] in einer Langzeitstudie an Hand von satellitengestützten Aerosol- und Branddaten zeigen. Die monatlich gemittelte AOD des Fein-Mode und die Brandverteilung der verschiedenen Regionen Europas wiesen eine Bimodalität der Maxima im Jahreszyklus auf. Diese Maxima werden im Frühling

und Sommer durch verstärkt auftretende landwirtschaftliche Brände und die natürlichen Waldbrände hervorgerufen. Die höchsten optischen Dicken im Fein-Mode wurden hierbei in den Gebieten Skandinaviens sowie Mittel- und Osteuropas beobachtet.

Für diese Arbeit wurden Messungen bezüglich Biomassenverbrennungs-Ereignissen in Osteuropa im Zeitraum von 2000–2010 untersucht. Dafür wurden Fallbeispiele ausgewählt, bei denen die beobachteten Luftmassen aus Osten herantransportiert wurden und für die gleichzeitig Messungen mit MARTHA zur Verfügung standen. Es wurden nur Fälle mit starken Verschmutzungen betrachtet. Die AOD sollte größer 0.4 sein und der Ångströmexponent nicht kleiner eins. Ähnlich große Werte der AOD findet man in Leipzig normalerweise nur im Fall von Saharastaub-Advektion. Dieser Staub ist jedoch durch wesentlich kleinere Ångströmexponenten charakterisiert [Müller *et al.*, 2007a].

Für die Bestimmung des beobachteten Aerosoltyps und der Quellregionen der Aerosolpartikel wurden verschiedene Modelle benutzt. Das globale Aerosolmodell NAAPS¹ ist ein Vorhersagemodell für die Verteilung von troposphärischem Aerosol [NAAPS-Homepage, 2011]. Es wird für die Bestimmung des Aerosoltyps verwendet. Das Modell berechnet aus aktuellen meteorologischen Daten und Emissionsdaten die optischen Dicken sowie die bodennahen Massenkonzentrationen von Staub, Biomassenverbrennungsmaterial und Sulfaten.

Für die Bestimmung der Quellregionen der Aerosolpartikel dienen die Transportmodelle HYSPLIT² [Draxler und Rolph, 2011; Rolph, 2011] und FLEXPART [Stohl *et al.*, 1998; Stohl und Thomson, 1999]. Beide sind Lagrangesche Transportmodelle, mit denen Vorwärts- und Rückwärtstrajektorien erstellt werden können. Vorwärtstrajektorien werden hauptsächlich zur Untersuchung der Ausbreitung von Aerosolpartikeln verwendet und Rückwärtstrajektorien zur Bestimmung der Aerosolquellen.

Zur Lokalisierung der Waldbrände sind Satellitenbeobachtungen mit MODIS sehr hilfreich [FIRMS-Homepage, 2011]. Hier kann in einem selbst gewählten Zeitraum die Verteilung und Häufigkeit des Auftretens von Waldbränden dargestellt werden.

¹Navy Aerosol Analysis and Prediction System

²HYbrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory Model

5.1 Fallbeispiele

In diesem Abschnitt werden drei Fälle vorgestellt, bei denen die Luftmassen aus Osteuropa herangeführt wurden. Es handelt sich dabei um den 22.08.2002, den 08.05.2006 und den 06.04.2009. Die dazugehörigen entfernungskorrigierten Signale bei 1064 nm sind in Abb. 5.1 dargestellt. Sie geben einen Überblick über die vertikale Verteilung der Aerosolschichten und deren zeitliche Variabilität.

In allen drei Fällen lag Leipzig unter Hochdruckeinfluss. Die entsprechenden DWD–Boden–Analysekarten für 12:00 UTC sind in Abb. 5.2 zu sehen. Für den 22.08.2002 steht keine DWD–Boden–Analysekarte bei „<http://www.Wetter3.de>“ zur Verfügung. Der Hochdruckeinfluss über Leipzig kann jedoch an Hand der am Leipziger Institut für Meteorologie gemessenen meteorologischen Größen abgeleitet werden. Im Mittel lag die Temperatur am 22.08.2002 bei etwa 20 °C und der Wind wehte schwach aus südlichen bis südöstlichen Richtungen. Trotz hoher relativer Luftfeuchte (93%) gab es keinen Niederschlag. Ähnliche Wetterverhältnisse sind an den beiden anderen Tagen zu sehen. Am 08.05.2006 und 06.04.2009 wehte der Wind größtenteils aus Osten, es war trocken und die Temperaturen lagen im Mittel bei 17 und 13.5 °C. Der Monat April 2009 lag etwa 5 K über dem Klimamittel. Grund hierfür waren die größtenteils aus östlichen Richtungen herangeführten wärmeren Luftmassen.

Für die Bestimmung der Aerosoltypen werden die Lidar–Messungen mit In–situ–Messungen verschiedener physikochemischer Eigenschaften kombiniert. Dafür werden die Partikelmassenkonzentrationen sowie Konzentrationen der wasserlöslichen Ionen (u.a. Ammonium, Calcium, Chlorid, Nitrat und Sulfat) und des elementaren (EC) und organischen Kohlenstoffs (OC) genutzt. Diese werden in der von Leipzig 50 km entfernten Forschungsstation Melpitz (12.56° E, 51.32° N) gemessen [Spindler *et al.*, 2010]. Die Parameter sind aufgrund des ländlichen Messstandorts fast unbeeinflusst von lokalen Quellen und können somit zur Charakterisierung der Aerosolpartikel aus entfernten Quellen beitragen. In dieser Arbeit werden alle Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser kleiner 10 μm betrachtet (PM_{10})³. Die PM_{10} –Daten beinhalten die aus der näheren Umgebung stammenden Partikel und die durch Ferntransport herangeführten Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser kleiner 2.5 μm . Weitere Details zur Messtechnik finden sich in Spindler *et al.* [2010].

Tabelle 5.1 und Abb. 5.3 zeigen die Mittelwerte aller im Sommerhalbjahr (April–September) an der Station Melpitz gemessenen PM_{10} –Konzentrationen für die Fälle

³Particulate Matter < 10 μm

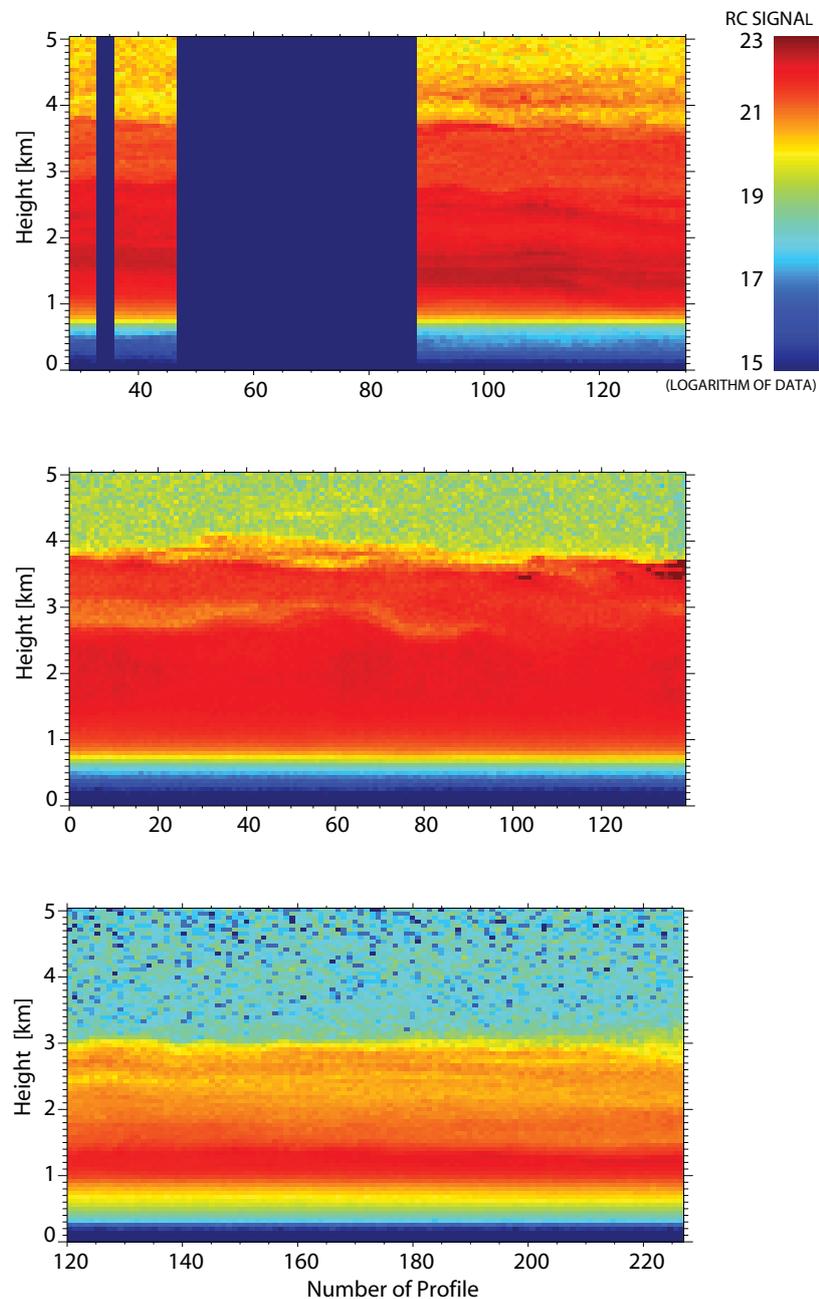
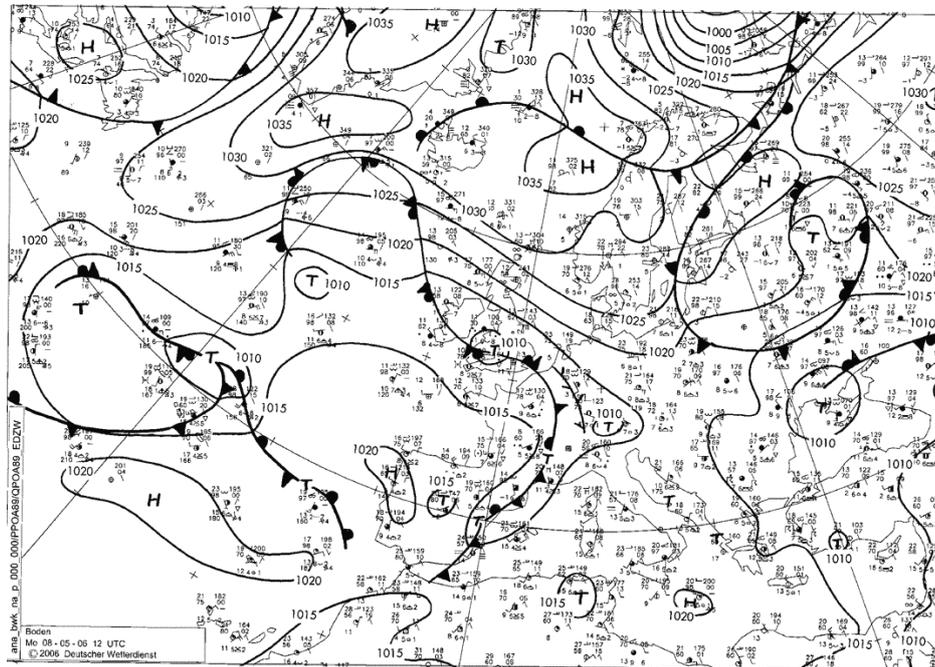
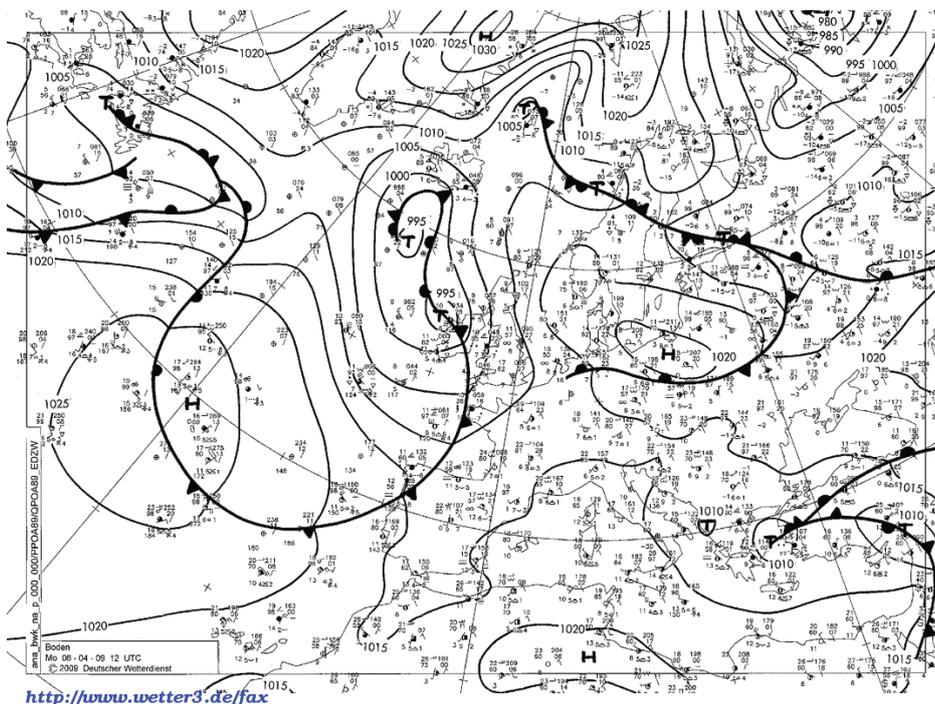


Abbildung 5.1: Entfernungskorrigiertes Signal bei 1064 nm über Leipzig für den 22.08.2002, 19:50-20:44 UTC (oben), 08.05.2006, 19:58-21:08 UTC (Mitte) und 06.04.2009, 20:39-21:34 UTC (unten). Die vertikale Auflösung beträgt 60 m und die zeitliche Auflösung 30 s. Farben: Höhenbereiche mit hoher (rötlich) und niedriger (bläulich) Aerosolkonzentration.



<http://www.wetter3.de>



<http://www.wetter3.de/fax>

Abbildung 5.2: DWD–Boden–Analysekarte für 12:00 UTC am 08.05.2006 (oben) und am 06.04.2009 (unten) [<http://www.Wetter3.de>].

Tabelle 5.1: PM₁₀-Partikelmassenkonzentration und -Konzentrationen der wasserlöslichen Ionen und des organischen und elementaren Kohlenstoffs in [$\mu\text{g m}^{-3}$] für den Zeitraum 05/2004–04/2008 sowie für den 08.05.2006 und 06.04.2009. Die Daten der zweiten und dritten Spalte beziehen sich auf Messungen, die im Sommerhalbjahr (April–September) an Tagen mit jeweils West- und Ostanströmung auftraten, und die letzten beiden Spalten auf Messungen, an denen die Luftmassen nur aus dem Osten kamen.

Konzentration [$\mu\text{g m}^{-3}$]	05/2004–04/2008 West	05/2004–04/2008 Ost	08.05.2006	06.04.2009
Masse	17.24	28.20	39.28	55.37
SO ₄ ⁻	2.37	4.64	4.33	7.12
NO ₃ ⁻	1.71	1.66	0.69	21.09
NH ₄ ⁺	1.31	2.01	1.83	9.21
OC	2.25	4.61	7.02	4.88
EC	1.41	2.64	3.67	1.35
Na ⁺	0.30	0.09	0.06	0.06
Cl ⁻	0.16	0.07	0.04	0.30
Mg ²⁺	0.05	0.04	0.06	0.02
Ca ²⁺	0.14	0.22	0.48	0.20
K ⁺	0.12	0.22	0.26	0.35

mit West- und Ostanströmung im Zeitraum von Mai 2004 bis April 2008 und die Mittelwerte der im Folgenden präsentierten Beispiele für den Aerosoltransport aus Osteuropa für die Tage des 08.05.2006 und des 06.04.2009 [persönliche Mitteilung, Spindler, 27.04.2011]. Für das dritte Beispiel, die Lidarmessung vom 22.08.2002, stehen keine physikochemischen Daten aus Melpitz zur Verfügung, da die Messgeräte aufgrund des Hochwassers im Sommer 2002 beschädigt waren und somit keine Messungen erfolgen konnten. Die Mittelwerte des Sommerhalbjahres werden für diese Arbeit verwendet, weil Feld- und Waldbrände hier am wahrscheinlichsten auftreten.

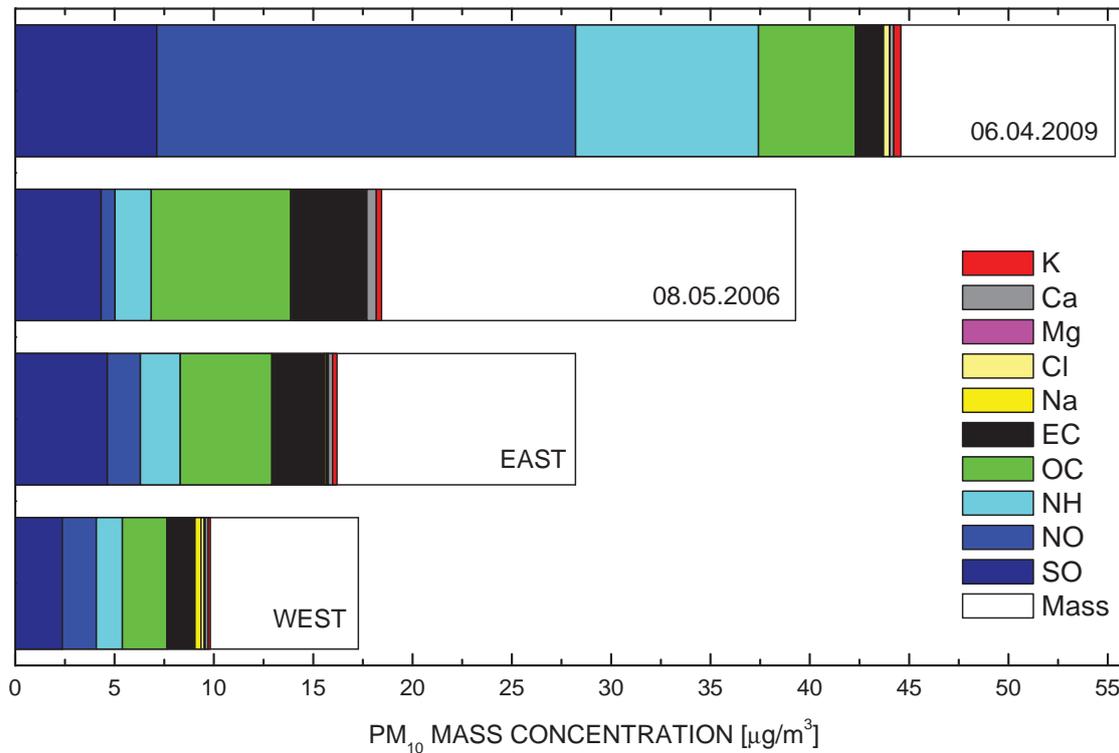


Abbildung 5.3: PM₁₀-Partikelmassenkonzentration und -Konzentrationen der wasserlöslichen Ionen und des organischen und elementaren Kohlenstoffs für das Sommerhalbjahr im Zeitraum von 05/2004–04/2008 an Tagen mit jeweils West- und Ostanströmung sowie für die Tage vom 08.05.2006 und 06.04.2009.

Der Vergleich der Sommerhalbjahre (2004–2008) für West- und Ostanströmung soll zunächst einen kurzen Überblick geben, inwiefern die einzelnen Komponenten von der Windrichtung abhängig sind und dementsprechend auch von den herantransportierten Aerosolpartikeln. Im Allgemeinen ist die PM₁₀-Partikelmassenkonzentration in Luftmassen aus dem Westen niedriger, weil die Luftmassen stärker durchmischt sind und die nasse Deposition (Niederschlag) ein sehr effektiver Senkenprozess ist [Spindler et al., 2010]. Generell werden bei Westwind höhere Konzentrationen an Natrium- und Chloridionen gemessen, die durch herangeführte Aerosolpartikel aus dem Ozean zu Stande kommen. Die doppelt so hohe Konzentration an Sulfationen bei kontinentalen Luftmassen (Ostwind) wird durch den stärkeren Einfluss anthropogener Aerosolpartikel aus Industrie und Kraftwerken der osteuropäischen Länder verursacht. Ebenso

kann bei Luftmassen aus Osteuropa eine etwa zweimal so hohe Konzentration an organischem und elementarem Kohlenstoff sowie von Kaliumionen festgestellt werden. Sie ist auf den höheren Einfluss von Feld- bzw. Waldbränden in Osteuropa zurückzuführen.

