

**Untersuchungen stratosphärischer Aerosole  
vulkanischen Ursprungs und polarer  
stratosphärischer Wolken mit einem  
Mehrwellen-Lidar auf Spitzbergen (79°N, 12°E)**

**Multiwavelength Lidar Measurements  
of Stratospheric Volcanic Aerosols  
and Polar Stratospheric Clouds  
on Spitsbergen (79°N, 12°E)**

---

**Georg Beyerle**

**Ber. Polarforsch. 138 (1994)  
ISSN 0176 - 5027**

Georg Beyerle

Alfred-Wegener-Institut für Polar- und Meeresforschung  
Forschungsstelle Potsdam, Telegraphenberg A43  
D-14473 Potsdam, Bundesrepublik Deutschland

Die vorliegende Arbeit wurde im Dezember 1993 dem Fachbereich 2 (Biologie/Chemie)  
der Universität Bremen als Dissertation vorgelegt.

# Inhaltsverzeichnis

<b>Zusammenfassung</b>	<b>5</b>
<b>Summary</b>	<b>7</b>
<b>Verzeichnis der Variablen</b>	<b>9</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>11</b>
1.1 Vulkanausbrüche im 19. und 20. Jahrhundert . . . . .	12
1.2 Polare stratosphärische Wolken . . . . .	13
1.3 Inhaltsübersicht . . . . .	14
<b>2 Aspekte der Aerosolphysik</b>	<b>15</b>
2.1 Größenspektren . . . . .	15
2.2 Nukleation . . . . .	16
2.2.1 Homogene Nukleation . . . . .	18
2.2.2 Heterogene Nukleation . . . . .	19
2.3 Kondensation und Verdunstung . . . . .	20
2.4 Sedimentation . . . . .	21
2.5 Koagulation . . . . .	22
<b>3 Stratosphärische Aerosole</b>	<b>23</b>
3.1 Hintergrundaerosol . . . . .	24
3.2 Vulkanisches Aerosol . . . . .	25
3.3 Polare stratosphärische Wolken . . . . .	26
3.4 Auswirkungen stratosphärischer Aerosole . . . . .	29
3.4.1 Vulkanisches Aerosol . . . . .	29
3.4.2 Polare stratosphärische Wolken . . . . .	30

<b>4</b>	<b>Dynamische Prozesse in der polaren Stratosphäre</b>	<b>33</b>
4.1	Potentielle Temperatur . . . . .	34
4.2	Potentielle Wirbelstärke . . . . .	35
4.3	Der Polarwirbel . . . . .	35
4.3.1	Entstehung des arktischen Vortex . . . . .	35
4.3.2	Unterschiede zwischen arktischem und antarktischem Vortex . . . . .	36
<b>5</b>	<b>Molekül- und Partikelstreuung</b>	<b>39</b>
5.1	Stokes-Vektoren und Müller-Matrizen . . . . .	39
5.2	Molekülstreuung . . . . .	40
5.2.1	Rayleigh-Streuquerschnitt . . . . .	41
5.2.2	Streu- und Extinktionskoeffizienten . . . . .	42
5.2.3	Linienbreiten . . . . .	42
5.3	Mie-Streuung . . . . .	43
5.3.1	Mie-Streueffizienzen . . . . .	44
5.3.2	Streu- und Extinktionskoeffizienten . . . . .	45
5.3.3	Numerische Berechnung . . . . .	46
<b>6</b>	<b>Lidar-Meßverfahren für Stratosphärenuntersuchungen</b>	<b>47</b>
6.1	Lidar-Gleichung für unpolarisiertes Licht . . . . .	48
6.2	Lidar-Gleichung für polarisiertes Licht . . . . .	50
6.3	Rückstreuverhältnis . . . . .	51
<b>7</b>	<b>Mehrwellenlängen-Aerosol-Lidar</b>	<b>53</b>
7.1	Laserlichtquellen . . . . .	55
7.1.1	Nd:YAG-Laser . . . . .	55
7.1.2	Excimer-Laser . . . . .	57
7.2	Aussendeoptik . . . . .	57
7.3	Teleskop . . . . .	59
7.4	Mehrwellenlängendetektor . . . . .	59
7.5	Datenaufnahmesystem . . . . .	63
7.5.1	Software . . . . .	64
7.5.2	Hardware . . . . .	64

<b>8</b>	<b>Methoden zur Datenauswertung</b>	<b>67</b>
8.1	Rohdatenerfassung und -aufbereitung . . . . .	69
8.1.1	Totzeitkorrektur . . . . .	70
8.1.2	Untergrundkorrektur . . . . .	71
8.1.3	Stokes-Vektor des Rückstreulichts . . . . .	71
8.1.4	Auswertbarer Höhenbereich . . . . .	72
8.2	Volumendepolarisation . . . . .	73
8.3	Klett-Methode zur Berechnung von Rückstreukoeffizienten . . . . .	74
8.3.1	Fehlerberechnung . . . . .	77
8.4	Optische Dicke des stratosphärischen Aerosols . . . . .	79
8.5	Partikelgrößen- und -oberflächenspektren . . . . .	80
8.5.1	Aerosol-Modell . . . . .	80
8.5.2	Bestimmung von Partikelgrößenverteilungen . . . . .	82
8.5.3	Bestimmung von Partikeloberflächen- und -volumenverteilungen . . . . .	84
8.6	Koexistenztemperaturen . . . . .	84
<b>9</b>	<b>Ergebnisse, deren Interpretation und Bewertung</b>	<b>87</b>
9.1	Stratosphärendynamik in den Wintern 1991/92 und 1992/93 . . . . .	88
9.2	Vulkanisches Aerosol . . . . .	89
9.2.1	Sommer 1991 . . . . .	89
9.2.2	Winter 1991/92 . . . . .	90
9.2.3	Sommer 1992 . . . . .	93
9.2.4	Winter 1992/93 . . . . .	94
9.3	Polare stratosphärische Wolken . . . . .	100
9.3.1	Januar 1989 und Januar 1990 . . . . .	100
9.3.2	Januar 1993 . . . . .	101
9.4	Fazit . . . . .	105
<b>10</b>	<b>Vergleich der Ergebnisse mit Resultaten anderer Messungen</b>	<b>107</b>
10.1	Optische Dicke . . . . .	107
10.2	Aerosol-Rückstreuprofile mehrerer Lidar-Stationen . . . . .	110
<b>A</b>	<b>Verzeichnis der Aerosol-Lidar-Meßtage</b>	<b>115</b>

<b>B Fehlerberechnung im Klett-Verfahren</b>	<b>119</b>
<b>C Herleitung der Depolarisationsgleichungen</b>	<b>121</b>
<b>Literatur</b>	<b>123</b>

# Zusammenfassung

In den Wintern 1991/92 und 1992/93 sind mit einem Mehrwellenlängen-Lidar Untersuchungen stratosphärischer Aerosole in Ny-Ålesund auf Spitzbergen (79°N, 11°O) durchgeführt worden. Während dieser zwei Meßkampagnen sind Höhenprofile des Rückstreuverhältnisses bei den Wellenlängen 353 und 532 nm (1991/92) bzw. 353, 532 und 1064 nm (1992/93) und der Volumendepolarisation bei 532 nm bestimmt worden. Das Aerosol-Lidar-System ist im Rahmen der vorliegenden Arbeit durch Erweiterung und Umbau eines Ozon-DIAL-Lidars entstanden, das seit 1988 vom Alfred-Wegener-Institut in Zusammenarbeit mit dem Institut für Umweltphysik der Universität Bremen in Ny-Ålesund betrieben wird.

Der Aerosolhaushalt der arktischen Stratosphäre ist im Meßzeitraum dominiert von vulkanischen Schwefelsäureaerosolen, die als Folge des Ausbruchs des philippinischen Vulkans Mt. Pinatubo (15°N, 120°O) im Juni 1991 entstanden sind. Der Nachweis erster Spuren vulkanischen Aerosols durch Lidar-Beobachtungen in Ny-Ålesund am 11. August 1991, weniger als acht Wochen nach dem Ausbruch des Vulkans, in Höhen um 14 km zeigt, daß in der unteren Stratosphäre schnelle meridionale Transportprozesse wirksam sind. Zwischen November 1991 und Mitte März 1992 verhindert der Polarwirbel im Höhenbereich oberhalb von etwa 500 K potentieller Temperatur das Eindringen des vulkanischen Aerosols in polare Breiten. Unterhalb dieser Höhe beginnt sich der Vortex abzuschwächen und es treten Austauschprozesse zwischen aerosolreicher Luft aus mittleren Breiten mit Luftpaketen aus dem inneren Bereich des Wirbels auf. Störungen der polaren Zirkulation Ende Januar und Mitte Februar 1992 führen zu vorübergehenden Einträgen aerosolreicher Luftpakete auch in größeren Höhen. Aber erst nach dem Zusammenbruch der polaren Zirkulation Ende März 1992 werden starke Rückstreusignale oberhalb von 500 K beobachtet. Eine Analyse der zeitlichen Entwicklung der optischen Dicke ab Ende März 1992 liefert eine Abklingzeit des vulkanischen Aerosols von etwa 350 Tagen. Photometer-Messungen bestätigen dieses Resultat.

Die Parametrisierung des Aerosolgrößenspektrums im Winter 1992/93 in Form einer Lognormal-Verteilung liefert Modenradien um  $0,1 \mu\text{m}$  im Höhenbereich zwischen 350 und 400 K. Die Oberflächendichte nimmt im gleichen Höhenbereich von etwa 100 auf etwa  $50 \mu\text{m}^2/\text{cm}^3$  mit zunehmender potentieller Temperatur ab. Die berechneten Modenradien und Oberflächendichten sind mit einem Fehler von bis zu einem Faktor zwei behaftet.

Volumendepolarisationsmessungen zeigen, daß die Schicht maximaler Rückstreuung während der gesamten Meßperiode von sphärischen Partikeln dominiert ist. Im Winter 1991/92 gibt es allerdings Hinweise auf die Existenz vulkanischer Aschepartikel mit Radien von etwa  $0,5 \mu\text{m}$  im unteren Bereich der vulkanischen Aerosolwolke unterhalb von 375 K. Diese stark asphärischen Partikel sind im Winter 1992/93

nicht mehr nachweisbar. Die Aerosol-Lidar-Messungen liefern keine Hinweise auf ein Ausfrieren der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Tröpfchen.

Da der Polarwirbel im Winter 1991/92 von einer großen Stratosphärenenerwärmung Mitte Januar gestört wird und die Stratosphärentemperaturen daher für längere Zeit nicht unter die Koexistenztemperatur von Salpetersäuretrihydrat (NAT) fallen, werden im Winter 1991/92 über Ny-Ålesund bis auf eine unbedeutende Ausnahme keine polaren stratosphärischen Wolken (PSW) beobachtet. Der folgende Winter 1992/93 dagegen ist charakterisiert durch einen stabilen Wirbel. Im Januar 1993 sinken die Temperaturen im Höhenbereich um 480 K über mehrere Wochen unter die NAT-Koexistenztemperatur. Anhand des Rückstreuverhältnisses  $R$  und der Volumendepolarisation  $\delta$  können PSW vom Typ Ia und Typ Ib unterschieden werden, Eiswolken (Typ II) werden nicht beobachtet. Die Analyse von  $R$  und  $\delta$  in Abhängigkeit von der adiabatischen Abkühlungsrate und der Temperatur des beobachteten Luftpakets zeigt, daß PSW vom Typ Ia bei Unterkühlungen von etwa  $-1$  bis  $-2$  K auftreten. Eine derartige Unterkühlung entspricht einer zwei- bis vierfachen Übersättigung von  $\text{HNO}_3$ . PSW vom Typ Ib entstehen bei einer Unterkühlung von ca.  $-3$  K entsprechend einer  $\text{HNO}_3$ -Übersättigung von etwa  $S \approx 9$ . Die beobachteten Übersättigungswerte sind ein Indiz für eine schlechte Kompatibilität zwischen dem  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Nukleationskeim und NAT.



## Summary

Lidar investigations of stratospheric aerosols were performed at Ny-Ålesund, Spitsbergen (79°N, 11°E) during winter 1991/92 and 1992/93. Height profiles of backscatter ratios at wavelengths of 353 and 532 nm (1991/92), and 353, 532 and 1064 nm (1992/93) and of volume depolarizations at 532 nm were determined. The aerosol lidar facility was set up by extending an ozone DIAL lidar at Ny-Ålesund operated jointly by Alfred Wegener Institute and Institute of Environmental Physics (University of Bremen) since 1988.

Throughout the whole measurement period the aerosol content of the Arctic stratosphere is dominated by sulfuric acid aerosols produced by the eruption of the Philippine volcano Mt. Pinatubo (15°N, 120°E) in mid-June 1991. Traces of volcanic aerosols above Spitsbergen observed at altitudes of 14 km on August 11th, 1991 — less than eight weeks after the eruption — indicate the occurrence of fast meridional transport processes in the lower stratosphere. Between November 1991 and mid-March 1992 the polar vortex prevents penetration of volcanic aerosols into the polar stratosphere above the isentropic level of 500 K. Below this altitude the isolating effect of the vortex decreases and exchange processes across the vortex boundary are possible. Distortions of the polar circulation end of January and in mid-February 1992 lead to transient occurrences of volcanic aerosols also at higher altitudes. Not until after the break-up of the polar vortex in March 1992 strong backscatter signals above 500 K are observed. An exponential fit to the temporal development of the aerosol optical density since March 1992 results in an e-folding time of about 350 days. Photometer measurements are in agreement with this result.

A parameterization of the aerosol size spectrum during winter 1992/93 using a lognormal size distribution yields median radii of about 0.1  $\mu\text{m}$  in the altitude range between 350 and 400 K. The surface density decreases in the same altitude region from about 100 to about 50  $\mu\text{m}^2/\text{cm}^3$  with increasing potential temperature. The estimated error of the calculated median radii and surface densities is approximately a factor of two.

Measurements of volume depolarization show that the layer of maximum backscatter ratio is dominated by spherical particles throughout the measurement period. During winter 1991/92 the lidar measurements indicate the occurrence of volcanic ash particles with radii around 0,5  $\mu\text{m}$  in the lower layer of the aerosol cloud below 375 K. In winter 1992/93 these nonspherical particles are no longer present. The lidar observations produce no evidence for the occurrence of frozen sulfuric acid droplets.

In winter 1991/92 the polar vortex is disturbed by a strong stratospheric warming event at the end of January and in mid-February and stratospheric temperatures do

not reach the coexistence temperature of nitric acid trihydrate (NAT). Therefore, polar stratospheric clouds (PSC) are not observed above Spitsbergen during winter 1991/92. The following winter 1992/93 is characterized by a stable polar vortex. During several weeks in January 1993 temperatures drop below the NAT coexistence temperature at altitudes around 480 K. Using backscatter ratio  $R$  and volume depolarization  $\delta$  PSC of type Ia and type Ib are differentiated, water ice clouds (type II) are not observed during the measurement period. An analysis of  $R$  and  $\delta$  as a function of the adiabatic cooling rate and the temperature of the corresponding air parcel indicates that PSW of type Ia occur under cooling rates of about  $-1$  to  $-2$  K. This rate corresponds to a supersaturation with respect to  $\text{HNO}_3$  of two to four. PSC of type Ib form under cooling rates of about  $-3$  K corresponding to a  $\text{HNO}_3$  supersaturation of  $S \approx 9$ . The observed supersaturation indicate reduced compatibility of  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -particle and NAT.

# Verzeichnis der Variablen

$\alpha_{\text{Str}}^{\text{Ray}}$	Rayleigh-Streukoeffizient
$\alpha_{\text{Abs}}^{\text{Mol}}$	Molekülabsorptionskoeffizient
$\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Mol}}$	Molekülextinktionskoeffizient
$\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}$	Partikelextinktionskoeffizient
$\beta^{\text{Ray}}$	Rayleigh-Rückstreukoeffizient
$\beta^{\text{Aer}}$	Partikelrückstreukoeffizient
$c$	Lichtgeschwindigkeit
$c_p$	spezifische Wärme von Luft bei konstantem Druck
$c_v$	spezifische Wärme von Luft bei konstantem Volumen
$D^{\text{Aer}}$	optische Dicke des atmosphärischen Aerosols
$D_s^{\text{Aer}}$	optische Dicke des stratosphärischen Aerosols
$D_t^{\text{Aer}}$	optische Dicke des troposphärischen Aerosols
$\delta$	Volumendepolarisation
$\delta^{\text{Aer}}$	Volumendepolarisation von Partikelstreuung
$\delta^{\text{Ray}}$	Volumendepolarisation von Rayleigh-Streuung
$\epsilon$	Anisotropiefaktor für trockene Luft
$\mathcal{E}(x)$	Fehler von $x$
$F^{\text{Aer}}$	Müller-Matrix für Partikelrückwärtsstreuung
$F^{\text{Ray}}$	Müller-Matrix für Rayleigh-Rückwärtsstreuung
$\Im(x)$	Imaginärteil von $x$
$L^{\text{Aer}}$	Mie-Streuverhältnis
$L^{\text{Ray}}$	Rayleigh-Streuverhältnis
$\lambda$	Wellenlänge; mittlere freie Weglänge
$m$	Brechungsindex; Kompatibilität
$\mathcal{N}^{\text{Mol}}$	Molekülteilchendichte
$\mathcal{N}^{\text{Aer}}$	Partikelteilchendichte
$dN^{\text{Aer}}/dr$	Partikelgrößenverteilung
$O(z)$	Strahlüberlappfunktion
$p$	Druck
$p^s$	Sättigungsdampfdruck
$Q$	Potentielle Wirbelstärke

$Q^{\text{Ext}}$	Mie-Extinktionseffizienz
$Q^{\text{Rck}}$	Mie-Rückstreuungseffizienz
$Q^{\text{Str}}$	Mie-Streuungseffizienz
$\bar{r}$	Modenradius
$R$	Rückstreuverhältnis
$\Re(x)$	Realteil von $x$
$\rho$	Massendichte
$s$	geometrische Standardabweichung
$S$	Übersättigung
$\mathcal{S}(x)$	Standardabweichung von $x$
$\sigma$	Oberflächenspannung
$d\sigma_{\text{Str}}^{\text{Ray}}/d\Omega$	differentieller Rayleigh-Streuquerschnitt
$d\sigma_{\text{Rck}}^{\text{Ray}}/d\Omega$	differentieller Rayleigh-Rückstreuquerschnitt
$\sigma_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}$	Partikelextinktionsquerschnitt
$d\sigma_{\text{Str}}^{\text{Aer}}/d\Omega$	differentieller Partikelstreuquerschnitt
$d\sigma_{\text{Rck}}^{\text{Aer}}/d\Omega$	differentieller Partikelrückstreuquerschnitt
$\theta$	Kontaktwinkel; potentielle Temperatur
$T$	Temperatur; Transmission
$T_{\text{Eis}}$	Koexistenztemperatur von Eis
$T_{\text{NAT}}$	Koexistenztemperatur von NAT
$\Delta T_{\text{NAT Ia}}$	Unterkühlung für die Bildung von PSW Typ Ia
$\Delta T_{\text{NAT Ib}}$	Unterkühlung für die Bildung von PSW Typ Ib
$v^T$	Sedimentationsgeschwindigkeit
$z$	Höhe
$z_T$	Tropopausenhöhe
$X^M$	Massenmischungsverhältnis
$X^V$	Volumenmischungsverhältnis
$Z$	Zählrate
$Z^s$	Signalzählrate
$Z^u$	Untergrundzählrate

# Kapitel 1

## Einleitung

Nach einer zweimonatigen Phase seismischer Aktivität, geologischer Verformungen und kleinerer Ascheeruptionen brach am 15. und 16. Juni 1991 der philippinische Vulkan Mt. Pinatubo im Südwesten der Insel Luzon auf  $15^{\circ}\text{N}$  und  $120^{\circ}\text{O}$  aus. Während eines Zeitraums von über 15 Stunden emittierte der Vulkan festes, flüssiges und gasförmiges Material in einer Reihe gewaltiger Eruptionen. Die Eruptionssäule reichte bis in die mittlere Stratosphäre in Höhen von 35 bis 40 km. Im Verlauf der Ausbrüche wurde ein Teil der Bergspitze von Mt. Pinatubo weggesprengt; es entstand ein Einbruchskessel von etwa 2,5 km Durchmesser. Bis in Entfernungen von mehreren tausend Kilometern ging Vulkanasche nieder. Unter anderem wurde Aschenfall in Südvietnam und im nördlichen Borneo beobachtet [EOS, 1991].

Schlammlawinen und Erdbeben, die durch heftige Regenfälle ausgelöst wurden, verwüsteten die nähere Umgebung des Vulkans. Trotz der Evakuierung von über 200.000 Bewohnern gefährdeter Gebiete durch die philippinischen Behörden kamen mehr als 300 Menschen ums Leben. Neben den Zerstörungen, die der Vulkanausbruch in der unmittelbaren Nachbarschaft verursachte, hatte die Eruption auch Konsequenzen für das globale Klimageschehen. Nach Satellitenbeobachtungen injizierte der Vulkan neben Staub- und Aschepartikeln auch etwa 20 Mt  $\text{SO}_2$  in die Stratosphäre. Das partikuläre Material mit Partikeldurchmessern von mehr als einigen Mikrometern sedimentierte innerhalb weniger Wochen in die Troposphäre und wurde dort ausgewaschen. Aus dem Schwefeldioxid hingegen entstanden mit einer Zeitkonstanten von etwa 3 bis 4 Wochen Schwefelsäureaerosole, die durch zonale und meridionale Transportprozesse während der folgenden Monate in der unteren und mittleren Stratosphäre global verteilt wurden. Die Ausbreitung dieser vulkanischen Aerosole, ihre mikrophysikalische Struktur und die Folgen für den Strahlungshaushalt stellen den ersten Themenkomplex dieser Arbeit dar.

Polare stratosphärische Wolken (PSW) sind die zweite Klasse stratosphärischer Aerosole, die im Rahmen dieser Arbeit untersucht wird. Sie haben im Gegensatz zum vulkanischen Aerosol eine nur geringe Auswirkung auf den Strahlungshaushalt. Die Bedeutung der PSW besteht in ihrem Einfluß auf die heterogene Chemie der polaren Stratosphären.

Vulkan	Ort	Datum	Strat. Aerosol [Mt]	Aschevolumen [km <sup>3</sup> ]
Tambora	8°S, 118°O	April 1815	ca. 200	ca. 150–180
Krakatau	6°S, 105°O	August 1883	ca. 50	ca. 20
Katmai	58°N, 155°W	Juni 1912	< 30	10–30
Agung	8°S, 115°O	März/Mai 1963	10	0,3–0,6
St. Helens	46°N, 122°W	Mai 1980	0,3	3
El Chichón	17°N, 93°W	März/April 1982	10–20	0,5–0,6
Pinatubo	15°N, 120°O	Juni 1991	30	3–5

**Tabelle 1.1:** Vulkanausbrüche der vergangenen 200 Jahre, die globale Klimaveränderungen zur Folge hatten. Die Tabelle enthält Angaben über die Gesamtmenge der vulkanischen Aerosols in der Stratosphäre und über das Gesamtvolumen des emittierten Materials [Deirmendjian, 1973; Rampino *et al.*, 1988; Pinto *et al.*, 1989; Schmincke, 1993]. Die Angaben für die Ausbrüche des 19. Jahrhunderts beruhen auf Abschätzungen.

## 1.1 Vulkanausbrüche im 19. und 20. Jahrhundert

Dem nordamerikanischen Staatsmann, Schriftsteller und Physiker Benjamin Franklin (1706–1790) wird zugeschrieben, als erster den Zusammenhang zwischen Vulkanausbrüchen und Klimaschwankungen erkannt zu haben [z.B. Rampino *et al.*, 1988]. Franklin hatte nach dem Ausbruch des isländischen Vulkans Laki (64°N, 18°W) im Jahre 1783 eine reduzierte Solarstrahlung beobachtet und die Eruption des Vulkans mit dem harten Winter 1783/84 in Europa und dem östlichen Nordamerika in Verbindung gebracht. Der Ausbruch des Laki war allerdings nicht explosiver Natur und führte nur zu einem troposphärischen Materialeintrag. Die klimatischen Auswirkungen blieben daher auf Europa und Nordamerika beschränkt.

Unter den dokumentierten Vulkanausbrüchen der vergangenen 200 Jahre ist die Eruption des Tambora im Jahre 1815 die energiereichste gewesen [Self und Rampino, 1981]. Der Ausbruch förderte etwa 150 bis 180 km<sup>3</sup> Asche und Staub. Infolge der Eruption entstanden etwa 200 Mt vulkanisches Aerosol in der Stratosphäre (vgl. Tab. 1.1). Diese Angaben beruhen auf Abschätzungen und sind daher mit großen Unsicherheiten verbunden. Die Konsequenzen des Ausbruchs waren weltweit zu spüren. Das Jahr 1816 ging als „das Jahr ohne Sommer“ in die Geschichte ein. Ein ungewöhnlich kaltes und trockenes Klima in Nordamerika und Europa verursachte Mißernten mit schwerwiegenden wirtschaftlichen und sozialen Folgen [Stommel und Stommel, 1988].

Die Explosion des Krakatau im Jahr 1883 war eine der ersten Vulkaneruptionen, die von Zeitgenossen wissenschaftlich genauer untersucht wurden. Diese Arbeiten und eine Reihe von Studien in späterer Zeit ergaben, daß im Verlauf des Ausbruchs etwa 20 km<sup>3</sup> Bimsstein und Asche ausgestoßen wurden, die auf einem über 700.000 km<sup>2</sup> großen Gebiet niedergingen. Mehrere Kubikkilometer an Magmen, die nach den explosiven Ausbrüchen in die See flossen, verursachten bis zu 40 m hohe Flutwellen an den benachbarten Küsten. Als Folge der Eruption entstanden etwa 50 Mt vulkanische Aerosole in der Stratosphäre. Diese Aerosolschicht führte in der Nordhemisphäre zu einer Abnahme der Durchschnittstemperaturen um

etwa 0,3 K [Self und Rampino, 1981; Francis und Self, 1988].

Obwohl der Ausbruch des Katmai im Jahre 1912 zu den stärksten Vulkaneruptionen in diesem Jahrhundert gehört und die bei der Eruption freigesetzte Energie mit der des Krakatau vergleichbar ist, existieren keine systematischen Untersuchungen und Analysen. Ein Grund hierfür ist vermutlich, daß der Ausbruch nur geringe globale Auswirkungen hatte [Deirmendjian, 1973].

Bis Ende der sechziger Jahre herrschte die Ansicht vor, klimatische Variationen nach Vulkaneruptionen seien auf die in die Stratosphäre eingetragenen Asche- und Staubpartikel zurückzuführen. Erst die Ausbrüche des Mt. St. Helens im Jahr 1980 und des El Chichón zwei Jahre später lieferten die wissenschaftlichen Beweise, daß nicht diese direkten Emissionsprodukte, sondern Schwefelsäuretröpfchen, die durch Oxidation von  $\text{SO}_2$  — und in geringerem Maße auch  $\text{H}_2\text{S}$  — entstehen, für die beobachteten Klimaschwankungen verantwortlich sind. Beide Eruptionen förderten vergleichsweise geringe Mengen festen und flüssigen Materials. Im Gegensatz zu Mt. St. Helens emittierte El Chichón Gase mit einem hohen Gehalt an Schwefeldioxid. Das  $\text{SO}_2$  wurde innerhalb weniger Wochen zu etwa 10 bis 20 Mt Schwefelsäureaerosol oxidiert. Modellrechnungen sagten für diese Mengen stratosphärischer Aerosole eine Erniedrigung der Durchschnittstemperatur um einige Zehntel Kelvin voraus. Im Jahr 1982 wurden tatsächlich um etwa 0,4 K geringere Durchschnittstemperaturen in der Nordhemisphäre beobachtet [Rampino *et al.*, 1988]. Nach der Eruption des Mt. St. Helens konnten dagegen, abgesehen von lokalen Einflüssen, keine signifikanten Veränderungen des globalen Klimas festgestellt werden.

## 1.2 Polare stratosphärische Wolken

Die Beobachtungen von polaren stratosphärischen Wolken (PSW) reichen bis ins vergangene Jahrhundert zurück. Aufgrund der im Vergleich zur Südhemisphäre höheren Besiedlungsdichte der arktischen Polargebiete stammen diese Berichte in erster Linie aus nordskandinavischen Ländern [Stanford und Davies, 1974]. PSW sind mit bloßem Auge nur unter besonderen Bedingungen zu beobachten. Man hielt sie daher bis vor wenigen Jahren für ein seltenes Phänomen. Die Auswertung von Satellitenbeobachtungen, in denen seit Beginn der achtziger Jahre die Extinktion der Stratosphäre bestimmt wird, zeigten allerdings, daß PSW insbesondere in der Antarktis sehr häufig auftreten [McCormick *et al.*, 1982; McCormick *et al.*, 1993]. Ihr Verbreitungsgebiet ist auf die polaren Stratosphären beschränkt. In der Arktis beobachtet man PSW am häufigsten im Höhenbereich zwischen 20 und 22 km, in der Antarktis zwischen 16 und 18 km. Weitere Analysen der Satellitendaten offenbaren eine deutliche Korrelation zwischen dem Auftreten von PSW und dem Unterschreiten einer Temperatur, die etwa 5–7 K über der Koexistenztemperatur von Eis liegt. Auf der Basis dieser Beobachtungen stellten Crutzen und Arnold [1986] sowie Toon und Mitarbeiter unabhängig voneinander die Hypothese auf, daß unter stratosphärischen Bedingungen neben  $\text{H}_2\text{O}$  auch  $\text{HNO}_3$  ausfriert [Toon *et al.*, 1986]. Laboruntersuchungen bestätigten, daß sich bei Temperaturen von etwa 195 K kristalline oder amorphe Partikel aus Salpetersäurehydrat bilden [Hanson und Mauersberger, 1988]. Der genaue Temperaturwert ist vom  $\text{H}_2\text{O}$ - und  $\text{HNO}_3$ -Partialdruck

abhängig. Sinken die Temperaturen unter die Koexistenztemperatur von Eis, lagert sich auf dem ausgefrorenen Salpetersäurehydrat Eis ab und es entstehen Eiskristalle. Letztere sind in der Arktis ein seltenes Phänomen, da die Durchschnittstemperaturen in den Polargebieten der Nordhemisphäre höher sind als in der Antarktis.

### 1.3 Inhaltsübersicht

Die drei folgenden Kapitel dienen einer kurzen Einführung in die Thematik der stratosphärischen Aerosole. Ich diskutiere zunächst in Kapitel 2 Aspekte der Aerosolphysik, die für die Untersuchung stratosphärischer Aerosole von Bedeutung sind. In Kapitel 3 werden die wichtigsten Klassen des partikulären Materials in der Stratosphäre vorgestellt. Die räumliche und zeitliche Verteilung der Aerosole in der polaren Stratosphäre werden von globalen Transportprozessen beeinflusst. Kapitel 4 ist der Diskussion dynamischer Vorgänge in der polaren Stratosphäre gewidmet.