5.1.1 22. August 2002

Als erstes Fallbeispiel wird die Messung vom 22.08.2002 im Zeitraum von 19:50-20:44 UTC betrachtet. Im dazugehörigen entfernungskorrigierten Signal bei 1064 nm in Abb. 5.1 ist deutlich eine Aerosolschicht bis etwa 3.8 km (rote Färbung) zu sehen. Die Aerosolschicht ist zeitlich konstant und zeigt nahezu keine atmosphärischen Veränderungen. Darüber nimmt das Signal mit der Höhe immer weiter ab (gelbe Färbung). Die blauen Balken stellen die Zeiträume dar, in denen Wolkenbildung in der Grenzschicht auftrat. Diese Zeiträume wurden bei der Auswertung der mittleren Profile der optischen Eigenschaften nicht berücksichtigt.

Abb. 5.4 zeigt die vertikalen Profile der mittleren Partikelrückstreu- und -extinktionskoeffizienten sowie die entsprechenden Ångströmxponenten aus der Rückstreuung und Extinktion und die Lidarverhältnisse für die Messung vom 22.08.2002 im Zeitraum von 19:50-20:44 UTC.

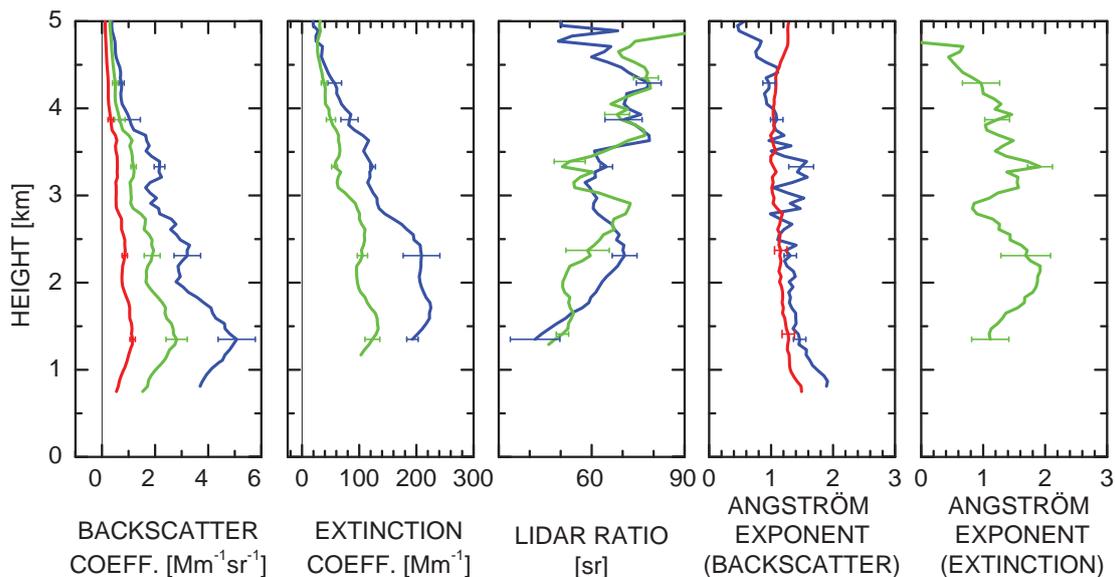


Abbildung 5.4: Partikelrückstreu- und -extinktionskoeffizient, Lidarverhältnis (rot: 1064 nm; grün: 532 nm und blau: 355 nm), Ångströmxponent aus der Rückstreuung (rot: 532/1064 nm; blau: 355/532 nm) und Ångströmxponent aus der Extinktion (grün: 355/532 nm) für den 22.08.2002, 19:50-20:44 UTC, mit vertikalen Glättungslängen für β von 60 m unterhalb von 3690 m und 660 m oberhalb von 3690 m und für α und L von 660 m unterhalb von 3810 m und 1260 m oberhalb von 3810 m. Die Fehlerbalken geben die Standardabweichung für die entsprechenden Aerosolschichten an.

Zu sehen sind mehrere Aerosolschichten, die durch erhöhte Rückstreu- und Extinktionswerte gekennzeichnet sind. Diese Schichten befinden sich bei 1–2 km, 2–3 km, 3–3.5 km, 3.5–4 km und 4–4.5 km. Die dazugehörigen Mittelwerte und Standardabweichungen der optischen Eigenschaften für die jeweiligen Aerosolschichten sind in Tabelle 5.2 aufgeführt.

Tabelle 5.2: Mittelwerte und Standardabweichungen der optischen Aerosoleigenschaften für die jeweiligen Aerosolschichten für die Messung vom 22.08.2002, 19:50-20:44 UTC.

	1–2 km	2–3 km	3–3.5 km	3.5–4 km	4–4.5 km
β_{355} [$\text{Mm}^{-1}\text{sr}^{-1}$]	4.2 ± 0.7	2.7 ± 0.5	2.0 ± 0.2	1.3 ± 0.4	0.7 ± 0.1
β_{532} [$\text{Mm}^{-1}\text{sr}^{-1}$]	2.3 ± 0.4	1.6 ± 0.3	1.1 ± 0.1	0.9 ± 0.2	0.5 ± 0.1
β_{1064} [$\text{Mm}^{-1}\text{sr}^{-1}$]	1.0 ± 0.1	0.7 ± 0.1	0.6 ± 0.0	0.4 ± 0.1	0.2 ± 0.0
α_{355} [Mm^{-1}]	214 ± 10	180 ± 32	118 ± 5	96 ± 15	56 ± 12
α_{532} [Mm^{-1}]	117 ± 13	99 ± 9	64 ± 5	58 ± 8	38 ± 5
L_{355} [sr]	54 ± 8	65 ± 4	61 ± 2	73 ± 6	72 ± 4
L_{532} [sr]	51 ± 2	62 ± 7	57 ± 5	71 ± 4	75 ± 4
$\dot{a}_{\beta_{355,532}}$	1.4 ± 0.1	1.3 ± 0.1	1.3 ± 0.2	1.1 ± 0.1	1.0 ± 0.1
$\dot{a}_{\beta_{532,1064}}$	1.2 ± 0.1	1.1 ± 0.1	1.0 ± 0.0	1.0 ± 0.0	1.0 ± 0.0
$\dot{a}_{\alpha_{355,532}}$	1.5 ± 0.3	1.4 ± 0.4	1.5 ± 0.2	1.2 ± 0.2	0.9 ± 0.3

Für die Quellenanalyse der Aerosolschichten wurde die Rückwärtssimulation mit FLEXPART genutzt. Abb. 5.5 zeigt die Aufenthaltszeit für die Aerosolschicht zwischen 3 und 3.5 km, die über die Höhe von 0 bis 2 km für einen Zeitraum von 10 Tagen aufsummiert wurde. Die Darstellung verdeutlicht, wo die Luftpakete, die über Leipzig zwischen 3 und 3.5 km gemessen werden, Kontakt zur Grenzschicht hatten und somit durch Quellen unterschiedlicher Gebiete beeinflusst werden konnten. Für die Startzeit der Rückwärtstrajektorien wurde der Messzeitraum zwischen 19:50-20:44 UTC des 22.08.2002 angenommen. Die FLEXPART-Simulationen für die Aerosolschichten darunter (1–2 km und 2–3 km) und darüber (3.5–4 km und 4–4.5 km) zeigen ähnliche Ergebnisse. Es ist zu sehen, dass die beobachteten Schichten aus Russland über die osteuropäischen Staaten (Weißrussland, Ukraine, Rumänien) und dann über Ungarn,

Österreich und Tschechien bis nach Leipzig transportiert wurden.

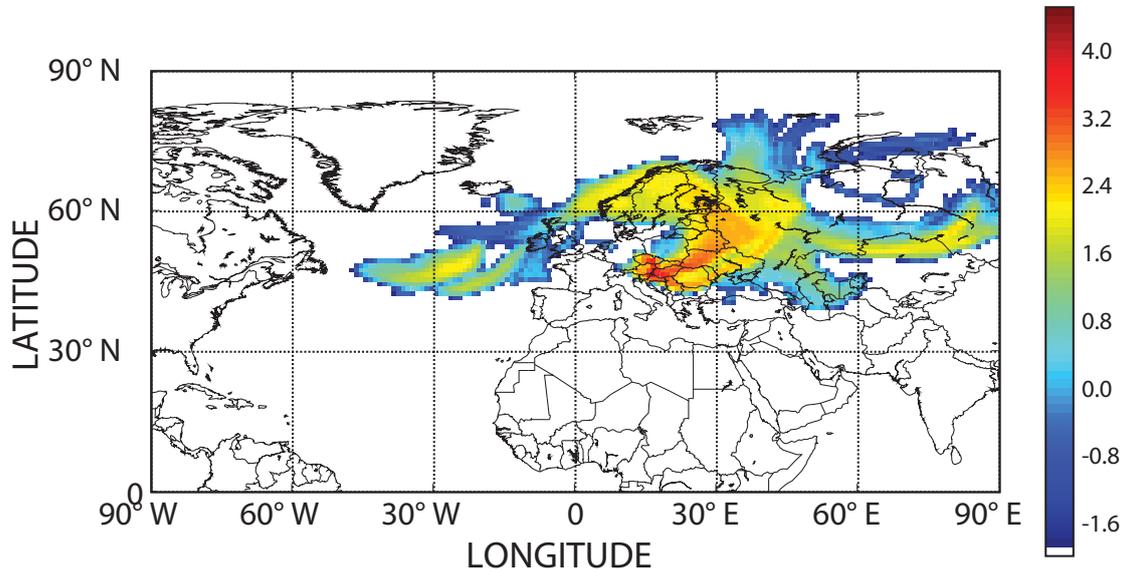


Abbildung 5.5: Aufenthaltszeiten für die Aerosolschicht zwischen 3 und 3.5 km des Falles vom 22.08.2002, 19:50–20:44 UTC, aufsummiert von 0 bis 2 km nach der 10-Tage-Rückwärtssimulation. Die Farbskala bezeichnet den dekadischen Logarithmus der Summe der Aufenthaltszeiten aller Luftpakete pro Höhen- und Zeitabschnitt.

In Abb. 5.6 sind alle mit MODIS aufgezeichneten Brände der letzten 10 Tage vor der Messung, ausgehend vom 22.08.2002, dargestellt. Hier ist ersichtlich, dass sich im Bereich der höchsten Aufenthaltswahrscheinlichkeit (rote Farben in Abb. 5.5) in den Tagen vor der Messung viele Brände ereignet hatten. Diese Brände waren größtenteils in Gebieten, in denen mehr landwirtschaftliche Flächen existieren als Wälder. Dieses Ergebnis legt den Schluss nahe, dass die in Leipzig beobachteten Aerosolpartikel aus Feldbränden in der Ukraine, Weißrussland und dem europäischen Teil Russlands stammten.

Die Mittelwerte der intensiven Aerosolgrößen in den jeweiligen Aerosolschichten (s. Tabelle 5.2) deuten darauf hin, dass der anthropogene Einfluss durch lokale Quellen mit der Höhe immer weiter abnimmt und der Einfluss der Partikel aus Feld- bzw. Waldbränden deutlich zunimmt. Im Allgemeinen zeigen die Lidarverhältnisse für die Aerosolschichten unterhalb von 3.5 km deutlich kleinere Werte als für die Aerosolschichten oberhalb von 3.5 km. In der unteren Aerosolschicht (1–2 km) ist der Einfluss lokaler Quellen bestimmend. Hier ist das Lidarverhältnis bei der Wellenlänge 355 nm sichtlich

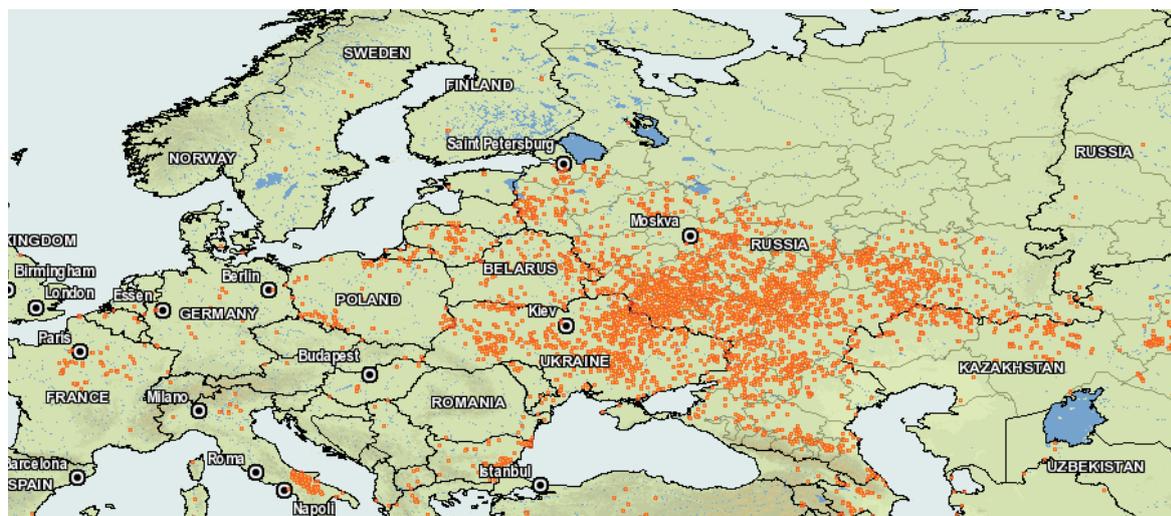


Abbildung 5.6: Verteilung und Häufigkeit von Bränden für den Zeitraum vom 13.08.–22.08.2002, aufgenommen mit MODIS. Orange Punkte sind alle Brände der letzten 10 Tage [<http://firefly.geog.umd.edu:8080/firemap/>].

größer als bei der Wellenlänge 532 nm. Hingegen deutet die oberste Aerosolschicht (4–4.5 km), mit einem größeren Lidarverhältnis bei der Wellenlänge 532 nm, auf Partikel aus Biomassenverbrennung hin [Müller *et al.*, 2005]. Das Verhältnis vom Lidarverhältnis bei der Wellenlänge 355 nm zum Lidarverhältnis bei der Wellenlänge 532 nm gibt Auskunft darüber, inwieweit die Partikel optische Eigenschaften von z.B. anthropogenen Partikeln und Partikeln aus gealterten Biomassenverbrennungen aufweisen. Für anthropogene Partikel und Partikel aus gealterten Biomassenverbrennungen konnten Verhältnisse von 1.1 ± 0.3 und 0.8 ± 0.2 ermittelt werden [Müller *et al.*, 2007a]. Die Ångströmxponenten zeigen ebenfalls den Einfluss der Partikel aus Biomassenverbrennung mit zunehmender Höhe. Für die Rückstreuung liegen sie im Mittel in den unteren drei Schichten bei 1.3–1.4 (355/532 nm) und bei 1.0–1.2 (532/1064 nm). Für die Schichten darüber sind die Mittelwerte der Ångströmxponenten kleiner (1.0–1.1 für 355/532 nm und 1.0 für 532/1064 nm). Die Ångströmxponenten aus der Extinktion haben im Mittel Werte von 1.5 in der unteren Schicht und Werte bei 0.9 in der obersten Schicht. Auch hier ist ein Abfall der Mittelwerte mit der Höhe zu beobachten, der auf verschiedene Aerosoltypen und Mischungen hindeutet. Die höheren Lidarverhältnisse in Kombination mit den niedrigeren Ångströmxponenten aus der Extinktion oberhalb von 3.5 km sprechen für relativ große und stark absorbierende Partikel und somit für gealtertes Brandaerosol in diesen Schichten. Charakteristische Werte für Ångströmxponenten aus der Rückstreuung (532/1064 nm) und der Extinktion (355/532 nm) sind

laut *Müller et al.* [2007a] für anthropogene Aerosolpartikel 1.3 ± 0.5 und 1.4 ± 0.6 und für gealterte Waldbrandaerosole 1.0 ± 0.4 und 1.0 ± 0.5 .

Die optische Dicke am 22.08.2002 beträgt bei den Wellenlängen 355 und 532 nm 0.77 und 0.42 und weist auf eine verminderte Luftqualität über Leipzig hin. Die optische Dicke wird über die gesamte Säule der Troposphäre aus dem Höhenintegral des Partikelextinktionkoeffizienten berechnet. Dazu wird der erste, gültige Extinktionswert bis zum Boden verlängert. Als Hintergrundwert für Leipzig kann eine AOD von 0.1 bei der Wellenlänge 532 nm angegeben werden [*Mattis et al.*, 2004b].

Auch Berechnungen mit dem Aerosol-Modell NAAPS deuten darauf hin, dass für die Messung vom 22.08.2002 Partikel aus Biomassenverbrennungen über Leipzig vorhanden waren. In Abb. 5.7 ist dazu die Analyse vom 23.08.2002, 00:00 UTC, der optischen Dicken und der Massenkonzentrationen an der Erdoberfläche für sulfathaltige Partikel, Mineralpartikel und Partikel aus Biomassenverbrennungen dargestellt. Das Aerosol-Modell zeigt für Sulfate und Partikel aus Biomassenverbrennungen optische Dicken von etwa 0.4–0.8 und 0.1–0.2 über Leipzig. Dies stimmt ungefähr mit den gemessenen AOD überein. Die entsprechenden Massenkonzentrationen liegen für das sulfathaltige Aerosol bei $8\text{--}16 \mu\text{g m}^{-3}$ und für das Brandaerosol bei $4\text{--}16 \mu\text{g m}^{-3}$. Die hohe Massenkonzentration an Sulfaten spricht dafür, dass neben der Biomassenverbrennung auch die Verbrennung schwefelhaltiger fossiler Brennstoffe (z.B. Kohle und Erdöl) stattgefunden hat. Ebenso ist ersichtlich, dass die Regionen mit sehr hohen Massenkonzentrationen (bis $128 \mu\text{g m}^{-3}$) hauptsächlich in Osteuropa (Ukraine, Weißrussland, Russland) liegen und somit die Quellregionen darstellen.