Kapitel 6 bis 8 beinhalten eine Beschreibung der angewendeten Meßverfahren und Methoden der Datenauswertung. Nach einer allgemeinen Diskussion des Lidar-Meßverfahrens in Kapitel 6 beschreibe ich in Kapitel 7 den Aufbau des Aerosol-Lidars. Mit diesem Instrument sind die in dieser Arbeit dargestellten Messungen durchgeführt worden. Als Vorbereitung für Kapitel 8, das eine Darstellung der Auswertemethoden enthält, wird in Kapitel 5 die Wechselwirkung von Laserlicht mit den Molekülen der Atmosphäre und dem in der Atmosphäre suspendierten partikulären Material kurz beschrieben. In Kapitel 9 und 10 werden die Ergebnisse diskutiert und in einen Zusammenhang mit den Ergebnissen anderer Arbeiten gestellt.



# Kapitel 2

## Aspekte der Aerosolphysik

Nach der genauen Bedeutung des Wortes besteht ein Aerosol oder Aerokolloid aus einem stabilen System von Trägergas und darin suspendierten festen oder flüssigen Partikeln [z.B. Pruppacher und Klett, 1978; Hinds, 1982; Reist, 1984; Seinfeld, 1986; Roedel, 1988]. Handelt es sich bei dem Trägergas um atmosphärische Luft, ist es üblich, die suspendierten Teilchen selbst als Aerosol oder Aerosole zu bezeichnen. Die Verwendung des Singulars impliziert nicht, daß das betrachtete partikuläre Material aus Teilchen identischer Natur besteht. Variabilität in Größe, Form und Zusammensetzung ist ein charakteristisches Merkmal atmosphärischer Aerosole.

In den folgenden Abschnitten werde ich einige Aspekte der Aerosolphysik skizzieren, soweit sie für diese Arbeit von Bedeutung sind. Zunächst werden Verfahren für die Größencharakterisierung von Aerosolen dargestellt. Die anschließende Diskussion beschäftigt sich mit Prozessen, die als Quellen und/oder Senken für stratosphärische Aerosole auftreten.

### 2.1 Größenspektren

Die Größe atmosphärischer Aerosolpartikel variiert über mehr als vier Größenordnungen. Sie reicht von einigen zehn Nanometern bis zu mehreren hundert Mikrometern. Aus thermodynamischen Gründen ist der Bereich, in dem stabile Teilchen auftreten können, zu kleinen Radien hin beschränkt; kontinuumsmechanische Prozesse begrenzen den Größenbereich zu großen Radien hin. Hierauf wird im folgenden noch genauer eingegangen werden.

Die Untersuchungen am stratosphärischen Aerosol Ende der fünfziger Jahre führte Junge und Mitarbeiter dazu, das partikuläre Material in drei Größenklassen einzuteilen [Junge *et al.*, 1961],

- Aitken-Kerne oder Nukleationsteilchen mit Radien kleiner als  $0,1 \mu\text{m}$ ,
- große Teilchen mit Radien zwischen  $0,1$  und  $1 \mu\text{m}$  und
- Riesenteilchen mit Radien größer als  $1 \mu\text{m}$ .

Diese Einteilung ist nicht willkürlich. In Abschnitt 3.1 wird diese Klassifizierung physikalisch begründet.

Für quantitative Aussagen über Oberflächen- oder Massendichten ist die Kenntnis der Teilchenzahl in diesen drei Größenklassen nicht ausreichend. Man benötigt Informationen über das Größenspektrum. Das Partikelgrößenspektrum oder die Partikelgrößenverteilung  $dN^{\text{Aer}}/dr$  ist definiert als die Anzahl der Partikel im infinitesimalen Radiusintervall  $[r, r + dr]$ .  $dN^{\text{Aer}}/dr$  wird in der Regel durch Anpassen von Meßwerten  $\Delta N(r)/\Delta r$  an eine analytische Funktion bestimmt. Ausgeprägte Maxima der Funktion  $dN^{\text{Aer}}/dr$  bezeichnet man als Moden. Ist die Verteilung von einem Maximum dominiert, spricht man von einer monomodalen Verteilung, ein bi- oder trimodales Spektrum besitzt zwei bzw. drei Maxima.

In der Literatur findet sich eine große Zahl unterschiedlicher Verteilungsfunktionen  $dN^{\text{Aer}}/dr$  [z.B. Junge *et al.*, 1961; Pinnick *et al.*, 1976; Pruppacher und Klett, 1978; Thomason, 1991]. Ich erwähne hier nur die Lognormal-Verteilung, da sie für die Beschreibung stratosphärischer Aerosole sehr verbreitet ist und in der vorliegenden Arbeit ausschließlich verwendet wird,

$$\frac{dN^{\text{Aer}}}{dr} = \frac{\mathcal{N}^{\text{Aer}}}{\sqrt{2\pi} r \ln(s)} \exp\left(-\frac{\ln^2(r/\bar{r})}{2 \ln^2(s)}\right). \quad (2.1)$$

$\mathcal{N}^{\text{Aer}}$  ist die Gesamtteilchenzahldichte und  $\bar{r}$  der Modenradius.  $s$  bezeichnet man als die geometrische Standardabweichung, sie ist ein Maß für die Breite der Verteilung.

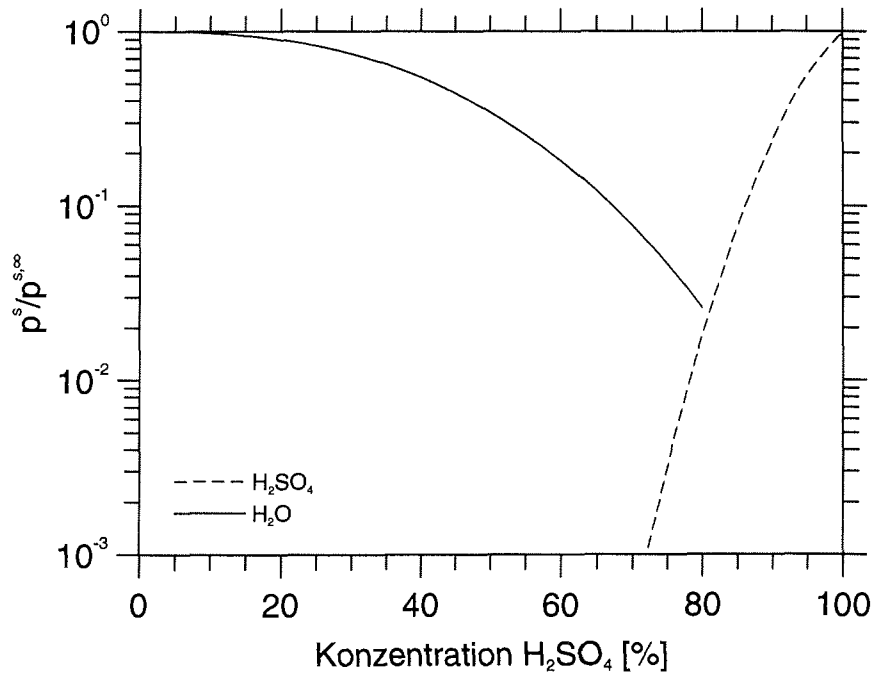
Die verbreitete Anwendung der Lognormal-Verteilung gründet sich nicht darauf, daß sie tatsächliche Größenverteilungen besser als andere Funktionen beschreibt, sondern basiert auf ihrer einfachen mathematischen Handhabbarkeit. Die Funktion ist integrierbar für alle Radien und die  $k$ -ten Momente der Verteilung lassen sich in einer einfachen analytischen Form darstellen [Reist, 1984],

$$\int_0^{\infty} dr r^k \frac{dN^{\text{Aer}}}{dr} = \mathcal{N}^{\text{Aer}} \bar{r}^k \exp\left(\frac{k^2}{2} \ln^2(s)\right). \quad (2.2)$$

Die Form flüssiger Teilchen wird in der Regel in ausreichender Genauigkeit durch Sphären beschrieben. Feste Partikel können amorphe Strukturen oder komplexe Kristallformen entwickeln, die von der Kugelform stark abweichen [Pruppacher und Klett, 1978]. Für die Beschreibung dieser asphärischen Teilchen führt man Äquivalentradien ein, die sich von Sphären gleicher Volumina, gleicher Massen oder gleichen aerodynamischen oder optischen Verhaltens ableiten.

## 2.2 Nukleation

Die Entstehung eines Aerosolpartikels aus der Gasphase bezeichnet man als Nukleation. Eine Voraussetzung für das Einsetzen der Nukleation ist das Vorhandensein einer Übersättigung, d.h. der Partialdruck des betreffenden Gases muß größer als der Sättigungsdampfdruck sein. Sind verschiedene Moleküle am Nukleationsprozeß



**Abbildung 2.1:** Die relativen Sättigungsdampfdrücke  $p^s/p^{s,\infty}$  von  $\text{H}_2\text{SO}_4$  (99%) und  $\text{H}_2\text{O}$  über einer Schwefelsäurelösung als Funktion der Konzentration für eine Temperatur von 296 K.  $p^{s,\infty}$  ist der Sättigungsdampfdruck, der sich über reinem  $\text{H}_2\text{O}$  bzw. 99 prozentiger  $\text{H}_2\text{SO}_4$  einstellt,  $p^s$  bezeichnet den Druck, der sich über der Mischung einstellt.  $p^{s,\infty}$  beträgt bei 296 K für  $\text{H}_2\text{O}$  etwa 28,4 hPa, für  $\text{H}_2\text{SO}_4$  (99%) etwa 3,3 mPa [Roedel, 1979].

beteiligt, spricht man von heteromolekularer, sonst von homomolekularer Nukleation. Heteromolekulare Nukleation ist gegenüber homomolekularer energetisch bevorzugt, da in der Regel der Sättigungsdampfdruck über einer Mischung geringer als über der reinen Substanz ist. Abb. 2.1 demonstriert dies am Beispiel des Systems  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ . Dargestellt sind die relativen Sättigungsdampfdrücke  $p^s/p^{s,\infty}$  von  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{H}_2\text{SO}_4$  über verdünnter Schwefelsäure als Funktion der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration [Roedel, 1979]. Hierbei bezeichnet  $p^{s,\infty}$  den Sättigungsdampfdruck, der sich über reinem  $\text{H}_2\text{O}$  bzw. 99 prozentiger  $\text{H}_2\text{SO}_4$  einstellt, und  $p^s$  den Druck über der Mischung. Für 80 prozentige  $\text{H}_2\text{SO}_4$  verringern sich beispielsweise die Sättigungsdampfdrücke von  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{H}_2\text{SO}_4$  um mehr als das 50fache. Zu beachten ist, daß für eine Temperatur von 296 K der Sättigungsdampfdruck von  $\text{H}_2\text{O}$  etwa  $p^{s,\infty} = 28,4$  hPa beträgt, der von  $\text{H}_2\text{SO}_4$  (99%) dagegen mit  $p^{s,\infty} = 3,3$  mPa um fast sechs Größenordnungen geringer ist [Roedel, 1979].

Der Sättigungsdampfdruck ist definiert für eine ebene Grenzfläche zwischen gasförmiger und flüssiger oder fester Phase. Ist die Grenzfläche stark gekrümmt, wird sich im Gleichgewicht ein Partialdruck einstellen, der höher als der Sättigungsdampfdruck ist. Dieses Phänomen bezeichnet man als Kelvin-Effekt. Der Partialdruck  $p$  über einem Tröpfchen des Radius  $r$  berechnet sich zu [Hinds, 1982; Reist, 1984]

$$p = p^s \exp\left(\frac{2\sigma m}{\rho k T r}\right). \quad (2.3)$$

Hierbei sind  $p^s$  der Sättigungsdampfdruck und  $T$  die Temperatur;  $\sigma$ ,  $m$  und  $\rho$  bezeichnen die Oberflächenspannung, Molekülmasse und Massendichte der Flüssigkeit.  $k$  ist die Boltzmann-Konstante. Da unter atmosphärischen Bedingungen der Partialdruck von Spurengasen über Längenskalen, die der Ausdehnung eines Aerosolpartikels entsprechen, als konstant angesehen werden kann, sind Partikel mit Radien größer als  $r$  nach Gl. 2.3 einem höheren Partialdruck ausgesetzt, als für den Gleichgewichtszustand erforderlich. Diese Teilchen nehmen daher durch Kondensation an Volumen zu. In analoger Weise verlieren Partikel mit Radien kleiner als  $r$  durch Verdunstung an Volumen.

### 2.2.1 Homogene Nukleation

Mit homogener Nukleation oder Selbstnukleation bezeichnet man die Kondensation aus der Gasphase ohne die Gegenwart von Nukleationskeimen. Homogene Nukleation spielt bei der Entstehung stratosphärischer Aerosole nur unter extremen Bedingungen, wie z.B. tiefen Temperaturen oder hohen Spurengaskonzentrationen, eine Rolle [Hamill *et al.*, 1982]. Sie soll dennoch an dieser Stelle beschrieben werden, da sie die Grundlage für das Konzept der heterogenen Nukleation darstellt.

Die klassische Theorie der homogenen Nukleation basiert auf der Vorstellung, daß sich Moleküle in der Gasphase zu Gruppen geringer Bindungsenergie, sogenannten Embryos, zusammenlagern, die thermisch leicht wieder aufgebrochen werden. Ausgangspunkt für die folgenden Überlegungen sind zwei Annahmen. Erstens setzt man voraus, daß die Embryos als sphärische Partikel mit makroskopischen Eigenschaften im Hinblick auf Dichte, Form und Oberflächenspannung behandelt werden können. Zweitens geht man davon aus, daß die Verteilung der Embryos dem Boltzmann-Gesetz folgt. Die Wahrscheinlichkeit für das Entstehen eines Teilchens pro Volumen- und Zeiteinheit ist unter den genannten Annahmen durch die Nukleationsrate [Pruppacher und Klett, 1978]

$$J = K_1 \exp\left(-\frac{\Delta F_{hom}(r)}{kT}\right) \quad (2.4)$$

gegeben.  $\Delta F_{hom}(r)$  bezeichnet die freie Energie für die homogene Nukleation eines Partikels mit Radius  $r$ .  $K_1$  ist ein kinetischer Vorfaktor. Die freie Energie  $\Delta F_{hom}$  setzt sich zusammen aus der Volumenenergie  $\Delta F^V$ , die bei der Entstehung eines Partikels frei wird, und der Oberflächenenergie  $\Delta F^O$ , die gegen die Oberflächenspannung des Partikels aufgebracht werden muß. D.h. es gilt

$$\begin{aligned} \Delta F_{hom}(r) &= \Delta F^O + \Delta F^V \\ &= A r^2 - B r^3 \end{aligned}$$

mit positiven Parametern  $A$  und  $B$ . Für kleine Radien liefert die Oberflächenenergie den dominierenden Beitrag zu  $\Delta F_{hom}$  und die Nukleation ist vernachlässigbar gering. Für große Radien dominiert die Volumenenergie, und Teilchenbildung setzt ein. Der Radius, für den  $\Delta F_{hom}$  den maximalen Wert annimmt, kennzeichnet den Übergangsbereich. Es zeigt sich, daß dieser Radiuswert durch

$$r^* = \frac{2 \sigma m}{\rho k T \ln(S)} \quad (2.5)$$

gegeben ist.  $S = p/p^s$  bezeichnet man als Übersättigungsverhältnis oder kurz Übersättigung. Im Maximum von  $\Delta F_{hom}$  halten sich Kondensation und Verdunstung die Waage, daher ist Gl. 2.5 identisch mit Gl. 2.3 [Pruppacher und Klett, 1978].

*Per definitionem* wird eine Nukleationsrate  $J \geq 1 \text{ cm}^{-3} \text{ sec}^{-1}$  mit einsetzender Teilchenbildung identifiziert. Der genaue Zahlenwert ist nicht relevant, da  $J$  sehr empfindlich von den Partialdrücken des kondensierenden Gases abhängt. Beispielsweise nimmt die Nukleationsrate von  $\text{H}_2\text{O}$ -Tröpfchen bei einer Temperatur von 261 K um etwa fünf Größenordnungen zu, wenn die Übersättigung von  $S = 5$  auf  $S = 6$  zunimmt [Pruppacher und Klett, 1978].

## 2.2.2 Heterogene Nukleation

Während homogene Nukleation sehr hohe Übersättigungen benötigt, bevor Teilchenwachstum einsetzen kann, erlaubt das Vorhandensein von Kondensationskernen Partikelentstehung schon bei Übersättigungen von wenigen Prozent über eins. Man bezeichnet diesen Fall als heterogene Nukleation [Pruppacher und Klett, 1978]. Hierbei hängt die Definition des Kondensationskerns vom betrachteten Aerosol ab. Beispielsweise dienen Ionencluster oder Mikrometeore als Nukleationskeime für das stratosphärische  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Hintergrundaerosol [Arnold, 1980]. Bei der Entstehung von polaren stratosphärischen Wolken fungieren nun die  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Partikel ihrerseits als Kondensationskerne.

Die Rate für heterogene Nukleation ist analog zu Gl. 2.4

$$J = K_2 \exp\left(-\frac{\Delta F_{het}}{kT}\right).$$

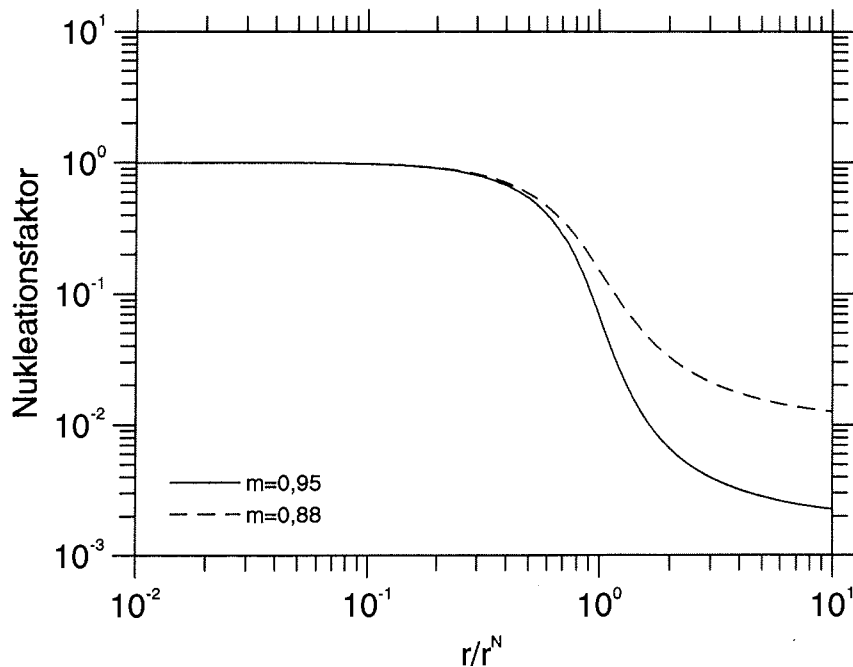
Die freie Energie  $\Delta F_{het}$  berechnet sich im Unterschied zum homogenen Fall nach

$$\begin{aligned} \Delta F_{het}(r) &= \frac{4}{3} \pi \sigma (r^N)^2 f(r/r^N, m) \\ m &= \cos(\theta), \end{aligned} \quad (2.6)$$

wobei  $r^N$  und  $r$  die Radien des Kondensationskerns und des Kondensats bezeichnen.  $\theta$  ist der Grenzwinkel, den die Oberfläche des Kondensats mit der Oberfläche des Kerns bildet. Der Grenz- oder auch Kontaktwinkel  $\theta$  läßt sich aus der Oberflächenspannung  $\sigma^{L/K}$  des Kondensats an der Grenzfläche zur Luft und aus den Oberflächenspannungen  $\sigma^{L/N}$  und  $\sigma^{K/N}$  des Kondensationskerns an der Grenzfläche zur Luft und zum Kondensat anhand der Youngschen Gleichung [Pruppacher und Klett, 1978]

$$\cos(\theta) = \frac{\sigma^{L/N} - \sigma^{K/N}}{\sigma^{L/K}}$$

bestimmen. Die Funktion  $f(r/r^N, m)$  kontrolliert die Nukleationsrate. Ihre Berechnung basiert auf geometrischen Überlegungen für die heterogene Nukleation von Flüssigkeiten [Pruppacher und Klett, 1978]. Abb. 2.2 zeigt die Abhängigkeit von  $f(r/r^N, m)$  vom Radius des Kondensats  $r$  für eine gute ( $m = 0,95$ ) und eine



**Abbildung 2.2:** Der Nukleationsfaktor  $f(r/r^N, m)$  als Funktion des Verhältnisses von Teilchenradius  $r$  zu Kondensationskernradius  $r^N$ .  $f(r/r^N, m)$  ist für eine gute ( $m = 0,95$ ) und eine schlechte ( $m = 0,88$ ) Kompatibilität berechnet worden.

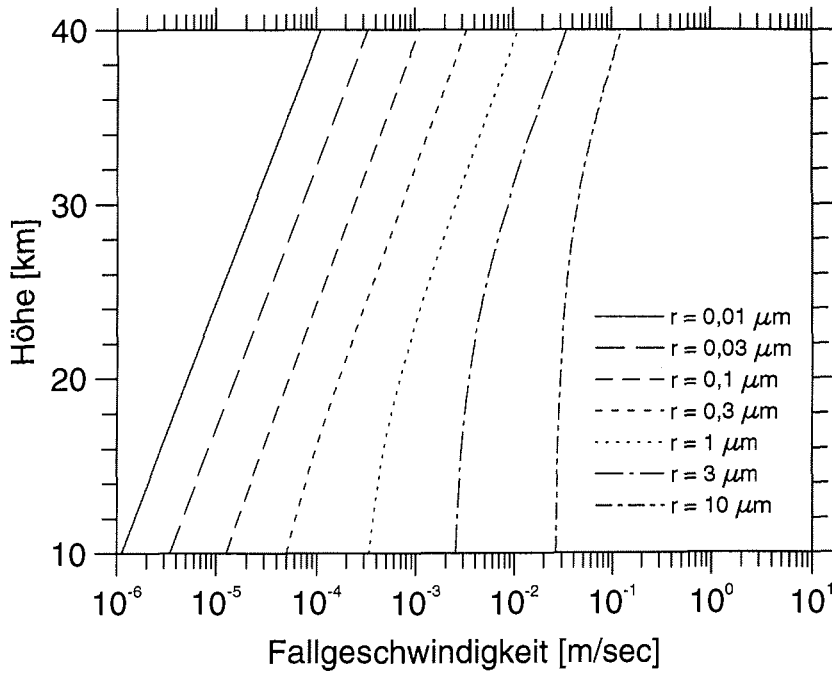
schlechte Kompatibilität ( $m = 0,88$ ). Nach Gl. 2.6 bedeuten geringe Werte von  $f(r/r^N, m)$  hohe Nukleationsraten.

Obwohl die klassische Theorie der heterogenen Nukleation makroskopische Konzepte, wie z.B. Kontaktwinkel, Oberflächenspannung oder Dichte, auf mikrophysikalische Vorgänge anwendet, sind die Übereinstimmungen mit experimentellen Ergebnissen erstaunlich gut. Mahatat und Alofs [1975] untersuchten die heterogene Kondensation von Wasser an ebenen Oberflächen und fanden geringe Differenzen zwischen ihren Resultaten und den Vorhersagen der klassischen Theorie für Kontaktwinkel kleiner als  $25^\circ$  ( $m \geq 0,9$ ).

## 2.3 Kondensation und Verdunstung

Ist durch heterogene oder homogene Nukleation ein Teilchen entstanden, dessen Radius den kritischen Radius nach Gl. 2.5 übersteigt, wächst es durch Kondensation weiter an. Die Wachstumsrate  $dr/dt$  ist abhängig von der Übersättigung  $S$  und der Knudsen-Zahl  $Kn$ , dem Verhältnis von mittlerer freier Weglänge  $\lambda$  der Moleküle in der Atmosphäre und dem Teilchenradius  $r$ ,

$$Kn = \frac{\lambda}{r}.$$



**Abbildung 2.3:** Die Fallgeschwindigkeit eines sphärischen Partikels der Dichte  $1,73 \text{ g/cm}^3$  als Funktion der Höhe. Die Kurven zeigen (von links nach rechts) die Fallgeschwindigkeit für die Radien  $0,01, 0,03, 0,1, 0,3, 1, 3$  und  $10 \mu\text{m}$ . Der Berechnung der Atmosphärendichte ist eine Skalenhöhe von  $6,5 \text{ km}$  und eine höhenkonstante Temperatur von  $230 \text{ K}$  zugrunde gelegt worden.

Unter der Annahme, daß sich an der Oberfläche der Aerosolpartikel ein Gleichgewichtsdruck  $p^\infty$  nach Gl. 2.3 einstellt, berechnet sich die Zu- oder Abnahme des Teilchenradius pro Zeiteinheit zu [z.B. Pruppacher und Klett, 1978]

$$\frac{dr}{dt} = \frac{D}{r\rho} \frac{p^\infty - p}{kT} f(Kn). \quad (2.7)$$

$D$  bezeichnet die molekulare Diffusionskonstante.  $p$  ist der Partialdruck in einem Abstand, der deutlich größer als die mittlere freie Weglänge ist. Der Korrekturfaktor  $f(Kn)$  ist nur für kleine Partikel ( $Kn > 1$ ) von Bedeutung. Er ist erforderlich, da die klassische Theorie für kleine Teilchenradien höhere Verdunstungs- bzw. Kondensationsraten liefert, als sie im Experiment beobachtet werden [Pruppacher und Klett, 1978].

## 2.4 Sedimentation

Neben Teilchenverlust durch Verdunstung nach Gl. 2.7 ist Sedimentation eine weitere Senke für stratosphärische Aerosole. Die Fallgeschwindigkeit  $v^T$ , die ein Teilchen der Massendichte  $\rho$  und des Radius  $r$  unter dem Einfluß der Gravitation in der Höhe  $z$  erreicht, ist gegeben durch [Pruppacher und Klett, 1978]

$$v^T(z) = \frac{2}{9} \frac{\rho - \rho_L(z)}{\eta(z)} g(z) r^2 C. \quad (2.8)$$

Hierbei bezeichnet  $\rho_L$  die Massendichte der Atmosphäre,  $\eta$  die kinematische Zähigkeit der Luft und  $g$  die Gravitationsbeschleunigung. Gl. 2.8 ist gültig für sphärische Partikel mit Radien kleiner als etwa  $80 \mu\text{m}$  [Pruppacher und Klett, 1978]. Der Cunningham-Korrekturfaktor  $C$  parametrisiert die Abnahme der Reibungskräfte für kleine Teilchen. Für Partikel, deren Ausdehnung geringer als die mittlere freie Weglänge ist, stellt das sie umgebende Gas kein Kontinuum dar und die Gültigkeit des Stokes-Gesetzes ist nicht mehr gewährleistet.

In Abb. 2.3 sind Fallgeschwindigkeiten für Partikel mit einer Dichte von  $1,73 \text{ g/cm}^3$  (75 prozentige  $\text{H}_2\text{SO}_4$  bei 230 K) als Funktion der Höhe für verschiedene Teilchenradien dargestellt. Hiernach benötigt beispielsweise ein stratosphärisches  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosolpartikel mit einem Radius von  $0,1 \mu\text{m}$  etwa 1 Jahr, um in einer Höhe von 20 km um 1,5 km zu sedimentieren.

## 2.5 Koagulation

Aerosolpartikel sind nicht nur der Wechselwirkung mit Molekülen der sie umgebenden Atmosphäre ausgesetzt, sondern sie kollidieren aufgrund ihrer Eigenbewegung auch miteinander. In der Regel verläuft ein hoher Prozentsatz dieser Kollisionen inelastisch und führt zur Bildung neuer Teilchen, die aus den beiden Stoßpartnern bestehen. Diesen Prozeß bezeichnet man als Koagulation [z.B. Pruppacher und Klett, 1978; Hinds, 1982].

Die Wahrscheinlichkeit für die Koagulation eines kleinen mit einem großen Partikel ist höher als die gleich großer Teilchen. Im ersteren Fall bewirkt die hohe Mobilität des einen und die große Oberfläche des anderen Stoßpartners eine hohe Kollisionsrate. Koagulation führt daher im Größenspektrum zu einem Verschwinden von Moden bei kleinen Radien, während sich der Radius des größeren Teilchens kaum ändert. Bezeichnen  $r_1$  und  $r_2$  die Radien des größeren und des kleineren Partikels, ist die Zunahme des Radius

$$\begin{aligned}\delta r &= \sqrt[3]{r_1^3 + r_2^3} - r_1 \\ &= \mathcal{O}\left(\left(\frac{r_2}{r_1}\right)^3\right)\end{aligned}$$

gegenüber  $r_1$  vernachlässigbar gering, falls  $r_1 \gg r_2$ .

In der Stratosphäre beeinflusst Koagulation das Größenspektrum nur geringfügig, da die Teilchendichten von großen Partikeln wenige  $\text{cm}^{-3}$  nicht übersteigen. Nach Modellrechnungen von Toon *et al.* [1989] ist die Koagulationsrate von  $0,1$  und  $0,5 \mu\text{m}$ -Partikeln mit Teilchen, die nicht größer als  $100 \mu\text{m}$  sind, auf einer Zeitskala von Tagen vernachlässigbar gering.



## Kapitel 3

# Stratosphärische Aerosole

Die Arbeiten von Junge und Mitarbeitern zu Beginn der sechziger Jahre liefern den ersten direkten Nachweis von partikulärem Material in der Stratosphäre [Junge *et al.*, 1961; Junge und Manson, 1961]. Zahlreiche Untersuchungen beschäftigen sich seit dieser Zeit mit den verschiedensten Aspekten des stratosphärischen Aerosols [z.B. Hofmann *et al.*, 1989; Wilson *et al.*, 1992; Dye *et al.*, 1992]. Die Ergebnisse von *in-situ*-Meßverfahren geben Hinweise auf die mikrophysikalische Struktur der Partikel. Fernerkundungsmeßsysteme liefern Informationen über globale Ausdehnung und Ausbreitung stratosphärischer Aerosole. Mit der Erkenntnis, daß heterogene chemische Reaktionen, die an Oberflächen des partikulären Materials ablaufen, eine fundamentale Bedeutung für die Chemie der polaren Stratosphäre haben, beginnt Ende der achtziger Jahre eine Phase intensiver Forschung sowohl im Bereich der Feld- und Laboruntersuchungen als auch auf dem Gebiet der Modellierung.