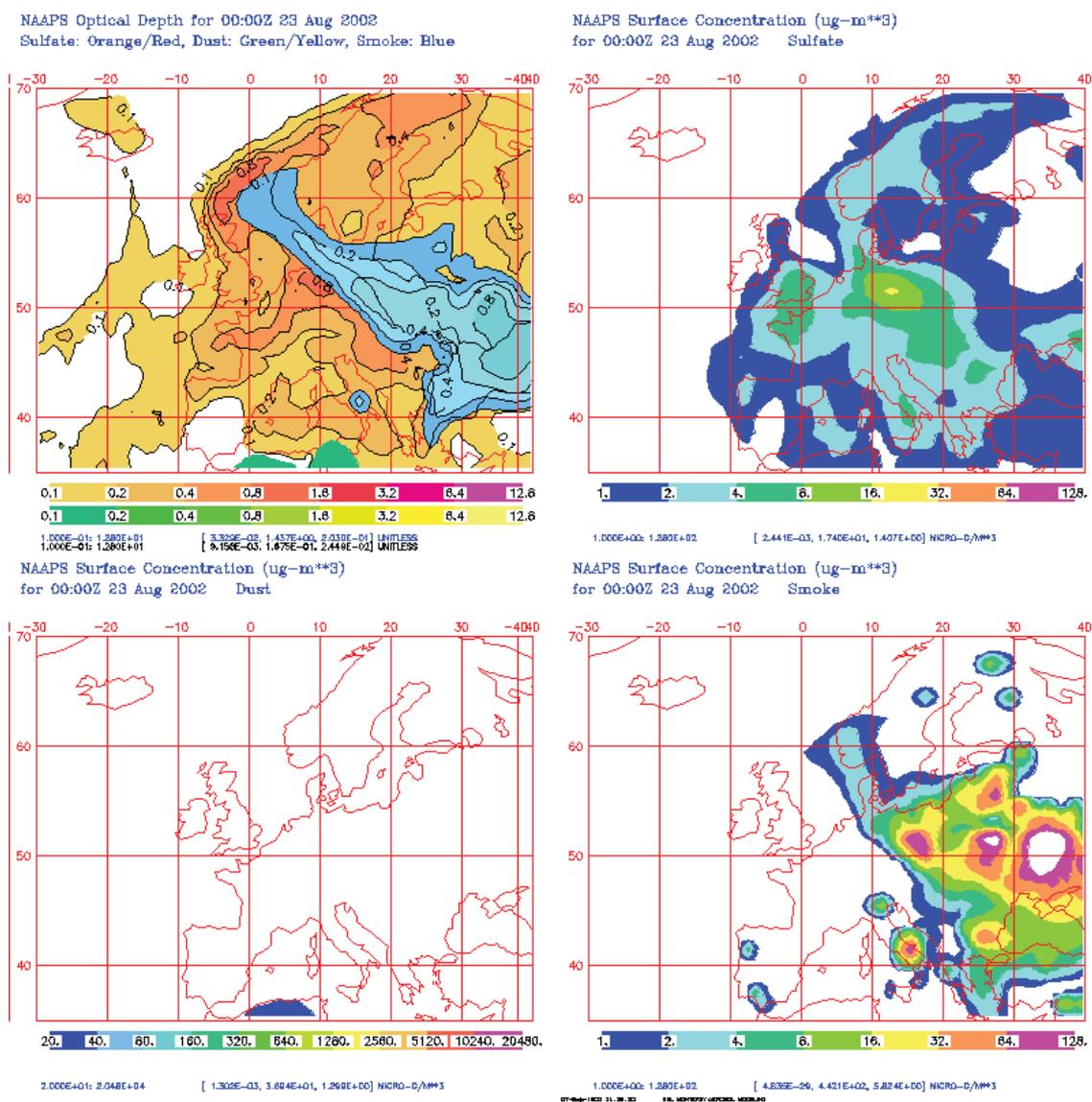


Abbildung 5.7: Optische Dichte (oben links) und Massenkonzentration an der Erdoberfläche für Sulfate (oben rechts), Mineralstaub (unten links) und Biomassenverbrennungsmaterial (unten rechts) für den 23.08.2002, 00:00 UTC, aus Analysen des NAAPS-Modells.

5.1.2 8. Mai 2006

Abb. 5.8 zeigt die vertikalen Profile der optischen Aerosoleigenschaften für die Messung vom 08.05.2006 im Zeitraum von 19:58-21:08 UTC. Es sind deutlich zwei Aerosolschichten im Partikelrückstreu- und -extinktionsprofil (1–2.7 km, 3–3.9 km) zu erkennen. Die Mittelwerte und Standardabweichungen der optischen Eigenschaften für die entsprechenden Aerosolschichten sind in Tabelle 5.3 aufgeführt.

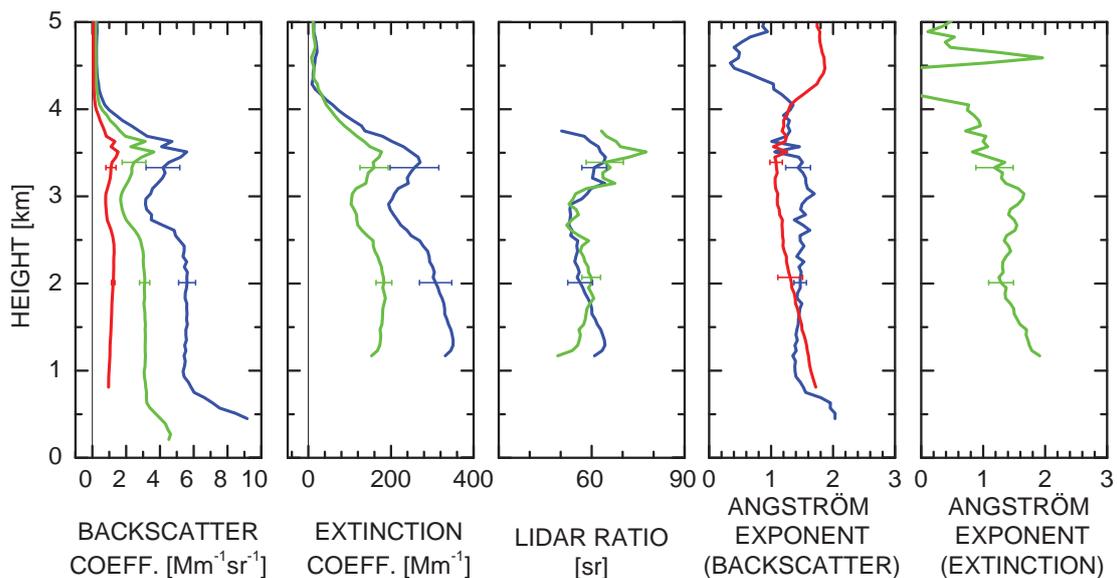


Abbildung 5.8: Partikelrückstreu- und -extinktionskoeffizient, Lidarverhältnis (rot: 1064 nm; grün: 532 nm und blau: 355 nm) und Ångströmxponent aus der Rückstreuung (rot: 532/1064 nm; blau: 355/532 nm) und Ångströmxponent aus der Extinktion (grün: 355/532 nm) für die Messung vom 08.05.2006, 19:58-21:08 UTC, mit vertikalen Glättungslängen für β von 60 m unterhalb von 3690 m und 660 m oberhalb von 3690 m und für α und L von 660 m unterhalb von 3750 m und 1260 m oberhalb von 3750 m. Die Fehlerbalken geben die Standardabweichung für die entsprechenden Aerosolschichten an.

Im Vergleich zur Messung vom 22.08.2002 dehnen sich die beiden Aerosolschichten stärker in der Höhe aus und zeigen höhere Mittelwerte im Rückstreu- und Extinktionsprofil. Die aus dem Extinktionskoeffizienten berechneten optischen Dicken sind dementsprechend auch größer. Die optische Dicke für die Wellenlängen 355 und 532 nm liegt bei 1.13 und 0.61.

Tabelle 5.3: Mittelwerte und Standardabweichungen der optischen Aerosoleigenschaften für die jeweiligen Aerosolschichten für die Messung vom 08.05.2006, 19:58-21:08 UTC.

	1–2.7 km	3–3.9 km
β_{355} [$\text{Mm}^{-1}\text{sr}^{-1}$]	5.4 ± 0.5	3.7 ± 1.0
β_{532} [$\text{Mm}^{-1}\text{sr}^{-1}$]	3.0 ± 0.3	2.1 ± 0.7
β_{1064} [$\text{Mm}^{-1}\text{sr}^{-1}$]	1.2 ± 0.1	1.1 ± 0.3
α_{355} [Mm^{-1}]	306 ± 39	204 ± 59
α_{532} [Mm^{-1}]	167 ± 19	128 ± 34
L_{355} [sr]	58 ± 4	60 ± 4
L_{532} [sr]	57 ± 3	66 ± 6
$\mathring{a}_{\beta_{355,532}}$	1.5 ± 0.1	1.4 ± 0.2
$\mathring{a}_{\beta_{532,1064}}$	1.4 ± 0.2	1.1 ± 0.1
$\mathring{a}_{\alpha_{355,532}}$	1.5 ± 0.2	1.1 ± 0.3

In Abb. 5.9 sind die FLEXPART-Simulationen für die untere (1–2.7 km) und die obere (3–3.9 km) Aerosolschicht dargestellt. Es wird deutlich, dass die Aerosolpartikel in der unteren Schicht größtenteils aus Osteuropa kommen, wohingegen die Aerosolpartikel aus der oberen Schicht aus Osteuropa und dem östlichen Mittelmeerraum (Türkei und Syrien) stammen. Abb. 5.10 zeigt die Verteilung der Brände der letzten sieben Tage ausgehend vom 08.05.2006. Die Quellregion der Brandaerosole befindet sich größtenteils in den Wäldern Russlands, hauptsächlich um Moskau, und breitet sich gegen Osten bis zum Ural aus. Es ist ersichtlich, dass für die beiden Schichten (1–2.7 km und 3–3.9 km) die Quellregion der Brandaerosole in den Bereichen der höchsten Aufenthaltswahrscheinlichkeit liegt (rote Farben in Abb. 5.9). Das bedeutet, dass beide Aerosolschichten Merkmale von Partikeln aus Biomasseverbrennungen, insbesondere Waldbrandpartikeln, aufweisen.

Bei der unteren Schicht ist jedoch der Anteil anthropogener Aerosole durch lokale Quellen höher als in der oberen Aerosolschicht. Dies geht aus den Vertikalprofilen der optischen Aerosoleigenschaften hervor. Die Lidarverhältnisse bei den Wellenlängen 355 und 532 nm liegen im Mittel bei 58 und 57 sr und die Ångströmxponenten aus der

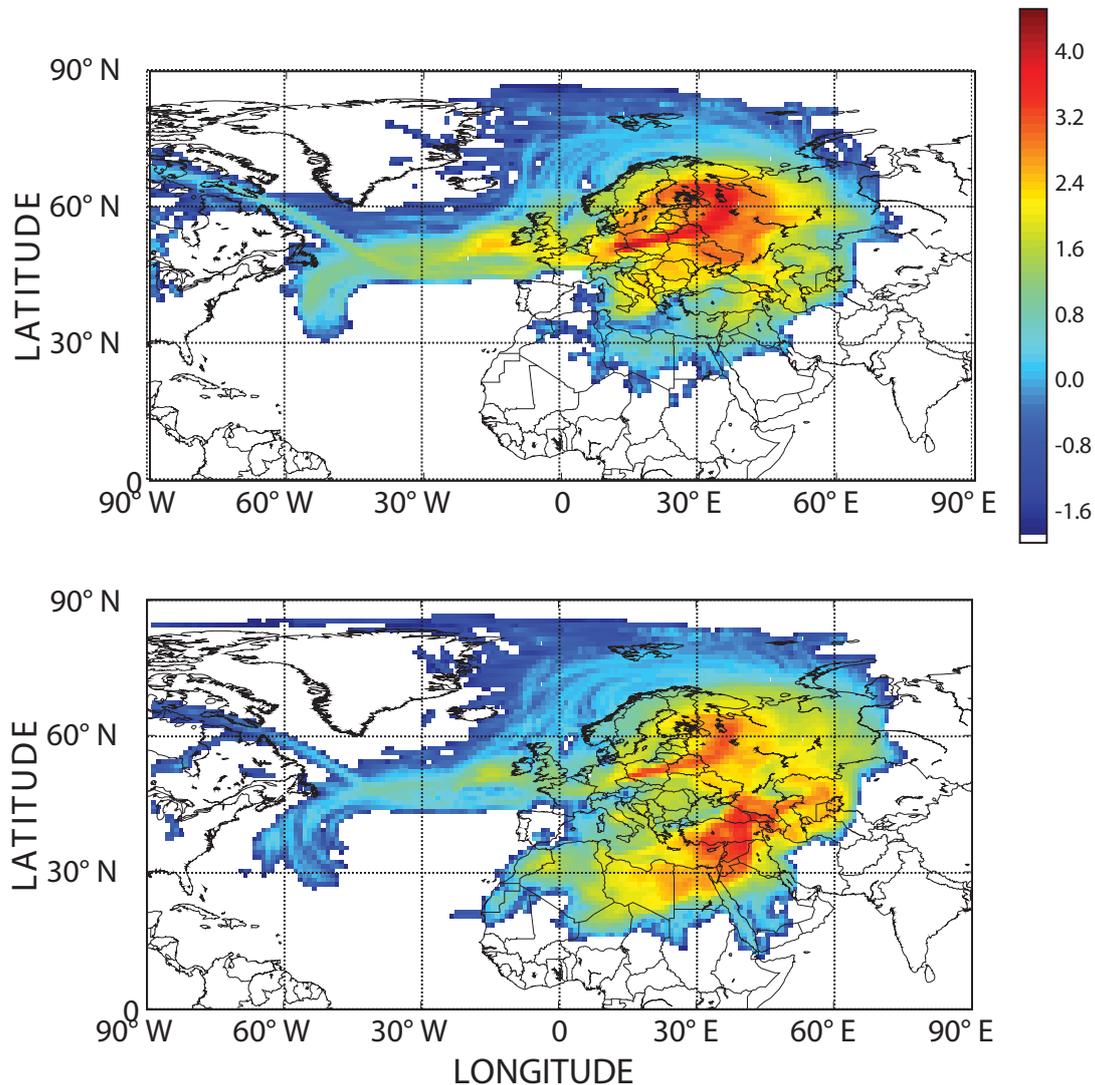


Abbildung 5.9: Aufenthaltszeiten für die Aerosolschicht zwischen 1 und 2.7 km (oben) und 3 und 3.9 km (unten) für die Messung vom 08.05.2006, 19:58-21:08 UTC, aufsummiert von 0 bis 2 km nach der 10-Tage-Rückwärtssimulation. Die Farbskala bezeichnet den dekadischen Logarithmus der Summe der Aufenthaltszeiten aller Luftpakete pro Höhen- und Zeitabschnitt.

Rückstreuung und der Extinktion bei 1.4–1.5. Diese Werte sind typisch für anthropogene Aerosole [Müller *et al.*, 2007b]. Im Gegensatz dazu hat die obere Schicht (3–3.9 km) höhere Lidarverhältnisse und das Lidarverhältnis bei der Wellenlänge 355 nm (60 sr) ist kleiner als bei 532 nm (66 sr). Dies spricht für eine Aerosolschicht aus gealtertem Biomassenverbrennungsaerosol [Müller *et al.*, 2005]. Die Ångströmxponenten

von etwa 1.1 deuten ebenfalls darauf hin [Müller *et al.*, 2007b]. Die niedrigeren Lidarverhältnisse in den abgehobenen Schichten im Vergleich zum Fall vom 22.08.2002 zeigen, dass die Aerosolpartikel aus Biomassenverbrennungen sehr unterschiedliche optische Eigenschaften aufweisen können. Dies kann zum Beispiel durch die verschiedenen Brandtypen hervorgerufen werden. Die Brände am 22.08.2002 traten hauptsächlich in Ländern mit wenig Wäldern auf, so dass die Vermutung nahe liegt, dass bei Verbrennungen auf Feldern die Lidarverhältnisse aufgrund stärker absorbierender Partikel größer sind als bei Bränden in Wäldern.

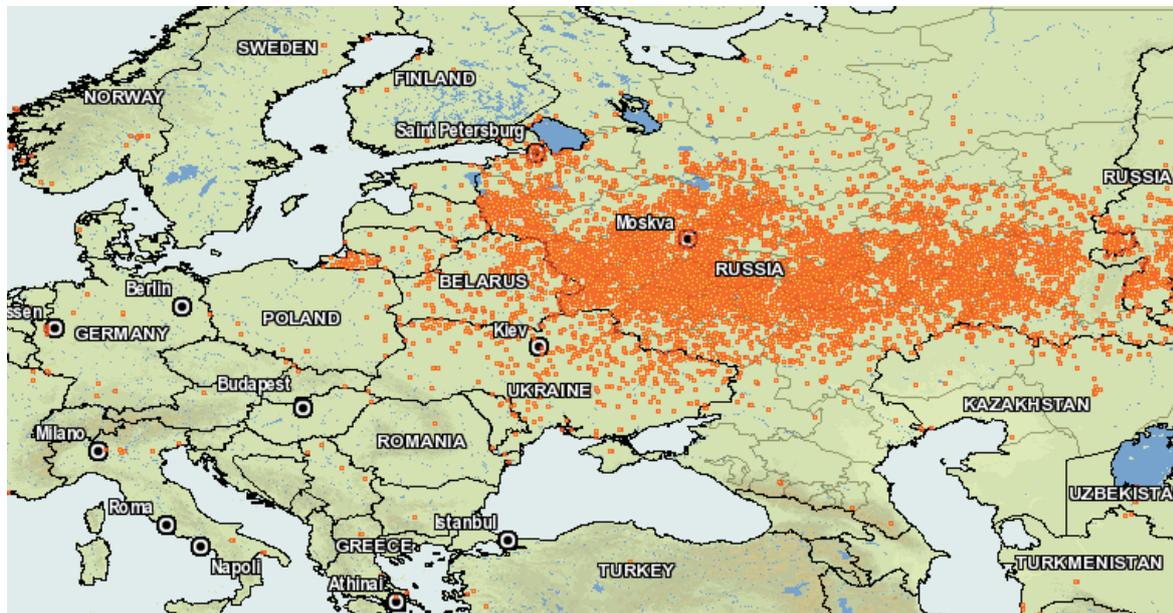


Abbildung 5.10: Verteilung und Häufigkeit von Bränden für den Zeitraum vom 02.05.–08.05.2006, aufgenommen mit MODIS. Orange Punkte sind alle Brände der letzten 7 Tage [<http://firefly.geog.umd.edu:8080/firemap/>].

Auch im Aerosol-Modell NAAPS in Abb. 5.11 vom 09.05.2006, 00:00 UTC, ist der Einfluss von anthropogenen Partikeln (Sulfate) und Partikeln aus Biomassenverbrennungen am Boden zu sehen. Die optischen Dicken liegen für beide Parameter bei etwa 0.1–0.2 und die entsprechenden Massenkonzentrationen an der Erdoberfläche im Bereich von 4–8 $\mu\text{g m}^{-3}$.

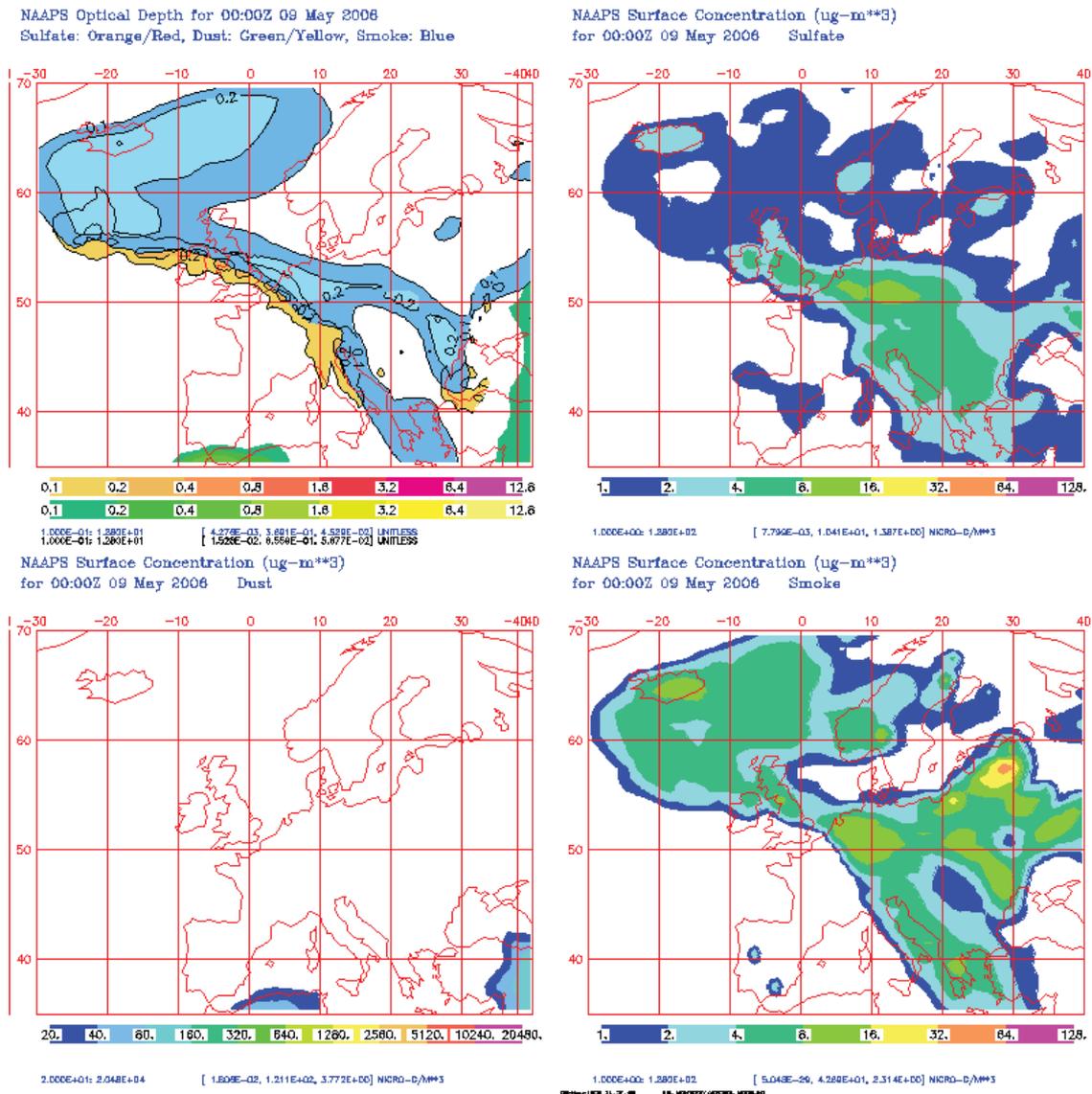


Abbildung 5.11: Optische Dicke (oben links) und Massenkonzentration an der Erdoberfläche für Sulfate (oben rechts), Mineralstaub (unten links) und Biomassenverbrennungsmaterial (unten rechts) für den 09.05.2006, 00:00 UTC, aus Analysen des NAAPS-Modells.

Vergleicht man die am 08.05.2006 in Melpitz gemessenen Werte mit denen im Sommer bei Ostanströmung gefundenen Mittelwerten im Gesamtzeitraum 05/2004–04/2008 (s. Tabelle 5.1), so zeigt sich, dass die PM_{10} -Partikelmassenkonzentration sowie die Konzentration des organischen und elementaren Kohlenstoffs sowie der Magnesium-, Calcium- und Kaliumionen am 08.05.2006 stark erhöht war.

Die Studie von *Sciare et al.* [2008] konnte zeigen, dass der organische und elementare Kohlenstoff sowie die Kaliumionen wichtige Indikatoren für Biomassenverbrennungen sind. Korrelationen zwischen dem gemessenen elementaren Kohlenstoff und den Kaliumionen ergaben gute Übereinstimmungen im Falle von Biomassenverbrennung. Des Weiteren zeigte sich bei Abwesenheit von Biomassenverbrennungen, dass die Konzentration des organischen Kohlenstoffs eine jahreszeitliche Variation aufwies (doppelt so groß in den Monaten Mai und Juni) und die Konzentration des elementaren Kohlenstoffs durchgängig stabil blieb. Das bedeutet, dass im Falle von Biomassenverbrennungen die Konzentration der oben genannten Indikatoren wesentlich höher ist. Besonders im Frühling wurden kleinere Verhältnisse von organischem zu elementarem Kohlenstoff als im Sommer beobachtet. Grund hierfür ist die höhere Anreicherung von elementarem Kohlenstoff bei landwirtschaftlichen Bränden im Gegensatz zu Waldbränden, weil hier die Verbrennungen unter niedrigeren Temperaturen stattfinden. Dabei entsteht eine größere Menge Rauch und eine höhere Konzentration von unvollständig verbrannten Kohlenstoffen [*Andreae und Merlet, 2001*]. Für die vorliegende Messung kann jedoch kein Vergleich bezüglich des Verhältnisses von organischem zu elementarem Kohlenstoff vorgenommen werden, weil keine Daten für einen Fall im Sommer mit ausschließlich Waldbränden vorliegt.

In Abb. 5.12 ist der Verlauf der PM_{10} -Partikelmassenkonzentration, der Konzentration des organischen und elementaren Kohlenstoffs sowie die der Kaliumionen für einen Zeitraum von 20 Tagen dargestellt. Hier ist deutlich zu sehen, dass bei einer Zunahme der Partikelmassenkonzentration ebenfalls die Indikatoren der Biomassenverbrennung anwachsen. Aus den Daten der Forschungsstation Melpitz geht außerdem hervor, dass zum Zeitpunkt der starken Zunahme aller Parameter der Wind aus östlicher Richtung wehte.

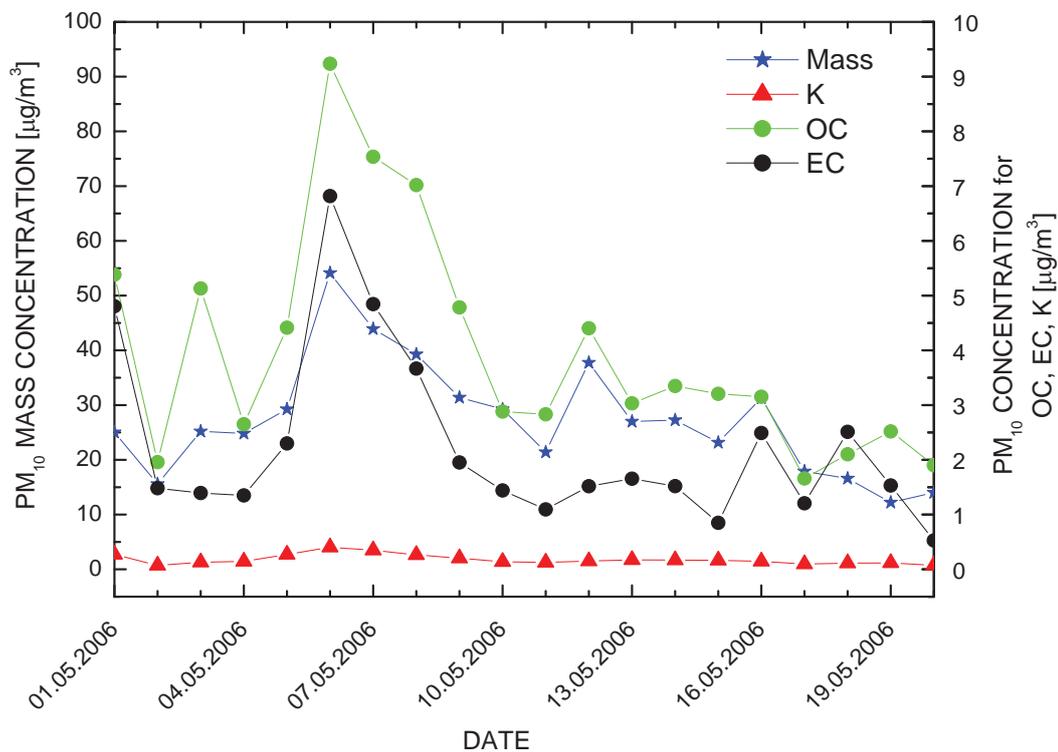


Abbildung 5.12: PM_{10} -Partikelmassenkonzentrationen (blau), Konzentrationen des organischen (OC, grün) und elementaren Kohlenstoffs (EC, schwarz) sowie der Kaliumionen (rot) für den 01.05.–20.05.2006 in Melpitz.

Die erhöhten Konzentrationen von Magnesium- und Calciumionen (Hinweise für Quellen aus Bautätigkeiten) werden vermutlich durch Quellen aus der näheren Umgebung Melpitzs verursacht. Die niedrigen Konzentrationen an Nitrat- und Sulfationen im Vergleich zum Gesamtzeitraum 05/2004–04/2008 (Sommer, Ostanströmung) deuten darauf hin, dass der Einfluss anthropogener Quellen aus der Industrie Osteuropas gering ist.

5.1.3 6. April 2009

Beim letzten Fallbeispiel von Aerosoltransport aus Osteuropa handelt es sich um die Messung vom 06.04.2009 im Zeitraum von 20:39-21:34 UTC. Genauso wie im Fall der beiden anderen Messungen lag Leipzig unter Hochdruckeinfluss. Das Hoch über Polen transportierte warme Luftmassen nach Leipzig und sorgte damit für Temperaturen im Mittel von 13.5 °C. In Abb. 5.1 ist das entfernungskorrigierte Signal bei 1064 nm für die Messung vom 06.04.09 dargestellt. Die Aerosolschicht reicht bis etwa 3 km und zeigt im unteren Höhenbereich bis etwa 1.5 km ein stärkeres Signal. Die Verteilung der Aerosolpartikel war im gesamten Zeitraum (20:39-21:34 UTC) weitestgehend konstant, so dass für den angegebenen Zeitraum die vertikalen Profile der optischen Aerosoleigenschaften bestimmt werden konnten (s. Abb. 5.13).

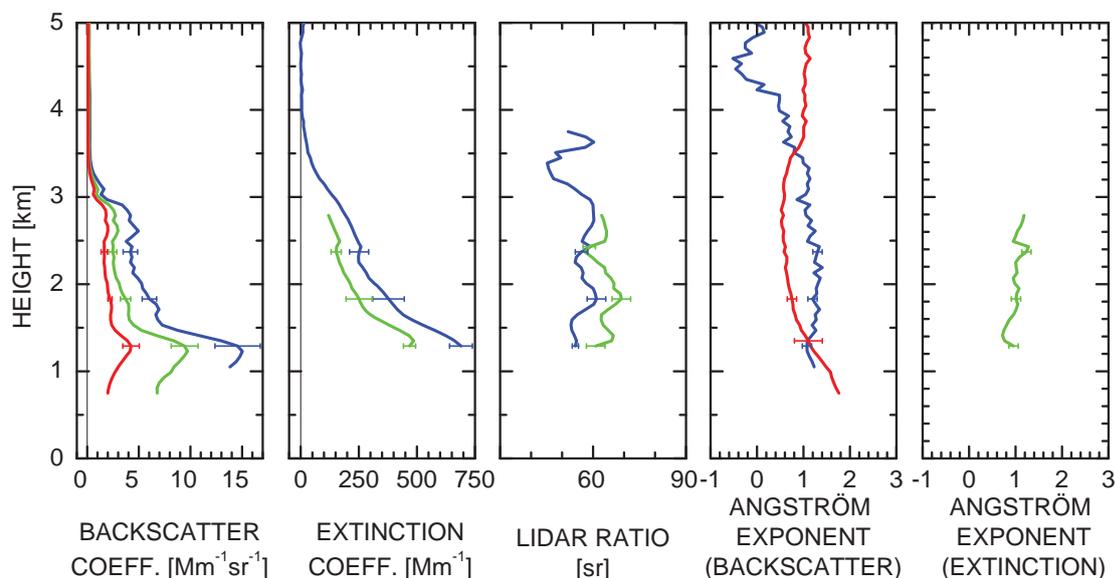


Abbildung 5.13: Partikelrückstreu- und -extinktionskoeffizient, Lidarverhältnis (rot: 1064 nm; grün: 532 nm und blau: 355 nm), Ångströmxponent aus der Rückstreuung (rot: 532/1064 nm; blau: 355/532 nm) und Ångströmxponent aus der Extinktion (grün: 355/532 nm) für den 06.04.2009, 20:39-21:34 UTC mit Glättungslängen für β von 60 m unterhalb von 3030 m und 660 m oberhalb von 3030 m, für α_{355} und L_{355} von 660 m unterhalb von 2430 m und 1260 m oberhalb von 2430 m und für α_{532} und L_{532} von 660 m unterhalb von 2490 m und 1260 m oberhalb von 2490 m. Die Fehlerbalken geben die Standardabweichung für die entsprechenden Aerosolschichten an.

Tabelle 5.4: Mittelwerte und Standardabweichungen der optischen Aerosoleigenschaften für die jeweiligen Aerosolschichten für die Messung vom 06.04.2009, 20:39-21:34 UTC.

	0.8–1.5 km	1.5–2 km	2–3 km
β_{355} [Mm ⁻¹ sr ⁻¹]	13.1 ± 2.2	6.3 ± 0.7	4.1 ± 0.7
β_{532} [Mm ⁻¹ sr ⁻¹]	7.9 ± 1.3	3.8 ± 0.5	2.5 ± 0.4
β_{1064} [Mm ⁻¹ sr ⁻¹]	3.1 ± 0.8	2.2 ± 0.2	1.7 ± 0.3
α_{355} [Mm ⁻¹]	638 ± 49	406 ± 68	229 ± 41
α_{532} [Mm ⁻¹]	462 ± 26	275 ± 56	158 ± 22
L_{355} [sr]	54 ± 1	58 ± 3	58 ± 2
L_{532} [sr]	64 ± 3	66 ± 3	63 ± 2
$\dot{a}_{\beta_{355,532}}$	1.2 ± 0.1	1.3 ± 0.1	1.2 ± 0.1
$\dot{a}_{\beta_{532,1064}}$	1.4 ± 0.3	0.8 ± 0.1	0.6 ± 0.0
$\dot{a}_{\alpha_{355,532}}$	0.8 ± 0.1	1.0 ± 0.1	1.1 ± 0.1

In den Partikelrückstreu- und -extinktionsprofilen in Abb. 5.13 sind deutlich die Aerosolschichten in den Höhenbereichen von 0.8–1.5 km, 1.5–2 km und 2–3 km zu sehen. Die Mittelwerte und Standardabweichungen der optischen Aerosoleigenschaften für die angegebenen Aerosolschichten sind in Tabelle 5.4 aufgeführt.

Zur Bestimmung der Quellregionen der Aerosolpartikel dienen die Rückwärtssimulationen mit HYSPLIT und FLEXPART. In Abb. 5.14 ist die HYSPLIT-Simulation vom 06.04.2009 um 21:00 UTC dargestellt. Die Trajektorien reichen 7 Tage zurück und enden in den Höhen, in denen jeweils die drei untersuchten Aerosolschichten liegen. Die Trajektorien kamen in allen drei Höhen aus Süden und änderten ihre Richtung gegen Südost über Österreich.

Die Trajektorie in 1383 m unterscheidet sich von den anderen beiden Trajektorien dahingehend, dass sie ursprünglich aus nördlicher Richtung kam. Die beiden anderen Trajektorien zeigen erst ab östlicher Schwarzmeerküste einen gemeinsamen Verlauf aus östlicher Richtung. Auf dem Weg nach Leipzig haben alle Trajektorien die Länder durchquert, in denen zu dieser Zeit vermehrt Brände stattfanden. Die Verteilung und Häufigkeit der Brände ist in Abb. 5.15 zu sehen. Betroffen davon waren vor allem die

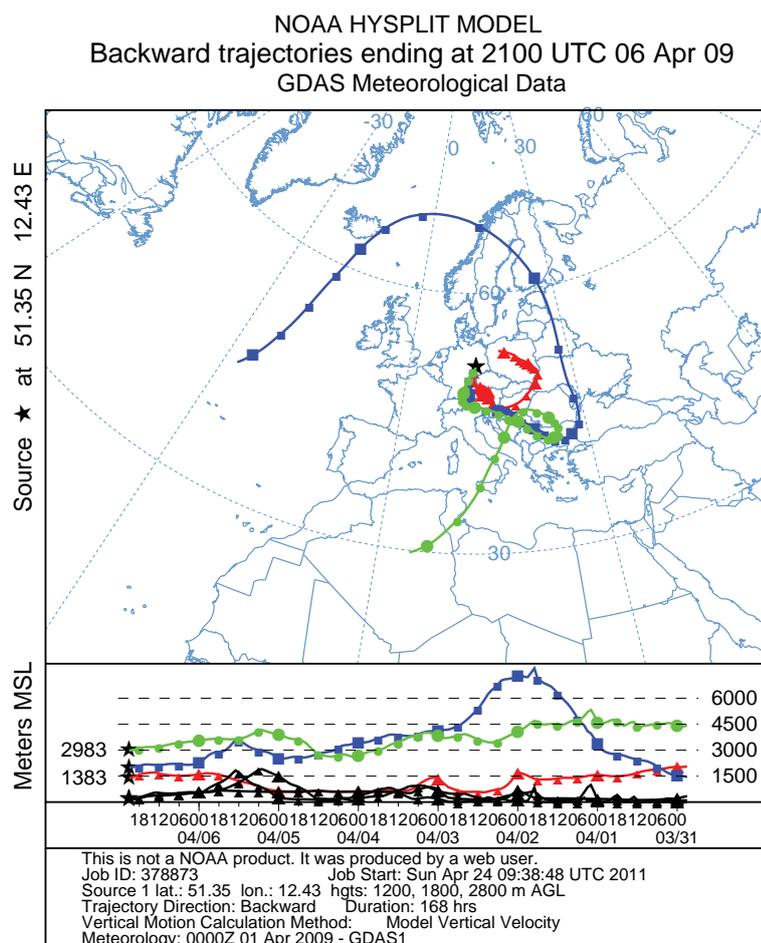


Abbildung 5.14: Rückwärtssimulation mit HYSPLIT für den 06.04.2009, 21:00 UTC für die Höhen 1383 (rot), 1983 (blau) und 2983 m (grün). Die schwarzen Linien stellen die Orographie unter der jeweiligen Trajektorie dar [<http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>].

Länder Ungarn, Bulgarien, Rumänien, Ukraine sowie Weißrussland und das angrenzende europäische Russland. Besonders auffällig sind auch die an Polen und Litauen angrenzenden Brände in der Exklave Russlands (Oblast Kaliningrad). Inwieweit die Verteilung der Brände in Zusammenhang mit den in Leipzig gemessenen optischen

Partikeleigenschaften steht, zeigt die präzisere Transportsimulation mit FLEXPART in Abb. 5.16. Die Herkunftsanalyse der Aerosolpartikel ist für die Aerosolschicht in 1.5–2 km dargestellt. Für die Aerosolschicht in 2–3 km ergibt sich ein ähnliches Bild. Es ist ersichtlich, dass sich in den Bereichen der höchsten Aufenthaltswahrscheinlichkeit (rote Farben in Abb. 5.16) in den Tagen vor der Messung viele Brände ereignet haben. Die FLEXPART-Simulation zeigt eine hohe Aufenthaltswahrscheinlichkeit in Tschechien und Österreich, die ebenso bei HYSPLIT in allen drei Rückwärtstrajektorien (etwa 3 Tage) zu sehen ist.



Abbildung 5.15: Verteilung und Häufigkeit von Bränden für den Zeitraum vom 31.03.–06.04.2006, aufgenommen mit MODIS. Orange Punkte sind alle Brände der letzten 7 Tage [<http://firefly.geog.umd.edu:8080/firemap/>].

Die genaue Betrachtung der einzelnen Rückwärtstrajektorien mit HYSPLIT zeigt, dass alle Trajektorien neben ihren teilweise unterschiedlichen Wegen auch verschiedene Aufenthaltszeiten in bestimmten Regionen haben. Die Trajektorie in 1383 m zeigt eine lange Aufenthaltsdauer der Luftmassen in Polen und führt von dort aus über Ungarn und Österreich schließlich nach Leipzig. Hier wird deutlich, dass es sich bei der vermessenen Aerosolschicht wahrscheinlich größtenteils um eine Mischung aus anthropogenen Aerosolpartikeln aus der Industrie Polens und aus Partikeln von Biomassenverbrennungen handelt. Diese können laut MODIS durch die starken Brände im Gebiet der Exklave Russlands, in der Ukraine, Ungarn und Rumänien zu Stande kommen. Die

Trajektorie 600 m darüber hält sich im Vergleich dazu mehr in den Ländern Rumänien, Bulgarien und Ungarn auf. Für die Trajektorie in 2983 m ist der Weg ähnlich der Trajektorie 1000 m darunter, doch kommt diese im Gegensatz dazu aus der Sahara über das Mittelmeer nach Osteuropa. Dennoch sind laut dem Staubvorhersage-Modell DREAM⁴ [Nickovic *et al.*, 2001] für den 07.04.2009 (00:00 UTC) praktisch keine Staubpartikel über Leipzig vorhanden.