Es zeigt sich, daß der größte Teil des stratosphärischen Aerosols durch Kondensation oder Ausfrieren von Spurengasen entsteht. Dies erleichtert die Charakterisierung des partikulären Materials hinsichtlich seiner chemischen und physikalischen Eigenschaften. Ich werde in den folgenden Abschnitten drei Arten stratosphärischer Aerosole diskutieren. Das stratosphärische Hintergrundaerosol wird in Zeiten geringer vulkanischer Aktivität beobachtet. Nach energiereichen Vulkaneruptionen, die zu einem Eintrag von Material in die Stratosphäre führen, wird das Hintergrundaerosol über einen Zeitraum von mehreren Jahren vom vulkanischen Aerosol verdeckt. Das vulkanische Aerosol ist im Hinblick auf seine Zusammensetzung dem Hintergrundaerosol verwandt, weist jedoch um Größenordnungen höhere Massenmischungsverhältnisse auf. Die dritte Klasse stellen die polaren stratosphärischen Wolken dar, die ausschließlich bei sehr tiefen Temperaturen in den polaren Stratosphären auftreten.

Ich verzichte im folgenden auf eine Diskussion anderer in der Stratosphäre vorkommender Aerosolarten, da diese mit einem bodengestützten Lidar nicht nachweisbar sind. Hierzu gehören beispielsweise Mikrometeore und Ionencluster [Arnold, 1980], die für die heterogene Nukleation des Schwefelsäureaerosols von Bedeutung sind, sowie Riesenpartikel mit Radien über  $1 \mu\text{m}$  und Teilchenzahldichten von  $10^{-7}$  bis  $10^{-6} \text{ cm}^{-3}$  [Zolensky *et al.*, 1989]. Letztere sind im wesentlichen anthropogenen Ursprungs.

### 3.1 Hintergrundaerosol

Eine genaue Beschreibung des Hintergrundaerosols und seine Abgrenzung zum Aerosol vulkanischen Ursprungs ist aus zwei Gründen schwierig. Vulkanausbrüche, die Material in die Stratosphäre eintragen, treten in unregelmäßigen Abständen auf und führen zu einer Störung des stratosphärischen Aerosolhaushalts, die mehrere Jahre andauern kann. Zweitens gibt es Hinweise auf den Eintrag schwefelhaltiger Gase in die Stratosphäre zu Zeitpunkten, an denen kein größerer Vulkanausbruch registriert worden ist [Sedlacek *et al.*, 1983]. Unter diesen Umständen kann nur indirekt auf den vulkanischen Ursprung der Störung des Hintergrundaerosols geschlossen werden.

Im Zeitraum der letzten zwanzig Jahre ist die Periode zwischen 1976 und 1979 und zwischen 1986 und 1990 charakterisiert durch geringe vulkanische Aktivität. Der Meßzeitraum der Aerosol-Lidar-Untersuchungen, die Gegenstand dieser Arbeit sind, fällt in die Phase der sehr starken Störung des stratosphärischen Aerosolhaushalts durch den Ausbruch des Mt. Pinatubo im Juni 1991. Da keine Messungen des Hintergrundaerosols im Rahmen dieser Arbeit vorliegen, werde ich im folgenden nur kurz seine wichtigsten Eigenschaften darstellen.

Nach den Untersuchungen von Junge *et al.* [1961] sowie Arbeiten von Rosen und Hofmann [1986] besteht das Hintergrundaerosol aus verdünnter Schwefelsäure. Die Partikel sind mit großer Wahrscheinlichkeit flüssig. Die Höhenverteilung ist in charakteristischer Weise abhängig vom Teilchenradius. Es zeigt sich, daß sich eine für alle geographischen Breiten vergleichbare Höhenabhängigkeit ergibt, wenn man als Höhenvariable die Höhe über der Tropopause einsetzt.

Das Massenmischungsverhältnis von Partikeln in der Nukleationsmode mit Radien kleiner als  $0,1 \mu\text{m}$  nimmt mit der Höhe stark ab. Dies legt den Schluß nahe, daß sich die Quelle für diese Teilchen in der Troposphäre befindet. Die Höhenverteilung großer Teilchen — das sind Partikel mit Radien über  $0,1 \mu\text{m}$  — besitzt dagegen ein ausgeprägtes Maximum im Bereich zwischen 7 und 10 km über der Tropopause. Diesen Bereich bezeichnet man nach seinem Entdecker als Junge-Schicht. Die Junge-Schicht besitzt eine bemerkenswert geringe meridionale und zonale Variabilität. Untersuchungen von Hofmann lassen allerdings eine deutliche jahreszeitliche Abhängigkeit erkennen, deren Ursache im Detail noch ungeklärt ist [Hofmann und Rosen, 1981].

Als Quelle für das stratosphärische  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Hintergrundaerosol kommen nur schwefelhaltige Gase in Betracht, die über eine ausreichende troposphärische Lebensdauer verfügen, damit vertikale Transportprozesse sie in die Stratosphäre eintragen können. In Phasen geringer vulkanischer Aktivität ist die dominierende Quelle OCS. Auch ein Beitrag durch  $\text{CS}_2$  wird diskutiert [Crutzen, 1976]. Carbonylsulfid wird photochemisch in Schwefeldioxid überführt, dieses oxidiert unter dem Einfluß des OH-Radikals zu Schwefelsäure. Der direkte Eintrag von troposphärischem Schwefeldioxid in die Stratosphäre ist vernachlässigbar, da  $\text{SO}_2$  bereits in der Troposphäre zu  $\text{H}_2\text{SO}_4$  oxidiert und vom Niederschlag ausgewaschen wird. Eine wichtige Ausnahme sind energiereiche Vulkaneruptionen, die einige Mt  $\text{SO}_2$  direkt in die Stratosphäre eintragen. Dies wird im folgenden Abschnitt diskutiert.

Der Kondensationsprozeß, der  $\text{H}_2\text{SO}_4$  aus der Gasphase in Schwefelsäureaerosol überführt, ist noch nicht im Detail verstanden. Modelluntersuchungen deuten darauf

hin, daß homogene Nukleation unter den normalerweise in der Stratosphäre vorherrschenden Bedingungen unwahrscheinlich ist [Hamill *et al.*, 1977; Hamill *et al.*, 1982]. Es wird daher die Kondensation an extraterrestrischen Partikeln (Mikrometeoriten), Ionenclustern oder Nukleationskeimen troposphärischen Ursprungs diskutiert [Arnold, 1980; Turco *et al.*, 1979].

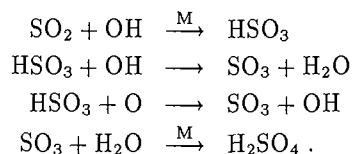
Experimentelle und theoretische Untersuchungen liefern Hinweise dafür, daß die H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Teilchen für Temperaturen bis hinunter zu 195–200 K in der flüssigen Phase vorliegen [Pueschel *et al.*, 1989; Dye *et al.*, 1992; Jensen *et al.*, 1991]. Dies bedeutet, daß das Schwefelsäureaerosol um bis zu 40 K unterkühlt ist. Die Konsequenzen dieser Resultate im Hinblick auf die Ausbildung von polaren stratosphärischen Wolken werden in Abschnitt 3.3 diskutiert.

Durch Kondensation wachsen die Aerosolpartikel und sedimentieren schließlich unter dem Einfluß der Gravitation in die Troposphäre, wo sie vom Niederschlag ausgewaschen werden.

## 3.2 Vulkanisches Aerosol

Eruptionssäulen energiereicher Vulkanausbrüche können Gase und Staubpartikel bis in die untere und mittlere Stratosphäre tragen. Im unteren Teil der Säule wird der Materialtransport von der kinetischen Energie des austretenden Magmas angetrieben. Atmosphärische Konvektionsprozesse, die durch die hohen Temperaturen des ausgeworfenen Materials ausgelöst werden, stabilisieren die Vertikalbewegung im oberen Bereich der Säule.

Die Auswirkungen eines Vulkanausbruchs auf den Aerosolhaushalt der Stratosphäre ist in erster Linie abhängig von der Gesamtmenge an schwefelhaltigen Gasen, die in die Stratosphäre eingetragen werden. Diese Menge muß nicht mit der während eines Ausbruchs freigesetzten Energie oder der Masse an ausgeworfenem Material korrelieren. So hat der Ausbruch des mexikanischen Vulkans El Chichón im April 1982 mit etwa 0,5 bis 0,6 km<sup>3</sup> etwa fünfmal weniger Staub und Asche gefördert als die Eruption des nordamerikanischen Vulkans Mt. St. Helens im Mai 1980. Die Gesamtmenge des stratosphärischen Schwefelsäureaerosols, die nach dem Ausbruch des El Chichón entstanden ist, übertrifft jedoch die des Mt. St. Helens um fast zwei Größenordnungen [Turco *et al.*, 1983]. Staub- und Aschepartikel, deren Durchmesser einige Mikrometer überschreiten, sedimentieren unter dem Einfluß der Gravitation innerhalb weniger Tage bis Wochen in die Troposphäre und werden dort vom Regen ausgewaschen. Gasanalysen des Eruptionsmaterials zeigen einen hohen Anteil an SO<sub>2</sub>. Auch H<sub>2</sub>S wird in geringen Mengen gefunden. Die in die Stratosphäre eingetragenen schwefelhaltigen Gase werden unter Beteiligung des Hydroxyl-Radikals zu H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> oxidiert. Die genauen Reaktionskanäle sind noch nicht im Detail verstanden. Es wird jedoch vermutet, daß der folgende Reaktionsmechanismus in der Stratosphäre eine dominierende Rolle spielt [Turco, 1985],



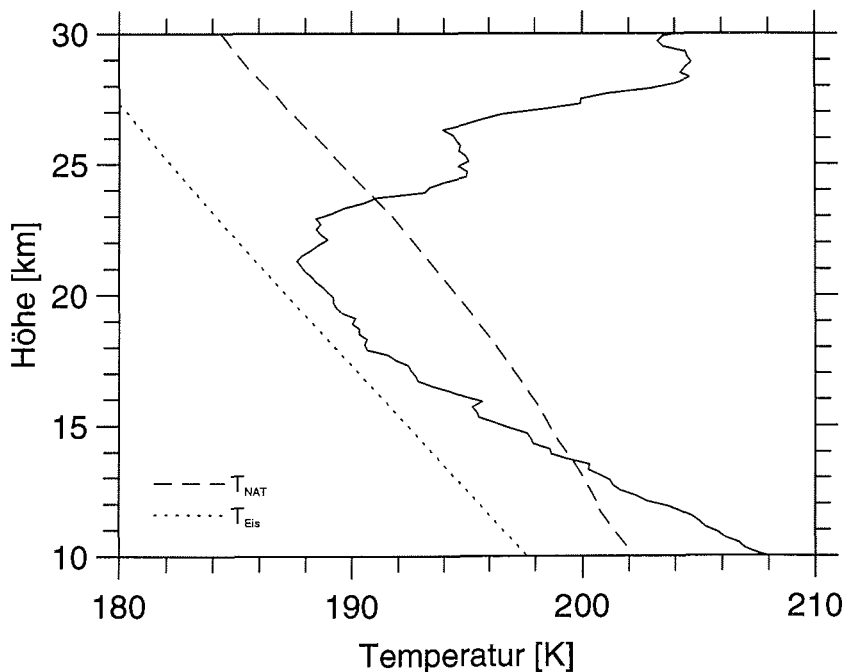
Das vulkanische Aerosol entsteht schließlich durch Kondensation von  $\text{H}_2\text{SO}_4$  und  $\text{H}_2\text{O}$ . Eine teilweise Kondensation setzt bereits im oberen Bereich der Eruptions-säule ein, da die Temperaturen dort auf ausreichend niedrige Werte abgesunken sind und hohe Partialdrücke von  $\text{H}_2\text{SO}_4$  und  $\text{H}_2\text{O}$  auftreten [Tabazadeh und Turco, 1993]. Die Zeitkonstante für die Kondensation des Schwefelsäureaerosols beträgt etwa 20 bis 30 Tage [Bluth *et al.*, 1992; McPeters, 1993; Deshler *et al.*, 1991].

Schwefelsäuretröpfchen befinden sich im Gleichgewicht mit dem in der Gasphase vorhandenen Wasser, d.h. die Anzahl der pro Zeiteinheit kondensierenden  $\text{H}_2\text{O}$ -Moleküle entspricht der pro Zeiteinheit verdunstenden Moleküle. Abschätzungen für diesen Prozeß ergeben eine Zeitkonstante in der Größenordnung weniger Sekunden [Steele und Hamill, 1981]. In Abhängigkeit von Wasserpartialdruck und Temperatur stellt sich unter Annahme typischer Stratosphärenbedingungen eine  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration zwischen 60 und 85% ein [Steele und Hamill, 1981]. Da das Volumenmischungsverhältnis von  $\text{H}_2\text{SO}_4$  in der Gasphase gegenüber dem  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnis etwa acht Größenordnungen geringer ist, ist die Zeitkonstante für Kondensation und Verdunstung von Schwefelsäuremolekülen wesentlich größer als die Abklingzeit der Störung durch das vulkanische Aerosol. Das Aerosoltröpfchen wird sich daher in der Regel bezüglich des Austauschs von  $\text{H}_2\text{SO}_4$  nicht im Gleichgewicht befinden.

Die Partikelradien des vulkanischen Aerosols nehmen aufgrund von Kondensationsprozessen zu, bis die Teilchen unter dem Einfluß der Gravitation durch die Tropopause in die Troposphäre sedimentieren. Ein Partikelwachstum aufgrund von Koagulation kann wegen der geringen Teilchendichte von wenigen hundert Partikeln pro Kubikzentimeter vernachlässigt werden. Dieser Sedimentationsprozeß ist ein sehr langsamer Vorgang. Die durch vulkanisches Aerosol erhöhte optische Dicke kehrt mit einer Abklingzeit von 9 bis 11 Monaten auf den Normalwert der ungestörten Stratosphäre zurück [Sedlacek *et al.*, 1983].

### 3.3 Polare stratosphärische Wolken

Aus Satellitenbeobachtungen weiß man, daß das Auftreten von Wolken in den polaren Stratosphären kein seltenes Phänomen sind. Während des Polarwinters findet man in der Antarktis an 30% aller Tage polare stratosphärische Wolken (PSW), in der Arktis aufgrund der höheren Durchschnittstemperaturen nur an etwa 5% aller Tage [McCormick *et al.*, 1982]. Auf der Basis dieser Beobachtungen definiert man eine PSW als eine vorübergehende Erhöhung des Partikelextinktionskoeffizienten, ausgehend von einem Hintergrundwert von etwa  $10^{-4} \text{ km}^{-1}$ , um mehr als eine Größenordnung. Das Auftreten von PSW ist mit der Stratosphärentemperatur korreliert. Oberhalb von 200 K werden nur mit sehr geringer Wahrscheinlichkeit PSW beobachtet. Fällt die Temperatur unter 190 K, besteht eine hohe Wahrscheinlichkeit für ein PSW-Ereignis [McCormick *et al.*, 1982]. Im Gegensatz zum Hintergrundaerosol und den vulkanischen Aerosolen ist das Auftreten von polaren stratosphärischen Wolken ein räumlich begrenztes Phänomen. Horizontale Ausdehnungen betragen in der Regel nicht mehr als einige hundert Kilometer. Wolkendicken zwischen wenigen Metern und wenigen Kilometern werden beobachtet [Hofmann *et al.*, 1990; Browell *et al.*, 1990].



**Abbildung 3.1:** Vergleich eines Temperaturprofils mit der Koexistenztemperatur von NAT und Eis. Die durchgezogene Linie ist das stratosphärische Temperaturprofil vom 27. Januar 1993 über Ny-Ålesund. Die unterbrochenen Linien kennzeichnen den Verlauf der Koexistenztemperatur von NAT und Eis,  $T_{\text{NAT}}$  und  $T_{\text{Eis}}$ . Die Berechnung von  $T_{\text{NAT}}$  und  $T_{\text{Eis}}$  basiert auf einem Profil des  $\text{HNO}_3$ -Mischungsverhältnisses mit einem Maximalwert von 10 ppbv in etwa 23 km Höhe (vgl. Abb. 8.9) und einem höhenkonstanten  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnis von 5 ppmv.

Mit der Erkenntnis, daß PSW zur gestörten Chemie in den polaren Stratosphären während der Polarnacht beitragen, hat in den vergangenen Jahren das wissenschaftliche Interesse an dieser Klasse von stratosphärischen Aerosolen zugenommen. Dennoch sind der Entstehungsprozeß und die mikrophysikalische Zusammensetzung der Wolkenpartikel noch nicht im Detail verstanden. Im folgenden werde ich zunächst PSW phänomenologisch beschreiben und im Anschluß die Hypothese der selektiven Nukleation für den Entstehungsprozeß von PSW diskutieren. [Toon *et al.*, 1989; Toon *et al.*, 1990].

Man unterscheidet zwei Typen von polaren stratosphärischen Wolken. PSW vom Typ I bestehen aus Salpetersäurehydrat [Crutzen und Arnold, 1986; Toon *et al.*, 1986]. Laboruntersuchungen zur thermodynamischen Stabilität liefern Hinweise darauf, daß es sich in erster Linie um Salpetersäuretrihydrat oder NAT (*nitric acid trihydrate*,  $\text{HNO}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ ) handelt [Hanson und Mauersberger, 1988; Middlebrook *et al.*, 1992; Schrems *et al.*, 1993]. Jedoch ist auch Salpetersäuredihydrat (NAD) unter stratosphärischen Bedingungen stabil [Koehler *et al.*, 1992; Peil und Schrems, 1993]. Nach FTIR-spektroskopischen Analysen tritt NAT in zwei Modifikationen auf ( $\alpha$ -NAT und  $\beta$ -NAT) [Middlebrook *et al.*, 1992; Peil und Schrems, 1993]. Da  $\beta$ -NAT die stabilere Konfiguration darstellt, wird vermutet, daß die natürlichen PSW-Partikel vom Typ I in der  $\beta$ -Konfiguration vorliegen. Nach *in-situ*-Analysen enthalten Typ I-Partikel variable Konzentrationen an  $\text{HNO}_3$ . Neben NAT sind daher

vermutlich auch andere Salpetersäurehydrate in einem PSW-Partikel vorhanden.

PSW vom Typ II sind Wassereiswolken. Die Koexistenztemperatur von NAT,  $T_{\text{NAT}}$ , liegt für typische stratosphärische  $\text{H}_2\text{O}$ - und  $\text{HNO}_3$ -Partialdrücke etwa 5–7 K über der Koexistenztemperatur von Eis ( $T_{\text{Eis}}$ , Frostpunkt) [Hanson und Mauersberger, 1988]. Als Koexistenztemperatur wird hier diejenige Temperatur bezeichnet, bei der sich die feste bzw. flüssige Phase einer Substanz im Gleichgewicht mit der gasförmigen Phase befindet. Die absoluten Werte von  $T_{\text{NAT}}$  und  $T_{\text{Eis}}$  hängen von den  $\text{H}_2\text{O}$ - und  $\text{HNO}_3$ -Partialdrücken ab. Abb. 3.1 zeigt  $T_{\text{NAT}}$  und  $T_{\text{Eis}}$  zusammen mit dem stratosphärischen Temperaturprofil vom 27. Januar 1993. Es zeigt sich, daß die Koexistenztemperaturen wegen der starken Höhenabhängigkeit der  $\text{H}_2\text{O}$ - und  $\text{HNO}_3$ -Partialdrücke mit zunehmender Höhe deutlich abnehmen.

Gefrierkeime für Typ I-Partikel liefert das  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Hintergrundaerosol. In dem von Toon und Mitarbeiter formulierten mikrophysikalischen Modell zur Entstehung von PSW wird angenommen, daß diese  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Teilchen gefroren sind [Toon *et al.*, 1990]. Damit ist es plausibel, von einer guten Kompatibilität ( $m = 0,95$ ) zwischen Nukleationskeim und NAT auszugehen. Fällt die Temperatur weiter, kann Wassereis auf den Typ I-Teilchen ausfrieren. Natürlich ist eine Ablagerung von  $\text{HNO}_3$  weiterhin möglich, jedoch ist zu diesem Zeitpunkt Salpetersäure schon fast vollständig aus der Gasphase entfernt. Die Eiskristalle können zu Partikeln mit mehreren Mikrometern Durchmesser anwachsen.

Lidar-Beobachtungen von PSW durch Browell *et al.* [1990] liefern Hinweise, daß zwei Unterklassen von Typ I PSW existieren. Browell bezeichnet sie als Typ Ia und Ib. Typ Ia ist charakterisiert durch niedrige Rückstreuverhältnisse zwischen 1,2 und 1,5 und hohe Aerosoldepolarisationen zwischen 0,3 und 0,5. (Rückstreuverhältnis und Aerosoldepolarisation werden in den Abschnitten 6.3 und 8.2 definiert.) PSW vom Typ Ib dagegen verursachen hohe Rückstreuverhältnisse zwischen 3 und 8 und eine geringe Aerosoldepolarisation von 0,005 bis 0,025. Ausgehend von der Tatsache, daß hohe Rückstreuverhältnisse durch hohe Teilchendichten und hohe Aerosoldepolarisation durch asphärische Partikel verursacht werden, entwickeln Toon und Mitarbeiter ein Konzept der selektiven Nukleation für die Entstehung von Typ I-Partikeln [Toon *et al.*, 1990]. Nach ihren Modellrechnungen aktivieren geringe Abkühlungsraten von unter 1 K/d weniger als 5% der zur Verfügung stehenden Nukleationskeime. Da ausreichend  $\text{HNO}_3$  in der Gasphase zur Verfügung steht, können die Partikelradien auf mehr als 1  $\mu\text{m}$  anwachsen. Dentritisches Wachstum führt zu Abweichungen von der sphärischen Form und erklärt die hohe Aerosoldepolarisation. Unabhängig von der Abkühlungsrate können Typ Ia-PSW auch entstehen, wenn die Koexistenztemperatur nur geringfügig unterschritten wird und die sich einstellende Übersättigung nur ausreicht, um die größten Schwefelsäurepartikel als Nukleationskeime zu aktivieren [Toon *et al.*, 1990].

Steigen die Abkühlungsraten dagegen auf Werte um 10 K/d, wird fast 60% des  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosols als Nukleationskeim aktiviert. Die hohe Teilchendichte verursacht eine deutliche Erhöhung des Rückstreuverhältnisses. Die Partikelradien werden nicht größer als etwa 0,5  $\mu\text{m}$ , da die Partikel um  $\text{HNO}_3$  in der Gasphase konkurrieren müssen. Es entstehen Typ Ib-Teilchen. Es ist allerdings auch denkbar, daß aufgrund der schnellen Abkühlung die Partikel als unterkühlte Tröpfchen vorliegen, die nicht depolarisierend wirken. Nach Arbeiten von Toon und Mitarbeiter ist auch bei der Ausbildung von Typ II-Wolken selektive Nukleation für eine starke Abhängigkeit

der Partikelgrößen von der Abkühlrate verantwortlich.  $\text{H}_2\text{O}$  ist jedoch mit einem etwa drei Größenordnungen höheren Mischungsverhältnis in der Stratosphäre vorhanden. Das Partikelwachstum wird daher nicht durch einen Mangel an  $\text{H}_2\text{O}$  in der Gasphase behindert.

Das Toonsche Modell der PSW-Entstehung läßt einige Fragen unbeantwortet. Zum einen ist eine gute Kompatibilität von  $m = 0,95$  nicht im Einklang mit experimentellen Befunden. Eine gute Kompatibilität bedeutet, daß schon eine geringe  $\text{HNO}_3$ -Übersättigung ausreicht, um NAT auszufrieren. Dagegen folgern Hofmann *et al.* [1989] aus ihren Beobachtungen mit ballongetragenen Partikelzählern, daß für PSW-Bildung eine bis zu zehnfache  $\text{HNO}_3$ -Übersättigung erforderlich ist. Auch die dieser Arbeit zugrundeliegenden Lidar-Messungen deuten auf eine schlechtere Kompatibilität von  $m \approx 0,88$  hin [Peter, 1993].

Zweitens gibt es experimentelle Hinweise darauf, daß das Schwefelsäureaerosol auch bei Temperaturen unterhalb von 200 K nicht gefroren ist und damit nicht als Gefrierkern für PSW-Teilchen zur Verfügung steht [Pueschel *et al.*, 1989; Dye *et al.*, 1992]. Ist das Hintergrundaerosol nicht gefroren, könnte die Entstehung einer PSW sich folgendermaßen darstellen [Peter, 1993]. Bei sinkenden Temperaturen nimmt das  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Tröpfchen  $\text{H}_2\text{O}$  und  $\text{HNO}_3$  aus der Gasphase auf. Der Radius des Partikels nimmt während dieses Prozesses etwa auf das Doppelte zu. Fällt die Temperatur unter die Koexistenztemperatur von NAT, bilden sich innerhalb des Tröpfchens NAT-Partikel. Diese wirken als Gefrierkeime für die  $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ -Mischung und das Tröpfchen friert als Schwefelsäuretetrahydrat (SAT,  $\text{H}_2\text{SO}_4 \cdot 4 \text{H}_2\text{O}$ ), NAT und Eis aus. Laboruntersuchungen unterstützen die Hypothese, daß eine Mischung aus  $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  nicht als ternäre Lösung, sondern als SAT und NAT ausfriert [Tolbert und Middlebrook, 1990].

Als Senke für PSW treten zwei Prozesse auf. Zum einen lösen sich die Wolken auf, falls die Temperatur über die Koexistenztemperatur  $T_{\text{NAT}}$  steigt. Nach Untersuchungen von Peter und Mitarbeiter beträgt die Lebensdauer von Typ I-Teilchen bei Erwärmung auf über 200 K weniger als eine Stunde, Typ II-Partikel sublimieren innerhalb weniger Sekunden [Peter, 1992]. Zum anderen können Typ Ia und Typ II-Partikel aufgrund ihrer Größe innerhalb weniger Tage um einige Kilometer sedimentieren.

## 3.4 Auswirkungen stratosphärischer Aerosole

In diesem Abschnitt werden die Auswirkungen stratosphärischer Aerosole unter zwei Gesichtspunkten diskutiert. Erstens steht das partikuläre Material mit der solaren Einstrahlung und der vom Erdboden aufsteigenden thermischen Infrarotstrahlung in Wechselwirkung und beeinflusst dadurch den stratosphärischen Strahlungshaushalt. Zweitens führt die Entstehung von Aerosolpartikeln zu Änderungen in Spurengaskonzentrationen und zu einer Erhöhung der Partikeloberflächendichte.

### 3.4.1 Vulkanisches Aerosol

Der Einfluß vulkanischer Aerosole auf den Strahlungshaushalt der Erde äußert sich in zweierlei Weise. Zum einen führt das Vorhandensein des partikulären Materials

durch verstärkte Absorption von Solarstrahlung zu einer Temperaturerhöhung in der Stratosphäre. Beispielsweise sind nach dem Ausbruch des Mt. Pinatubo Temperaturdifferenzen von bis  $+3,5$  K gegenüber dem langjährigen Mittel beobachtet worden [Labitzke und McCormick, 1992]. Auf dem 30 hPa Druckniveau liegen die Abweichungen der Monatsmitteltemperaturen im September und Oktober 1991 bei  $+2,5$  K. Die zweite Auswirkung betrifft die Temperaturentwicklung in der Troposphäre. Stratosphärische Aerosole erhöhen die Albedo und verringern damit die solare Einstrahlung am Erdboden. Gleichzeitig führen die Aerosolpartikel zu einer Reflexion der thermischen Infrarotstrahlung, die von der Erdoberfläche emittiert wird. Beide Prozesse wirken in die entgegengesetzte Richtung. Eine höhere Albedo verursacht geringere Temperaturen in der Troposphäre, der Treibhauseffekt hat eine Temperaturerhöhung zur Folge. Nach Untersuchungen von Lacis *et al.* [1992] überwiegt für Partikel mit kleineren effektiven Radien als etwa  $2 \mu\text{m}$  der Albedoeffekt, erst für größere Teilchen dominiert der Treibhauseffekt. Da der mittlere Radius des vulkanischen Aerosols zwischen  $0,1$  und  $0,2 \mu\text{m}$  liegt, sollte man nach starken Vulkanausbrüchen eine Abkühlung in der Troposphäre erwarten.

Die Modellierung des atmosphärischen Strahlungshaushalts nach dem Ausbruch des El Chichón im Jahr 1982 liefert in der Tat troposphärische Temperaturerniedrigungen um etwa  $-0,4$  K in der Nordhemisphäre [z.B. Harshvardhan *et al.*, 1984]. Die numerische Simulationen zeigen aber auch, daß die zeitliche Entwicklung der Troposphärentemperatur mit einer Zeitkonstanten von etwa 5 Jahren auf die vulkanische Störung reagiert. In der Stratosphäre ist die Antwortzeit mit einem Monat wesentlich kürzer. Da die Abklingzeit der vulkanischen Aerosolschicht weniger als ein Jahr beträgt (vgl. Abschnitt 10.1), kann sich in der Troposphäre kein Gleichgewichtszustand einstellen [Lenoble, 1984].

Eine Temperaturreduktion in der Größenordnung von  $-0,4$  K ist anhand von Beobachtungsdaten schwer nachzuweisen, da sie von dynamischen Vorgängen in der Atmosphäre überdeckt wird. Untersuchungen der klimatischen Auswirkungen von Vulkanausbrüchen der letzten 100 Jahre durch Robock und Mao [1992] ergeben, daß die mittleren Oberflächentemperaturen in dem dem Ausbruch folgenden Winter im Mittleren Osten tiefer, in Nordamerika und Eurasien dagegen höher als im langjährigen Mittel gewesen sind [siehe auch Halpert *et al.*, 1993]. Die Ursache hierfür ist zum Teil dynamischer Natur. Die Temperaturerhöhung in der tropischen Stratosphäre führt zu einem erhöhten meridionalen Temperaturgradienten, der zonale Windströmungen in mittleren und hohen Breiten intensiviert. In der Folge wird verstärkt warme Meeresluft über die nordamerikanischen und eurasischen Kontinente transportiert. Diese führen dort zu einer Erhöhung der beobachteten mittleren Temperatur. In tropischen Breiten dagegen überwiegt die Abkühlung durch verminderte solare Einstrahlung und es kommt zu einer Temperaturerniedrigung.

### 3.4.2 Polare stratosphärische Wolken

PSW haben in zweifacher Weise Auswirkungen auf den Strahlungshaushalt der Stratosphäre [Pollack und McKay, 1985; Kinne und Toon, 1990]. Zum einen erhöhen sie die optische Dicke des stratosphärischen Aerosols. Zum zweiten führt das Ausfrieren von  $\text{HNO}_3$  und  $\text{H}_2\text{O}$  zu einer Verringerung der molekularen Absorption solarer oder thermischer Strahlung durch diese Spurengase. Die Wechselwirkung von PSW



mit der Solarstrahlung ist von geringerer Bedeutung, da PSW bevorzugt während Perioden großer Sonnenzenitwinkel auftreten. Simulationsrechnungen mit Strahlungsmodellen ergeben, daß Typ I-PSW sich nicht signifikant auf die Strahlungsbilanz der Stratosphäre auswirken. Die Temperaturvariationen liegen im Bereich von  $\pm 0,1$  K/d. Optisch dicke PSW vom Typ II können zu einer stärkeren Abkühlung bzw. Erwärmung zwischen  $-0,2$  und  $+1,0$  K/d führen [Kinne und Toon, 1990]. Das Vorzeichen der Temperaturentwicklung ist abhängig von der Intensität und spektralen Verteilung der aufsteigenden thermischen Infrarotstrahlung und damit von der Bodentemperatur. Über kalten Oberflächen wie beispielsweise dem antarktischen Kontinent erwartet man eine Abkühlung, über warmen Oberflächen eine Erwärmung.