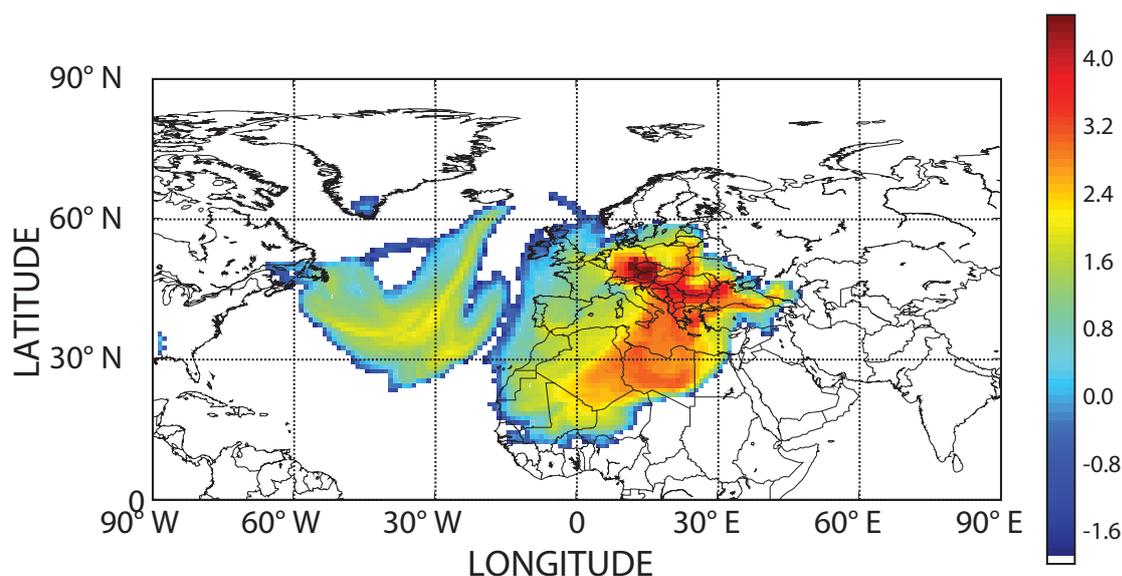


Abbildung 5.16: Aufenthaltszeiten für die Aerosolschicht zwischen 1.5 und 2 km für die Messung vom 06.04.2009, 20:39–21:34 UTC, aufsummiert von 0 bis 2 km nach der 10-Tage-Rückwärtssimulation. Die Farbskala bezeichnet den dekadischen Logarithmus der Summe der Aufenthaltszeiten aller Luftpakete pro Höhen- und Zeitabschnitt.

Aus den Mittelwerten der optischen Eigenschaften (s. Tabelle 5.4) geht hervor, dass in allen drei Aerosolschichten (0.8–1.5 km, 1.5–2 km und 2–3 km) keine eindeutige Zuordnung des Aerosoltyps möglich ist. Der Vergleich der intensiven Größen in allen Aerosolschichten zeigt, dass die Lidarverhältnisse bei der Wellenlänge 532 nm größer sind als bei der Wellenlänge 355 nm und somit auf gealterte Partikel aus Biomassenverbrennungen hinweisen [Müller *et al.*, 2005]. Die sehr stark variierenden Ångströmxponenten aus der Rückstreuung und der Extinktion lassen jedoch keine Rückschlüsse auf den Partikeltyp zu. Tendenziell deuten die Ångströmxponenten aus der Rückstreuung

⁴Dust REgional Atmospheric Model

darauf hin, dass der anthropogene Anteil (Industrie) mit der Höhe ab- und der Anteil an Biomassenverbrennungen zunimmt [Müller *et al.*, 2007b].

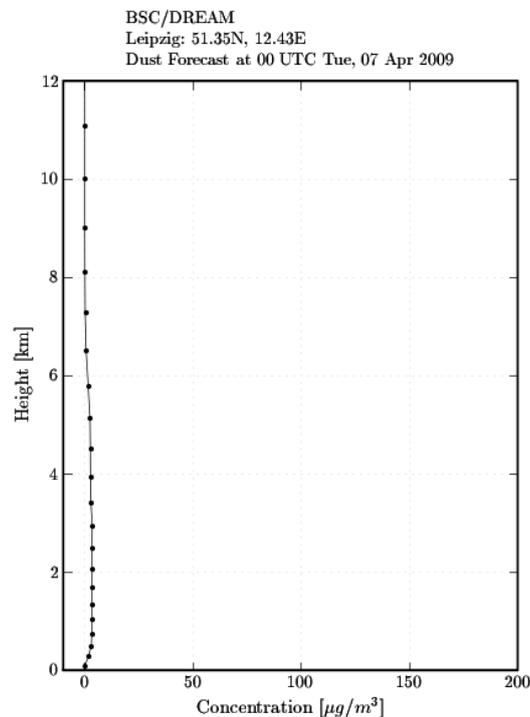


Abbildung 5.17: DREAM–Staubvorhersage für den 07.04.2009, 00:00 UTC
[<http://www.bsc.es/projects/earthscience/DREAM>].

Das Aerosol–Modell NAAPS vom 07.04.2009 (00:00 UTC) zeigt eine leichte Erhöhung in der AOD durch Mineralstaubpartikel (0.1) und durch sulfathaltige Partikel (0.2). Die Erhöhung durch Sulfate ist ebenfalls in den Massenkonzentrationen an der Erdoberfläche zu sehen ($8\text{--}16 \mu\text{g m}^{-3}$). Der anthropogene Einfluss durch die sulfathaltigen Partikel in Bodennähe stimmt mit den gemessenen optischen Aerosoleigenschaften überein. Die Massenkonzentration der Mineralstaubpartikel am Boden ist kleiner $20 \mu\text{g m}^{-3}$ und liegt etwas südlich von Leipzig bei $20\text{--}40 \mu\text{g m}^{-3}$. Demnach kann ein leichter Staubanteil nicht ausgeschlossen werden. Eine erhöhte Massenkonzentration von Partikeln aus Biomassenverbrennung ist nahe der Erdoberfläche über Leipzig aus den Modellrechnungen nicht zu erkennen, jedoch deuten die Erhöhungen nahe der ostdeutschen Grenze (Polen und Österreich) darauf hin, dass sich Partikel aus Feld– bzw. Waldbränden in den oberen Aerosolschichten über Leipzig befinden könnten. Es sollte bedacht werden, dass es sich hier um ein Modell handelt, welches

nur für bodennahe Schichten Informationen zur optischen Dicke und der Konzentration von Aerosolpartikeln liefert. Das Modell ist nicht unbedingt repräsentativ für die gesamte Atmosphärensäule über Leipzig.

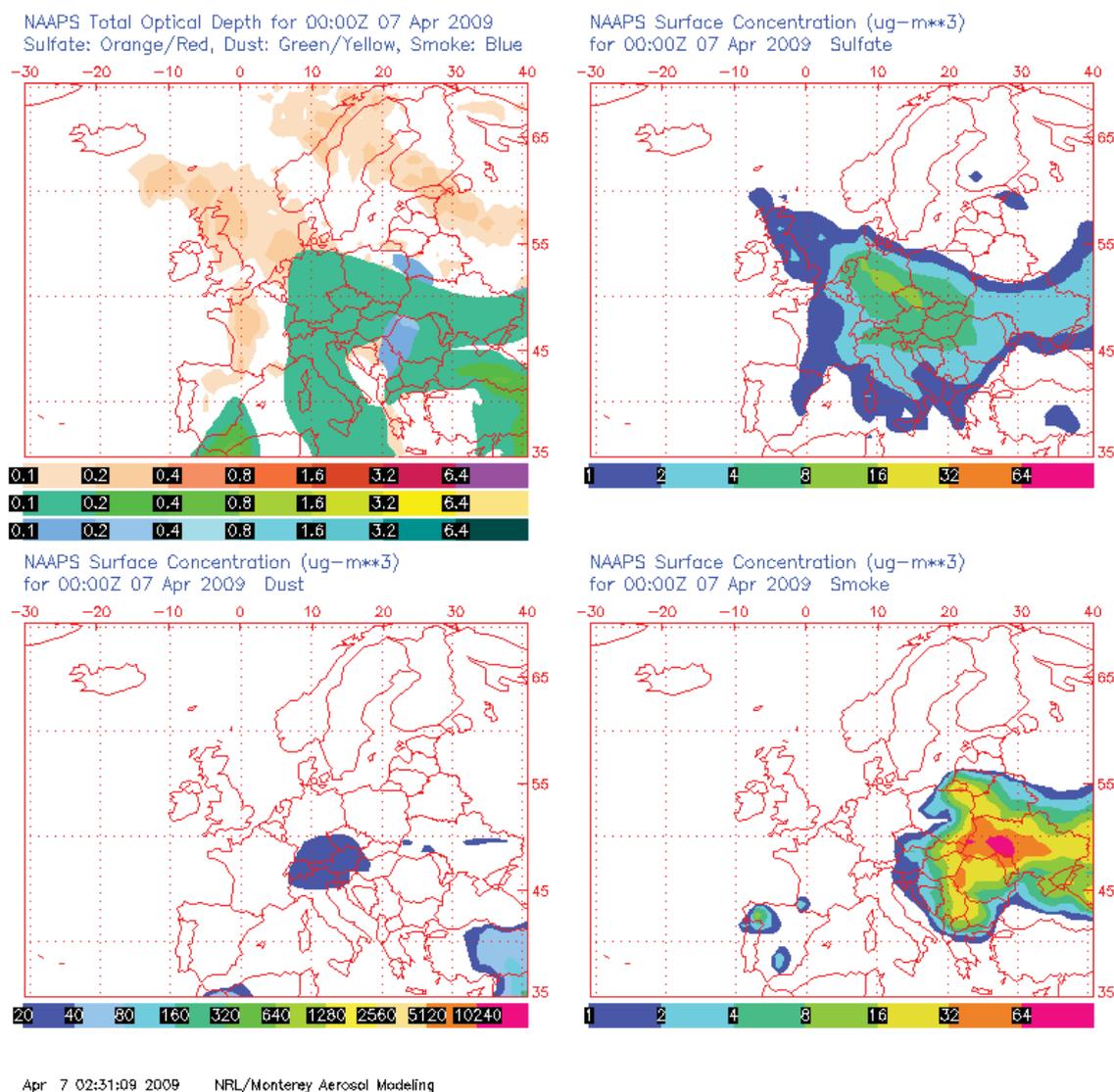


Abbildung 5.18: Optische Dicke (oben links) und Massenkonzentration an der Erdoberfläche für Sulfate (oben rechts), Mineralstaub (unten links) und Biomassenverbrennungsmaterial (unten rechts) für den 07.04.2009, 00:00 UTC, aus Analysen des NAAPS-Modells.

Die in Melpitz gemessenen PM_{10} -Partikelmassenkonzentrationen und Konzentrationen der wasserlöslichen Ionen und des organischen und elementaren Kohlenstoffs für den 06.04.2009 sind in Tabelle 5.1 aufgeführt. Im Vergleich zum Gesamtzeitraum 05/2004–04/2008 (Sommer, Ostanströmung) sind in fast allen Konzentrationen bis auf den elementaren Kohlenstoff sowie die Magnesium- und Calciumionen starke Erhöhungen zu finden. Die PM_{10} -Partikelmassenkonzentration überschreitet mit $55.37 \mu\text{g m}^{-3}$ für diesen Tag sogar die EU-Richtlinie⁵, wonach die PM_{10} -Partikelmassenkonzentration nicht größer sein darf als $50 \mu\text{g m}^{-3}$. Die hohe PM_{10} -Partikelmassenkonzentration wird vor allem durch die stark erhöhten Konzentrationen an Nitrat- und Ammoniumionen (21.09 und $9.21 \mu\text{g m}^{-3}$) verursacht. Diese werden bevorzugt als Düngemittel (Ammoniumnitrat) in der Landwirtschaft eingesetzt und können in diesem Fall als lokale Quelle angesehen werden. Die im Vergleich zum Mittelwert fast doppelt so hohe Konzentration an Kaliumionen und die erhöhte Konzentration an organischem Kohlenstoff deuten auf Biomassenverbrennung hin.

⁵Bei Überschreitung der PM_{10} -Partikelmassenkonzentration von $50 \mu\text{g m}^{-3}$ an 35 Tagen im Jahr müssen Ballungsgebiete (Melpitz ausgeschlossen) luftqualitätsverbessernde Maßnahmen ergreifen.

In Abb. 5.19 ist der entsprechende Verlauf der Indikatoren für Biomassenverbrennung für den 01.04.–20.04.2009 dargestellt. Die Konzentrationen des organischen und elementaren Kohlenstoffs sowie der Kaliumionen folgen größtenteils der PM_{10} -Massenkonzentration. Am 08.04. und 09.04.2009 nimmt die Konzentration aufgrund einer Westwindwetterlage kurzzeitig ab und liegt im Mittel bei Werten von etwa $35 \mu\text{g m}^{-3}$. Jedoch bleibt der starke Einfluss der Biomassenverbrennungen aufgrund der östlichen Anströmung über die meiste Zeit erhalten.

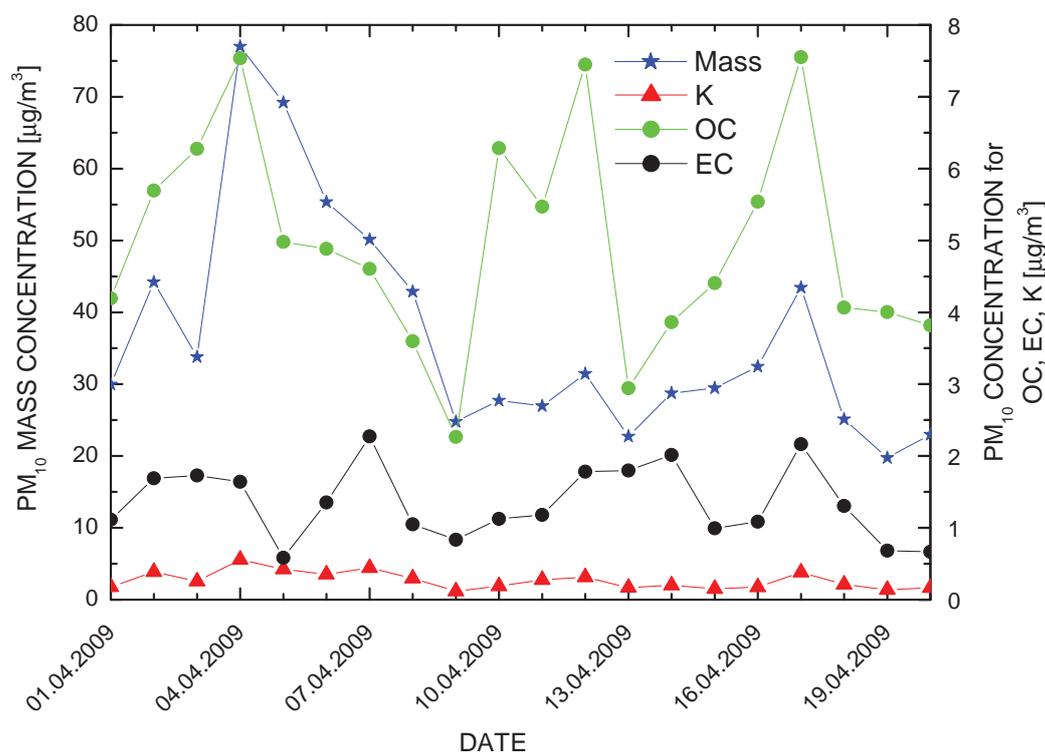


Abbildung 5.19: PM_{10} -Partikelmassenkonzentrationen (blau), Konzentrationen des organischen (OC, grün) und elementaren (EC, schwarz) Kohlenstoffs sowie der Kaliumionen (rot) für den 01.04.–20.04.2009 in Melpitz.

Die Konzentration der Sulfationen war am 06.04.2009 im Vergleich zum 08.05.2006 erheblich höher. Dies deutet auf einen höheren Einfluss anthropogener Partikel aus Industrie und Kraftwerken hin. Die geringen Konzentrationen an Magnesium- und Calciumionen im Vergleich zum Gesamtzeitraum 2004–2008 (Sommer, Ostanströmung) am Messstandort Melpitz zeigen, dass die Region kaum von Saharastaub beeinflusst war.

Zusammenfassend ist zu sagen, dass die Bodenmessungen vom 06.04.2009 in Mel-pitz viel stärker von lokalen Quellen beeinflusst wurden als die mit dem Ramanlidar MARTHA gemessenen Vertikalprofile. Somit können die physikochemischen Eigenschaften nur unterstützend zur Aerosoltypbestimmung dienen. Es geht jedoch aus den optischen als auch physikochemischen Aerosoleigenschaften hervor, dass die Verschmutzungen über Leipzig durch anthropogene Partikel aus der Industrie Osteuropas und durch Feld- bzw. Waldbrandpartikel verursacht wurden. Die Verschmutzungen in Leipzig zeichnen sich ebenso durch hohe optische Dicken aus. Die optische Dicke, berechnet aus dem mit MARTHA gemessenen Extinktionsprofil, beträgt bei der Wellenlänge 355 nm 1.31 und stimmt mit der von AERONET gemessenen optischen Dicke von 1.25 (06.04.2009, 16:06 UTC, 380 nm) gut überein.

5.2 Diskussion des Auftretens von Biomassen- verbrennungs-Ereignissen

In einer Studie über einen Zeitraum von 6 Jahren (2002–2007) untersuchten *Barnaba et al.* [2011] mittels satellitengestützter Brand- und Aerosol-Daten, die mit atmosphärischen Transportmodellen verknüpft wurden, die Verteilung der Waldbrände sowie die AOD Europas. Dazu wurde Europa in sieben Gebiete unterteilt (Skandinavien, Westeuropa, Mitteleuropa, Osteuropa sowie westlicher Mittelmeerraum, Mittelmeerraum und Türkei), und es wurden alle gemessenen Daten monatlich gemittelt. *Barnaba et al.* [2011] haben festgestellt, dass die Verteilung und Häufigkeit der Großflächenbrände einen direkten Einfluss auf den Jahreszyklus der AOD haben.

Im Allgemeinen sind Ost- und Mitteleuropa sowie Skandinavien die am meisten beeinflussten Gebiete. Nicht nur die direkten Emissionen, sondern auch der Ferntransport spielen hier eine wesentliche Rolle. Westeuropa und der westliche Mittelmeerraum dagegen stehen nur unter geringem Einfluss. Im gesamten Zeitraum lag die maximale Aerosolbelastung im Frühling bzw. Sommer und das Minimum im Winter. Die Untersuchungen der AOD im Fein-Mode-Bereich zeigen, dass etwa 5–35% der AOD im Frühling durch Waldbrände verursacht werden, wobei im April das Maximum mit 20–35% in Ost- und Mitteleuropa ebenso wie in Skandinavien und im Mittelmeerraum erreicht wird. Im Sommer sind in fast allen Regionen Erhöhungen in den optischen Dicken des Fein-Mode zu verzeichnen. Sie liegen im August über Osteuropa bei 28% und für die Türkei bis zum westlichen Mittelmeerraum bei 34 und 25%.

Sehr ähnliche Maxima und Minima weisen auch die monatlich und regional gemit-

telten Waldbrände auf. Die Bimodalität des Jahreszykluses (Frühling, Sommer) wird größtenteils durch die landwirtschaftlichen Brände verursacht. Diese werden im Frühling und Sommer zur Düngung und zum Roden der Felder absichtlich gelegt. Zudem herrschen im Sommer auch verstärkte natürliche Waldbrände aufgrund von Trockenheit und hohen Temperaturen.

Jetzt stellt sich die Frage, wie oft solche Aerosolschichten aus Feld- und Waldbränden aus Osteuropa in Leipzig auftreten und wie sich diese in den optischen Aerosoleigenschaften widerspiegeln. Dazu wurden die Studien von *Mattis et al.* [2003b], *Preißler* [2008] und *Meißner* [2009] betrachtet. Die Studien unterscheiden sich dahingehend, dass sie verschiedene Ansätze bei der statistischen Auswertung langjähriger Messzeitreihen benutzen. Dabei beschäftigten sich *Mattis et al.* [2003b] mit Aerosolpartikeln aus der Grenzschicht und *Preißler* [2008] untersuchte Aerosolpartikel aus der freien Troposphäre. In der Arbeit von *Meißner* [2009] wurde die gesamte Säule der Troposphäre betrachtet.