Die eigentliche Bedeutung der PSW ist in ihrer Rolle zu sehen, die sie in der Stratosphärenchemie spielen. Zwei Prozesse sind hier von besonderer Wichtigkeit. Erstens stellen die PSW-Partikel Oberflächen für heterogene Reaktionen zur Verfügung, in denen inaktive Chlor-Verbindungen, die nicht am katalytischen Ozonabbau teilnehmen, zu aktiven Verbindungen umgewandelt werden [Tolbert *et al.*, 1987; Tolbert und Middlebrook, 1988a; Tolbert *et al.*, 1988b; Anderson *et al.*, 1991]. Zu diesen inaktiven Verbindungen oder Reservoirspezies gehören  $\text{ClONO}_2$  und  $\text{HCl}$ . Aktive Chlorverbindungen, wie z.B. Chlormonoxid oder atomares Chlor, können entweder selbst Ozon katalytisch abbauen, oder sie sind, wie z.B.  $\text{Cl}_2$ , Vorläufersubstanzen, die sich photolytisch in ozonabbauende Verbindungen spalten lassen.

Für die effektive Umwandlung der Reservoirspezies in aktive Chlorverbindungen müssen Stickoxide aus der Gasphase entfernt werden, um die Rückreaktion von  $\text{ClO}$  in Chlornitrat zu unterbinden. Dieser Denitrifizierungsprozeß ist der zweite wichtige Vorgang, der durch das Ausfrieren der PSW-Partikel verursacht wird. Wachsen die Teilchen zu Typ II-Partikeln mit Durchmessern von mehreren Mikrometern heran, können sie unter dem Einfluß der Gravitation innerhalb weniger Tage um einige Kilometer sedimentieren. Die Folge ist eine dauerhafte Abnahme der Stickoxidmischungsverhältnisse im betrachteten Höhenbereich. Dieser Prozeß ist sehr effektiv; auf diese Weise kann das Volumenmischungsverhältnis von  $\text{HNO}_3$  um bis zu 80% abnehmen. *In-situ*-Untersuchungen der antarktischen Stratosphäre liefern im Oktober  $\text{HNO}_3$ -Mischungsverhältnisse von 1-2 ppbv. Das  $\text{HNO}_3$ -Mischungsverhältnis liegt damit im antarktischen Frühling um etwa 3 ppbv unter dem Vergleichswert des Monats Juni [Salawitch *et al.*, 1988; Fahey *et al.*, 1990].



# Kapitel 4

## Dynamische Prozesse in der polaren Stratosphäre

Die Dynamik der polaren Stratosphäre während der Polarnacht ist bestimmt von einem starken Westwindband im Höhenbereich oberhalb von etwa 15 km. Das Maximum der zonalen Geschwindigkeitskomponente dieses Starkwindsystems befindet sich auf einer geographischen Breite von etwa 60°. Es markiert die Grenze des Polarwirbels, der im folgenden auch als Vortex bezeichnet wird. Die Windströmung erschwert oder verhindert sogar den Transport von Luftpaketen über die Wirbelgrenzen hinweg und führt damit zu einer Isolation polarer Luftmassen.

Bevor ich näher auf Ursachen für die Entstehung des Polarwirbels und seine Auswirkungen eingehe, werden in den folgenden Abschnitten zwei Größen, die potentielle Temperatur  $\theta$  und die potentielle Wirbelstärke  $Q$ , definiert. Es zeigt sich nämlich, daß die geometrische Höhe und die geographische Breite ungeeignete Koordinaten für die Diskussion dynamischer Prozesse in der polaren Stratosphäre sind. Die Position des Wirbelzentrums weicht oft erheblich vom geographischen Pol ab. Trajektorien von Luftpaketen verlaufen in der Regel nicht in konstanter geometrischer Höhe. Die Darstellung dynamischer Vorgänge als Funktion von  $\theta$  und  $Q$  ermöglicht eine dem Problem angemessenere Beschreibung [Hoskins *et al.*, 1985].

An dieser Stelle möchte ich eine Bemerkung zum Gebrauch der Begriffs „Höhe“ in dieser Arbeit einschieben. Im folgenden werden Höhenprofile diskutiert, die von

geometrische Höhe [km]	geopotentielle Höhe [km]
5	4,996
10	9,984
15	14,965
20	19,937
25	24,902
30	29,859
40	39,750
50	49,610

Tabelle 4.1: Zusammenhang zwischen geometrischer und geopotentieller Höhe [USSA, 1976].

pot. Temperatur [K]	Höhe [km]	Standardabweichung [km]
300	8,1	0,83
325	10,4	0,50
350	12,1	0,47
375	13,9	0,46
400	15,6	0,45
425	17,1	0,44
450	18,4	0,41
475	19,7	0,40
500	20,8	0,33
550	22,7	0,36
600	24,3	0,41
650	25,8	0,50
700	27,0	0,58

**Tabelle 4.2:** Zusammenhang zwischen Höhe und potentieller Temperatur für die Wintermonate in der polaren Stratosphäre. Als Maß für die Variabilität ist zusätzlich die Standardabweichung der geometrischen Höhenwerte angegeben.

unterschiedlichen Meßsystemen aufgenommen worden sind. Ballongetragene Radiosonden liefern Druck- und Temperaturprofile. Diese werden durch Integration der hydrostatischen Gleichung als Funktionen der geopotentiellen Höhe dargestellt. Lidar-Systeme dagegen messen Streukoeffizienten in Abhängigkeit von der geometrischen Höhe. Wie in Tab. 4.1 gezeigt wird, beträgt der Unterschied zwischen geopotentieller und geometrischer Höhe in 20 km Höhe etwa 60 m [USSA, 1976]. Diese Differenz ist etwa 30% der Höhenauflösung des Aerosol-Lidars (vgl. Kap. 7). Ich werde daher im folgenden den Unterschied zwischen geometrischer und geopotentieller Höhe vernachlässigen und einheitlich den Begriff „Höhe“ benutzen.

## 4.1 Potentielle Temperatur

Die potentielle Temperatur  $\theta$  ist *per definitionem* die Temperatur, die ein Luftpaket besitzt, nachdem es adiabatisch, also ohne Zu- oder Abfuhr von Wärmeenergie, von der Temperatur  $T$  und dem Druck  $p$  auf einen Referenzdruck  $p_0$  komprimiert oder expandiert worden ist [z.B. Andrews, 1987; Rogers und Yau, 1989],

$$\theta = T \left( \frac{p_0}{p} \right)^{\frac{c_p - c_v}{c_v}}.$$

Hier bezeichnet  $c_p = 1005 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$  die spezifische Wärme von Luft bei konstantem Druck,  $c_v = 718 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$  ist die spezifische Wärme bei konstantem Volumen. Der Referenzdruck beträgt  $p_0 = 1000 \text{ hPa}$ . Adiabatische Transportprozesse finden auf Flächen konstanter potentieller Temperatur statt. Diese Flächen werden auch als Isentropen bezeichnet.

Da in einer statisch stabilen Atmosphäre die potentielle Temperatur monoton mit der Höhe zunimmt, kann man  $\theta$  als Höhenvariable interpretieren. Tabelle 4.2 gibt

einen Überblick über die Höhenbereiche, in denen bestimmte Niveaus der potentiellen Temperatur in der polaren Stratosphäre während der Wintermonate zu finden sind.

## 4.2 Potentielle Wirbelstärke

Ein quantitatives Maß für die polare Zirkulation ist die potentielle Wirbelstärke  $Q$ . Sie ist in der hydrostatischen Näherung gegeben durch [z.B. Houghton, 1977; Hoskins *et al.*, 1985]

$$Q \approx -g \frac{\partial \theta}{\partial p} (f + \zeta_\theta), \quad (4.1)$$

wobei  $f$  den Coriolis-Parameter und  $\zeta_\theta = (\nabla \times \vec{u})_\theta$  die  $\theta$ -Komponente der Rotation des Windfeldes  $\vec{u}$  bezeichnet. Die Einheit von  $Q$  ist nach Gl. 4.1  $\text{K m}^2 \text{s}^{-1} \text{kg}^{-1}$ . Ich werde im folgenden für  $10^{-6} \text{K m}^2 \text{s}^{-1} \text{kg}^{-1}$  die Abkürzung 1 PWE (potentielle Wirbelstärkeneinheit) benutzen. Die potentielle Wirbelstärke ist für adiabatische Transportprozesse eine erhaltene Größe.  $Q$  ist daher dem Mischungsverhältnis einer chemischen Substanz vergleichbar, für die keine Quellen oder Senken vorhanden ist.

Anhand von Druck-, Temperatur- und Windfeldern kann die potentielle Wirbelstärke nach Gl. 4.1 berechnet und auf Isentropen graphisch dargestellt werden [Hoskins *et al.*, 1985; Knudsen *et al.*, 1992]. Diese Stratosphärenkarten zeigen während der Polarnacht eine in der Regel monotone Zunahme der potentiellen Wirbelstärke mit abnehmender Distanz zum Wirbelzentrum. In der Zone, in der die höchsten zonalen Windgeschwindigkeiten auftreten, nimmt das Betragsquadrat des Gradienten von  $Q$  — ermittelt auf der Fläche konstanter potentieller Temperatur — maximale Werte an. Man definiert daher die Wirbelgrenze als den Bereich, in dem dieser Meridionalgradient von  $Q$  maximal wird. In grober Näherung kann man davon ausgehen, daß auf der 425 K-Isentrope die Wirbelgrenze bei etwa 21 PWE, auf 475 K bei etwa 36 PWE und auf 550 K bei etwa 70 PWE zu finden ist [Knudsen *et al.*, 1992].

## 4.3 Der Polarwirbel

Das Temperaturprofil in der polaren Stratosphäre während des Polarsommers ist charakterisiert durch einen positiven Temperaturgradienten im Höhenbereich zwischen der Tropopause in etwa 8–10 km Höhe und der Stratopause in etwa 50 km Höhe. Diese Temperaturzunahme wird durch die Absorption von Solarstrahlung im ultravioletten Spektralbereich durch das Spurengas Ozon verursacht. Es besteht ein Strahlungsgleichgewicht zwischen Erwärmung durch UV-Absorption und Auskühlung durch Emission im infraroten Bereich des Spektrums.

### 4.3.1 Entstehung des arktischen Vortex

Mit Beginn der Polarnacht geht der solare Energieeintrag zurück und die Stratosphäre kühlt sich ab. Als Folge der Abkühlung sinken die stratosphärischen Luft-

schichten ab und es bildet sich ein meridionaler Druckgradient aus. Die Komprimierung der Luftpakete während des Absinkens führt wiederum zu einer Temperaturerhöhung, die dem Auskühlen entgegenwirkt. Unterhalb von 30 km stellt sich ein neues Strahlungsgleichgewicht ein und die Absinkbewegung geht zurück [Schoeberl und Hartmann, 1991]. Unter dem Einfluß der Coriolis-Kraft werden die Luftpakete, die der meridionalen Druckgradientenkraft folgen, nach Osten abgelenkt. In der mittleren und oberen Stratosphäre entsteht eine Zone starker Westwinde mit Windgeschwindigkeiten von über 100 m/s [Schoeberl und Hartmann, 1991; Schoeberl *et al.*, 1992]. Der Bereich dieses Starkwindbands definiert die Grenzen des Polarwirbels.

Die innerhalb des Wirbels aus der oberen Stratosphäre absinkenden Luftmassen führen die in ihnen enthaltenen Spurengasmischungsverhältnisse mit sich. Zwar sind außerhalb des Wirbels die Absinkraten u.U. größer, da die Luft wärmer ist und damit die erreichbaren Abkühlraten größer sind, jedoch führt hier die Aktivität planetarischer Wellen zu einer stärkeren meridionalen Durchmischung als innerhalb des Vortex und verhindert vertikale Verschiebungen von Mischungsverhältnissen. Beide Prozesse, die Absinkbewegung innerhalb und die Durchmischung außerhalb des Wirbels, verursachen eine scheinbare vertikale Verschiebung von etwa 2–3 km während der Wintermonate [Schoeberl und Hartmann, 1991].

#### **4.3.2 Unterschiede zwischen arktischem und antarktischem Vortex**

Der Polarwirbel der Südhemisphäre ist in der Regel stärker ausgeprägt als der arktische Vortex. Er überdeckt eine größere Fläche, es werden tiefere Temperaturen beobachtet und die polare Zirkulation ist über einen längeren Zeitraum hin stabil.

Die Ursachen für die Labilität des arktischen Wirbels sind Störungen der arktischen Zirkulation durch planetarische Wellen. Diese periodischen Dichteschwankungen sind troposphärischen Ursprungs. Sie werden durch Gebirgszüge angeregt und breiten sich in die Stratosphäre aus. Aufgrund der mit der Höhe abnehmenden Luftdichte nimmt die Amplitude der Welle während ihrer Ausbreitung exponentiell zu und führt schließlich zu einer lokalen Instabilität der Atmosphäre mit der Folge der Dissipation der Wellenenergie [McIntyre und Palmer, 1983]. Eine derartige Störung ist in der Regel von Temperaturerhöhungen begleitet. So ist beispielsweise im Januar 1992 in der arktischen Stratosphäre eine Temperaturerhöhung von mehr als 50 K innerhalb weniger Tage beobachtet worden [Naujokat *et al.*, 1992]. Reicht die Temperaturerhöhung aus, um das Vorzeichen des meridionalen Temperaturgradienten umzukehren und wechselt darüberhinaus die vorherrschende zonale Luftströmung ihre Richtung, spricht man von einer Stratosphärenenerwärmung [Naujokat *et al.*, 1992].

Aufgrund der unterschiedlichen Orographie der Antarktis sind Störungen der polaren Zirkulation durch planetarische Wellen in der Südhemisphäre von geringerer Bedeutung als in der Arktis. Der Temperaturhaushalt des antarktischen Wirbels ist daher in erster Linie strahlungsdominiert. Dies hat zur Folge, daß der antarktische Vortex bis mindestens Anfang oder Mitte Oktober bestehen bleibt. Der Wirbel

stabilisiert den chemisch gestörten Zustand der Stratosphäre solange, bis die im Oktober beginnende solare Einstrahlung den katalytischen Ozonabbau initiieren kann [Anderson *et al.*, 1991]. In der Arktis dagegen führen Störungen der polaren Zirkulation bereits im Februar zum Einfließen von Luft subpolarer Herkunft und damit zu einem Rückgang der erhöhten ClO-Mischungsverhältnisse. Zu diesem Zeitpunkt ist der größte Teil des Wirbels noch nicht von Sonnenlicht beschienen und ein chemischer Ozonabbau, der in Grad und Ausdehnung mit dem antarktischen vergleichbar wäre, tritt nicht auf.





# Kapitel 5

## Molekül- und Partikelstreuung

Die Laserstrahlen, die das Aerosol-Lidar emittiert, werden von den Molekülen der Atmosphäre und dem suspendierten partikulären Material gestreut und absorbiert. Ersteres bezeichnet man als Molekülstreuung, letzteres als Partikelstreuung, falls die Ausdehnung des streuenden Objekts von gleicher Größenordnung wie die Wellenlänge  $\lambda$  des eingestrahlten Lichts ist [z.B. Kerker, 1969; Jackson, 1983; van de Hulst, 1957; Bohren und Huffman, 1983]. Der Spezialfall der Streuung an einer optisch homogenen Kugel heißt Mie-Streuung. Die Wechselwirkung von Licht mit Objekten, deren Dimensionen sehr viel größer als  $\lambda$  sind, wird durch die Gesetze der geometrischen Optik beschrieben [z.B. Born und Wolf, 1980]. Die Wirkungsquerschnitte für Molekül- und Partikelstreuung sind abhängig von der Wellenlänge des eingestrahlten Lichts sowie von den optischen Eigenschaften und der Dimension des streuenden Teilchens.

In den folgenden Abschnitten werden einige Aspekte der Molekül- und Partikelstreuung diskutiert, die für die vorliegende Arbeit von Bedeutung sind. Da in den Aerosol-Lidar-Messungen neben der Intensität auch die Änderung des Polarisationszustands der emittierten Lichtwelle bestimmt wird, beginne ich die Darstellung mit der Definition von Stokes-Vektoren und Müller-Matrizen. Im Anschluß wird auf die Berechnung von Molekül- und Partikelstreuoeffizienten eingegangen.

### 5.1 Stokes-Vektoren und Müller-Matrizen

Im folgenden betrachte ich eine quasi-monochromatische elektromagnetische Welle der Frequenz  $\nu$  mit dem Wellenvektor  $\vec{k}$ ,

$$\vec{E}(t) = (E_{\parallel}(t) \hat{e}_{\parallel} + E_{\perp}(t) \hat{e}_{\perp}) \exp(i(\vec{k} \vec{r} - 2\pi \nu t)).$$

Hier bezeichnen  $\hat{e}_{\parallel}$  und  $\hat{e}_{\perp}$  die Einheitsvektoren senkrecht zur Ausbreitungsrichtung sowie  $E_{\parallel}(t)$  und  $E_{\perp}(t)$  den Betrag der elektrischen Feldstärke in Richtung von  $\hat{e}_{\parallel}$  und  $\hat{e}_{\perp}$ . Auf einer Zeitskala, die deutlich größer als die inverse Frequenz ist ( $T \gg 1/\nu$ ), kann die Lichtwelle durch vier Größen charakterisiert werden: die Intensität der  $\perp$ - und der  $\parallel$ -Komponente, die Phasendifferenz zwischen der  $\perp$ - und der  $\parallel$ -Komponente und der prozentuale Anteil des vollständig polarisierten Lichts. Es gibt verschiedene Möglichkeiten der Darstellung dieser vier-elementigen Größe [van de Hulst, 1957;

Shurcliff, 1962; Clarke und Grainger, 1971; Bohren und Huffman, 1983]. Ungeachtet der differierenden Definitionen bezeichnet man diese Größe als Stokes-Vektor  $\vec{P} = (P_1, P_2, P_3, P_4)$ . Ich folge der Notation von Bohren und Huffman [1983],

$$\begin{aligned} P_1 &= \langle E_{\parallel} E_{\parallel}^* + E_{\perp} E_{\perp}^* \rangle \\ P_2 &= \langle E_{\parallel} E_{\parallel}^* - E_{\perp} E_{\perp}^* \rangle \\ P_3 &= \langle E_{\parallel} E_{\perp}^* + E_{\perp} E_{\parallel}^* \rangle \\ P_4 &= i \langle E_{\parallel} E_{\perp}^* - E_{\perp} E_{\parallel}^* \rangle . \end{aligned}$$

Die zeitliche Mittelung, angedeutet durch die eckigen Klammern, erfolgt über einen Beobachtungszeitraum  $T \gg 1/\nu$ .  $E_{\parallel}^*$  ist die komplex Konjugierte von  $E_{\parallel}$ .  $P_1$  ist proportional zur Gesamtintensität der Lichtwelle,  $P_2$  ist proportional zur Intensität des parallel ( $0^\circ$ ) oder senkrecht ( $90^\circ$ ) polarisierten Anteils,  $P_3$  ist proportional zur Intensität des unter  $45^\circ$  oder  $135^\circ$  polarisierten Anteils und  $P_4$  ist proportional zur Intensität des zirkular polarisierten Anteils [Bohren und Huffman, 1983]. Da im Rahmen dieser Arbeit die Absolutbeträge von Lichtintensitäten nicht von Belang sind, identifiziere ich im folgenden  $P_1$  mit der Gesamtintensität. Entsprechend verfare ich für  $P_2$ ,  $P_3$  und  $P_4$ . Der polarisierte Anteil der Lichtwelle ist gegeben durch

$$p = \frac{\sqrt{(P_2)^2 + (P_3)^2 + (P_4)^2}}{P_1} .$$

Man bezeichnet  $p$  als Polarisationsgrad [van de Hulst, 1957; Bohren und Huffman, 1983]. Vollständig parallel oder senkrecht polarisiertes Licht besitzt demnach einen Polarisationsgrad von eins. Für parallel bzw. senkrecht linear polarisiertes Licht ( $P_3 = 0 = P_4$ ) definiere ich die Depolarisation  $\delta$  durch die Beziehung

$$\begin{aligned} \delta &= \frac{P_1 - P_2}{P_1 + P_2} \\ &= \frac{1 - p}{1 + p} . \end{aligned}$$

Beschreibt der Stokes-Vektor  $\vec{P}$  die aus einem Atmosphärenvolumen zurückgestreute Lichtwelle, werde ich im folgenden  $\delta$  auch als Volumendepolarisation bezeichnen.

Aufgrund der Linearität der elektromagnetischen Wechselwirkung können die Komponenten des Stokes-Vektors einer gestreuten Lichtwelle  $\vec{P}^r$  als Linearkombination der Stokes-Komponenten des einfallenden Lichts  $\vec{P}^e$  dargestellt werden,

$$\vec{P}^r = F \vec{P}^e .$$

Die  $4 \times 4$ -Matrix  $F$  bezeichnet man als Müller-Matrix. Jeder Streuprozess läßt sich in eindeutiger Weise durch eine Müller-Matrix beschreiben. Dies gilt für die Streuung an Molekülen oder Partikeln, aber auch für die Transmission durch Linearpolarisatoren oder Verzögerungsplatten und für die Reflexion an Oberflächen.

## 5.2 Molekülstreuung

Die Streuung einer elektromagnetischen Welle an Molekülen oder Atomen bezeichnet man als Molekülstreuung. Das Streuspektrum enthält Komponenten der Rayleigh-Streuung und der Vibrations-Raman-Streuung [Young, 1981]. Letztere werden durch

$T_s^s = 1 + \frac{4\epsilon}{45}$	$T_s^p = \frac{3\epsilon}{45}$	$T_s^o = 1 + \frac{7\epsilon}{45}$
$T_p^s = \frac{3\epsilon}{45}$	$T_p^p = \frac{3\epsilon}{45} + (1 + \frac{\epsilon}{45}) \cos^2(\theta)$	$T_p^o = \frac{6\epsilon}{45} + (1 + \frac{\epsilon}{45}) \cos^2(\theta)$
$T_o^s = 1 + \frac{7\epsilon}{45}$	$T_o^p = \frac{6\epsilon}{45} + (1 + \frac{\epsilon}{45}) \cos^2(\theta)$	$T_o^o = 1 + \frac{13\epsilon}{45} + (1 + \frac{\epsilon}{45}) \cos^2(\theta)$

**Tabelle 5.1:** Depolarisationsfaktoren für Rayleighstreuung.  $\theta$  ist der Streuwinkel und  $\epsilon$  der Anisotropiefaktor. Die Superskripts  $s$ ,  $p$  und  $o$  bezeichnen senkrecht und parallel polarisiertes sowie unpolarisiert einfallendes Licht. Die Subskripts  $s$ ,  $p$  und  $o$  kennzeichnen die senkrecht und parallel polarisierte Komponente der Streustrahlung sowie die Summe der beiden Komponenten [Young, 1982].

Änderungen von Vibrationszuständen des streuenden Moleküls verursacht. Das Rayleigh-Spektrum seinerseits besteht aus der zentralen Cabannes-Linie und Rotations-Raman-Linien. Ebenso wie die Cabannes-Linie sind auch die Vibrations-Raman-Linien von Rotations-Raman-Linien umgeben. Die Frequenzdifferenzen zwischen den Raman-Linien und der zentralen Cabannes-Linie sind jeweils molekülspezifisch.

Die spektrale Auflösung  $\Delta\lambda/\lambda$  des Aerosol-Lidar-Detektors beträgt etwa 0,01 bis 0,03 (vgl. Abschnitt 7.4). Eine Trennung des Rotations-Raman-Spektrums von der Cabannes-Linie ist mit dieser geringen Auflösung nicht möglich und ich beschränke mich daher in der folgenden Diskussion auf die Beschreibung der Rayleigh-Streuung.

### 5.2.1 Rayleigh-Streuquerschnitt

Der differentielle Rayleigh-Streuquerschnitt  $d\sigma_{\text{Str}}^{\text{Ray}}/d\Omega(\theta, \phi)$  für linear polarisiert eingestrahktes Licht ist [Jackson, 1983; Kerker, 1969; Young, 1981]

$$\frac{d\sigma_{\text{Str}}^{\text{Ray}}}{d\Omega}(\theta, \phi) = \frac{\pi^2 |m(\lambda)^2 - 1|^2}{(\mathcal{N}^{\text{Mol}})^2 \lambda^4} \left( T_o^s(\theta, \epsilon) \cos^2 \phi + T_o^p(\theta, \epsilon) \sin^2 \phi \right). \quad (5.1)$$

Der Winkel  $\theta$  bezeichnet den Streuwinkel,  $\phi$  den Winkel zwischen der Polarisations-ebene des einfallenden Lichts und der Streuebene,  $\lambda$  die Wellenlänge und  $\mathcal{N}^{\text{Mol}}$  die Molekülteilchendichte. Der Brechungsindex  $m(\lambda)$  ist eine Funktion der Wellenlänge; im sichtbaren Spektralbereich ist die effektive Wellenlängenabhängigkeit des Streuquerschnitts etwa proportional  $\lambda^{-4,08}$  [Penndorf, 1957; Young, 1982]. Die Faktoren  $T_x^y(\theta, \epsilon)$  hängen ab von  $\theta$  und dem Anisotropiefaktor  $\epsilon$ . Tab. 5.1 listet  $T_x^y(\theta, \epsilon)$  für verschiedene Polarisationszustände des einfallenden und gestreuten Lichts auf. Mit den von Young [1981] zitierten Resultaten von Laboruntersuchungen, die bei Wellenlängen von 488 und 515 nm durchgeführt worden sind, erhält man als Wert für den Anisotropiefaktor  $\epsilon = 0,2163$ . Diesen Wert werde ich im folgenden der Auswertung bei der Lidar-Wellenlänge von 532 nm zugrunde legen.

Der Rayleigh-Rückstreuquerschnitt berechnet sich mittels Gl. 5.1 und Tab. 5.1 zu

$$\frac{d\sigma_{\text{Str}}^{\text{Ray}}}{d\Omega}(\theta = \pi) = \frac{d\sigma_{\text{Rck}}^{\text{Ray}}}{d\Omega} = \frac{\pi^2 |m(\lambda)^2 - 1|^2}{(\mathcal{N}^{\text{Mol}})^2 \lambda^4} \left( 1 + \frac{7\epsilon}{45} \right). \quad (5.2)$$

Den totalen Rayleigh-Streuquerschnitt erhält man durch Integration von Gl. 5.1 über den gesamten Raumwinkel

$$\sigma_{\text{Str}}^{\text{Ray}} = \frac{8\pi}{3} \frac{\pi^2 |m(\lambda)^2 - 1|^2}{(\mathcal{N}^{\text{Mol}})^2 \lambda^4} \left(1 + \frac{2\epsilon}{9}\right). \quad (5.3)$$

Aus Gl. 5.2 und 5.3 folgt, daß das Verhältnis von totalem Rayleigh-Streuquerschnitt zu Rayleigh-Rückstreuquerschnitt eine Konstante ist,

$$\begin{aligned} L^{\text{Ray}} &= \frac{\sigma_{\text{Str}}^{\text{Ray}}}{d\sigma_{\text{Rck}}^{\text{Ray}}/d\Omega} \\ &= \frac{8\pi}{3} \frac{45 + 10\epsilon}{45 + 7\epsilon}. \end{aligned} \quad (5.4)$$

Im folgenden werde ich  $L^{\text{Ray}}$  auch als Rayleigh-Streuverhältnis bezeichnen. Die Depolarisation des Lidar-Rückstreulichts für einen linear polarisierten, einfallenden Strahl ist durch

$$\begin{aligned} \delta^{\text{Ray}} &= \frac{T_s^p}{T_p^p} \\ &= \frac{3\epsilon}{4\epsilon + 45} \\ &\approx 0,0141 \end{aligned} \quad (5.5)$$

gegeben.

## 5.2.2 Streu- und Extinktionskoeffizienten

Für die Auswertung der Lidar-Daten erweist sich die Verwendung des Rayleigh-Rückstreuquerschnitts als sinnvoll. Er ist gegeben durch

$$\beta^{\text{Ray}}(\lambda) = \frac{d\sigma_{\text{Rck}}^{\text{Ray}}}{d\Omega}(\lambda) \mathcal{N}^{\text{Mol}}.$$

$\mathcal{N}^{\text{Mol}}$  bezeichnet die Molekülteildichte. In analoger Weise ist der Rayleigh-Extinktionskoeffizient definiert,

$$\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Mol}}(\lambda) = \sigma_{\text{Str}}^{\text{Ray}}(\lambda) \mathcal{N}^{\text{Mol}} + \alpha_{\text{Abs}}^{\text{Mol}}(\lambda).$$

$\alpha_{\text{Abs}}^{\text{Mol}}$  ist der durch Absorption verursachte Beitrag zum Extinktionskoeffizienten.

## 5.2.3 Linienbreiten

Die Linienbreite im Streuspektrum ist beeinflusst durch die natürliche Linienbreite und die Doppler-Verbreiterung. Dieser Abschnitt enthält eine Abschätzung darüber, inwieweit Linienverbreiterung unter atmosphärischen Bedingungen berücksichtigt werden muß.

Die endliche Lebensdauer angeregter Energiezustände eines Moleküls führt zu einer natürlichen Linienbreite (FWHM) von [z.B. Measures, 1984]

$$\Delta\lambda = \frac{\lambda^2}{\pi c \tau},$$

wobei  $\tau$  die Lebensdauer des angeregten Zustands und  $c$  die Lichtgeschwindigkeit bezeichnet. Mit  $\tau = 10^{-8}$  sec und  $\lambda = 532$  nm ergibt sich eine Linienbreite von etwa 0,01 pm. Diese Linienbreite liegt um fast sechs Größenordnungen unter den Halbwertsbreiten der im Detektor des Aerosol-Lidars verwendeten Interferenzfilter und wird daher im folgenden vernachlässigt (vgl. Abschnitt 7.4).

Ein Molekül, das sich in Richtung des einfallenden Strahls mit der Geschwindigkeit  $v_z$  bewegt, wird aufgrund des Doppler-Effekts Licht mit der Frequenzverschiebung

$$\Delta\nu = \nu_0 \frac{v_z}{c}$$

emittieren.  $\nu_0$  bezeichnet die Frequenz des Streulichts im Bezugssystem des Moleküls. Unter der Annahme einer Maxwell'schen Geschwindigkeitsverteilung erhält man eine Linienbreite (FWHM) von

$$\Delta\lambda = 2 \lambda_0 \sqrt{\frac{2 \ln(2) k T}{m c^2}}.$$

$m$  bezeichnet die mittlere Molekülmasse. Für  $\lambda_0 = 532$  nm und  $T = 220$  K beträgt die Linienbreite 1,5 pm. Die Dopplerlinienbreite ist damit fast vier Größenordnungen geringer als die Breite der Interferenzfilter und wird daher im folgenden ebenso wie die natürliche Linienbreite nicht berücksichtigt.

### 5.3 Mie-Streuung

Die Streuung von elektromagnetischen Wellen an Objekten, deren Ausdehnung mit der Wellenlänge des eingestrahlten Lichts vergleichbar ist, bezeichnet man als Partikelstreuung. Nur für wenige, spezielle Teilchenformen existieren analytische Lösungen dieses Streuproblems. Die für Aerosoluntersuchungen wichtigste analytische Lösung ist die Streuung an einer homogenen Kugel (Mie-Streuung). In den vergangenen Jahren sind auch für komplexere Teilchenformen Algorithmen zur Berechnung von Wirkungsquerschnitten entwickelt worden [z.B. Chylek *et al.*, 1976; Wiscombe, 1980; Mugnai und Wiscombe, 1986]. Ein gemeinsames Merkmal aller dieser Lösungen ist, daß sie nur mit hohem numerischen Aufwand auswertbar sind. Ich beschränke mich daher im folgenden auf den vergleichsweise einfachen Fall der Mie-Streuung.

Die Dimensionen, die das Streuproblem charakterisieren, sind der Kugelradius  $r$  und die Wellenlänge  $\lambda$  des einfallenden Lichts. Daraus ergibt sich, daß die Streueffizienz  $Q^{\text{Str}}$ , d.h. der auf das geometrische Profil der Kugel normierte Wirkungsquerschnitt

$$Q^{\text{Str}} = \frac{d\sigma_{\text{Str}}^{\text{Aer}}/d\Omega}{\pi r^2},$$

nur von dem dimensionslosen Quotienten  $r/\lambda$  abhängt. Man definiert daher eine dimensionslose Größe als

$$x = \frac{2\pi r}{\lambda}$$

und bezeichnet sie als Größenparameter.

### 5.3.1 Mie-Streueffizienzen

Die Berechnung der Streueffizienzen erfolgt durch Entwicklung der  $\vec{E}$ -Felder innerhalb und außerhalb der Kugel nach Vektorkugelfunktionen unter Berücksichtigung der Stetigkeit der Feldkomponenten senkrecht zur Kugeloberfläche. Die Müller-Matrix für Rückwärtsstreuung an einer homogenen Kugel mit dem Brechungsindex  $m$  ist gegeben durch [Bohren und Huffman, 1983]

$$F = \frac{1}{x^2} \begin{pmatrix} S_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & S_{11} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -S_{11} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -S_{11} \end{pmatrix}, \quad (5.6)$$

wobei

$$\begin{aligned} S_{11} &= \left| \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n (2n+1) (a_n - b_n) \right|^2 \\ a_n &= \frac{m \psi_n(mx) d\psi_n(x)/dx - \psi_n(x) d\psi_n(mx)/dx}{m \psi_n(mx) d\xi_n(x)/dx - \xi_n(x) d\psi_n(mx)/dx} \\ b_n &= \frac{\psi_n(mx) d\psi_n(x)/dx - m \psi_n(x) d\psi_n(mx)/dx}{\psi_n(mx) d\xi_n(x)/dx - m \xi_n(x) d\psi_n(mx)/dx} \\ \psi_n(x) &= x j_n(x) \\ \xi_n(x) &= x h_n^{(1)}(x). \end{aligned}$$

$j_n(x)$  und  $h_n^{(1)}(x)$  sind die sphärischen Bessel- und sphärischen Hankel-Funktionen.

Aus der Form der Müller-Matrix in Gl. 5.6 ist zu erkennen, daß Mie-Streuung unter Rückwärtsrichtung den Polarisationsgrad der einlaufenden Lichtwelle beim Streuprozeß nicht ändert. Dies ist ein wesentlicher Unterschied zur Rayleigh-Streuung, die nach Gl. 5.5 für Rückwärtsstreuung eine Depolarisation von  $\delta^{\text{Ray}} = 0,0141$  verursacht.

Die Rückstreueffizienz  $Q^{\text{Rck}}$  berechnet sich zu [Bohren und Huffman, 1983]

$$\begin{aligned} Q^{\text{Rck}} &= \frac{d\sigma_{\text{Rck}}^{\text{Aer}}/d\Omega}{\pi r^2} \\ &= \frac{1}{4\pi x^2} \left| \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n (2n+1) (a_n - b_n) \right|^2. \end{aligned} \quad (5.7)$$

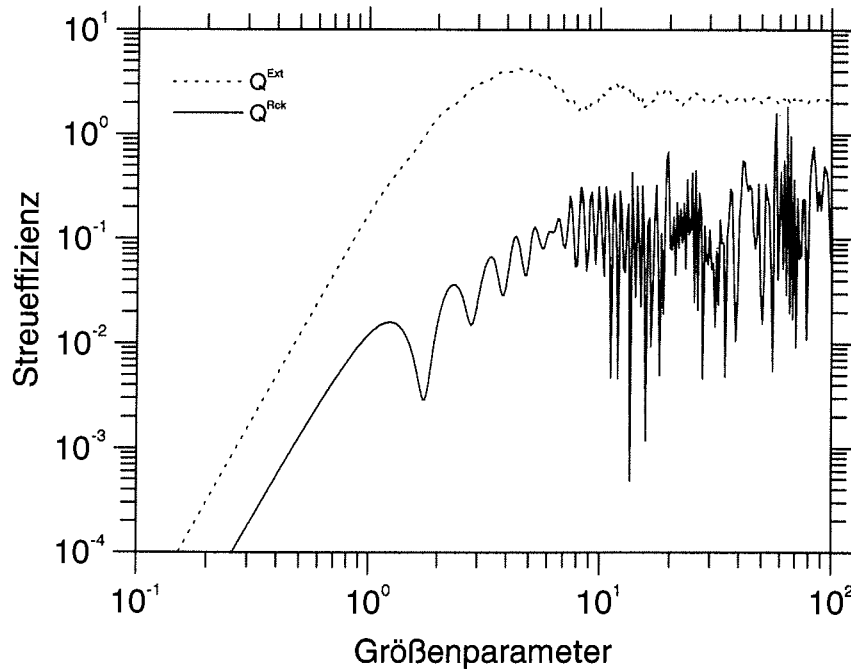


Abbildung 5.1: Die Rückstre- und Extinktionseffizienz einer Kugel mit dem Brechungsindex  $1,45 - i0$  als Funktion des Größenparameters  $x = 2\pi r/\lambda$ .

Die Extinktionseffizienz  $Q^{\text{Ext}}$  ist durch die Reihenentwicklung

$$\begin{aligned}
 Q^{\text{Ext}} &= \frac{\sigma_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}}{\pi r^2} \\
 &= \frac{2}{x^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \Re(a_n + b_n)
 \end{aligned} \tag{5.8}$$

gegeben [Bohren und Huffman, 1983].  $\Re(x)$  bezeichnet den Realteil von  $x$ .

### 5.3.2 Streu- und Extinktionskoeffizienten

Ebenso wie für Rayleigh-Streuung kann man auch für Mie-Streuung Extinktions- und Rückstreukoeffizienten definieren. Da Partikel mit unterschiedlichen Radien unterschiedliche Streueffizienzen aufweisen, sind die Wirkungsquerschnitte mit der Größenverteilung  $dN^{\text{Aer}}/dr$  zu wichten. Der Mie-Rückstreukoeffizient ist daher gegeben durch

$$\begin{aligned}
 \beta^{\text{Aer}}(\lambda, m) &= \int_0^{\infty} dr \frac{d\sigma_{\text{Rck}}^{\text{Aer}}}{d\Omega}(r, \lambda, m) \frac{dN^{\text{Aer}}}{dr}(r) \\
 &= \int_0^{\infty} dr \pi r^2 Q^{\text{Rck}}(r, \lambda, m) \frac{dN^{\text{Aer}}}{dr}(r).
 \end{aligned}$$

Entsprechend definiert man den Mie-Extinktionskoeffizienten,

$$\begin{aligned}\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}(\lambda, m) &= \int_0^{\infty} dr \sigma_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}(r, \lambda, m) \frac{dN^{\text{Aer}}}{dr}(r) \\ &= \int_0^{\infty} dr \pi r^2 Q^{\text{Ext}}(r, \lambda, m) \frac{dN^{\text{Aer}}}{dr}(r).\end{aligned}\quad (5.9)$$

Analog zu Gl. 5.4 bezeichne ich im folgenden das Verhältnis

$$L^{\text{Aer}}(\lambda, m) = \frac{\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}(\lambda, m)}{\beta^{\text{Aer}}(\lambda, m)} \quad (5.10)$$

als Mie-Streuverhältnis. Im Gegensatz zu  $L^{\text{Ray}}$  weist  $L^{\text{Aer}}$  eine deutliche Abhängigkeit von Wellenlänge und Brechungsindex auf.

### 5.3.3 Numerische Berechnung

In der Literatur existieren optimierte Algorithmen zur numerischen Berechnung der Funktionen  $j_n(x)$  und  $h_n^{(1)}(x)$  sowie zur Bestimmung des Abbruchkriteriums in den Entwicklungen in Gl. 5.7 und 5.8 [Wiscombe, 1980; Bohren und Huffman, 1983]. Für die vorliegende Arbeit sind die in Bohren und Huffman [1983] veröffentlichten Algorithmen verwendet worden.

Abb. 5.1 zeigt die Rückstreu- und Extinktionseffizienz einer Kugel mit dem Brechungsindex  $1,45 - i0$  als Funktion des Größenparameters  $x$ . Für  $x < 1$  ist die Streueffizienz proportional zu  $r^4$  (Rayleigh-Streuung),  $x \gg 1$  ist der Bereich der geometrischen Optik. Charakteristisch für Mie-Streueffizienzen sind die Interferenzstrukturen im Bereich  $x > 1$ . Diese Strukturen werden durch Wellen verursacht, die sich auf der Oberfläche der Kugel ausbreiten und je nach Kugelradius und Wellenlänge konstruktiv oder destruktiv interferieren.



## Kapitel 6

# Lidar-Meßverfahren für Stratosphärenuntersuchungen

Für Untersuchungen des stratosphärischen Aerosols werden verschiedene, zum Teil komplementäre Meßverfahren eingesetzt. Die mikrophysikalische Struktur des partikulären Materials wird mit Hilfe von *in-situ*-Meßsystemen analysiert. Auf optischer Basis arbeitende Partikelzähler ermöglichen die Bestimmung von Größenspektren [z.B. Hofmann *et al.*, 1989; Rosen und Kjome, 1991; Deshler *et al.*, 1991]. Die Probennahme und anschließende Analyse im Labor liefert Aussagen über die chemische Zusammensetzung [z.B. Junge *et al.*, 1961; Dye *et al.*, 1992]. Diese *in-situ*-Instrumente werden von Ballons oder Flugzeugen in die Stratosphäre getragen; die Meßdauer ist daher in der Regel auf einen Zeitraum von wenigen Stunden begrenzt. Mit Fernerkundungsverfahren kann dagegen die zeitliche Entwicklung des stratosphärischen Aerosols über die für klimatologische Untersuchungen relevanten Zeiträume von Monaten bis Jahren aufgezeichnet werden. Satellitengestützte Instrumente erlauben eine große räumliche Abdeckung der Atmosphäre. Fernerkundungssysteme, die vom Boden aus betrieben werden, übertreffen in der Regel Satelliteninstrumente in bezug auf die räumliche und zeitliche Auflösung. Allerdings liefern bodengestützte Systeme nur Informationen über einen begrenzten räumlichen Bereich, sodaß für die Dateninterpretation oft Ergebnisse anderer Messungen herangezogen werden.

In diesem Kapitel beschränke ich mich auf die Diskussion des Lidar-Verfahrens. Das Akronym Lidar steht für *light detection and ranging*. Man könnte dies frei mit „Erkennung und Entfernungsbestimmung mit Hilfe elektromagnetischer Strahlung im infraroten, sichtbaren und ultravioletten Spektralbereich“ übersetzen. Das Meßprinzip entspricht dem Radar-Verfahren; man bezeichnet Lidar daher auch als optisches Radar. Das Lidar-Verfahren zählt zu den aktiven Fernerkundungsmeßmethoden. Ein Laserpuls wird über eine geeignete Aussendeoptik vertikal in die Atmosphäre emittiert. Die Moleküle der Luft und die in der Atmosphäre suspendierten Partikel streuen und absorbieren das Laserlicht (vgl. Kap. 5). Das Signal erfährt auf seinem Weg durch die Atmosphäre zusätzlich eine Abschwächung durch Absorption und Streuung.

Das in Rückwärtsrichtung gestreute Licht wird von einem Teleskop aufgefangen und auf ein Detektorsystem fokussiert. Dieses weist die Intensität des Rückstreusignals mit empfindlichen Photodetektoren nach und speichert das Zeitverhalten der

Detektorsignale in hoher zeitlicher Auflösung ab. Aus der Zeitdifferenz  $t$  zwischen Emission und Detektion läßt sich die Höhe  $z$  berechnen, in der der Streuprozess stattgefunden hat,

$$z = \frac{ct}{2} .$$

Die Höhengauflösung eines Lidars wird theoretisch durch die Pulslänge des emittierten Lasersignals  $\tau$  begrenzt; in der Praxis liegt die erreichte Höhengauflösung mindestens eine Größenordnung darüber [Measures, 1984].

In Abhängigkeit von der untersuchten Fragestellung werden verschiedene Lidar-Verfahren eingesetzt. Zu den wichtigsten zählen die folgenden drei Verfahren:

- Das Rayleigh- oder Rückstreu-Lidar detektiert auf der emittierten Wellenlänge. Das detektierte Spektrum umfaßt in der Regel die Cabannes-Linie und die Rotations-Raman-Linien.
- Das *Differential absorption lidar* oder DIAL-Lidar bestimmt Höhenprofile von Spurengaskonzentrationen. Dies wird durch Emission zweier Wellenlängen erreicht. Eine Wellenlänge ist auf eine Absorptionslinie des zu messenden Spurengases abgestimmt, die zweite liegt im Bereich neben der Linie. Durch Vergleich beider Rückstreusignale lassen sich Höhenprofile von Spurengaskonzentrationen berechnen.
- Die Moleküle der Atmosphäre emittieren nach dem Einstrahlen einer Lichtwelle neben der Cabannes-Linie auch Raman-verschobene Linien, wobei die Frequenzverschiebung zwischen eingestrahelter und emittierter Linie charakteristisch für ein bestimmtes Molekül ist. Lidar-Systeme, die zusätzlich zum elastischen Signal diese Raman-Linien detektieren, bezeichnet man als Raman-Lidar. Ein Raman-Lidar erlaubt die Separation der durch Streuung an Aerosolen und der durch Streuung an Molekülen verursachten Beiträge zum Rückstreusignal, da im Partikelstreuungsspektrum keine Raman-Linien vorhanden sind.

Da die dieser Arbeit zugrundeliegenden Messungen mit einem Rückstreu-Lidar durchgeführt worden sind, werde ich mich in der folgenden Diskussion auf diesen Lidar-Typ beschränken.

## 6.1 Lidar-Gleichung für unpolarisiertes Licht

Der Zusammenhang zwischen den physikalischen Atmosphärenparametern und dem Meßsignal wird durch die Lidar-Gleichung beschrieben. Ich stelle zunächst die Lidar-Gleichung für ein Rückstreu-Lidar unter der Annahme eines vollständig depolarisierten Emissionsstrahls vor. In Abschnitt 6.2 wird die Diskussion auf den Fall polarisierter Emission erweitert. Die Intensität des während des Zeitintervalles  $[2z/c, 2(z + \Delta z)/c]$  im Detektor nachgewiesenen Streulichts  $P^d(z, \lambda)$  ist zunächst proportional der Energie des emittierten Laserpulses  $P^e(\lambda)$ . Sie ist zweitens proportional der Summe der Rückstreuoeffizienten  $\beta^{\text{Ray}}(\lambda, z) + \beta^{\text{Aer}}(\lambda, z)$ . Drittens ist

sie proportional dem Raumwinkel  $A/z^2$ , unter dem das Streuvolumen die effektive Teleskopfläche  $A$  sieht. Schließlich ist zu berücksichtigen, daß der Laserpuls auf seinem Weg durch die Atmosphäre durch Streuung und Absorption abgeschwächt wird. Daher ist der Zusammenhang zwischen emittierter und detektierter Intensität gegeben durch [Measures, 1984]

$$P^d(z, \lambda) = D^k(\lambda) P^e(\lambda) \frac{A}{z^2} (\beta^{\text{Ray}}(z, \lambda) + \beta^{\text{Aer}}(z, \lambda)) O(z) T^2(z, \lambda) \Delta z \quad (6.1)$$

$$T(z, \lambda) = \exp \left( - \int_{z_0}^z d\tilde{z} \alpha_{\text{Ext}}^{\text{Mol}}(\tilde{z}, \lambda) + \alpha_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}(\tilde{z}, \lambda) \right),$$

wobei

$z$	die Höhe,
$\Delta z$	die Höhenauflösung des Detektors ( $\Delta z \gg c\tau/2$ ),
$O(z)$	den geometrischen Überlapp zwischen emittiertem Laserstrahl und Teleskopgesichtsfeld,
$D^k(\lambda)$	die Empfindlichkeit des Detektorkanals $k$ für die Wellenlänge $\lambda$ ,
$\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Mol}}(z, \lambda)$	den Rayleigh-Extinktionskoeffizienten,
$\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}(z, \lambda)$	den Partikelextinktionskoeffizienten,
$P^e(\lambda)$	die Intensität des zum Zeitpunkt $t$ und mit der Wellenlänge $\lambda$ emittierten Laserlichts,
$P^d(z, \lambda)$	die Intensität des zum Zeitpunkt $t = 2z/c$ und bei der Wellenlänge $\lambda$ detektierten Signals und
$T(z, \lambda)$	die Transmission der Atmosphäre zwischen der Beobachtungshöhe $z_0$ und der Höhe $z$

bezeichnet. Gl. 6.1 ist die Lidar-Gleichung. Sie ist in dieser Form nur gültig, wenn die folgenden Voraussetzungen erfüllt sind.

- Die optische Dicke der Atmosphäre ist so gering, daß Mehrfachstreuung gegenüber Einfachstreuung vernachlässigt werden kann.

Für eine Wellenlänge von 532 nm beträgt der Rayleigh-Extinktionskoeffizient in einer Höhe von 16 km etwa  $10^{-6}$  m.  $\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}$  übersteigt diesen Wert in der Regel um nicht mehr als eine Größenordnung. Daher ist die Annahme korrekt, daß Einfachstreuung in der Stratosphäre der dominierende Streuprozess ist.

- Die Zähleradditionszeit des Detektors übersteigt die Pulslänge des Laserpulses um mindestens eine Größenordnung (vgl. Kapitel 7).

Die Pulslängen der Laser, die in dieser Arbeit zum Einsatz gekommen sind, liegen zwischen 5 und 10 nsec. Die Höhenauflösung des Detektors beträgt 200 m. Dies entspricht einer Additionszeit von etwa 1,33  $\mu\text{sec}$ .

- Die spektrale Bandbreite des emittierten Laserpulses ist gegenüber der Wellenlängenabhängigkeit der Rückstreu- und Extinktionskoeffizienten vernachlässigbar gering.

Die Linienbreiten  $\Delta\lambda/\lambda$  der Laser betragen zwischen  $3 \cdot 10^{-5}$  und  $10^{-4}$  (vgl. Tab. 7.1 und 7.2). Über diesen spektralen Bereich hinweg ändern sich die Rayleigh-Extinktions- und -Rückstreuoeffizienten um etwa  $10^{-4}$  bis  $4 \cdot 10^{-4}$ .

Die Wellenlängenabhängigkeit von  $\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}$  und  $\beta^{\text{Aer}}$  ist in der Regel geringer als  $\lambda^{-4}$  und liegt daher noch unterhalb dieser Werte. Rückstreu- und Extinktionskoeffizienten können folglich in guter Näherung über den Spektralbereich als konstant angesehen werden.

## 6.2 Lidar-Gleichung für polarisiertes Licht

Enthält das Emissions- oder Streusignal einen polarisierten Anteil, muß die skalare Lidar-Gleichung durch eine Beziehung für die Stokes-Vektoren ersetzt werden [z.B. Kavaya, 1987; Anderson, 1989],

$$\begin{aligned} \vec{P}^r(z, \lambda) = & \left( F^{\text{Ray}} \beta^{\text{Ray}}(z, \lambda) + F^{\text{Aer}}(z) \beta^{\text{Aer}}(z, \lambda) \right) \\ & \times \vec{P}^e(\lambda) \frac{A}{z^2} O(z) T^2(z, \lambda) \Delta z . \end{aligned} \quad (6.2)$$

Es bezeichnet

- $F^{\text{Ray}}$  die Rayleigh-Streumatrix für Rückwärtsstreuung,
- $F^{\text{Aer}}(z)$  die Partikelstreumatrix für Rückwärtsstreuung,
- $\vec{P}^e(\lambda)$  den Stokes-Vektor des mit der Wellenlänge  $\lambda$  emittierten Laserlichts und
- $\vec{P}^r(z, \lambda)$  den Stokes-Vektor des in der Höhe  $z$  gestreuten Laserlichts vor Eintritt in Teleskop und Detektor.

In der Regel ändert ein realer Detektor den Polarisationszustand des Streusignals  $\vec{P}^r$ ,

$$\vec{P}^{d,k}(z, \lambda) = D^k \vec{P}^r(z, \lambda) . \quad (6.3)$$

Hier bezeichnet  $D^k$  die Müller-Matrix des  $k$ -ten Detektorkanals und  $\vec{P}^d$  den Stokes-Vektor des Lichts, dem der Photodetektor im Kanal  $k$  ausgesetzt ist. Die Rayleigh-Streumatrix für einen Streuwinkel von  $180^\circ$  hat die Form [van de Hulst, 1957; Bohren und Huffman, 1983]

$$F^{\text{Ray}} = \frac{1}{45 + 7\epsilon} \begin{pmatrix} 45 + 7\epsilon & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 45 + \epsilon & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -(45 + \epsilon) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -(45 + 45\epsilon) \end{pmatrix} \quad (6.4)$$

mit dem molekularen Anisotropiefaktor  $\epsilon$  (vgl. Abschnitt 5.2). Unter der Annahme einer isotropen, spiegelsymmetrischen Partikelverteilung ist die Streumatrix  $F^{\text{Aer}}$  gegeben durch [van de Hulst, 1957]

$$F^{\text{Aer}}(z) = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & a(z) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -a(z) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -b(z) \end{pmatrix} \quad (6.5)$$

Da die Form der Partikel in der Regel höhenabhängig ist, sind die positiven Parameter  $a(z)$  und  $b(z)$  Funktionen von  $z$ . Für sphärische Partikel gilt  $a = 1 = b$ . Der

Vorfaktor in Gl. 6.4 garantiert, daß Gl. 6.2 für unpolarisierte Emission in die skalare Form der Lidar-Gleichung übergeht.

Im folgenden verzichte ich der Übersichtlichkeit wegen auf die Indizierung mit dem Kanalindex  $k$ . Ist die Quantenausbeute der Photodetektoren unabhängig vom Polarisationszustand des eingestrahlt Lichts, hängt die Zählrate  $Z(z)$  im  $k$ -ten Detektorkanal nur von der ersten Komponente von  $\vec{P}^d$  ab. Unter der Voraussetzung, daß der Photodetektor nicht übersteuert wird, gilt daher

$$Z(z) = Z^s(z) + Z^u = C P_1^d(z) + Z^u . \quad (6.6)$$

$C$  bezeichnet die Detektorempfindlichkeit und  $Z^u$  die Untergrundzählrate im Kanal  $k$ .

Für parallel bzw. senkrecht linear polarisiertes Emissionslicht ( $\vec{P}^e = (P_1^e, P_2^e, 0, 0)$ ) verbleiben von Gl. 6.2 nur zwei nichttriviale Gleichungen, die skalare Lidar-Gleichung und eine Gleichung, die die Depolarisation des Rückstreusignals beschreibt,

$$P_1^r(z, \lambda) = \left( \beta^{\text{Ray}}(z, \lambda) + \beta^{\text{Aer}}(z, \lambda) \right) P_1^e(\lambda) \frac{A}{z^2} O(z) T^2(z, \lambda) \Delta z \quad (6.7)$$

$$P_2^r(z, \lambda) = \left( F_{22}^{\text{Ray}} \beta^{\text{Ray}}(z, \lambda) + F_{22}^{\text{Aer}} \beta^{\text{Aer}}(z, \lambda) \right) \times P_2^e(\lambda) \frac{A}{z^2} O(z) T^2(z, \lambda) \Delta z . \quad (6.8)$$

Für die Berechnung von  $\beta^{\text{Aer}}(z, \lambda)$  wird Gl. 6.7 verwendet. Gl. 6.8 in Kombination mit Gl. 6.7 gestattet die Bestimmung der Volumendepolarisation (vgl. Abschnitt 8.2). Wie die Diskussion des Klett-Verfahrens zur Berechnung von Rückstreukoeffizienten in Abschnitt 8.3 zeigen wird, genügt für die Berechnung von  $\beta^{\text{Aer}}$  die Kenntnis von  $\vec{P}^r(z, \lambda)$  bis auf eine multiplikative Konstante.

### 6.3 Rückstreuverhältnis

Der aus Lidar-Messungen abgeleitete Aerosolgehalt in der Atmosphäre wird üblicherweise in Form des Rückstreuverhältnisses angegeben. Das Rückstreuverhältnis  $R$  ist definiert als

$$R(z, \lambda) = \frac{\beta^{\text{Ray}}(z, \lambda) + \beta^{\text{Aer}}(z, \lambda)}{\beta^{\text{Ray}}(z, \lambda)} . \quad (6.9)$$

Für eine aerosolfreie Atmosphäre nimmt  $R$  den Wert eins an. Ebenso wie das Volumenmischungsverhältnis eines Tracers ist das Rückstreuverhältnis auf einer Zeitskala, während der die Zusammensetzung und die Größenverteilung des Aerosols als konstant angesehen werden kann, eine konservative Größe.



## Kapitel 7

# Mehrwellenlängen-Aerosol-Lidar

Seit Sommer 1988 betreibt das Alfred-Wegener-Institut in Zusammenarbeit mit dem Institut für Umweltphysik der Universität Bremen ein DIAL-Ozon-Lidar an der deutschen Arktisforschungsstation (Koldewey-Station) in Ny-Ålesund auf Spitzbergen (79°N, 12°O). In den Wintern 1988/89 und 1989/90 wurde die Auswertung der Ozon-Lidar-Messungen durch das Auftreten von polaren stratosphärischen Wolken (PSW) erschwert. Wie in Abschnitt 1.2 erläutert worden ist, haben PSW eine zentrale Funktion für die gestörte Stratosphärenchemie in der Antarktis, die für Ozonabbauprozesse während des antarktischen Frühlings verantwortlich ist. Für die Beantwortung der Frage, inwieweit man die antarktischen Verhältnisse auf die Arktis übertragen kann, ist eine quantitative Charakterisierung des stratosphärischen Aerosols erforderlich. Weitere Fragestellungen ergaben sich nach dem Vulkanausbruch auf den Philippinen im Juni 1991. Falls vulkanisches Aerosol als Tracer fungiert, bietet die Beobachtung der zeitlichen und räumlichen Entwicklung des Aerosolgehalts die Möglichkeit, zum Verständnis dynamischer Prozesse in der mittleren Atmosphäre beizutragen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde daher für die EASOE-Meßkampagne (*European Arctic Stratospheric Ozone Experiment*) im Winter 1991/92 der Aufbau und Einsatz eines Aerosol-Lidars geplant.

Aus zeitlichen und finanziellen Gründen wurde auf die Entwicklung eines eigenständigen Aerosol-Lidars verzichtet und stattdessen das DIAL-Lidar für Aerosoluntersuchungen erweitert. Dabei mußte die uneingeschränkte Funktionalität im Hinblick auf die Ozonmessungen erhalten bleiben. Das DIAL-Lidar emittiert bei Wellenlängen von 308 und 353 nm (UV). Durch Einbau eines Nd:YAG-Festkörperlaser und eines zweiten Aussendezweigs stehen zusätzlich die Emissionswellenlängen 532 nm (VIS) und 1064 nm (IR) zur Verfügung. Für die Detektion dieser vier Wellenlängen wurde ein neuer Mehrwellenlängendetektor aufgebaut. Ein fünfter Detektor kanal bestimmt die Depolarisation bei 532 nm. Die beiden VIS-Kanäle werden im folgenden auch als Polarisations- und Depolarisationskanal bezeichnet. Da das Datenaufnahmesystem des DIAL-Lidars modular aufgebaut ist, war die Erweiterung von zwei auf vier Kanälen problemlos möglich. Die Datenaufnahme im IR-Kanal wurde als unabhängiges System auf PC-Basis realisiert.

Die Umbauphase begann im November 1990 mit dem Einbau des Nd:YAG-Lasers. Erste Testmessungen mit dem DIAL-Detektor konnten im Januar 1991 durchgeführt werden. Nach der Entwicklung und dem Einbau des Mehrwellenlängendetektors im Spätherbst 1991 wurde das Aerosol-Lidar am 25. November 1991 in Betrieb

genommen. Während der Wintermeßkampagne 1991/92 arbeitete das Aerosol-Lidar auf den zwei UV-Wellenlängen (308 und 353 nm) und der VIS-Wellenlänge (532 nm). In einem weiteren Detektorkanal wurde die Depolarisation des Rückstreusignals bei 532 nm bestimmt.

Der Ausbau des Aerosol-Lidars war im November 1992 mit der Inbetriebnahme des IR-Empfangszweigs abgeschlossen. Dieser detektiert das Streulicht des bei einer Wellenlänge von 1064 nm emittierten Laserlichts unter Verwendung eines empfindlichen IR-Halbleiterdetektors. Im Winter 1992/93 standen damit vier Wellenlängenkanäle im ultravioletten (UV), sichtbaren (VIS) und infraroten (IR) Spektralbereich sowie ein Depolarisationskanal zur Verfügung.

Das Aerosol-Lidar besteht aus fünf mechanischen, optischen und elektronischen Komponenten.