In *Mattis et al.* [2003b] sind die jahreszeitlichen Trends der optischen Aerosoleigenschaften in der Grenzschicht für den Zeitraum von 2000–2003 dargestellt. Vor allem in den Jahren 2001 und 2002 zeigten die optischen Eigenschaften stärkere Minima und Maxima als in den Jahren davor und danach. Zu sehen ist, dass die Lidarverhältnisse im Sommer geringer sind als im Winter und die Extinktionskoeffizienten wie auch die entsprechenden Ångströmexponenten im Sommer höher als im Winter sind. Weiterhin sind tendenziell die Rückstreukoeffizienten im Sommer höher als im Winter. In allen Parametern zeichnet sich wie bei *Barnaba et al.* [2011] die Bimodalität der Maxima im Jahreszyklus im Frühling und im Sommer ab. Jedoch ereignen sich die Maxima nicht immer zur selben Zeit, sondern variieren aufgrund der aktuellen Wetterlage und der durch Ferntransport herangeführten Aerosolschichten. Diese Aerosolschichten können eine Vielzahl von Aerosoltypen aufweisen.

Die Clusteranalyse in der planetaren Grenzschicht bei Ostanströmung und geringen Windgeschwindigkeiten ergab für die Extinktionskoeffizienten, Ångströmexponenten und Grenzschichthöhen die größten Werte im Vergleich zu anderen Anströmrichtungen. Die Extinktionskoeffizienten bei den Wellenlängen 355 und 532 nm lagen im Mittel bei 210 und 110 Mm^{-1} . Der hohe Mittelwert des Ångströmexponenten von 1.9 deutet vor allem auf anthropogene Aerosolpartikel aus Industrie, Hausbrand und Verkehr hin. Jedoch zeigt auch das Minimum des Mittelwerts des Ångströmexponenten in der Grenzschicht von etwa 1.1 den Einfluss größerer Partikel im Akkumulations-Mode, die hauptsächlich bei Biomassenverbrennungen emittiert werden.

Die Arbeit von *Preißler* [2008] beschäftigte sich mit der Herkunft abgehobener Aerosolschichten in der freien Troposphäre über Leipzig. Dazu hat *Preißler* [2008] Europa in verschiedene Quellgebiete eingeteilt und herausgefunden, dass zwischen 2000 und 2006 etwa 31% der abgehobenen Aerosolschichten über Leipzig aus Osteuropa und 27% aus Südosteuropa kommen. Dabei ist Polen die häufigste Quellregion (20%) und die Ukraine die am wenigsten beobachtete (3%). Des Weiteren findet man im Frühling und Sommer vor allem abgehobene Aerosolschichten über Leipzig aus Osteuropa und im Winter praktisch nur aus Südosteuropa.

Die Untersuchungen von optischen Aerosoleigenschaften mit einem Photometer (2000–2008) zeigen [*Meißner*, 2009], dass die optische Dicke bei der Wellenlänge 500 nm einen ähnlichen Verlauf aufweist wie bei *Barnaba et al.* [2011]. Weiterhin ist in der AOD (500 nm) eine große Variabilität zum mittleren Jahresverlauf des gesamten Untersuchungszeitraumes zu sehen (vor allem im März/April sowie in den Monaten Juni bis August). Das bedeutet, dass nicht nur kontinuierlich Aerosolpartikel aus Biomassenverbrennung gegenwärtig sind, sondern auch andere anthropogene und natürliche Aerosolpartikel. Im Mittel werden die größten optischen Dicken im März/April sowie im August beobachtet. Der Vergleich zum Ångströmxponenten aus der Extinktion bei den Wellenlängen 380 und 500 nm im gesamten Zeitraum weist darauf hin, dass bei Maximal-Werten von 0.4–1.0 in der AOD bei der Wellenlänge 500 nm der Ångströmxponent in vielen Fällen bei etwa 1.0 liegt. Nach den Erkenntnissen von *Müller et al.* [2005, 2007a] deuten diese Werte auf gealterte Partikel aus Biomassenverbrennung hin. Solch ein gegenläufiges Verhalten von Ångströmxponenten und der optischen Dicke ist ein Hinweis auf das Auftreten von Aerosolpartikeln aus Biomassenverbrennungen. Bei den Betrachtungen von *Meißner* [2009] wurden jedoch keine Windrichtungen berücksichtigt.

Es wird deutlich, dass keine genauen Aussagen darüber getroffen werden können, wann genau Partikel aus Biomassenverbrennungen aus Osteuropa in Leipzig vorkommen. Jedoch treten solche Ereignisse vorzugsweise im Frühling und Sommer auf. Für genauere Kenntnisse der Auftrittswahrscheinlichkeit der Biomassenverbrennungs-Ereignisse aus Osteuropa bedarf es noch weiterer Studien.

Kapitel 6

Statistische Datenanalyse

Nachdem bisher nur Fallbeispiele für Aerosoltransport aus Osteuropa behandelt wurden, werden in diesem Kapitel die Mehrwellenlängenmessungen mit dem Ramanlidar aus dem Zeitraum 2006–2010, ähnlich der Studie von *Mattis et al.* [2004a], betrachtet. *Mattis et al.* [2004a] haben den Zeitraum 2000–2003 untersucht. Die Messreihe aus dem Zeitraum 2000–2003 war die erste Phase des EU-Projekts EARLINET, und die von 2006–2010 die Phase der ESA¹–CALIPSO² Studie [*Pappalardo et al.*, 2010]. Während der beiden Zeiträume gab es in Leipzig sehr viele planmäßige EARLINET-Messungen. Für den dazwischen liegenden Zeitraum 2004/2005 konnten jedoch nur wenige Messungen durchgeführt werden, so dass dieser Messzeitraum bei der statistischen Datenauswertung nicht betrachtet wurde.

Für die statistische Analyse der Lidardaten aus dem Zeitraum Mai 2006 bis Juli 2010 wurden folgende optische Eigenschaften betrachtet:

- der Rückstreuoeffizient bei den Wellenlängen 355, 532 und 1064 nm
- der Extinktionskoeffizient bei den Wellenlängen 355 und 532 nm
- das Lidarverhältnis bei den Wellenlängen 355 und 532 nm
- der Ångströmxponent aus der Rückstreuung bei 355 und 532 nm sowie bei 532 und 1064 nm und aus der Extinktion bei 355 und 532 nm.

Für die oben aufgeführten Parameter jeder einzelnen Messung wurden zunächst die Mittelwerte in verschiedenen Höhenbereichen (untere Messhöhe bis Grenzschichtober-

¹European Space Agency

²Cloud–Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observations

kante, Grenzschichtoberkante bis 5 km und 5 km bis 10 km) berechnet und anschließend diese Schicht–Mittelwerte über alle Messungen gemittelt. Die Mittelwerte sowie Standardabweichungen und die Anzahl der zur Verfügung stehenden Profile für die Höhenbereiche der planetaren Grenzschicht und der freien Troposphäre sind in Tabelle 6.1 aufgeführt. In der dazugehörigen Abb. 6.1 sind die Mittelwerte durch schwarze Linien gekennzeichnet und die entsprechenden Standardabweichungen als graue Flächen.

Tabelle 6.1: Mittelwerte (\bar{x}) und Standardabweichungen (σ) sowie Anzahl der Messungen (N) für den Zeitraum Mai 2006 bis Juli 2010.

	PBL		FT (<5 km)		FT (>5 km)	
	$\bar{x} \pm \sigma$	(N)	$\bar{x} \pm \sigma$	(N)	$\bar{x} \pm \sigma$	(N)
β_{355} [$\text{Mm}^{-1}\text{sr}^{-1}$]	2.95 ± 2.19	54	0.24 ± 0.27	57	0.07 ± 0.04	52
β_{532} [$\text{Mm}^{-1}\text{sr}^{-1}$]	1.85 ± 1.09	268	0.14 ± 0.16	279	0.03 ± 0.03	263
β_{1064} [$\text{Mm}^{-1}\text{sr}^{-1}$]	0.78 ± 0.46	68	0.08 ± 0.17	76	0.02 ± 0.03	73
α_{355} [Mm^{-1}]	139 ± 93	45	13 ± 13	63	3 ± 3	64
α_{532} [Mm^{-1}]	90 ± 64	41	10 ± 12	58	3 ± 3	53
L_{355} [sr]	57 ± 13	35	53 ± 15	41	53 ± 16	19
L_{532} [sr]	59 ± 16	35	56 ± 18	41	60 ± 13	18
$\dot{a}_{\beta_{355,532}}$	1.4 ± 0.4	52	1.2 ± 0.7	54	1.4 ± 0.8	52
$\dot{a}_{\beta_{532,1064}}$	1.0 ± 0.3	65	1.2 ± 0.6	72	1.3 ± 0.7	70
$\dot{a}_{\alpha_{355,532}}$	1.3 ± 0.8	41	1.5 ± 1.3	55	1.2 ± 1.6	48

Für die Auswertung standen 78 Mehrwellenlängenmessungen zur Verfügung. Im Falle des Partikelrückstreukoeffizienten bei der Wellenlänge 532 nm konnten 285 Messungen ausgewertet werden, da sich diese Größe auch für Tagmessungen und unter ungünstigen meteorologischen Bedingungen (z.B. durchbrochene Wolken) berechnen lässt. Aufgrund der hohen Anzahl des Partikelrückstreukoeffizienten bei 532 nm und der dementsprechend repräsentativeren Statistik wurde dieser auch zur Bestimmung der mittleren Höhe der PBL verwendet. Die mittlere PBL–Höhe für den Gesamtzeitraum 2006–2010 beträgt 1792 ± 715 m. Um sich einen genaueren Überblick über die atmosphärische Variabilität der vergangenen Jahre zu verschaffen, wurde die mittlere PBL–Höhe der Jahreszeiten Frühling (März, April und Mai), Sommer (Juni, Juli

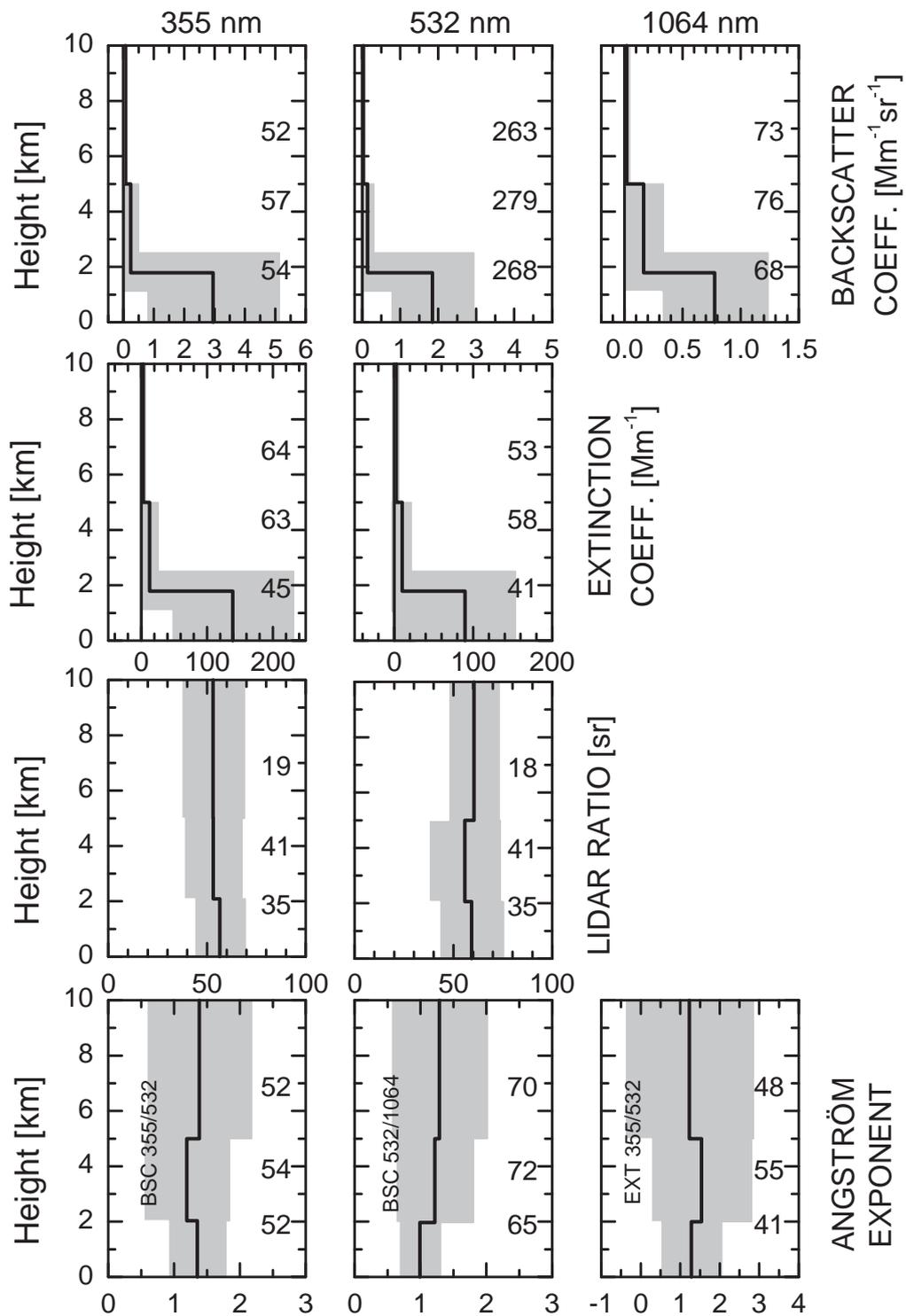


Abbildung 6.1: Mittelwerte (schwarze Linie), Standardabweichung (graue Balken) und Anzahl der zur Verfügung stehenden Profile (Zahl) aus dem Zeitraum Mai 2006 bis Juli 2010.

und August), Herbst (September, Oktober und November) und Winter (Dezember, Januar und Februar) für die Jahre von 2000 bis 2010 berechnet. Abb. 6.2 zeigt die PBL-Höhen aus dem Gesamtzeitraum 2006–2010 sowie die mittleren PBL-Höhen für die entsprechenden Jahreszeiten der einzelnen Jahre. Die dazugehörigen Mittelwerte und Standardabweichungen sind in Tabelle 6.2 aufgeführt. Aus Abb. 6.2 ist ersichtlich, dass bis 2009 bedeutend mehr Messungen in die statistische Datenanalyse einfließen konnten als im Jahr 2010, so dass die mittleren PBL-Höhen im Jahr 2010 für den Frühling und den Sommer weniger repräsentativ sind. Ähnlich verhält es sich auch für die Mittelwerte im Winter, da im Winter kaum Messungen aufgrund ungünstiger meteorologischer Bedingungen stattfinden können.

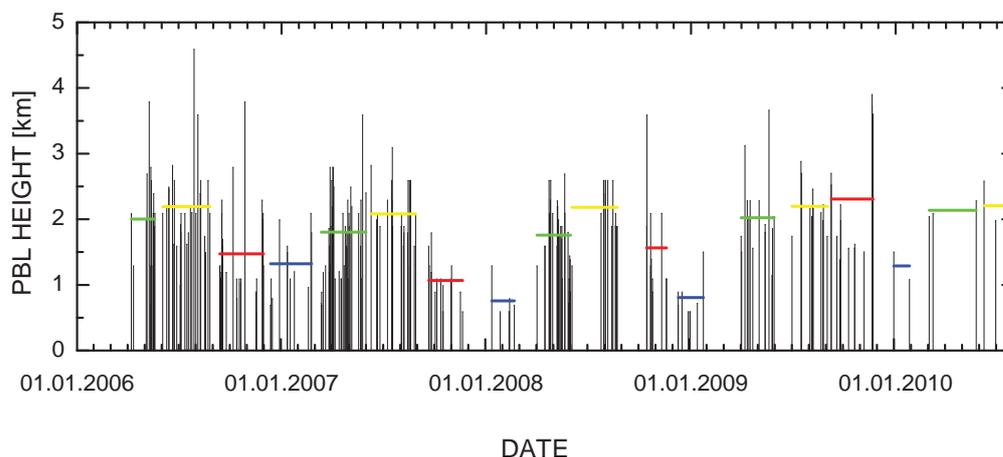


Abbildung 6.2: PBL-Höhen aus dem Gesamtzeitraum 2006–2010 (schwarz) und mittlere PBL-Höhen der einzelnen Jahre für Frühling (grün), Sommer (gelb), Herbst (rot) und Winter (blau).

Im Sommer sind die beobachteten mittleren PBL-Höhen der jeweiligen Jahre von 2006–2010 sehr ähnlich, wohingegen die im Frühling beobachteten mittleren PBL-Höhen etwas stärker variieren. Die PBL-Höhen schwanken im Frühling bei etwa 250 m und im Sommer bei etwa 100 m (2010 ausgenommen). Die Schwankungen im Frühling sind hauptsächlich auf den Einfluss der Großwetterlage zurückzuführen. Während der Sommer durch häufigen Hochdruckeinfluss gekennzeichnet ist, sind im Frühling Hoch- und Tiefdruckgebiete bestimmend. Das bedeutet, dass bei verstärkten Hochdruckeinfluss die Grenzschicht aufgrund der stärkeren solaren Einstrahlung stärker durchmischt

wird und sich dementsprechend auch stärker in der Vertikalen ausbreiten kann. Dies könnte 2006 und 2009 der Fall gewesen sein. Durch Ferntransport u.a. von Saharastaub und Partikeln aus Biomassenverbrennungen kann ebenfalls die Grenzschichthöhe anwachsen. Im Winter liegen die Grenzschichthöhen im Vergleich zum Frühling, Sommer und Herbst aufgrund der geringeren Intensität der Sonneneinstrahlung bedeutend niedriger. Die im Frühling und Herbst beobachteten mittleren PBL-Höhen für den Gesamtzeitraum liegen bis zu 800 m und 500 m höher als im Winter. Auch im Herbst ist die Variabilität der Atmosphäre deutlich an den unterschiedlichen PBL-Höhen der jeweiligen Jahre zu sehen. Die Variabilität wird ähnlich wie im Frühling durch die Großwetterlage bestimmt. Die verstärkt auftretenden Saharastaub-Ereignisse in den Herbstmonaten Oktober und November können ebenfalls eine höhere Grenzschicht hervorrufen.

Tabelle 6.2: Mittlere PBL-Höhe aus dem Gesamtzeitraum 2006–2010 und den einzelnen Jahren für Frühling, Sommer, Herbst und Winter sowie die entsprechenden Standardabweichungen.

Jahr	Frühling	Sommer	Herbst	Winter
2006–2010	1863 ± 642	2161 ± 530	1566 ± 792	1051 ± 449
2006	2003 ± 770	2192 ± 700	1474 ± 688	1322 ± 462
2007	1803 ± 672	2082 ± 493	1068 ± 358	757 ± 273
2008	1758 ± 532	2182 ± 411	1565 ± 761	808 ± 306
2009	2024 ± 671	2198 ± 359	2308 ± 910	1290 ± 297
2010	2137 ± 127	2208 ± 256	–	–

Für die Partikelrückstreuoeffizienten in der planetaren Grenzschicht bei den Wellenlängen 355, 532 und 1064 nm ergeben sich Mittelwerte mit den dazugehörigen Standardabweichungen von 2.95 ± 2.19 , 1.85 ± 1.09 und $0.78 \pm 0.46 \text{ Mm}^{-1}\text{sr}^{-1}$ und für den Partikelextinktionskoeffizienten von 139 ± 93 und $90 \pm 64 \text{ Mm}^{-1}$ (s. Abb. 6.1). In der freien Troposphäre nimmt die Konzentration der Aerosolpartikel sehr stark ab und dementsprechend sind die Mittelwerte der extensiven Größen sehr klein. Sie betragen in der FT unterhalb von 5 km nur etwa 10% und in der FT oberhalb von 5 km etwa 2% im Vergleich zu den Mittelwerten der PBL. Des Weiteren zeigt die Streubreite der extensiven Größen in der freien Troposphäre im Gegensatz zur PBL bedeutend

höhere Werte, die aufgrund von größeren Messunsicherheiten in den Rückstreu- und Extinktionsprofilen in der freien Troposphäre hervorgerufen werden.