- Als Laserlichtquelle dienen zwei leistungsstarke Lasersysteme, die Energie in drei spektralen Bereichen mit hoher Pulsenergie und Pulsrate bereitstellen.
- Die Aussendeoptik lenkt die Laserpulse vertikal in die Atmosphäre. Eine Strahlaufweitung im UV-Kanal verringert die Divergenz des emittierten Laserstrahls.
- Mittels eines Spiegelteleskops in Newton-Montierung werden die Rückstreusignale aufgefangen und in den Detektor fokussiert.
- Der Detektor separiert das Rückstreusignal in die verschiedenen Wellenlängenkomponten und bestimmt zusätzlich für eine Wellenlänge die Depolarisation. Die Rückstreusignale werden mit empfindlichen und rauscharmen Photodetektoren nachgewiesen, die alle im Photonenählmodus arbeiten.
- Eine rechnergestützte Datenaufnahme nimmt die von den Photodetektoren erzeugten Zählpulse in Vielkanalzählern auf. Ein Rechner steuert die Datenaufnahmeelektronik, speichert die Zählraten periodisch ab und führt eine einfache Datenanalyse für die Kontrolle und Steuerung des Instrumentes durch.

Abb. 7.1 zeigt eine schematische Darstellung des Aerosol-Lidars. Ein Excimer- und ein Nd:YAG-Laser erzeugen Laserpulse der Wellenlängen 308, 532 und 1064 nm. Mit Hilfe einer Raman-Zelle (in der Abbildung nicht gezeigt) wird ein Teil der UV-Laserlichts in Licht der Wellenlänge 353 nm konvertiert. Ein Teleskop fokussiert die Rückstreusignale in den Mehrwellenlängendetektor. Ein schnellaufendes Flügelrad (Chopper) verhindert, daß intensives Streulicht aus den untersten Schichten der Atmosphäre die Photodetektoren übersteuert. Dichroitische Strahlteiler separieren das Signal in die vier Wellenlängenkanäle. Interferenzfilter dienen der Erhöhung des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses und der Verbesserung der Kanaltrennung. Die Zählraten der Photodetektoren werden in Vielkanalzählern eingelesen und von zwei Rechnern weiterverarbeitet und abgespeichert. Ein optischer Signalgeber am Chopper liefert den Zeittakt für die Emission der Lasersignale und die Datenaufnahme.

In den folgenden Abschnitten werden die Komponenten des Aerosol-Lidars beschrieben.



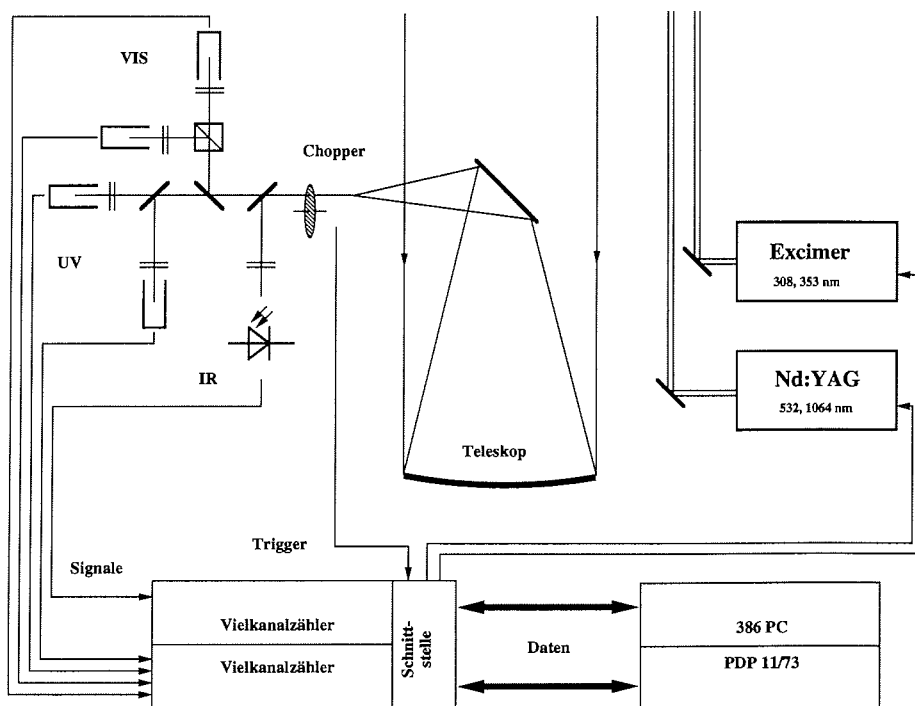


Abbildung 7.1: Schematische Darstellung des Mehrwellenlängen-Aerosol-Lidars.

## 7.1 Laserlichtquellen

Da die Rückstreuintensitäten aufgrund der abnehmenden Luftdichte exponentiell mit der Höhe abnehmen, sind für stratosphärische Lidar-Untersuchungen leistungsstarke Laser, große Teleskope und empfindliche Photodetektoren erforderlich. Als Laserlichtquellen werden daher zwei Lasersysteme hoher Pulsenergie und Repetitionsrate eingesetzt. Beide Systeme sind kommerziell erhältlich. Für die Erzeugung des UV-Laserlichts bei 308 nm wird der Excimer-Laser des DIAL-Lidars verwendet. Die IR- und VIS-Wellenlängen (1064 und 532 nm) liefern die Fundamente und die zweite Harmonische eines Nd:YAG-Lasers.

### 7.1.1 Nd:YAG-Laser

Als Quelle für die Erzeugung von Laserlicht bei 532 und 1064 nm wird der gepulste Nd:YAG-Festkörperlaser NY 61-30 des Herstellers Continuum eingesetzt. Dieses Gerät zeichnet sich durch kompakte Bauform bei hoher Ausgangsleistung aus. Für den Betrieb ist eine 220 V Stromversorgung und ein Wasseranschluß erforderlich. Alle optischen Komponenten einschließlich des Verdopplerkristalls zur Erzeugung

Hersteller	Continuum	
Typ	Nd:YAG NY 61-30	
Wellenlänge	1064 nm	532 nm
Pulsfrequenz	30 Hz	
Pulsenergie	ca. 200 mJ	ca. 190 mJ
Pulslänge	6-8 nsec	5-7 nsec
Linienbreite	30 GHz	
Divergenz	0,5 mrad	
Polarisation	zirkular	vertikal
Energiestabilität	3%	4,5%
Stromversorgung	220 V	
Wasserversorgung	11-15 l/min	

**Tabelle 7.1:** Die technischen Daten des Nd:YAG-Festkörperlasers NY 61-30. Die angegebenen Pulsenergien beziehen sich auf den Betrieb mit Frequenzverdoppler.

der ersten Harmonischen sind in dem  $90 \times 30 \times 30$  cm großen Laserkopf untergebracht. Die Spannungsversorgung, die Kühleinheit und der Steuerungsrechner befinden sich in einem separaten Modul. Die wichtigsten technischen Daten des Gerätes sind in Tabelle 7.1 aufgelistet [Continuum, 1990].

Der NY 61-30 verfügt über eine Oszillator- und eine Verstärkerstufe. Beide YAG-Stäbe werden mittels einer Blitzlampe optisch gepumpt. Zur Erhöhung der Pulsenergie und zum Erreichen kurzer Pulslängen ist der Laser mit einer Güteschaltung ausgestattet. Der Verdopplerkristall erzeugt die zweite Harmonische aus der Fundamentalwellenlänge von 1064 nm. Durch Verkippen des Kristalls wird auf maximale Pulsenergie bei 532 nm justiert. Die nominelle Blitzlampenfrequenz des ND 61-30 beträgt 30 Hz. Aufgrund der Ausdehnung des optischen Mediums können höhere Frequenzen eine Fokussierung des Laserstrahls innerhalb der YAG-Stäbe verursachen und damit zur Zerstörung des Lasermediums führen. Frequenzen niedriger als 30 Hz gefährden zwar keine optischen Komponenten, erhöhen aber die Divergenz des emittierten Lichts. Aufgrund von Problemen mit der Netzspannungsversorgung konnte der Laser im Winter 1991/92 nur mit einer Frequenz von 25 Hz betrieben werden. Die vergrößerte Divergenz des Sendestrahls führte unter ungünstigen Umständen zu einem unvollständigen Strahlüberlapp.

Für den Einsatz des Nd:YAG-Lasers als Lidar-Lichtquelle muß die Möglichkeit einer externen Triggerung bestehen. Der NY 61-30 benötigt zwei Triggerpulse. Der erste Puls zündet die Blitzlampe, die das Lasermedium optisch pumpt. Nach etwa 280  $\mu$ sec schaltet ein zweiter Puls den Güteschalter durch und startet damit die Laseraktivität. Für eine maximale Pulsenergie ist die genaue Justage der Zeitdifferenz zwischen erstem und zweitem Triggersignal erforderlich.

Die Verlustwärme der Nd:YAG-Stäbe wird von einem geschlossenen Wasserkreislauf abgeführt. Dieser Primärkühlkreis ist über einen Wärmetauscher mit einem sekundären Kühlkreislauf verbunden, der vom Hersteller für den offenen Betrieb an einem normalen Wasseranschluß ausgelegt ist. Da der Lidar-Container in Ny-Ålesund nicht an das Wasserleitungsnetz angeschlossen ist, wird der zweite Kühlkreislauf mit einer Umwälzpumpe und einem ausgedienten Radiator auf dem Container-Dach realisiert. Zusatz von Frostschutzmittel verhindert das Einfrieren des Sekundärkreis-

Hersteller	Lambda Physik
Typ	EMG 150 TMSC
Wellenlänge	308 nm
Pulsfrequenz	max. 40 Hz
Pulsenergie	ca. 150 mJ
Pulslänge	15 nsec
Linienbreite	32 GHz
Divergenz	0,2 mrad
Stromversorgung	380 V

**Tabelle 7.2:** Die technischen Daten des Excimer-Gaslaser EMG 150 TMSC.

laufes auch bei Temperaturen unter  $-30^{\circ}\text{C}$ . Der Aufbau hat sich in der geschilderten Form trotz seines improvisierten Charakters während zweier Meßkampagnen gut bewährt.

### 7.1.2 Excimer-Laser

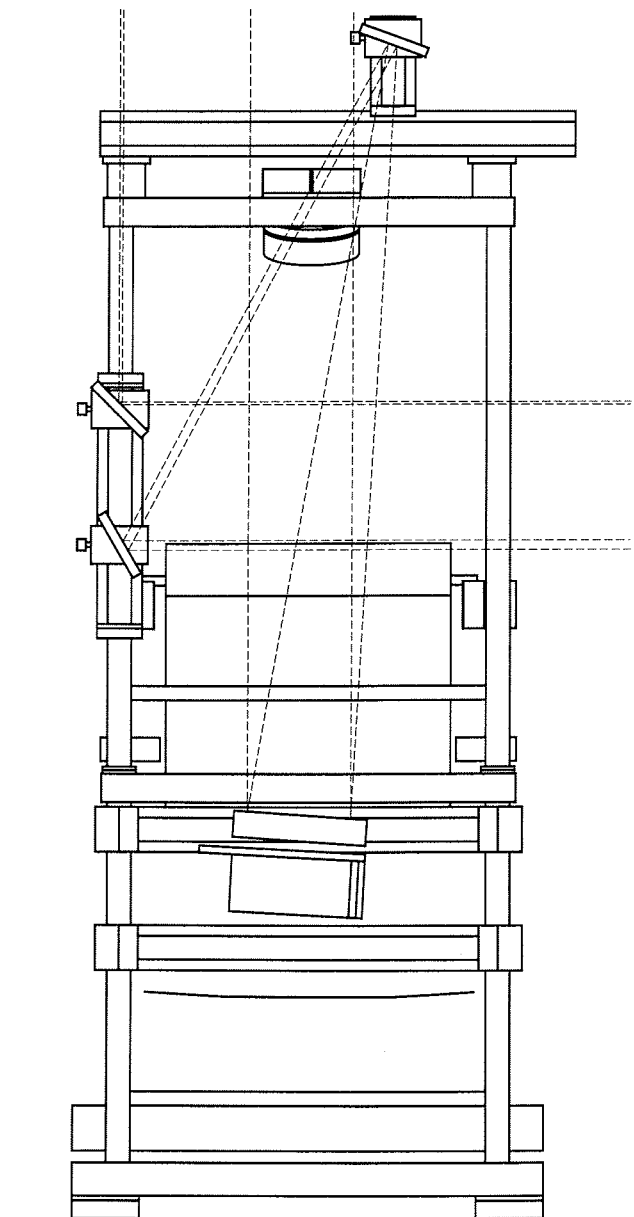
Für die Erzeugung des UV-Laserlichts bei 308 nm wird ein XeCl-Excimer-Gaslaser des Herstellers Lambda Physik eingesetzt. Die wichtigsten Systemparameter sind in Tabelle 7.2 zusammengefaßt. Ein Teil der Laserenergie wird in einer mit  $\text{H}_2$  gefüllten Raman-Zelle zu Strahlung mit der Wellenlänge 353 nm (1. Stokes-Linie) konvertiert [Werner *et al.*, 1983]. Eine detaillierte Beschreibung des Lasers sowie der Justage der Raman-Zelle findet sich in [Steinbrecht, 1987].

## 7.2 Aussendeoptik

Die Aussendeoptik lenkt die Laserpulse, die horizontal aus den Laserquellen emittiert werden, vertikal in die Atmosphäre. Die Stellung der Aussendespiegel ist justierbar, um einen vollständigen Überlapp des Sendestrahls mit dem Teleskopgesichtsfeld einstellen zu können. Das Emissionslicht des Nd:YAG und des Excimers wird separat durch zwei voneinander unabhängige Aussendeoptiken geführt.

Die Aussendeoptik des UV-Zweigs besteht aus einem System von drei Spiegeln. Über einen 2-Zoll-UV-Spiegel wird der Strahl durch ein Aufweitungsteleskop geleitet. Das Teleskop besteht aus einem Konvexspiegel der Brennweite  $f = -175$  mm und einem Konkavspiegel mit einer Brennweite von  $f = 1750$  mm. Diese Anordnung liefert eine Strahlaufweitung von 1:10 und verringert damit die Divergenz des emittierten Laserstrahls um eine Größenordnung. In Abb. 7.2 ist die Strahlführung dargestellt. Die Justage des Strahlüberlapps erfolgt über zwei Differentialmikrometerschrauben am Konkavspiegel. Meßfühler ermöglichen die Kontrolle und das Reproduzieren der Einstellungen.

Für den VIS-Kanal wird auf eine Strahlaufweitung verzichtet. Die Aussendeoptik besteht aus einem 2-Zoll-Spiegel, der in einem kardanischen Halter eingefaßt ist. Der Spiegel ist mit einer hochreflektierenden Beschichtung für 532 und 1064 nm versehen.



**Abbildung 7.2:** Strahlführung der Aussendeoptik des Aerosol-Lidars. Die Abbildung zeigt das Teleskopgerüst mit den Aussendeoptiken. Die Aussendestrahlen treten horizontal von rechts in den Teleskopraum ein. Der Nd:YAG-Strahl (oben) wird ohne Aufweitung in die Atmosphäre emittiert, der Excimer-Strahl (unten) wird über eine Kombination von Plan-, Konvex- und Konkavspiegeln um einen Faktor 10 aufgeweitet.

In der Meßkampagne 1991/92 wurde der Strahlüberlapp durch Verkippen des kardanischen Spiegelhalters mittels zweier Differentialmikrometerschrauben justiert. Da diese manuelle Justagemethode insbesondere bei tiefen Temperaturen Probleme bereitet hat, sind die Mikrometerschrauben für die Winterkampagne 1992/93 durch motorgetriebene Linearversteller ersetzt worden. Die Motoren werden durch eine Kontrolleinheit angesteuert, die über die serielle Schnittstelle mit einem Rechner verbunden ist. Die Antriebe bewährten sich auch bei Betriebstemperaturen bis  $-30^{\circ}\text{C}$ .

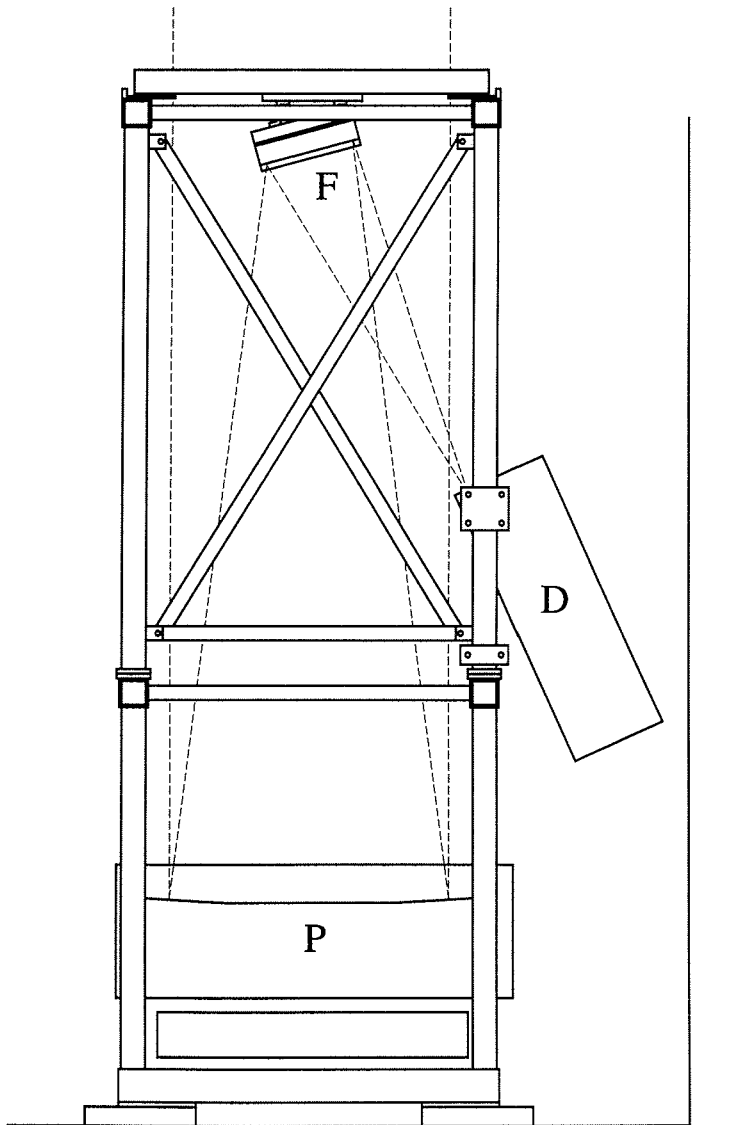
### 7.3 Teleskop

Für die Detektion der Rückstreusignale wird das Spiegelteleskop des DIAL-Lidars verwendet. Der Primärspiegel ist ein sphärischer Zerodur-Spiegel, dessen Spiegelfläche einen Durchmesser von 600 mm besitzt. Sein Öffnungsverhältnis beträgt  $f/4$ . Der durch die sphärische Aberration des Spiegels verursachte Streukreis hat einen Durchmesser von etwa 0,7 mm. Wegen des beschränkten Raums, der für den Aufbau des Detektors zur Verfügung stand, wurde ein modifizierter Newton-Aufbau gewählt. Abb. 7.3 zeigt den Strahlengang durch das Teleskop. 1560 mm über dem Primärspiegel ist unter einem Winkel von 12,5 Grad ein ebener Faltspiegel angebracht, der den Fokus des Teleskops in die Blendenöffnung des Detektors positioniert. Der Detektor ist in einem Kasten an der rechten Seite des Teleskopgerüsts untergebracht (vgl. Abb. 7.3). Beide Spiegel sind mit Aluminium beschichtet und mit einer Siliziumoxidschutzschicht versehen. Der Kippwinkel des Faltspiegels ergibt sich aus der Forderung nach geringer Depolarisation durch Reflexion an den Spiegelflächen und einer Fokusposition außerhalb des Gesichtsfeldes des Primärspiegels.

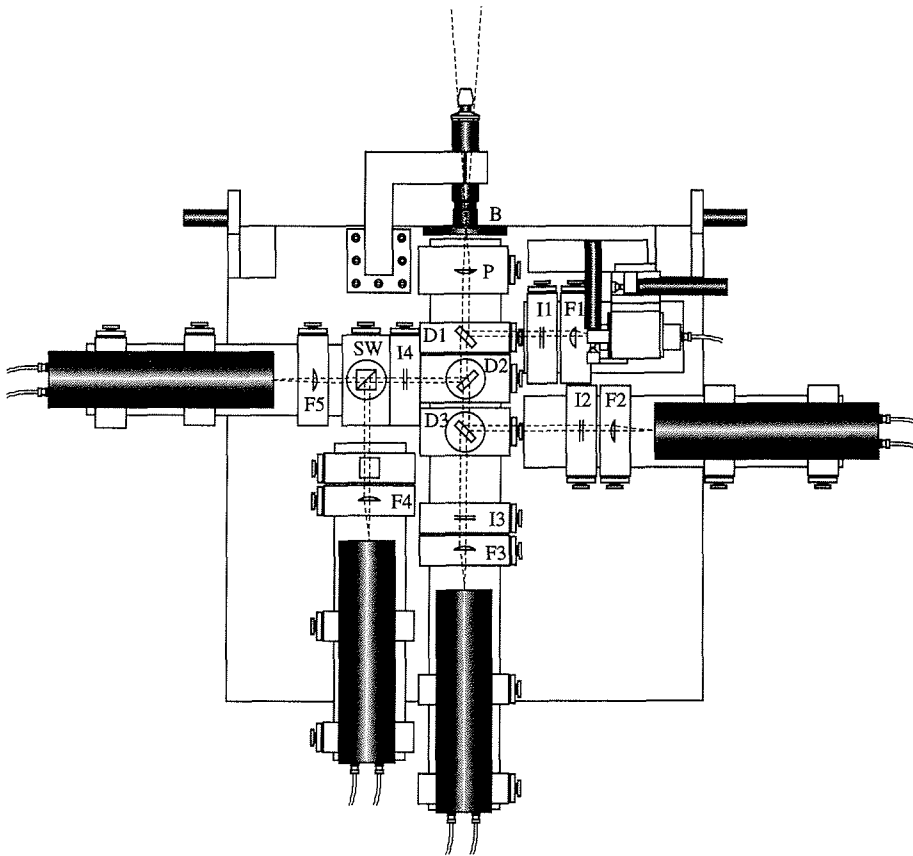
### 7.4 Mehrwellenlängendetektor

Bei der Entwicklung des Mehrwellenlängendetektors stand die Forderung nach einem einfachen und modularen Aufbau an erster Stelle. Soweit möglich werden ausschließlich kommerziell erhältliche Teile verwendet und es wird auf Spezialanfertigungen verzichtet. Alle Einstellungen sind justierbar. Um einen platzsparenden Aufbau des Detektors zu gewährleisten, werden optische Komponenten in 1-Zoll-Ausführung eingesetzt. Daher konnten bis auf die Photomultipliergehäuse alle fünf Detektorkanäle in einem  $20 \times 60 \times 60$  cm großen Gehäuse untergebracht werden. Die 15 mm starke Detektorbodenplatte aus Aluminium ist mit vier Halterungen am Teleskopgerüst befestigt. Die Haltekonstruktion ermöglicht eine Justierung der Detektorposition auf den Fokus und die optische Achse des Teleskops. Der Detektor kann in einer Ebene, die durch die optische Achse und die Normale der Detektorebene definiert ist, verschoben und um drei Achsen verkippt werden. Die Einstellgenauigkeit beträgt etwa 0,1 mm und 0,2 mrad. Abb. 7.4 zeigt den Aufbau des Detektors, wie er im Winter 1992/93 eingesetzt wurde. Im folgenden werde ich die einzelnen Elemente des Detektors kurz beschreiben.

Das Signal tritt von oben in den Detektor und trifft zunächst auf die Gesichtsfeldblende. Durch eine sorgfältige Justage ist sichergestellt, daß sich die Blende



**Abbildung 7.3:** Das Empfangsteleskop mit dem Mehrwellenlängendetektor. An der Basis des Teleskopgerüsts ist der 60-cm-Primärspiegel *P* aufgehängt. Das Rückstreulicht wird über den um  $12,5^\circ$  verkippten Faltspiegel *F* in den Detektor *D* fokussiert.



**Abbildung 7.4:** Der Mehrwellenlängendetektor des Aerosol-Lidars. Das Signal fällt durch die Gesichtsfeldblende *B* auf die Parallelisierungslinse *P*. Unmittelbar unter der Blende *B* dreht sich das Chopper-Blatt. Die Wellenlängenseparation erfolgt über drei sequentiell angeordnete dichroitische Strahlteiler *D*<sub>1</sub>, *D*<sub>2</sub> und *D*<sub>3</sub>. Im VIS-Kanal (links) separiert ein polarisierender Strahlteilerwürfel *SW* die parallel und die senkrecht polarisierten Komponenten des Rückstreulichtes. Die Interferenzfilter *I*<sub>1</sub> bis *I*<sub>4</sub> dienen der Untergrundreduktion und einer erhöhten Kanaltrennung. Die Fokussierlinsen *F*<sub>1</sub> bis *F*<sub>5</sub> bilden zusammen mit der Parallelisierungslinse *P* die Blende *B* auf die Detektorflächen ab.

im Fokus des Teleskops befindet. Das Gesichtsfeld  $\alpha$  des Teleskops wird durch die Größe der Blende bestimmt. Für die Aerosol-Lidarmessungen werden zumeist Blendendurchmesser  $d$  von 2 mm verwendet. Mit einer Teleskopbrennweite  $f \approx 2400$  mm ergibt sich ein Gesichtsfeld  $\alpha$

$$\alpha = \frac{d}{f} \approx 0,8 \text{ mrad} .$$

Unmittelbar unterhalb der Blende befindet sich das Flügelrad für die Abschattung der Photodetektoren. Eine optische Abtastung der Flügelradposition mittels einer Leuchtdiode und einem lichtempfindlichen Element liefert Pulse, aus denen die Signale für Lasertriggerung und Datenaufnahme abgeleitet werden.

Separation von	353 nm	532 nm	1064 nm
Hersteller	Laser Optik Garbsen		
Transmission			
1064 nm			3%
532 nm		0,5%	90%
353 nm	0,5%	90%	40%
308 nm	88%	85%	88%
Planität	$\lambda/10$		
Substratstärke	9,5 mm		
Substratmaterial	Herasil		

**Tabelle 7.3:** Die Daten der dichroitischen Strahlteiler.

Kanal	UV	VIS	IR	
Hersteller	Oriel			
Zentralwellenlänge	307,1 nm	355,0 nm	532,0 nm	1064,0 nm
Transmission	15%	25%	50%	40%
Halbwertsbreite	$10,0 \pm 2$ nm	$10,0 \pm 2$ nm	$10,0 \pm 2$ nm	$10,0 \pm 2$ nm
Substratstärke	3,5 mm	7 mm	7 mm	8,5 mm
eff. Brechungsindex	k.A.	1,45	2,05	2,05

**Tabelle 7.4:** Die Daten der Interferenzfilter nach Unterlagen des Herstellers.

Eine plankonvexe Quarzlinse mit einer Brennweite von 50,2 mm parallelisiert das einfallende Licht und leitet es auf drei hintereinander angeordnete dichroitische Strahlteiler. Der erste reflektiert den infraroten Teil des Spektrums und transmittiert die sichtbaren und ultravioletten Komponenten. Der zweite reflektiert die Wellenlänge 532 nm und transmittiert die Wellenlängen 353 und 308 nm. Im dritten schließlich werden die Wellenlängen 308 und 353 nm separiert. Die Transmissionswerte der Dichroite sind in Tab. 7.3 aufgelistet. Die Daten beruhen auf Herstellerangaben.

Nach der spektralen Zerlegung sorgen Interferenzfilter für eine Reduktion des Untergrundlichts in den vier Wellenlängenkanälen und für eine Erhöhung der Kanaltrennung. Tab. 7.4 enthält Angaben über die verwendeten Interferenzfilter und deren optische Daten. Die Wellenlänge maximaler Transmission  $\lambda$  eines Interferenzfilters variiert mit dem Einfallswinkel  $\alpha$  nach [Macleod, 1969]

$$\lambda = \lambda_0 \sqrt{1 - \left(\frac{m_0}{m^*}\right)^2 \sin^2 \alpha}, \quad (7.1)$$

wobei  $\lambda_0$  die Zentralwellenlänge,  $m_0$  den Brechungsindex des umgebenden Mediums und  $m^*$  den effektiven Brechungsindex des Filters bezeichnet (vgl. Tab. 7.4). Die Divergenz des Lichtstrahls innerhalb des Detektors beträgt etwa 40 mrad. Mit Gl. 7.1 verschiebt sich die Wellenlänge maximaler Transmission um ca. 0,02%. Diese Wellenlängendifferenz ist wesentlich geringer als die Halbwertsbreite der Filter und kann daher vernachlässigt werden.

Im 532-nm-Kanal erfolgt eine Separation der parallel und der senkrecht polarisierten Komponenten mittels eines polarisierenden Strahlteilerwürfels. Die Transmission für vollständig parallel polarisiertes Licht ( $\parallel$ -Licht) und die Reflektivität für



Kanal	UV	VIS	IR
Hersteller	Thorn EMI		RCA
Detektortyp	Photomultiplier		Photodiode
Typ	9893Q/350	9863QA/350	SPCM-100
Betriebsart	Photonenzählung		
Dunkelzählrate	300 sec <sup>-1</sup>	40 sec <sup>-1</sup>	500 sec <sup>-1</sup>
Grenzfrequenz	ca. 200 MHz	ca. 200 MHz	1,8 MHz
Quantenausbeute	ca. 12%	ca. 23%	ca. 0,8%
Detektordurchmesser	9 mm	9 mm	0,15 mm
Spannungsversorgung	2250 V (typ.)	1950 V (typ.)	±5, +12 V
Kühlung	—	—	Peltier-Element

**Tabelle 7.5:** Die technischen Daten der Photodetektoren. Die Angaben sind den Herstellerunterlagen entnommen.

vollständig senkrecht polarisiertes Licht ( $\perp$ -Licht) wird vom Hersteller mit  $\geq 99\%$  angegeben. Die durch Rayleigh-Streuung verursachte Depolarisation des Rückstreusignals beträgt etwa 0,0141 [Young, 1980]. Das  $\perp$ -Signal ist damit fast zwei Größenordnungen geringer als das  $\parallel$ -Signal. Um den Anteil von parallel polarisiertem Licht im  $\perp$ -Kanal weiter zu verringern, wurde für die Wintermeßkampagne 1992/93 im  $\perp$ -Kanal ein zweiter Polarisator eingefügt.