Für die Lidarverhältnisse sind die Mittelwerte bei der Wellenlänge 532 nm für alle drei Höhenbereiche im Allgemeinen etwas größer als bei der Wellenlänge 355 nm. In bisherigen Studien [Mattis *et al.*, 2004a; Müller *et al.*, 2007b] der optischen Aerosoleigenschaften in der PBL für den urbanen Standort Leipzig waren die Mittelwerte des Lidarverhältnisses der Wellenlänge 355 nm im Gegensatz zu den hier präsentierten Ergebnissen größer als bei 532 nm. Wegen der großen Streubreite der Lidarverhältnisse lassen sich jedoch keine Schlussfolgerungen bezüglich eines starken Einflusses von Biomassenverbrennungen ziehen (größere Lidarverhältnisse bei der Wellenlänge 532 nm als bei der Wellenlänge 355 nm sind typisch für Partikel aus Biomassenverbrennung [Müller *et al.*, 2005]). Die Ergebnisse werden von der starken Variabilität der Atmosphäre dominiert. Das Lidarverhältnis bei der Wellenlänge 355 nm nimmt mit der Höhe etwas ab, wohingegen das Lidarverhältnis bei der Wellenlänge 532 nm zunächst kleiner und dann wieder größer wird. Auch hier kann aufgrund der Streubreite aus den mittleren Lidarverhältnissen in den verschiedenen Höhenbereichen kein dominanter Aerosoltyp bestimmt werden.

Die Ångströmxponenten in der PBL liegen bei 1.0–1.4 und zeigen typische Eigenschaften anthropogener Aerosolpartikel für den urbanen Standort Leipzig [Müller *et al.*, 2007a]. Die doppelt so große Streubreite bei den Ångströmxponenten aus der Extinktion im Vergleich zu den Ångströmxponenten aus der Rückstreuung in der PBL wird durch die Unsicherheit der Überlappungskorrektur verursacht. Für die Ångströmxponenten in der freien Troposphäre können Werte von 1.2–1.5 angegeben werden. Es ist ersichtlich, dass die Streubreite der Ångströmxponenten mit Eintritt in die freie Troposphäre sehr stark zunimmt.

Die stärkere Streubreite der Ångströmxponenten in der freien Troposphäre im Vergleich zur PBL deutet darauf hin, dass die optischen Aerosoleigenschaften in größeren Höhen durch verschiedene Aerosoltypen bestimmt werden. Dagegen zeigen die Mittelwerte der Ångströmxponenten mit einer geringen Streubreite in der PBL, dass die PBL größtenteils durch Aerosolpartikel aus lokalen Quellen beeinflusst wird. Die unterschiedlichen Aerosoltypen gelangen hauptsächlich durch Ferntransport nach Leipzig. Charakteristische Eigenschaften für häufig vorkommende Aerosoltypen wie Saharastaub und gealterte Partikel aus Biomassenverbrennung sind jedoch nicht zu erkennen.

Zusammenfassend ist zu sagen, dass die Mittelwerte der extensiven Größen, bedingt durch die geringere Anzahl der Aerosolpartikel mit zunehmender Höhe, insbesondere zwischen der PBL–Oberkante und dem Anfang der freien Troposphäre sehr stark abnehmen. Ebenso ist aus der intensiven Größe des Ångströmxponenten ersichtlich, dass in der PBL hauptsächlich anthropogene Aerosolpartikel beobachtet werden. Für die freie Troposphäre sind jedoch keine der in Abschnitt 2.1 genannten Aerosoltypen dominant.

Im Folgenden werden die Messreihen aus dem Zeitraum 2000–2003 [Mattis *et al.*, 2004a] und dem Zeitraum 2006–2010 miteinander verglichen. Die Mittelwerte und Standardabweichungen aus dem Zeitraum 2000–2003 sind in Tabelle 6.3 für die Höhenbereiche der PBL und der freien Troposphäre aufgeführt. Diese wurden aus Mattis *et al.* [2004a] entnommen.

Tabelle 6.3: Mittelwerte und Standardabweichungen für die optischen Eigenschaften in den Höhenbereichen der planetaren Grenzschicht und der freien Troposphäre für den Zeitraum Mai 2000 bis März 2003.

	PBL	FT
β_{355} [Mm ⁻¹ sr ⁻¹]	3.2 ± 2.0	0.08 ± 0.08
β_{532} [Mm ⁻¹ sr ⁻¹]	1.7 ± 0.9	0.05 ± 0.05
β_{1064} [Mm ⁻¹ sr ⁻¹]	0.6 ± 0.4	0.03 ± 0.05
α_{355} [Mm ⁻¹]	191 ± 115	6.2 ± 4.0
α_{532} [Mm ⁻¹]	94 ± 50	4.3 ± 3.7
L_{355} [sr]	58 ± 12	52 ± 16
L_{532} [sr]	53 ± 11	53 ± 20
$\dot{a}_{\beta_{355,532}}$	1.65 ± 0.43	1.25 ± 0.90
$\dot{a}_{\beta_{532,1064}}$		1.23 ± 0.72
$\dot{a}_{\alpha_{355,532}}$	1.43 ± 0.49	1.0 ± 0.83

Die mittlere PBL–Höhe aus dem Zeitraum 2000–2003, bestimmt aus 107 Messungen, beträgt 1917 ± 861 m und ist im Vergleich zur PBL–Höhe des späteren Zeitraums (2006–2010) 125 m höher. Die mittleren PBL–Höhen für die Sommer– und Winterhalbjahre betragen 2350 und 1300 m für den Messzeitraum 2000–2003 sowie 1991 ± 613 und 1416 ± 745 m für den Messzeitraum 2006–2010. Es ist deutlich sichtbar, dass die PBL–

Höhe aus dem Zeitraum 2000–2003 im Sommerhalbjahr etwa 360 m höher liegt und im Winterhalbjahr etwa 120 m niedriger als zwischen 2006 und 2010. Jedoch liegen die Mittelwerte der Grenzschichthöhe von 2000–2003 innerhalb der Streubreite der Mittelwerte von 2006–2008. Das bedeutet, dass die Unterschiede in den PBL-Höhen beider Zeiträumen nur aufgrund der variablen Atmosphäre zu Stande kommen.

Die Mittelwerte der Partikelrückstreukoeffizienten sind für beide Zeiträume sehr ähnlich. Dahingehend weisen die Mittelwerte der Partikelextinktionskoeffizienten kleinere Werte für den Zeitraum 2006–2010 auf. Die Streuung ist jedoch so hoch, dass alle Werte der extensiven Größen im Rahmen der atmosphärischen Variabilität unverändert sind. Dasselbe gilt für die intensiven Größen. Die Mittelwerte zeigen deutlich Abweichungen zwischen den verschiedenen Zeiträumen, allerdings ist die Streubreite so groß, dass sich die Werte im Rahmen der atmosphärischen Variabilität bewegen. Auch für den Zeitraum von 2000–2003 zeigen die Lidarverhältnisse und die Ångströmexponenten im Vergleich zum Zeitraum 2006–2010, dass der anthropogene Einfluss lokaler Quellen in der PBL bestimmend ist und mit Eintritt in die freie Troposphäre abnimmt und andere Aerosoltypen eine große Streubreite in den intensiven Größen verursachen.

Kapitel 7

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit beschäftigte sich mit der Bestimmung der optischen Eigenschaften von Aerosolpartikeln in der planetaren Grenzschicht und der freien Troposphäre. Die Messungen dazu wurden am Leibniz-Institut für Troposphärenforschung mit dem Ramanlidar MARTHA durchgeführt. Der vorhandene Datensatz von 2006–2008 wurde mit dem in dieser Arbeit bestimmten Datensatz von 2009–2010 erweitert und für eine statistische Analyse der Lidardaten verwendet. Anschließend erfolgte der Vergleich der Messreihen 2000–2003 und 2006–2010.

Zu den untersuchten optischen Aerosoleigenschaften gehörten die extensiven Größen Partikelrückstreuung (355, 532 und 1064 nm) und -extinktionskoeffizient (355 und 532 nm) sowie die intensiven Größen Lidarverhältnis (355 und 532 nm) und die Ångströmxponenten aus der Rückstreuung (355/532 nm und 532/1064 nm) und der Extinktion (355/532 nm). Dabei sind die extensiven Größen von der Anzahl der Aerosolpartikel abhängig, wohingegen die intensiven Größen Auskunft über den Aerosoltyp geben.

Für die Bestimmung des Partikelextinktionskoeffizienten wurden Überlappungsfunktionen benötigt, da der Sendespiegel eine Abschattung im Gesichtsfeld des Empfangsteleskops verursacht und die Abbildung auf das Teleskop im Nahfeldbereich unscharf wird. Dazu wurden im Messzeitraum von 2009–2010 sieben Überlappungsfunktionen aus vier Messungen bei den Wellenlängen 355 und 532 nm erstellt. Bei den Messungen handelt es sich um die Tage des 12.01.2009, 07.12.2009, 17.06.2010 (nur für 532 nm) und 28.06.2010.

Für die statistische Analyse der Lidardaten wurden für alle oben aufgeführten optischen Aerosoleigenschaften die Mittelwerte jeder einzelnen Messung aus dem Zeitraum 2006–2010 in verschiedenen Höhenbereichen (untere Messhöhe bis Grenzschicht-

oberkante, Grenzschichtoberkante bis 5 km und 5 bis 10 km) berechnet und anschließend diese Schicht-Mittelwerte über alle Messungen gemittelt. Für die Auswertung standen insgesamt 78 Mehrwellenlängenmessungen zur Verfügung und 285 Messungen für den Partikelrückstreuoeffizienten bei der Wellenlänge 532 nm. Die Partikelrückstreuprofile bei 532 nm dienten aufgrund der hohen Anzahl der Messwerte und der somit repräsentativeren Statistik zur Bestimmung der mittleren Höhe der PBL. Die mittlere PBL-Höhe für den Gesamtzeitraum 2006–2010 über Leipzig beträgt 1792 ± 715 m. Untersuchungen der mittleren PBL-Höhen bezüglich der Jahreszeiten Frühling (1863 ± 642 m), Sommer (2161 ± 530 m), Herbst (1566 ± 792 m) und Winter (1051 ± 449 m) ergaben, dass die mittleren Grenzschichthöhen im Frühling, Sommer und Herbst deutlich höher lagen als im Winter. Verantwortlich dafür ist die größere Intensität der Einstrahlung der Sonne im Frühling, Sommer und Herbst. Des Weiteren zeigte sich, dass die Mittelwerte der PBL-Höhen der jeweiligen Jahre im Sommer sehr ähnlich waren und die im Frühling und Herbst stärker variierten. Dies ist vor allem auf die Großwetterlage zurückzuführen. Während die Sommer der letzten Jahre vermutlich verstärkt unter Hochdruckeinfluss standen, zeigten die PBL-Höhen im Frühling und Herbst eine starke atmosphärische Variabilität, die vor allem durch Frontensysteme verursacht wird. Über die Mittelwerte der PBL-Höhen im Winter können aufgrund der geringen Messungen keine repräsentativen Aussagen getroffen werden.

Die extensiven Größen zeigten, dass die Konzentration der Aerosolpartikel in der freien Troposphäre sehr stark abnahm. Dementsprechend lagen die Mittelwerte in der freien Troposphäre unterhalb von 5 km bei 10% und oberhalb von 5 km bei 2% im Gegensatz zu den Mittelwerten der PBL. Die intensive Größe Ångströmxponent mit Mittelwerten bei 1.0–1.4 in der PBL wies typische Eigenschaften anthropogener Aerosolpartikel aus urbanen Gebieten auf und zeigte für die freie Troposphäre eine große Vielfalt verschiedener Aerosoltypen. Aufgrund der hohen Streubreite der Ångströmxponenten in der FT im Vergleich zur PBL waren keine bestimmten Aerosoltypen dominant. Für die freie Troposphäre lagen die Mittelwerte der Ångströmxponenten bei 1.2–1.5. Die Mittelwerte der Lidarverhältnisse bei der Wellenlänge 532 nm waren in allen drei Höhenbereichen etwas größer als die Lidarverhältnisse bei 355 nm. Die große Streubreite der Lidarverhältnisse deutet jedoch darauf hin, dass der Einfluss von Biomassenverbrennungen ausgeschlossen werden kann. Des Weiteren zeigte die breite Streuung der Lidarverhältnisse in der FT, wie im Fall der Ångströmxponenten, dass kein Aerosoltyp maßgebend war.

Der Vergleich der Messreihen aus dem Zeitraum 2000–2003 und 2006–2010 zeigte, dass die PBL-Höhe im Zeitraum 2000–2003 im Sommerhalbjahr (April–September) etwa 360 m höher lag und im Winterhalbjahr (Oktober–März) etwa 120 m niedriger als im Zeitraum 2006–2010. Die Mittelwerte der optischen Aerosoleigenschaften beider Zeiträume, abgesehen von den Partikelextinktionskoeffizienten in der PBL, wiesen größtenteils ähnliche Werte auf. Die hohen Streuungen in den Messwerten, u.a. bei den Partikelextinktionskoeffizienten, zeigten, dass die optischen Aerosoleigenschaften im Rahmen der atmosphärischen Variabilität unverändert blieben. Des Weiteren war in beiden Zeiträumen der Einfluss anthropogener Aerosolpartikel aus lokalen Quellen in der planetaren Grenzschicht und der Einfluss verschiedenster Aerosoltypen, welche in Mitteleuropa beobachtet werden, in der freien Troposphäre sichtbar.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden drei Fälle von Aerosoltransport aus Osteuropa, insbesondere Biomassenverbrennung, untersucht. Dabei handelte es sich um die Nachtmessungen vom 22.08.2002, 08.05.2006 und 06.04.2009. In allen drei Fällen lag Leipzig unter Hochdruckeinfluss (östliche Anströmung). Neben den optischen Aerosoleigenschaften dienten das Aerosol-Modell NAAPS und In-situ-Messungen von physikochemischen Eigenschaften der Forschungsstation Melpitz zur Bestimmung des Aerosoltyps. Für die Identifizierung der Aerosolquellen wurden die Rückwärtssimulationen mit FLEXPART und HYSPLIT sowie die mit MODIS aufgenommene Verteilung und Häufigkeit der Brände genutzt.

Alle drei Fälle von Aerosoltransport aus Osteuropa zeigten typische Merkmale von Biomassenverbrennungen für die abgehobenen Aerosolschichten im Lidarverhältnis (Lidarverhältnis bei der Wellenlänge 532 nm ist größer als bei der Wellenlänge 355 nm) [Müller *et al.*, 2005]. Für die Messung vom 22.08.2002 wurden in den oberen Aerosolschichten (3.5–4 km, 4–4.5 km) hohe Lidarverhältnisse (71–75 sr) und niedrige Ångströmexponenten (0.9–1.2) beobachtet. Die Kombination der intensiven Größen spricht dafür, dass es sich um große und stark absorbierende Aerosolpartikel handelt. Weiterhin zeigte die Rückwärtssimulation mit FLEXPART und die mit MODIS aufgenommene Brandverteilung, dass sich die Aerosolschichten größtenteils in Ländern mit vielen Ackerflächen aufhielten (Ukraine, Weißrussland und südliches europäisches Russland). Dahingehend wurde für die Messung vom 08.05.2006 festgestellt, dass die Aerosolpartikel in der abgehobenen Schicht größtenteils in Gebieten mit vielen Wäldern verweilen (nördliches europäisches Russland und Weißrussland). Dies äußerte sich in niedrigeren Lidarverhältnissen (60–66 sr) und höheren Ångströmexponenten (1.1–1.4). Die beobachteten Aerosolschichten vom 06.04.2009 hielten sich ebenfalls wie die Aero-

solschichten vom 22.08.2002 in Ländern mit vielen Ackerflächen auf, wo ein verstärktes Abbrennen von Feldern stattfand. Jedoch wurden hier in den höheren Aerosolschichten kleinere Lidarverhältnisse als am 22.08.2002 beobachtet. Des Weiteren variierten die Ångströmxponenten so stark, dass keine eindeutige Zuordnung des Aerosoltyps möglich war.

Anhand der drei ausgewählten Fälle wurde deutlich, dass die Aerosolpartikel aus Biomassenverbrennungen sehr unterschiedliche optische Aerosoleigenschaften aufweisen können. Dies wird vermutlich durch die unterschiedlichen Brandtypen verursacht.

Aus Studien verschiedenster langjähriger Messreihen mit unterschiedlichsten Ansätzen in der Datenauswertung geht hervor, dass die Wahrscheinlichkeit jährlich Aerosolpartikel aus Biomassenverbrennungen aus Osteuropa über Leipzig nachweisen zu können sehr hoch ist. Die aktuelle Wetterlage spielt dabei eine entscheidende Rolle. Nach Aussage von *Preißler* [2008] wurden abgehobene Aerosolschichten in der freien Troposphäre am häufigsten im Frühling und Sommer beobachtet, weil hier die Luftmassen größtenteils aus Osteuropa kamen. Auch *Meißner* [2009] konnte zeigen, dass die größten Verschmutzungen (hohe AOD bei 500 nm) im Mittel im März/April sowie im August gemessen wurden. Ebenso zeigten die Ångströmxponenten und die AOD einen gegenläufigen Trend, der auf Biomassenverbrennung hindeuten könnte. *Barnaba et al.* [2011] fanden ähnliche Maxima und Minima in den monatlich und regional gemittelten Waldbränden sowie in den optischen Dicken im Fein-Mode.

Es wird deutlich, dass keine genauen Aussagen darüber getroffen werden können, wann Aerosolschichten mit Partikeln aus Biomassenverbrennungen aus Osteuropa in Leipzig auftreten. Sicher jedoch ist, dass solche Biomassenverbrennungs-Ereignisse im Frühling und Sommer beobachtet werden. Für präzisere Kenntnisse der Auftrittswahrscheinlichkeit der Biomassenverbrennungs-Ereignisse aus Osteuropa bedarf es jedoch noch weiterer Studien.