Der Nachweis der Signale in den beiden VIS- und den beiden UV-Kanälen erfolgt mit Photomultipliern. Für die Detektion des IR-Signals kommt eine Si-Avalanche-Photodiode zum Einsatz. Fokussierlinsen, die vor jedem dieser fünf Detektoren angeordnet sind, bilden zusammen mit der Parallelisierungslinse die Gesichtsfeldblende auf die empfindlichen Detektorflächen ab. Die Brennweite dieser Linsen in den VIS- und UV-Kanälen beträgt 50,2 mm. Aufgrund der sehr kleinen Detektorfläche des IR-Detektors von  $0,1 \times 0,1$  mm wird für die Fokussierlinse im IR-Kanal eine kurze Brennweite von 25 mm gewählt. Die Spezifikationen der Photodetektoren sind in Tabelle 7.5 zu finden.

Der IR-Detektor besteht aus einer abgeschlossenen Einheit, in die die Si-Avalanche-Photodiode, ein Peltier-Element zur Kühlung der Diode, die Signalverarbeitung und die Spannungsversorgung integriert sind. Die Zählimpulse stehen am Ausgang als TTL-Signale zur Verfügung. Das IR-Detektormodul ist auf einer 3-Achsen-Verstelleinheit montiert, die von Motoren angetrieben wird. Die Erfahrungen beim Meßbetrieb zeigen, daß die Position des Detektors insbesondere entlang der optischen Achse in regelmäßigen Abständen nachjustiert werden muß. Mit der motorgetriebenen Verstelleinheit ließ sich diese Justage mit der erforderlichen Genauigkeit reproduzierbar durchführen.

## 7.5 Datenaufnahmesystem

Das Datenaufnahmesystem diskriminiert die Zählpulse der Photodetektoren, liest diese in Vielkanalzähler ein, steuert über Triggersignale die Laserpulsemission, startet die Vielkanalzähler, stellt die Rohdaten graphisch dar und speichert diese in geeigneter Form ab. Für die Auslese der UV- und VIS-Zählraten wird das um zwei

Kanäle erweiterte Datenaufnahmesystem des Ozon-DIAL-Lidars verwendet. Die Signale des IR-Detektors werden in einem getrennten Aufnahmeweig bearbeitet.

### 7.5.1 Software

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Datenaufnahmeprogramm entwickelt, das auf die Anforderungen des Aerosol-Lidars abgestimmt ist. Das Programm besteht aus drei Modulen. Das Einlesemodul transferiert nach 1000 Laserpulsen die addierten Zählraten aus dem Speicher der Vielkanalzähler in den Hauptspeicher des Rechners. Die Daten aller Kanäle werden zu einem Datensatz zusammengefaßt und anschließend zusammen mit Zusatzinformationen wie Uhrzeit und Datum vom Abspeichermodul auf dem Massenspeicher abgelegt. Jeweils 40 dieser Datensätze werden in einer Datei abgespeichert. Ein weiterer Programmteil analysiert die Datensätze und bestimmt Mittelwerte in fünf Höhenbereichen von jeweils 10 km Breite. Zur Aussteuerungskontrolle der Photodetektoren werden darüber hinaus für jeden Kanal Maximalzählraten berechnet. Neben der Ausgabe dieser Werte auf ein alphanumerisches Terminal werden die Profile auf einem Monitor graphisch dargestellt. Bei einer Betriebsfrequenz von 30 Hz ergibt sich hieraus eine Datenrate von 0,4 MByte/h. Das Datenaufnahmeprogramm läuft auf einem PDP-11/73-Computer unter dem Echtzeitbetriebssystem RT-11.

Für die Signalauslese im IR-Zweig wird der kommerzielle Vielkanalzähler Turbo-MCS der Firma EG&G eingesetzt. Ein angeschlossener Personalcomputer stellt die Meßdaten graphisch dar und speichert sie ab. Im IR-Kanal werden Datenraten von 0,1 MByte/h erreicht.

### 7.5.2 Hardware

Das Datenaufnahmesystem des DIAL-Lidars wurde von der Elektronikwerkstatt des Physikalischen Instituts der Universität München entwickelt und in Form modularer NIM-Einschübe realisiert [Steinbrecht, 1987]. Die vom Chopper erzeugten Taktsignale formt das Triggerpulsgenerator-Modul in TTL-Pulse um und teilt sie auf die Betriebsfrequenz des Datenaufnahmesystems herunter. Die Frequenz des Choppertakts, die durch die Umdrehungsgeschwindigkeit des Choppers bestimmt wird, beträgt etwa 500 Hz, die nominelle Betriebsfrequenz der Datenaufnahme 60 Hz. Das 60-Hz-Signal wird in zwei Lasertrigger-Module eingespeist, die zunächst einen Triggerpuls für die Zündung der Blitzlampe im Nd:YAG-Kopf erzeugen, anschließend die Vielkanalzähler zurücksetzen, starten und schließlich Pulse für die externe Triggerung des Nd:YAG- bzw. des Excimer-Lasers abgeben. Diese externen Triggerpulse werden mit der halben Frequenz und im Wechsel miteinander abgegeben. D.h. Nd:YAG- und Excimer-Pulse folgen abwechselnd im zeitlichen Abstand von 1/60 sec. Auf diese Weise wird in jedem Kanal vor bzw. nach jeder Signalmessung eine Untergrundmessung durchgeführt. Die wechselweise Emission der IR/VIS- und UV-Signale verhindert ein Übersprechen zwischen diesen Empfangskanälen.

Die Zählsignale der Photomultiplier werden in Diskriminator-Modulen in ECL-Pulse umgeformt und in Vielkanalzähler eingelesen. Für jeden Kanal stehen zwei Sätze zu je 256 Zähler — je ein Satz für die Signal- und Untergrundmessung — zur

Verfügung. Durch entsprechende Einstellung der Zähleradditionszeit können Höhenauflösungen von 50, 100, 200 und 500 m erreicht werden. Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen wurde eine Auflösung von 200 m verwendet. Dies entspricht einer Zähleradditionszeit von 1,33  $\mu$ sec.

Das Startsignal für den IR-Datenaufnahmeweig wird vom UV/VIS-Zweig abgegriffen. Eine Diskriminierung der Zählimpulse ist nicht erforderlich, da der IR-Detektor TTL-Pulse zur Verfügung stellt. Der IR-Vielkanalzähler besitzt nur einen Kanal, der aus 16.384 Einzelzählern besteht. Für die IR-Messung werden allerdings nur die ersten 1024 Zähler bei einer Zähleradditionszeit von 650  $\mu$ sec ausgelesen. Dies entspricht einer Höhenauflösung von 97,4 m und einem Höhenbereich von 0 bis 99,7 km. Da kein separater Untergrundkanal vorhanden ist, wird die Untergrundbestimmung durch Analyse der Zählraten im Bereich zwischen 50,0 und 99,7 km durchgeführt (vgl. Abschnitt 8.1.2).



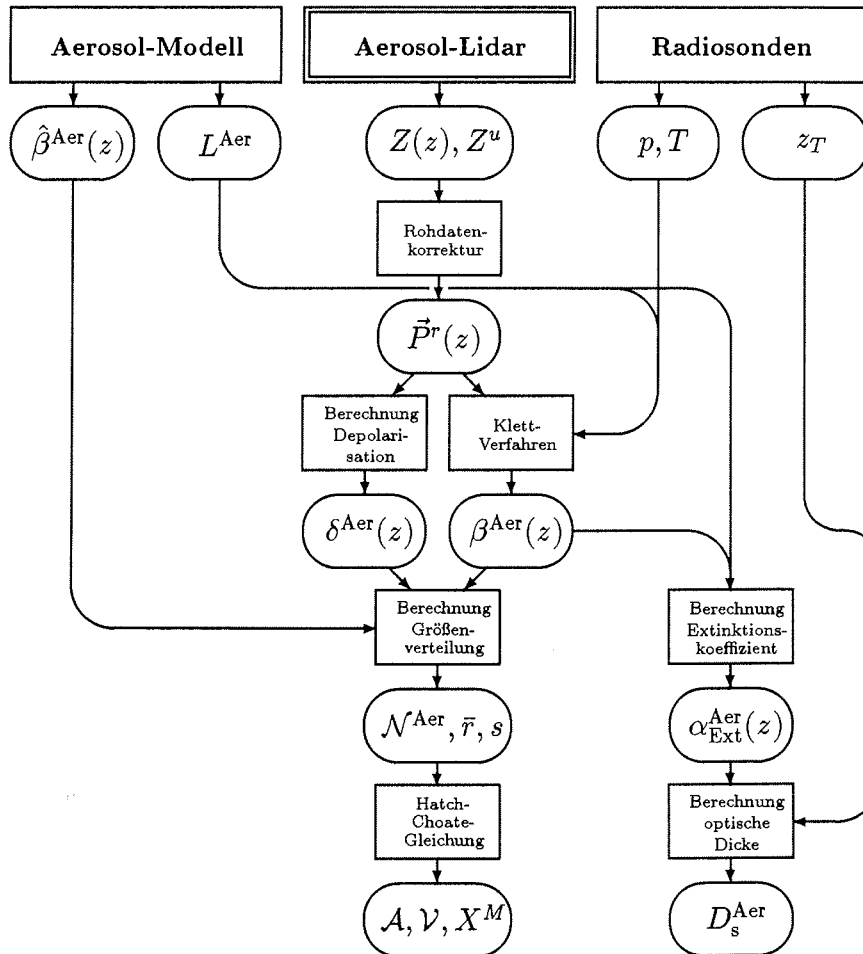
# Kapitel 8

## Methoden zur Datenauswertung

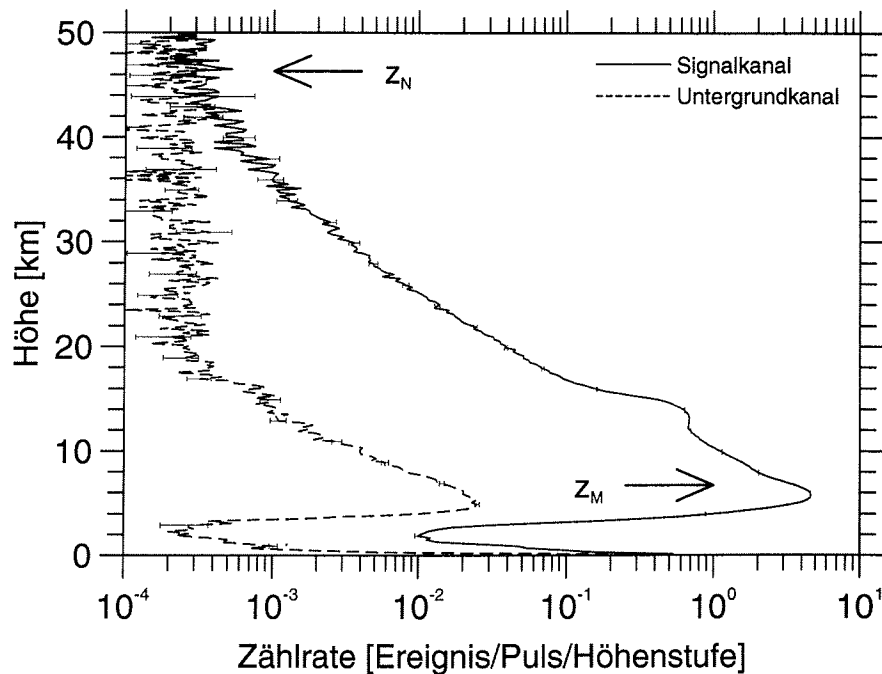
Dieses Kapitel enthält eine Beschreibung von Methoden und Algorithmen für die Auswertung der Aerosol-Lidar-Daten. Ich diskutiere zunächst die generelle Struktur des Auswerteprozesses und gehe anschließend ausführlicher auf die einzelnen Bearbeitungsschritte ein.

Der Auswerteprozess ist schematisch in Abb. 8.1 dargestellt. Dieser gliedert sich in zwei Bereiche. Aus Lidar-Zählraten  $Z^s(z_i)$  sowie Druck- und Temperaturprofilen,  $p(z_i)$  und  $T(z_i)$ , werden zunächst Rückstreukoeffizienten  $\beta^{\text{Aer}}(z_i)$  und Volumendepolarisationen  $\delta^{\text{Aer}}(z_i)$  berechnet. Im folgenden versehe ich die Höhenvariable  $z$  mit einem Subskript  $i$ , da  $z$  aufgrund der endlichen Höhenauflösung des Aerosol-Lidars nur diskrete Werte annimmt.  $p(z_i)$  und  $T(z_i)$  stehen aus Ballonsondierungen zur Verfügung, die täglich an der Koldewey-Station in Ny-Ålesund durchgeführt werden.  $\beta^{\text{Aer}}(z_i)$  und  $\delta^{\text{Aer}}(z_i)$  sind die primären geophysikalischen Meßgrößen des Aerosol-Lidars. In ihre Berechnung fließen mit Ausnahme des Mie-Streuverhältnisses  $L^{\text{Aer}}$  nur auf Messungen basierende Werte ein. Wie in Abschnitt 8.3.1 gezeigt wird, ist die Abhängigkeit des Rückstreukoeffizienten von  $L^{\text{Aer}}$  gering. In der zweiten Stufe der Auswertung werden Partikelextinktionskoeffizienten  $\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}$ , optische Dicken des stratosphärischen Aerosols  $D_s^{\text{Aer}}$  und Größenverteilungen bestimmt, die mit den tatsächlichen Spektren verträglich sind. Alle diese Größen hängen zum Teil erheblich von Modelldaten  $\hat{\beta}^{\text{Aer}}$  und  $L^{\text{Aer}}$  ab. Ich bezeichne sie daher im folgenden als sekundäre Meßgrößen.

In den folgenden Abschnitten beschreibe ich die einzelnen Schritte der Datenauswertung, wobei ich mich an Abb. 8.1 orientiere. In Abschnitt 8.1 werden die Verfahren zur „Rohdatenkorrektur“ dargestellt. (Begriffe in Anführungszeichen beziehen sich auf die Beschriftung der Rechtecke in Abb. 8.1.) In Abschnitt 8.2 wird die „Berechnung der Volumendepolarisation“ beschrieben. Das „Klett-Verfahren“ zur Berechnung von Rückstreukoeffizienten wird in Abschnitt 8.3 diskutiert. Abschnitt 8.4 enthält die Darstellung der „Berechnung von Extinktionskoeffizienten“ und der „Berechnung der optischen Dicke“. Eine Darstellung der „Berechnung von Größenverteilungen“ und der „Hatch-Choate-Gleichungen“ findet sich schließlich in Abschnitt 8.5.



**Abbildung 8.1:** Schematische Darstellung der Aerosol-Lidar-Datenauswertung. Ovale stehen für Daten, Rechtecke symbolisieren Auswerteschritte. Aus Signalzählraten  $Z$  und dem Untergrund  $Z^u$  sowie Druck- und Temperaturprofilen,  $p$  und  $T$ , werden in der ersten Auswertestufe Partikelrückstreuoeffizienten  $\beta^{Aer}$  und -volumendepolarisationen  $\delta^{Aer}$  bestimmt. Die Kenntnis von  $\beta^{Aer}$  und  $\delta^{Aer}$  ermöglicht zusammen mit Modelldaten  $L^{Aer}$  und  $\hat{\beta}^{Aer}$  die Berechnung von Partikelextinktionskoeffizienten  $\alpha_{Ext}^{Aer}$ , optischen Dicken des stratosphärischen Aerosols  $D_s^{Aer}$  und Parametern des Lognormal-Größenspektrums,  $\mathcal{N}^{Aer}$ ,  $\bar{r}$  und  $s$ . Aus dem Größenspektrum wird die Oberflächendichte  $\mathcal{A}$ , die Volumendichte  $\mathcal{V}$  und das Massenmischungsverhältnis  $X^M$  abgeleitet.

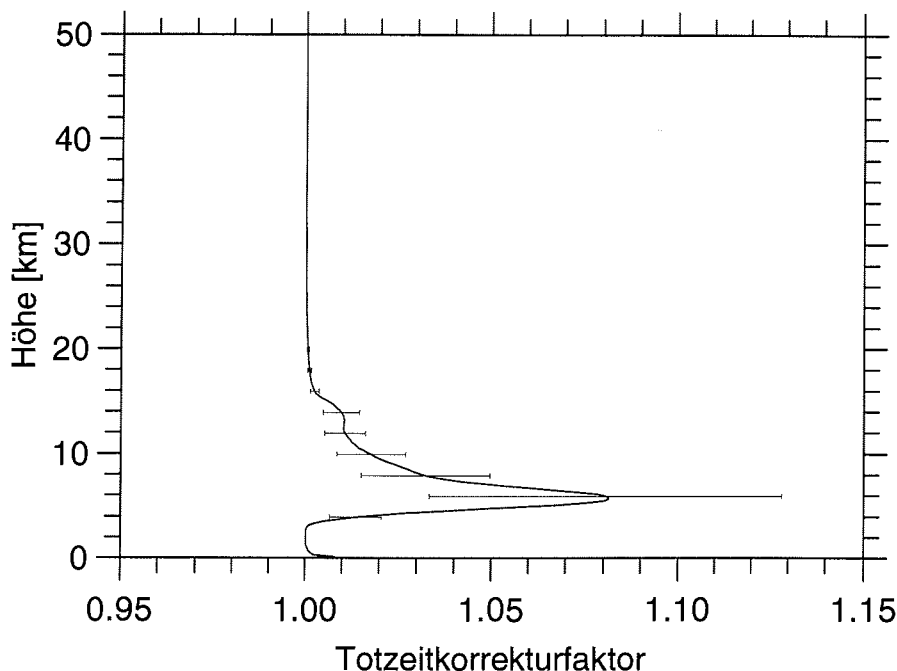


**Abbildung 8.2:** Ein Aerosol-Lidar-Rohdatenprofil für die Wellenlänge von 532 nm als Funktion der Höhe. Die durchgezogene Linie ist die detektierte Zählrate  $Z$ , die im Untergrund-Kanal detektierte Zählrate  $Z^u$  ist als unterbrochene Linie dargestellt. Für dieses Profil ist über 40.000 Laserpulse gemittelt worden, die Meßdauer beträgt 26,7 min. Zeitpunkt der Messung ist der 24. Januar 1992 12<sup>20</sup>.  $z_M$  und  $z_N$  begrenzen den Höhenbereich, in dem die Daten ausgewertet werden. Unterhalb von  $z_M$  wird die Signalintensität durch mechanische Abschattung verringert.

## 8.1 Rohdatenerfassung und -aufbereitung

Die vom Aerosol-Lidar detektierten Rückstreusignale haben eine sehr geringe Intensität. Als Beispiel zeige ich in Abb. 8.2 ein Rohdatenprofil für die Lidar-Wellenlänge 532 nm vom 24. Januar 1992. Aufgrund der mit der Höhe abnehmenden Luftdichte fällt das Signal in erster Näherung exponentiell ab. In etwa 14 km Höhe verursacht die Streuung an stratosphärischen Aerosolen einen zusätzlichen Beitrag zum Rückstreusignal. Unterhalb von etwa 6 km reduziert die mechanische Abblendvorrichtung (Chopper) die Zählraten. Die Flanke zwischen 2 und 6 km Höhe wird im folgenden auch als Chopper-Kante bezeichnet. Diffuse Streuung im Teleskopraum des Lidars lassen die Zählraten im untersten Kilometer des Profils stark ansteigen.

Für das abgebildete Profil ist der Mittelwert über die Zählraten von 40.000 Laserpulsen berechnet worden. Die maximale Zählrate pro emittiertem Puls beträgt etwa 5 Ereignisse pro Puls und Höhenintervall von 200 m. Die detektierten Raten in den UV- und IR-Wellenlängenkanälen sind zum Teil um mehr als eine Größenordnung geringer. Um eine Auswertung bis in etwa 30 km Höhe durchführen zu können, werden daher im ersten Schritt der Datenaufbereitung Mittelwerte über Zählraten von 40.000 emittierten Laserpulsen gebildet. Dies entspricht einer Meßzeit von 26,7 bzw. 22,2 Minuten bei einer Laser-Pulsfrequenz von 25 bzw. 30 Hz.



**Abbildung 8.3:** Totzeitkorrektur des in Abb. 8.2 gezeigten Rohdatenprofils. Das Korrekturprofil ist auf der Basis einer Diskriminator-totzeit von 10 nsec und einer Zähleradditionszeit von 1,33  $\mu\text{sec}$  berechnet worden.

Damit Signalschwankungen, die von durchziehenden Wolkenfeldern verursacht werden, nicht das Resultat verfälschen, werden bei der Berechnung des Mittelwerts nur diejenigen Rohdatenprofile berücksichtigt, deren Maxima mindestens 50% des Maximums des zählratenreichsten Profils erreichen.

In den folgenden vier Paragraphen werden die einzelnen Schritte der Rohdatenkorrektur und -aufbereitung dargestellt. Die Reihenfolge entspricht der Abfolge der einzelnen Schritte im Datenauswerteprozess. Zunächst werden die detektierten Zählraten auf Totzeiteffekte korrigiert. Im nächsten Schritt berechne ich aus den korrigierten Zählraten eine bzw. zwei Komponenten des Streusignal-Stokes-Vektors. Die Darstellung als Stokes-Vektor ist für die Berechnung der Volumendepolarisation (vgl. Abschnitt 8.2) von Bedeutung. Schließlich wird der Höhenbereich bestimmt, im dem eine weitere Auswertung der Signale sinnvoll ist.

### 8.1.1 Totzeitkorrektur

Nach der Mittelwertbildung werden die Profile auf Totzeiteffekte korrigiert, die durch die endliche Bandbreite der Detektoren bzw. des Datenaufnahmesystems verursacht werden. Für die UV- und VIS-Kanäle sind die Diskriminatoren die bandbreitenbegrenzenden Elemente. Die Totzeit der Diskriminatormodule für die UV- und VIS-Kanäle beträgt etwa 10 nsec [Steinbrecht, 1993]. Die Bandbreite der Photomultiplier dagegen ist größer als 130 MHz [EMI, 1986]. Da eine Überprüfung der Diskriminator-totzeiten aus meßtechnischen Gründen nicht möglich gewesen ist, schätze ich



hierfür einen Fehler von  $\pm 5$  nsec ab. Die Bandbreite des IR-Detektormoduls beträgt 1,8 MHz [RCA, 1991].

Die totzeitkorrigierte Zählrate  $Z^0(z_i)$  im Höhenintervall  $[z_i, z_i + \Delta z]$  berechnet sich aus der detektierten Zählrate  $Z(z_i)$  gemäß [Saleh, 1978; Steinbrecht, 1993]

$$Z^0(z_i) = \frac{1}{4} \frac{T}{\tau_d} \left( 1 - \sqrt{1 - 8 \frac{\tau_d}{T} Z(z_i)} \right). \quad (8.1)$$

Hier bezeichnet  $\tau_d$  die Diskriminatortotzeit und  $T$  die Zähleradditionszeit. Bei einer Höhenauflösung von  $\Delta z = 200$  m beträgt  $T = 1,33 \mu\text{sec}$ . In Abb. 8.3 ist der Totzeitkorrekturfaktor  $Z^0(z_i)/Z(z_i)$  als Funktion der Höhe für das in Abb. 8.2 gezeigte Rohdatenprofil dargestellt. Der Vergleich von Abb. 8.3 mit Abb. 8.2 zeigt, daß nur für Zählraten  $> 0,6$  pro Puls und Höhenstufe die Korrektur nach Gl. 8.1  $Z(z_i)$  um mehr als 1% erhöht. Die Totzeitkorrektur der IR-Zählraten ist nach einer vom Hersteller angegebenen Korrekturfunktion durchgeführt worden [RCA, 1991].

### 8.1.2 Untergrundkorrektur

Wie in Paragraph 7.5.2 erläutert worden ist, arbeiten die UV- und die VIS/IR-Kanäle im wechselseitigen Betrieb, d.h. die UV-Untergrundmessung läuft simultan zu einer VIS/IR-Signalmessung und umgekehrt. Die Untergrundzählrate setzt sich zusammen aus der Detektordunkelzählrate und dem Hintergrundsignal, das durch die Himmelsresthelligkeit verursacht wird. Zusätzlich treten zum Teil erhebliche Beiträge durch Übersprechen aus anderen Kanälen auf. Dieser dritte Beitrag ist an der in Abb. 8.2 gezeigten Zählrate des Untergrundkanals im Höhenbereich bis etwa 20 km deutlich erkennbar. Für die Bestimmung des tatsächlichen Untergrundes wird daher der Mittelwert der Untergrundzählrate zwischen 35 und 50 km berechnet. In diesem Höhenbereich liefert die Hintergrundzählrate den dominierenden Beitrag. Sie kann in den VIS-Kanälen die Photomultiplier-Dunkelzählrate, insbesondere bei Vollmond oder Dämmerung, um mehr als zwei Größenordnungen übersteigen.

Im IR-Kanal steht keine eigene Untergrundmessung zur Verfügung, stattdessen werden die Signalzählraten bis in eine Höhe von  $97,4 \text{ m} \times 1024 = 99,7 \text{ km}$  abgespeichert (vgl. Paragraph 7.5.2). Eine Analyse der IR-Rohdaten zeigt, daß im Höhenbereich oberhalb von etwa 25 bis 30 km das Signal-zu-Rausch-Verhältnis unter eins fällt. Der IR-Untergrundmittelwert wird daher aus den Zählraten zwischen 50 und 99,7 km bestimmt. Die untergrundkorrigierte Signalzählrate  $Z^s(z_i)$  ergibt sich nun durch Subtraktion des Untergrundmittelwerts  $Z^u$  von der detektierten Zählrate  $Z(z_i)$ .

### 8.1.3 Stokes-Vektor des Rückstrelights

Zur Bestimmung der Depolarisation erweist es sich als sinnvoll, die Zählraten  $Z(z_i)$  in die Komponenten von Stokes-Vektoren umzurechnen. Für die Wellenlänge 353 und 1064 nm liefern die Lidar-Daten nur Information über die erste Komponente des Stokes-Vektors  $P_1^r(z_i)$ . Unter der Voraussetzung, daß sich im UV- und IR-Kanal keine polarisierenden Elemente befinden, ist  $P_1^r(z_i)$  proportional zu  $Z(z_i)$ ,

$$P_1^r(z_i) = \frac{1}{D_{11}} \frac{Z(z_i)}{C}.$$

Der Depolarisationskanal erlaubt für 532 nm zusätzlich die Bestimmung der zweiten Komponente  $P_2^r(z_i)$ . Aus den Zählraten im Polarisationskanal ( $k = \parallel$ ) und Depolarisationskanal ( $k = \perp$ ) berechnet sich durch Invertierung von Gl. 6.3  $P_1^r(z_i)$  und  $P_2^r(z_i)$  zu

$$\begin{aligned} P_1^r(z_i) &= \frac{1}{\text{Det}} \left( \frac{D_{12}^\perp}{C^\parallel} Z^\parallel(z_i) - \frac{D_{12}^\parallel}{C^\perp} Z^\perp(z_i) \right) \\ P_2^r(z_i) &= \frac{1}{\text{Det}} \left( -\frac{D_{11}^\perp}{C^\parallel} Z^\parallel(z_i) + \frac{D_{11}^\parallel}{C^\perp} Z^\perp(z_i) \right), \end{aligned} \quad (8.2)$$

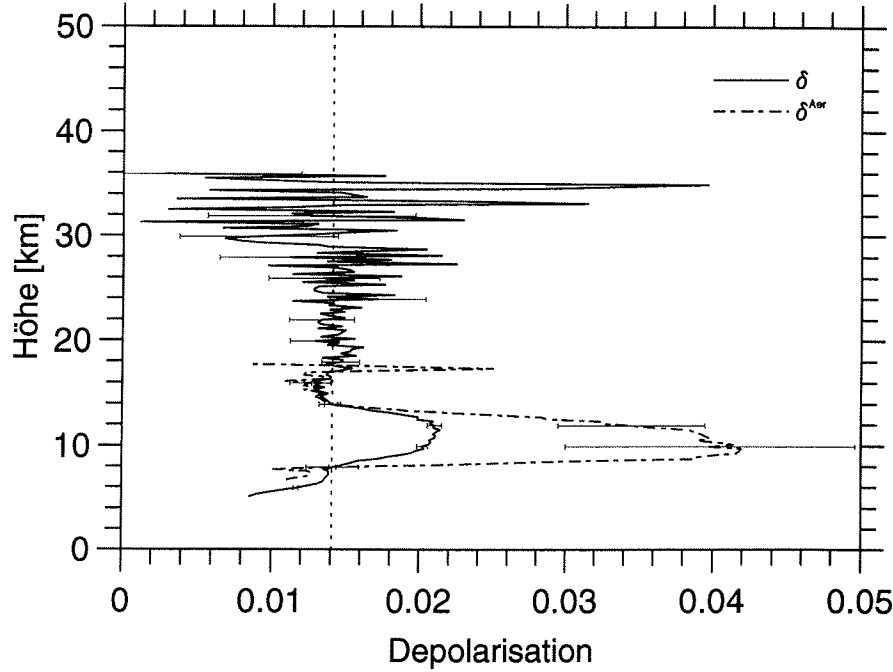
wobei

$$\text{Det} = (D_{11}^\parallel D_{12}^\perp - D_{12}^\parallel D_{11}^\perp).$$

Die Matrixelemente  $D_{ij}$  sind während einer Serie von Testmessungen durch Rotation einer  $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte bestimmt worden, die unmittelbar hinter die Parallelisierungslinse eingefügt worden ist (vgl. Abb. 7.4). Die relativen Detektorempfindlichkeiten  $C^\perp/C^\parallel$  werden durch Anpassung des gemessenen Depolarisationsprofils an den Wert der molekularen Depolarisation im Höhenbereich zwischen 25 und 50 km berechnet. In diesem Höhenbereich sind während des Meßzeitraums keine Aerosolschichten beobachtet worden (vgl. Abschnitt 9.2 und 9.3). Im folgenden gehe ich davon aus, daß die dritte und die vierte Komponente von  $\vec{P}^r$  verschwindet, ( $\vec{P}^e = (P_1^e, P_2^e, 0, 0)$ ). Diese Annahme ist gerechtfertigt, da linear polarisiertes Licht emittiert wird und die Streuung an isotrop orientierten Aerosolpartikeln nicht zu einer Drehung der Polarisations Ebene führt [van de Hulst, 1957; Bohren und Huffman, 1983].