Literaturverzeichnis

- AERONET-Homepage (2011), AErosol RObotic NETwork (AERONET), <http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>, 15.03.2011.
- Andreae, M. O. und P. Merlet (2001), Emission of trace gases and aerosols from biomass burning, *Global Biogeochemical Cycles*, *15*(4), 955–966.
- Ångström, A. (1964), The parameters of atmospheric turbidity, *Tellus*, *16*, 64–75.
- Ansmann, A. und D. Müller (2005), Lidar and atmospheric aerosol particles, in *Lidar: Range-Resolved Optical Remote Sensing of the Atmosphere*, editiert von C. Weitkamp, Seiten 105–141, Springer, New York.
- Ansmann, A., I. Mattis, U. Wandinger, F. Wagner, J. Reichardt und T. Deshler (1997), Evolution of the Pinatubo aerosol: Raman lidar observations of particle optical depth, effective radius, mass and surface area over Central Europe at 53.4° N, *J. Atmos. Sci.*, *54*, 2630–2641, doi:10.1175/1520-0469.
- Ansmann, A., I. Mattis, H. Jäger und U. Wandinger (1998), Stratospheric aerosol monitoring with lidar: conventional backscatter versus Raman lidar observations of Pinatubo aerosol, *Contr. Atmos. Phys.*, *71*, 213–222.
- Ansmann, A., F. Wagner, D. Müller, D. Althausen, A. Herber, W. v. Hoyningen-Huene und U. Wandinger (2002), European pollution outbreaks during ACE 2: Optical particle properties inferred from multiwavelength lidar and star-Sun photometry, *J. Geophys. Res.*, *107*, 4259, doi:10.1029/2001JD001109.
- Barnaba, F., F. Angelini, G. Curci und G. P. Gobbi (2011), An important fingerprint of wildfires on the European aerosol load, *Atmospheric Chemistry & Physics Discussions*, *11*, 2317–2354, doi:10.5194/acpd-11-2317-2011.
-

- Birmili, W., K. Schepanski, A. Ansmann, G. Spindler, I. Tegen, B. Wehner, A. Nowak, E. Reimer, I. Mattis, K. Müller, E. Brüggemann, T. Gnauk, H. Herrmann, A. Wiedensohler, D. Althausen, A. Schladitz, T. Tuch und G. Löschau (2008), A case of extreme particulate matter concentrations over Central Europe caused by dust emitted over the southern Ukraine, *Atmos. Chem. Phys.*, *8*, 997–1016, doi: 10.5194/acp-8-997-2008.
- Damoah, R., N. Spichtinger, C. Forster, P. James, I. Mattis, U. Wandinger, S. Beirle, T. Wagner und A. Stohl (2004), Around the world in 17 days - hemispheric-scale transport of forest fire smoke from Russia in May 2003, *Atmos. Chem. Phys.*, *4*, 1311-1321, doi:10.5194/acp-4-1311-2004.
- Draxler, R. und G. Rolph (2011), HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY Website (<http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>), NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD.
- EARLINET-Homepage (2011), A European Aerosol Research Lidar Network to establish an aerosol climatology: EARLINET, http://www.earlinet.org/index.php?id=earlinet_homepage, 28.04.2011.
- FAO (2009), *Forest fires and the law – A guide for national drafters based on the Fire Management Voluntary Guidelines*, ISBN: 978-92-5-106151-0, 175 Seiten, FAO LEGISLATIVE STUDY 2009, Rome, Italy.
- FIRMS-Homepage (2011), Fire Information for Resource Management System (FIRMS), <http://firefly.geog.umd.edu:8080/firemap/>.
- Hansen, J. und L. Travis (1974), Light scattering in planetary atmospheres, *Space Science Reviews*, *16*, 527–610, doi:10.1007/BF00168069.
- Heintzenberg, J. (2008a), Atmosphärische Aerosole: Aerosolquellen, Vorlesung.
- Heintzenberg, J. (2008b), Atmosphärische Aerosole: Senken des atmosphärischen Aerosols, Vorlesung.
- Heintzenberg, J. und R. M. Welch (1982), Retrieval of aerosol size distribution from angular scattering functions: effects of particle composition and shape, *Appl. Opt.*, *21*, 822–830, doi:10.1364/AO.21.000822.
-

- Jäger, H. (2005), Long-term record of lidar observations of the stratospheric aerosol layer at Garmisch-Partenkirchen, *J. Geophys. Res.*, 110(D08106), doi:10.1029/2004JD005506.
- Koppmann, R., K. von Czapiewski und J. S. Reid (2005), A review of biomass burning emissions, part I: gaseous emissions of carbon monoxide, methane, volatile organic compounds, and nitrogen containing compounds, *Atmospheric Chemistry & Physics Discussions*, 5, 10455–10516, doi:10.5194/acpd-5-10455-2005.
- Korontzi, S., J. McCarty, T. Loboda, S. Kumar und C. Justice (2006), Global distribution of agricultural fires in croplands from 3 years of Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) data, *Global Biogeochemical Cycles*, 20(GB2021), doi:10.1029/2005GB002529.
- Kraus, W. (2004), *Die Atmosphäre der Erde: Eine Einführung in die Meteorologie*, 422 Seiten, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York.
- Mattis, I., A. Ansmann, U. Wandinger und D. Müller (2003a), Unexpectedly high aerosol load in the free troposphere over central Europe in spring/summer 2003, *Geophys. Res. Lett.*, 30(22), 2178, doi:10.1029/2003GL018442.
- Mattis, I., D. Müller, U. Wandinger und A. Ansmann (2003b), Statistical analysis of extinction and lidar ratio profiles observed with Raman lidar over Leipzig, Germany, in *First EARLINET symposium on the structure and use of the data base derived from systematic lidar observations*, Max-Planck-Institut für Meteorologie, Bundesstraße 55, Geomatikum, D-20146 Hamburg.
- Mattis, I., A. Ansmann, D. Müller, U. Wandinger und D. Althausen (2004a), Multiyear aerosol observations with dual-wavelength Raman lidar in the framework of EARLINET, *J. Geophys. Res.*, 109(D13203), doi:10.1029/2004JD004600.
- Mattis, I., D. Müller, A. Ansmann, U. Wandinger, T. Murayama und R. Damoah (2004b), Siberian forest-fire smoke observed over central Europe in spring/summer 2003 in the framework of EARLINET, in *Proceedings of the 22nd International Laser Radar Conference (ILRC 2004)*, Matera, Italy, editiert von G. Pappalardo, A. Amodeo und B. Warmbein, Seiten 857–860, ESA Publications Division, ESTEC, Noordwijk, The Netherlands.
-

- Mattis, I., D. Müller, A. Ansmann, U. Wandinger, J. Preißler, P. Seifert und M. Tesche (2008), Ten years of multiwavelength Raman lidar observations of free-tropospheric aerosol layers over central Europe: Geometrical properties and annual cycle, *J. Geophys. Res.*, 113(D20202), doi:10.1029/2007JD009636.
- Meißner, K. (2009), Optische Eigenschaften des atmosphärischen Aerosols im sichtbaren Spektralbereich über einem zentraleuropäischen Standort: AERONET Photometermessungen von 2001–08, Diplomarbeit, Technische Universität Dresden, 91 Seiten.
- Möller, D. (2003), *Luft: Chemie Physik Biologie Reinhaltung Recht*, 750 Seiten, Walter de Gruyter & Co.KG Berlin, New York.
- Mollicone, D., H. D. Eva und F. Achard (2006), Ecology: Human role in Russian wild fires, *Nature*, 440, 436–437, doi:10.1038/440436a.
- Müller, D., I. Mattis, U. Wandinger, A. Ansmann, D. Althausen und A. Stohl (2005), Raman lidar observations of aged Siberian and Canadian forest-fire smoke in the free troposphere over Germany in 2003: Microphysical particle characterization, *J. Geophys. Res.*, 110(D17201), doi:10.1029/2004JD005756.
- Müller, D., A. Ansmann, I. Mattis, M. Tesche, U. Wandinger, D. Althausen und G. Pisani (2007a), Aerosol-type-dependent lidar ratios observed with Raman lidar, *J. Geophys. Res.*, 112(D16202), doi:10.1029/2006JD008292.
- Müller, D., I. Mattis, A. Ansmann, U. Wandinger und D. Althausen (2007b), Raman lidar for monitoring of aerosol pollution in the free troposphere, in *Advanced Environmental Monitoring*, editiert von Y.-J. Kim und U. Platt, Seiten 155–166, Springer.
- NAAPS-Homepage (2011), Global Aerosol Modell NAAPS (Navy Aerosol Analysis and Prediction System), http://www.nrlmry.navy.mil/aerosol_web/Docs/globaer_model.html, 01.04.2011.
- Nickovic, S., G. Kallos, A. Papadopoulos und O. Kakaliagou (2001), A model for prediction of desert dust cycle in the atmosphere, *J. Geophys. Res.*, 106, 18113–18130, doi:10.1029/2000JD900794.
- Pappalardo, G., A. Amodeo, M. Pandolfi, U. Wandinger, A. Ansmann, J. Bösenberg, V. Matthias, V. Amiridis, F. de Tomasi, M. Frioud, M. Iarlori, L. Komguem,
-

- A. Papayannis, F. Rocadenbosch und X. Wang (2004), Aerosol Lidar Intercomparison in the Framework of the EARLINET Project. 3. Raman Lidar Algorithm for Aerosol Extinction, Backscatter, and Lidar Ratio, *Appl. Opt.*, *43*, 5370–5385, doi: 10.1364/AO.43.005370.
- Pappalardo, G., U. Wandinger, L. Mona, A. Hiebsch, I. Mattis, A. Amodeo, A. Ansmann, P. Seifert, H. Linné, A. Apituley, L. Alados Arboledas, D. Balis, A. Chaikovsky, G. D’Amico, F. De Tomasi, V. Freudenthaler, E. Giannakaki, A. Giunta, I. Grigorov, M. Iarlori, F. Madonna, R.-E. Mamouri, L. Nasti, A. Papayannis, A. Pietruczuk, M. Pujadas, V. Rizi, F. Rocadenbosch, F. Russo, F. Schnell, N. Spinelli, X. Wang und M. Wiegner (2010), EARLINET correlative measurements for CALIPSO: First intercomparison results, *J. Geophys. Res.*, *115*, D00H19, doi:10.1029/2009JD012147.
- Preißler, J. (2008), Geometrische und optische Eigenschaften von Aerosolschichten aus verschiedenen Quellregionen Europas, Diplomarbeit, Universität Leipzig, 94 Seiten.
- Reid, J. S., T. F. Eck, S. A. Christopher, R. Koppmann, O. Dubovik, D. P. Eleuterio, B. N. Holben, E. A. Reid und J. Zhang (2005a), A review of biomass burning emissions part III: intensive optical properties of biomass burning particles, *Atmos. Chem. Phys.*, *5*, 827–849, doi:10.5194/acp-5-827-2005.
- Reid, J. S., R. Koppmann, T. F. Eck und D. P. Eleuterio (2005b), A review of biomass burning emissions part II: intensive physical properties of biomass burning particles, *Atmos. Chem. Phys.*, *5*, 799–825, doi:10.5194/acp-5-799-2005.
- Rödel, W. (2000), *Physik unserer Welt: Die Atmosphäre*, 498 Seiten, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York.
- Rolph, G. (2011), Real-time Environmental Applications and Display sYstem (READY) , <http://ready.arl.noaa.gov>, NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD.
- Schönwiese, C. D. (2006), *Praktische Statistik für Meteorologen und Geowissenschaftler*, 302 Seiten, Borntraeger, Berlin, Stuttgart.
- Sciare, J., K. Oikonomou, O. Favez, E. Liakakou, Z. Markaki, H. Cachier und N. Mihalopoulos (2008), Long-term measurements of carbonaceous aerosols in the Eastern Mediterranean: evidence of long-range transport of biomass burning, *Atmos. Chem. Phys.*, *8*, 5551–5563.
-

- Seinfeld, J. H. und S. N. Pandis (2006), *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*, 2nd Ed., 1203 Seiten, John Wiley & Sons, Inc., Hoboken, New Jersey.
- Spindler, G., E. Brüggemann, T. Gnauk, A. Grüner, K. Müller und H. Herrmann (2010), A four-year size-segregated characterization study of particles PM₁₀, PM_{2.5} and PM₁ depending on air mass origin at Melpitz, *Atmospheric Environment*, *44*, 164–173.
- Stohl, A. und D. Thomson (1999), A density correction for Lagrangian particle dispersion models, *Boundary-Layer Meteorol.*, *90*, 155–167.
- Stohl, A., M. Hittenberger und G. Wotawa (1998), Validation of the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART against large scale tracer experiment data, *Atmos. Env.*, *32*, 4245–4264.
- Strohm, H. (1984), *Meteorologie, Über die Welt*, 3, 355 Seiten, Oldenbourg Akademie-verlag, 01.12.1984.
- Stull, R. B. (1988), *An Introduction to Boundary Layer Meteorology*, 1st Ed., 666 Seiten, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht/Boston/London.
- Wallenhauer, S. (1998), Bestimmung spektraler Streukoeffizienten des atmosphärischen Aerosols aus Lidarmessungen, Diplomarbeit, Universität Leipzig, 52 Seiten.
- Wandinger, U. (2005), Introduction to Lidar, in *Lidar: Range-Resolved Optical Remote Sensing of the Atmosphere*, editiert von C. Weitkamp, Seiten 1–18, Springer, New-York.
- Wandinger, U. und A. Ansmann (2002), Experimental determination of the lidar overlap profile with Raman lidar, *Appl. Opt.*, *41*, 511–514, doi:10.1364/AO.41.000511.
- Wandinger, U., D. Müller, C. Böckmann, D. Althausen, V. Matthias, J. Bösenberg, V. Weiß, M. Fiebig, M. Wendisch, A. Stohl und A. Ansmann (2002), Optical and microphysical characterization of biomass-burning and industrial-pollution aerosols from multiwavelength lidar and aircraft measurements, *J. Geophys. Res.*, *107*, 8125, doi:10.1029/2000JD000202.
-

-
- Wandinger, U., I. Mattis, M. Tesche, A. Ansmann, J. Bösenberg, A. Chaikovsky, V. Freudenthaler, L. Komguem, H. Linné, V. Matthias, J. Pelon, L. Sauvage, P. Sobolewski, G. Vaughan und M. Wiegner (2004), Air-mass modification over Europe: EARLINET aerosol observations from Wales to Belarus, *J. Geophys. Res.*, *109*(D24205), doi:10.1029/2004JD005142.
- Wang, Z. und K. Sassen (2002), Cirrus cloud microphysical property retrieval using lidar and radar measurements. Part II: Midlatitude cirrus microphysical and radiative properties , *J. Aerosol Sci.*, *59*, 2291–2302.
- Wiedensohler, A. (2007), Atmosphärische Aerosole: Aerosol Transport und Dynamik, Vorlesung.
-

Abbildungsverzeichnis

2.1	Umwandlungsprozesse in der Troposphäre	8
2.2	Typische Grenzschichtentwicklung im Laufe eines Tages, aus <i>Stull</i> [1988].	13
3.1	Schematische Darstellung des Raman-Lidars MARTHA	18
4.1	Quicklook 12.01.2009, 16:52-18:03 UTC und 19.10.2009, 17:19-19:12 UTC	27
4.2	Variation der Überlappungsfunktion für verschiedene Lidarverhältnisse	29
4.3	Überlappungsprofil und zugehörige Ableitung für den 12.01.2009, 16:52- 18:03 UTC	30
4.4	Extinktionsprofil mit und ohne Überlappungsprofil	31
4.5	Schematische Darstellung der Auswertung der optischen Eigenschaften.	33
4.6	Einfluss der Glättungslänge auf Extinktionskoeffizienten	35
4.7	Einfluss des Referenzwerts auf den 06.04.2009 und 12.01.2009	37
4.8	Einfluss der Überlappungsfunktion auf Extinktionskoeffizienten, Lidar- verhältnis und Ångströmxponenten	39
4.9	Variabilität der Partikelückstreu- und -extinktionskoeffizienten	41
5.1	Quicklooks: 22.08.2002, 19:50-20:44 UTC; 08.05.2006, 19:58-21:08 UTC und 06.04.2009, 20:39-21:34 UTC	46
5.2	DWD-Boden-Analysekarte für 12:00 UTC am 08.05.2006 und am 06.04.2009	47
5.3	PM ₁₀ -Partikelkonzentration für den Zeitraum 2004–2008 (Sommerhalb- jahr) bei West- und Ostanströmung sowie für den 08.05.2006 und 06.04.2009	49
5.4	Partikelrückstreu- und -extinktionskoeffizient, Lidarverhältnis, Ångströmxponenten aus Rückstreuung und Extinktion für den 22.08.2002, 19:50-20:44 UTC	51

5.5	Rückwärtssimulation mit FLEXPART für den 22.08.2002, 19:50-20:44 UTC	53
5.6	MODIS, 13.08.–22.08.2002	54
5.7	NAAPS, 23.08.2002, 00:00 UTC	56
5.8	Partikelrückstreu- und -extinktionskoeffizient, Lidarverhältnis, Ångströmexponenten aus Rückstreuung und Extinktion für den 08.05.2006, 19:58-21:08 UTC	57
5.9	Rückwärtssimulation mit FLEXPART für den 08.05.2006, 19:58-21:08 UTC	59
5.10	MODIS, 02.05.–08.05.2006	60
5.11	NAAPS, 09.05.2006, 00:00 UTC	61
5.12	PM ₁₀ -Partikelkonzentrationen für den 01.05–20.05.2006 in Melpitz . . .	63
5.13	Partikelrückstreu- und -extinktionskoeffizient, Lidarverhältnis, Ångströmexponenten aus Rückstreuung und Extinktion für den 06.04.2009, 20:39-21:34 UTC	64
5.14	Rückwärtssimulation mit HYSPLIT für den 06.04.2009, 21:00 UTC . .	66
5.15	MODIS, 31.03.–06.04.2006	67
5.16	Rückwärtssimulation mit FLEXPART für den 06.04.2009, 20:39-21:34 UTC	68
5.17	DREAM, 07.04.2009, 00:00 UTC	69
5.18	NAAPS, 07.04.2009, 00:00 UTC	70
5.19	PM ₁₀ -Partikelkonzentrationen für den 01.04.–20.04.2009 in Melpitz . .	72
6.1	Mittelwerte, Standardabweichung und Anzahl der zur Verfügung stehenden Profile für Mai 2006 bis Juli 2010	79
6.2	PBL-Höhen aus dem Gesamtzeitraum 2006–2010 (schwarz) und mittlere PBL-Höhen der einzelnen Jahre für Frühling (grün), Sommer (gelb), Herbst (rot) und Winter (blau).	80

Tabellenverzeichnis

4.1	Einfluss des Referenzwerts auf Fall mit verschmutzter (06.04.2009) und sauberer Atmosphäre (12.01.2009)	38
4.2	Einfluss der Überlappungsfunktion in der PBL am Beispiel vom 06.04.2009	40
5.1	PM ₁₀ -Partikelkonzentrationen für den Zeitraum 2004–2008 (Sommerhalbjahr) bei West- und Ostanströmung sowie für den 08.05.2006 und 06.04.2009	48
5.2	Mittelwerte und Standardabweichungen der optischen Aerosoleigenschaften für den 22.08.2002, 19:50-20:44 UTC	52
5.3	Mittelwerte und Standardabweichungen der optischen Aerosoleigenschaften für den 08.05.2006, 19:58-21:08 UTC	58
5.4	Mittelwerte und Standardabweichungen der optischen Aerosoleigenschaften für den 06.04.2009, 20:39-21:34 UTC	65
6.1	Mittelwerte und Standardabweichungen der optischen Aerosoleigenschaften sowie Anzahl der Messungen für den Zeitraum Mai 2006 bis Juli 2010	78
6.2	Mittlere PBL-Höhe aus dem Gesamtzeitraum 2006–2010 und den einzelnen Jahren für Frühling, Sommer, Herbst und Winter sowie die entsprechenden Standardabweichungen.	81
6.3	Mittelwerte und Standardabweichungen der optischen Aerosoleigenschaften für den Zeitraum Mai 2000 bis März 2003	83

Selbstständigkeitserklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig angefertigt, nicht anderweitig zu Prüfungszwecken vorgelegt und keine anderen als die angegebenen Hilfsmittel oder Quellen verwendet habe. Sämtliche wesentlich verwendete Zitate oder Inhalte anderer Verfasser wurden ausdrücklich als solche gekennzeichnet.

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

Anja Müller

Leipzig, den 30. Juni 2011

Danksagung

Ich danke Herrn Dr. habil. Albert Ansmann und Herrn Prof. Dr. Andreas Macke für die gute Betreuung und Bewertung dieser Arbeit. Auch möchte ich mich recht herzlich für die freundliche Aufnahme in der Lidargruppe bedanken sowie für die vielen interessanten Gespräche und die konstruktiven Verbesserungsvorschläge und Hinweise für meine Diplomarbeit.

Ein besonderer Dank gilt Frau Dr. Ina Mattis, die mir während meiner Diplomarbeit stets sehr hilfreich mit Rat und Tat zur Seite stand und mich in die Welt des wissenschaftlichen Schreibens eingeführt hat. Zudem möchte ich mich bei Frau Dr. Ulla Wandler für ihre sorgfältigen Korrekturen bedanken.

Von ganzem Herzen bedanke ich mich bei meinen Eltern und meinem Freund René Leonhardt, die immer für mich da waren und mich in dieser Zeit auf jegliche Art und Weise unterstützt haben. Vielen lieben Dank auch an mein Herzchen Fanny Finger, die immer ein Ohr für mich offen hatte und meine Arbeit kritisch beliebäugelt hat. All meinen Freunden, die ebenfalls zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben und mir stets dazu Abwechslung boten, möchte ich danken.