### 8.1.4 Auswertbarer Höhenbereich

Die Rohdatenbearbeitung wird abgeschlossen mit der Bestimmung des Höhenbereiches  $[z_M, z_N]$ , in dem eine Auswertung möglich ist. Das Kriterium für die Bestimmung von  $z_N$  ist das Signal-zu-Rausch-Verhältnis.  $z_N$  ist diejenige Höhenstufe, auf der das Signal unter die Untergrundzählrate gesunken ist (vgl. Abb. 8.2).  $z_M$  ist definiert als die minimale Höhe oberhalb der Chopper-Kante, in der keine Beeinflussung der Signalintensität durch den Chopper vorliegt. Die Berechnung von  $z_M$  erfolgt durch Anpassen des molekularen Dichteprofiles  $\mathcal{N}^{\text{Mol}}(z_i)$  an das Rohdatenprofil  $Z^s(z_i)$  mittels einer multiplikativen Konstante  $K$ . Die Anpassung wird im Höhenbereich zwischen 15 und 30 km vorgenommen. Durch den Aerosolgehalt in der unteren Stratosphäre wird dort  $Z^s(z_i)$  größer als  $K \mathcal{N}^{\text{Mol}}(z_i)$ . Die Abschattung des Signals durch den Chopper läßt  $Z^s(z_i)$  unterhalb einer bestimmten Höhe kleiner als  $K \mathcal{N}^{\text{Mol}}(z_i)$  werden. Diese Höhenstufe zuzüglich eines Sicherheitsabstands von 400 m ergibt  $z_M$  (vgl. Abb. 8.2). Die  $z^2$ -Abhängigkeit des Signals wird hierbei nicht berücksichtigt.



**Abbildung 8.4:** Depolarisation und Aerosoldepolarisation bei 532 nm als Funktion der Höhe. Die dargestellten Profile sind aus dem in Abb. 8.2 gezeigten Rohdatenprofil und einem weiteren, im Depolarisationskanal aufgenommenen Profil, berechnet worden. Die vertikale, unterbrochene Linie markiert den Wert der molekularen Depolarisation von 0,0141.

## 8.2 Volumendepolarisation

Mit der Kenntnis der ersten beiden Komponenten des Stokes-Vektors  $\vec{P}^r$  läßt sich die Volumendepolarisation direkt berechnen. Die Depolarisation des Rückstreusignals

$$\delta^r(z_i) = \frac{P_1^r(z_i) - P_2^r(z_i)}{P_1^r(z_i) + P_2^r(z_i)} \quad (8.3)$$

setzt sich zusammen aus einem Anteil des emittierten Laserlichts

$$\delta^e = \frac{P_1^e - P_2^e}{P_1^e + P_2^e}$$

und einem durch die atmosphärischen Streuprozesse verursachten Anteil  $\delta(z_i)$ . Die lineare Polarisation des Nd:YAG-Pulses beträgt beim Verlassen des Laserkopfs etwa 99% [Continuum, 1993]; hieraus ergibt sich eine Depolarisation von  $\delta^e = 0,005$ . Durch Einsetzen von Gl. 8.2 in Gl. 8.3 erhält man die Volumendepolarisation  $\delta^r$  als

$$\delta^r(z_i) = \frac{-C^\perp/C^\parallel (D_{11}^\perp + D_{12}^\perp) Z^\parallel(z_i) + (D_{11}^\parallel + D_{12}^\parallel) Z^\perp(z_i)}{C^\perp/C^\parallel (D_{11}^\perp - D_{12}^\perp) Z^\parallel(z_i) - (D_{11}^\parallel - D_{12}^\parallel) Z^\perp(z_i)}. \quad (8.4)$$

$\delta(z_i)$  berechnet sich aus  $\delta^r(z_i)$  und  $\delta^e$  zu

$$\delta(z_i) = \frac{\delta^r(z_i) - \delta^e}{1 - \delta^r(z_i) \delta^e}. \quad (8.5)$$

Die Depolarisation  $\delta(z_i)$  besteht ihrerseits aus einer Komponente der Rayleigh-Streuung  $\delta^{\text{Ray}}$  und einer Komponente der Partikelstreuung  $\delta^{\text{Aer}}(z_i)$ . Mit dem Rückstreuverhältnis  $R(z_i)$  (Gl. 6.9) und der Rayleigh-Depolarisation  $\delta^{\text{Ray}}$  berechnet sich die Partikeldepolarisation zu

$$\delta^{\text{Aer}}(z_i) = \frac{(1 + \delta^{\text{Ray}}) \delta(z_i) R(z_i) - (1 + \delta(z_i)) \delta^{\text{Ray}}}{(1 + \delta^{\text{Ray}}) R(z_i) - (1 + \delta(z_i))}. \quad (8.6)$$

Die Herleitung der Gl. 8.5 und 8.6 findet sich im Anhang.

Die Berechnung von  $\delta^{\text{Aer}}(z_i)$  ist für einen geringen Aerosolgehalt ( $R \approx 1$  und  $\delta \approx \delta^{\text{Ray}}$ ) problematisch, da nach Gl. 8.6 der Fehler  $\mathcal{E}(\delta^{\text{Aer}})$  beliebig groß wird. Abb. 8.4 demonstriert dies an dem Profil vom 24. Januar 1992. Die durchgezogene Kurve kennzeichnet den Verlauf der Volumendepolarisation  $\delta(z_i)$ . Die unterbrochene Kurve zeigt die Partikeldepolarisation  $\delta^{\text{Aer}}(z_i)$ . Für Höhen über 18 km wird  $\delta^{\text{Aer}}(z_i)$  nicht dargestellt, da die relativen Fehler von  $\delta^{\text{Aer}}(z_i)$  in diesem Höhenbereich beliebig große Werte annehmen. Die vertikale, unterbrochene Linie markiert den Wert der molekularen Depolarisation  $\delta^{\text{Ray}}$ .

Für eine verschwindende Aerosoldepolarisation  $\delta^{\text{Aer}}(z_i)$  folgt aus Gl. 8.6, daß die Volumendepolarisation mit ansteigendem Rückstreuverhältnis abnimmt,

$$\delta(z_i) = \frac{\delta^{\text{Ray}}}{(1 + \delta^{\text{Ray}}) R(z_i) - \delta^{\text{Ray}}}. \quad (8.7)$$

### 8.3 Klett-Methode zur Berechnung von Rückstreukoeffizienten

Nach der Lidar-Gleichung 6.1 ist das Meßsignal  $Z^s(z_i)$  von vier physikalischen Größen abhängig,

- dem Rayleigh-Rückstreukoeffizienten  $\beta^{\text{Ray}}(z_i, \lambda)$ ,
- dem Molekülabsorptionskoeffizienten  $\alpha_{\text{Abs}}^{\text{Mol}}(z_i, \lambda)$ ,
- dem Aerosolrückstreukoeffizienten  $\beta^{\text{Aer}}(z_i, \lambda)$  und
- dem Aerosolextinktionskoeffizienten  $\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}(z_i, \lambda)$ .

Der Rayleigh-Streukoeffizient  $\alpha_{\text{Str}}^{\text{Ray}}(z_i, \lambda)$  ist keine unabhängige Größe, da er nach Gl. 5.4 proportional zu  $\beta^{\text{Ray}}(z_i, \lambda)$  ist.

Drei unbekanntem Größen steht eine Meßgröße gegenüber. Daher kann die Lidar-Gleichung nur unter Zuhilfenahme von zusätzlichen Informationen gelöst werden.

- Mit einem Temperaturprofil  $T(z_i)$  und Druckprofil  $p(z_i)$  kann der Rayleigh-Rückstreukoeffizient  $\beta^{\text{Ray}}(z_i, \lambda)$  berechnet werden. Unter Verwendung des idealen Gasgesetzes gilt

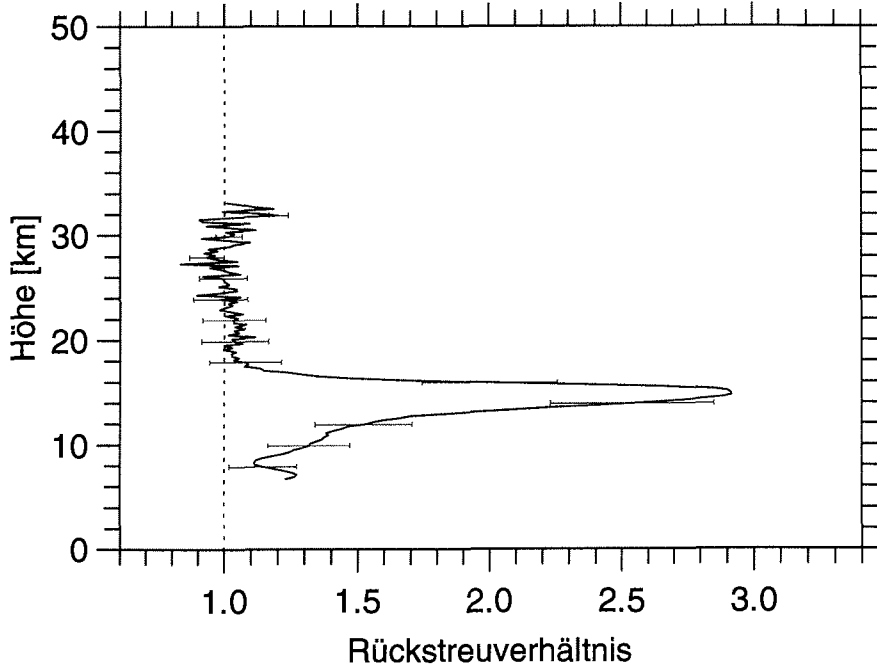
$$\beta^{\text{Ray}}(z_i, \lambda) = \frac{kT(z_i)}{p(z_i)} \frac{d\sigma_{\text{Rck}}^{\text{Ray}}}{d\Omega}(\lambda).$$

Wellenlänge	Mie-Streuverhältnis
$\lambda$	$L^{\text{Aer}} = \alpha_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}/\beta^{\text{Aer}}$
353 nm	30 sr
532 nm	40 sr
1064 nm	60 sr

**Tabelle 8.1:** Mie-Streuverhältnisse für die drei Lidar-Wellenlängen. In dieser Arbeit wird  $L^{\text{Aer}}(z_i)$  durch eine höhenunabhängige Konstante approximiert. Die Werte basieren auf Analysen von Satellitenbeobachtungen und der Auswertung von *in-situ*-Daten [Thomason und Osborn, 1992; Deshler, 1993]. Für alle drei Werte wird ein relativer Fehler von 50% angesetzt.

Ballonsondierungen, die täglich an der Koldewey-Station durchgeführt werden, liefern Druck und Temperatur bis in Höhen zwischen 25 und 35 km. Die Meßfehler betragen  $\mathcal{E}(p) \leq 1$  hPa für  $p > 100$  hPa und  $\mathcal{E}(p) \leq 3$  hPa für  $p < 100$  hPa sowie  $\mathcal{E}(T) \leq 0,2$  K für  $183 \text{ K} < T < 333 \text{ K}$  [Vaisala, 1988].

- Absorption durch Spurengase ist zu berücksichtigen, wenn die Emissions- oder Detektionswellenlänge auf Absorptionslinien atmosphärischer Gase liegen. Zur Korrektur ist ein Höhenprofil des betreffenden Spurengases erforderlich. Für die beim Aerosol-Lidar verwendeten Wellenlängen ist nur das Chappuis-Absorptionsband des Spurengases Ozon für die Wellenlänge 532 nm von Bedeutung. Der Absorptionswirkungsquerschnitt bei 532 nm beträgt  $(2,81 \pm 0,14) \cdot 10^{-25} \text{ m}^2$  [Griggs, 1968; Anderson und Mauersberger, 1992]. Der angegebene Fehler ist verursacht durch die graphische Bestimmung der in der Literatur angegebenen Absorptionsspektren. Die Temperaturabhängigkeit des Ozon-Absorptionswirkungsquerschnitts vernachlässige ich, da die Ozon-Korrektur selbst die berechneten Rückstreukoeffizienten nur um maximal 3% erhöht [Steinbrecht, 1987]. Während des Polarwinters werden an der Koldewey-Station mehrmals wöchentlich neben der Bestimmung der meteorologischen Profile Ozonsondierungen durchgeführt [Neuber *et al.*, 1992b]. Diese Daten werden für die Absorptionskorrektur in dieser Arbeit verwendet.
- Wie im folgenden gezeigt werden wird, benötigt man für die Berechnung der Rückstreukoeffizienten die Kenntnis des Mie-Streuverhältnisses  $L^{\text{Aer}}(z_i, \lambda) = \alpha_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}(z_i, \lambda)/\beta^{\text{Aer}}(z_i, \lambda)$ .  $L^{\text{Aer}}$  ist eine Funktion der Aerosolzusammensetzung, des Partikelgrößenspektrums und der Form der Teilchen. Sowohl  $\beta^{\text{Aer}}(z_i, \lambda)$  wie auch  $\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}(z_i, \lambda)$  sollen jedoch erst als ein Ergebnis der Lidar-Datenauswertung bestimmt werden und sind daher zunächst nicht bekannt. Analysen von Satellitenbeobachtungen liefern Abschätzungen für  $L^{\text{Aer}}(z_i, \lambda)$  zwischen 40 und 80 sr in einem Höhenbereich zwischen 16 und 28 km bei einer Wellenlänge von 532 nm [Thomason und Osborn, 1992]. Die Analysen basieren auf Messungen der atmosphärischen Extinktion im Zeitraum vom 23. bis zum 27. Oktober 1991 zwischen  $30^\circ$  und  $50^\circ\text{N}$ . Eine weitere Möglichkeit besteht in der Berechnung von  $L^{\text{Aer}}$  anhand von *in-situ* bestimmten Partikelgrößenverteilungen [Deshler, 1993]. Diese Sondierungen sind zwischen dem 18. Januar und dem 13. Februar 1992 in Kiruna ( $68^\circ\text{N}$ ,  $20^\circ\text{O}$ ) durchgeführt worden. Auf der Basis dieser Untersuchungen benutze ich für die Lidar-Wellenlängen die in Tab. 8.1 aufgeführten höhenkonstanten Werte. Um den Ergebnissen von Raman-Lidar-Untersuchungen Rechnung zu tragen, die eine deutliche Höhenabhängigkeit von  $L^{\text{Aer}}$  zeigen, wird ein relativer Fehler  $\mathcal{E}(L^{\text{Aer}})/L^{\text{Aer}}$  von 50%



**Abbildung 8.5:** Rückstreuverhältnis bei 532 nm als Funktion der Höhe. Das dargestellte Profil ist aus dem in Abb. 8.2 gezeigten Rohdatenprofil berechnet worden. Die vertikale, unterbrochene Linie markiert den Wert des Rückstreuverhältnisses für eine aerosolfreie Atmosphäre.

angesetzt [Ansmann *et al.*, 1993]. Diese Vorgehensweise wird durch die geringe Abhängigkeit des Partikelrückstreuoeffizienten  $\beta^{\text{Aer}}(z_i, \lambda)$  von  $L^{\text{Aer}}$  gerechtfertigt (vgl. Abschnitt 8.3.1).

- Der Rückstreuoeffizient in einer Referenzhöhe  $z_R$  muß bekannt sein. Die Referenzhöhe  $z_R$  wird in eine Atmosphärenschicht gelegt, in der Rayleigh-Streuung der dominierende Streuprozess ist und in der daher  $\beta(z_R)$  durch  $\beta^{\text{Ray}}(z_R)$  ersetzt werden kann.

Mit diesen zusätzlichen Informationen kann  $\beta^{\text{Aer}}(z_i, \lambda)$  anhand von Gl. 6.1 berechnet werden. Im Sinne der Übersichtlichkeit verzichte ich im folgenden auf die explizite Darstellung der Wellenlängenabhängigkeit von Variablen. Die Lidar-Gleichung 6.1 läßt sich als Differentialgleichung schreiben [Klett, 1981; Klett, 1985],

$$\frac{dS(z_i)}{dz} = \frac{d}{dz} \ln \left( \beta^{\text{Ray}}(z_i) + \beta^{\text{Aer}}(z_i) \right) - 2 \left( \alpha_{\text{Str}}^{\text{Ray}}(z_i) + \alpha_{\text{Abs}}^{\text{Mol}}(z_i) + \alpha_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}(z_i) \right), \quad (8.8)$$

wobei

$$S(z_i) = \ln(z_i^2 P_1^r(z_i))$$

den Logarithmus des entfernungskorrigierten Signals bezeichnet. Gleichung 8.8 hat die formale Struktur einer Bernoulli-Differentialgleichung. Ihre Lösung lautet [Bronstein und Semendjajew, 1981]

$$\beta^{\text{Aer}}(z_i) = \frac{\mathcal{Z}(z_i)}{C + 2\Delta z \sum_{j=i}^N L^{\text{Aer}}(z_j) \mathcal{Z}(z_j)} - \beta^{\text{Ray}}(z_i) \quad (8.9)$$

mit der Integrationskonstanten  $C$ , die sich aus der Anfangsbedingung  $\beta(z_R) = \beta^{\text{Ray}}(z_R)$  ergibt, und dem Zähler

$$\mathcal{Z}(z_i) = \exp \left( S(z_i) - S(z_N) - 2 \Delta z \sum_{j=i}^N \left[ (L^{\text{Ray}} - L^{\text{Aer}}(z_j)) \beta^{\text{Ray}}(z_j) + \alpha_{\text{Abs}}^{\text{Mol}}(z_j) \right] \right).$$

In der Formulierung von Gl. 8.9 ist berücksichtigt, daß  $S(z_i)$  nur auf diskreten Höhenniveaus  $z_i$  vorliegt; Integrationen über  $z$  sind daher durch Summationen ersetzt worden. Klett [1981] wies als erster darauf hin, daß die Stabilität der Lösung (Gl. 8.9) unempfindlicher gegenüber Meßfehlern wird, wenn als Referenzhöhe  $z_R$  nicht die untere Grenzhöhe  $z_M$ , sondern die obere Grenze  $z_N$  benutzt wird. Die Integrationskonstante  $C$  könnte man direkt zu

$$C^{-1} = \beta^{\text{Ray}}(z_N) + \beta^{\text{Aer}}(z_N) \approx \beta^{\text{Ray}}(z_N)$$

bestimmen. Einsetzen eines fehlerhaften Werts von  $\beta^{\text{Ray}}(z_N)$  in Gl. 8.9 führt zu einer Verschiebung des gesamten Profils  $\beta^{\text{Aer}}(z_i)$ . Der Fehler von  $\beta^{\text{Ray}}(z_i)$  nimmt jedoch mit Höhe exponentiell zu. Ich bestimme daher die Integrationskonstante  $C$  mittels einer Anpassung von  $\beta^{\text{Aer}}(z_i)$  an die Nullfunktion im Höhenbereich  $[z_K, z_N]$ , d.h. durch Minimierung von

$$\chi^2(C) = \sum_{i=K}^N \left( \frac{\beta^{\text{Ray}}(z_i) - \mathcal{Z}(z_i) / \left( C + 2 \Delta z \sum_{j=i}^N L^{\text{Aer}}(z_j) \mathcal{Z}(z_j) \right)}{\mathcal{E}(\beta^{\text{Ray}}(z_i))} \right)^2.$$

Der Höhenbereich  $[z_K, z_N]$ , in dem die Minimierung erfolgt, ist so gewählt, daß er vollständig oberhalb der Aerosolschichten liegt. Für die Auswertung der Daten des Winters 1991/92 und 1992/93 verwende ich  $z_K = 25,1$  km.

In Abb. 8.5 wird als Beispiel das Ergebnis der Auswertung des in Abb. 8.2 dargestellten Rohdatenprofils gezeigt. Das Profil, das Abb. 8.5 zeigt, ist allerdings nicht der Rückstreukoeffizient selbst, sondern das Rückstreuverhältnis  $R$  (vgl. Gl. 6.9). Man erkennt, daß in einer Höhe von 14,7 km die Partikelrückstreuung fast doppelt so stark wie die Rayleigh-Rückstreuung ist.

### 8.3.1 Fehlerberechnung

Der Fehler von  $\beta^{\text{Aer}}(z_i) = \beta(z_i) - \beta^{\text{Ray}}(z_i)$  berechnet sich nach [Bevington, 1969]

$$\begin{aligned} (\mathcal{E}(\beta_i^{\text{Aer}}))^2 &= \sum_{j=M}^N \left( \frac{\partial \beta_i^{\text{Aer}}}{\partial P_{1,j}^r} \mathcal{E}(P_{1,j}^r) \right)^2 + \sum_{j=M}^N \left( \frac{\partial \beta_i^{\text{Aer}}}{\partial \beta_j^{\text{Ray}}} \mathcal{E}(\beta_j^{\text{Ray}}) \right)^2 \\ &+ \sum_{j=M}^N \left( \frac{\partial \beta_i^{\text{Aer}}}{\partial L_j} \mathcal{E}(L_j) \right)^2 + \sum_{j=M}^N \left( \frac{\partial \beta_i^{\text{Aer}}}{\partial \alpha_{\text{Abs}j}^{\text{Mol}}} \mathcal{E}(\alpha_{\text{Abs}j}^{\text{Mol}}) \right)^2. \quad (8.10) \end{aligned}$$

Hierbei verzichte ich der Übersichtlichkeit wegen auf die Angabe der expliziten Höhenabhängigkeit und füge den Höhenindex direkt an die höhenabhängige Variable an; statt  $X(z_i)$  schreibe ich also  $X_i$ . Eine explizite Darstellung der Differentialquotienten  $\partial \beta_i^{\text{Aer}} / \partial X_j$  findet sich im Anhang. In Abb. 8.6 ist der relative

für ein Profil des Partikelrückstreuungskoeffizienten dargestellt. Es handelt sich hierbei um die Auswertung des in Abb. 8.2 gezeigten Rohdatenprofils vom 24. Januar 1992. Im Maximum der Aerosolwolke in etwa 15 km Höhe geht der Gesamtfehler auf etwa 8% zurück. Unterhalb und oberhalb der Aerosolschicht nimmt der relative Fehler deutlich größere Werte an, da dort  $\beta_{\text{Aer}}^i(z_i)$  verschwindet. Im gesamten Höhenbereich

$$S_\alpha = \sqrt{\sum_{j=1}^M \left( \frac{\partial \beta_{\text{Aer}}^i}{\partial \alpha_{\text{Mol}}^j} \mathcal{E}(\alpha_{\text{Mol}}^j) \right)^2}$$

$$S_T = \sqrt{\sum_{j=1}^M \left( \frac{\partial \beta_{\text{Aer}}^i}{\partial T_j} \mathcal{E}(T_j) \right)^2}$$

$$S_\beta = \sqrt{\sum_{j=1}^M \left( \frac{\partial \beta_{\text{Aer}}^i}{\partial \beta_{\text{Ray}}^j} \mathcal{E}(\beta_{\text{Ray}}^j) \right)^2}$$

$$S_P = \sqrt{\sum_{j=1}^M \left( \frac{\partial \beta_{\text{Aer}}^i}{\partial P_{T_j}^i} \mathcal{E}(P_{T_j}^i) \right)^2}$$

Fehler  $\mathcal{E}(\beta_{\text{Aer}}^i)/\beta_{\text{Aer}}^i$  zusammen mit den vier Einzelbeiträgen aus Gl. 8.10

Abb. 8.2 gezeigte Rohdaten-Profil vom 24. Januar 1992 benutzt worden. kennzeichnet den Verlauf des Gesamtfehlers  $\mathcal{E}(\beta_{\text{Aer}}^i(z_i))/\beta_{\text{Aer}}^i(z_i)$ . Für diese Analyse ist das in nis  $S_T$  und durch den Fehler im Molekülabsorptionskoeffizienten  $S_\alpha$ . Die durchgezogene Linie durch den Fehler im Molekülrückstreuungskoeffizienten  $S_\beta$ , durch den Fehler im Partikelstreuverhältnis  $S_P$  seine Zusammensetzung. Die vier Beiträge sind verursacht durch den Fehler im Lidar-Signal  $S_P$ , durch den Fehler des Partikelrückstreuungskoeffizienten  $\mathcal{E}(\beta_{\text{Aer}}^i(z_i))/\beta_{\text{Aer}}^i(z_i)$  und

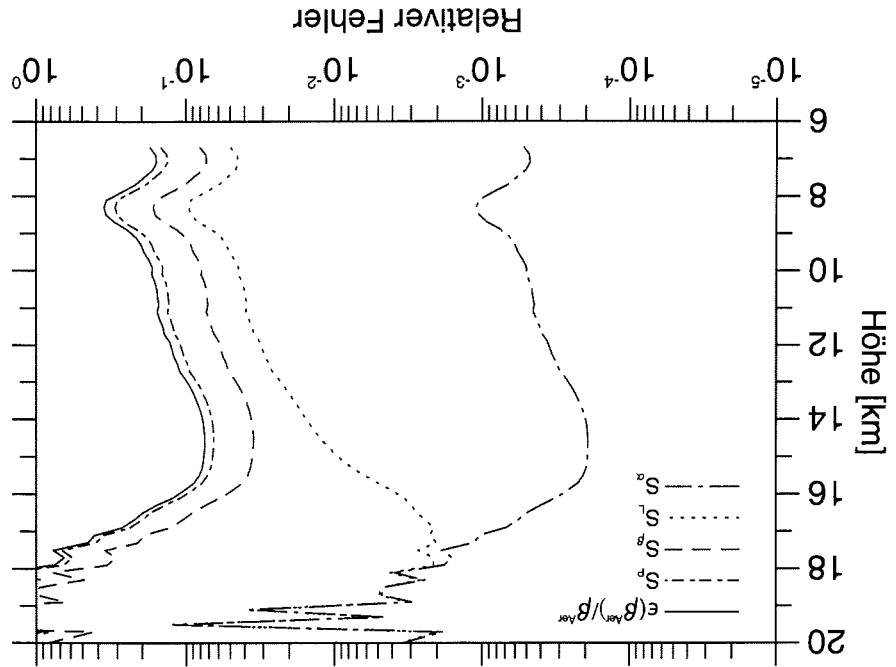


Abbildung 8.6: Der relative Fehler des Partikelrückstreuungskoeffizienten  $\mathcal{E}(\beta_{\text{Aer}}^i(z_i))/\beta_{\text{Aer}}^i(z_i)$  und



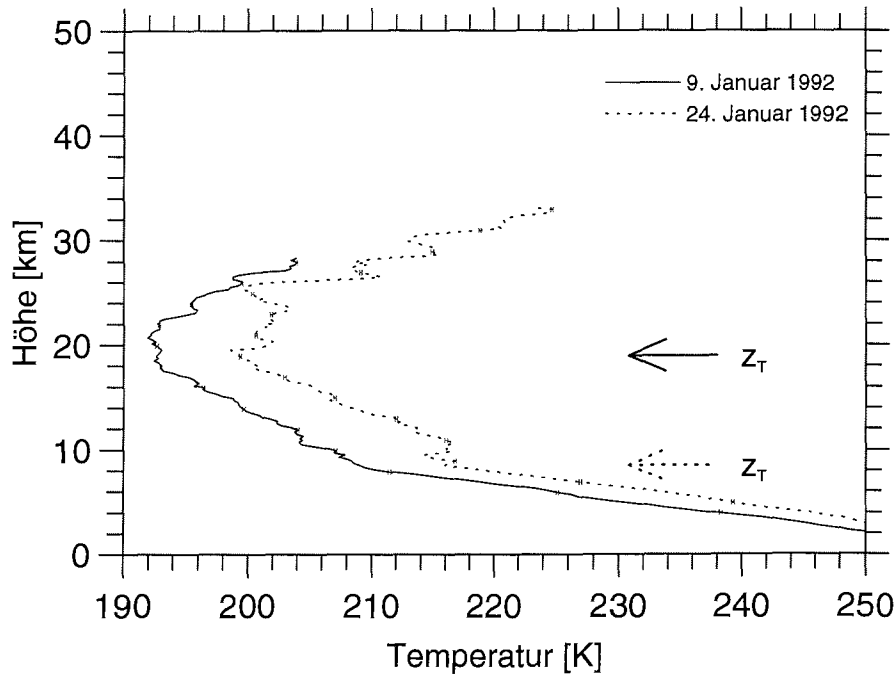


Abbildung 8.7: Temperaturprofile vom 9. und 24. Januar 1992. Die Pfeile markieren die Position der Tropopausenhöhen  $z_T$ .

tragen zu  $\mathcal{E}(\beta^{\text{Aer}})/\beta^{\text{Aer}}$  wesentlich nur der Fehler des Rohdatensignals und der Fehler des Rayleigh-Rückstreuoprofils bei. Die Unsicherheiten in der Bestimmung von  $L^{\text{Aer}}$  und  $\alpha_{\text{Abs}}^{\text{Mol}}$  wirken sich nicht signifikant auf das Ergebnis  $\beta^{\text{Aer}}(z_i)$  aus.

In den bisherigen Abschnitten dieses Kapitels ist die Auswertung der primären Meßgrößen,  $\beta^{\text{Aer}}(z_i)$  und  $\delta(z_i)$ , dargestellt worden. Die Berechnung der sekundären Meßgrößen, der optischen Dicke und der Partikelgrößenspektren, ist Inhalt der folgenden beiden Abschnitte.

## 8.4 Optische Dicke des stratosphärischen Aerosols

Die optische Dicke  $D_s^{\text{Aer}}(\lambda)$  des stratosphärischen Aerosols wird durch Summieren des Partikelextinktionskoeffizienten über die Höhe  $z$  berechnet

$$D_s^{\text{Aer}}(\lambda) = \Delta z \sum_{i=T}^N \alpha_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}(z_i, \lambda), \quad (8.11)$$

wobei der Partikelextinktionskoeffizient über die Beziehung

$$\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}(z_i, \lambda) = L^{\text{Aer}}(\lambda) \beta^{\text{Aer}}(z_i, \lambda) \quad (8.12)$$

bestimmt wird. Der Höhenbereich, über den summiert wird, erstreckt sich von der Tropopausenhöhe  $z_T$  bis zum Ende des Profils  $z_N$  in 25 bis 35 km Höhe. Der ge-

naue Wert von  $z_N$  ist nicht relevant, da  $\beta^{\text{Aer}}$  in diesem Höhenbereich vernachlässigbar klein ist.

Die Tropopausenhöhe dagegen sollte genau bekannt sein. Während der Polarnacht kann an manchen Tagen diese Information aus den Temperaturprofilen nicht abgeleitet werden. Zur Demonstration zeige ich in Abb. 8.7 zwei Temperaturprofile vom 9. und 24. Januar 1992. Nach der Definition der *World Meteorological Organization*, die sich an der Änderung der Temperaturabnahme mit der Höhe orientiert, würde man Tropopausenhöhen von 18,9 und 8,5 km erhalten [Liljequist und Cehak, 1974]. Eine Tropopausenhöhe von fast 19 km in polaren Breiten erscheint allerdings aus geophysikalischen Gründen wenig sinnvoll. Die in Kapitel 9 diskutierten Ergebnisse der Aerosol-Lidar-Messungen lassen es als unwahrscheinlich erscheinen, daß die für die troposphärische Dynamik charakteristischen konvektiven Prozesse bis in 19 km Höhe reichen. Aus diesem Grund wird für die Bestimmung der optischen Dicke nach Gl. 8.11 die Tropopausenhöhe in Ny-Ålesund durch Mittelwertbildung über einen Zeitraum von 7 Tagen bestimmt. Tageswerte, die größer als 12 km sind, werden hierbei ignoriert. Die auf diese Weise berechneten Tropopausenhöhen liegen in den Wintermonaten zwischen 8 und 9 km.

## 8.5 Partikelgrößen- und -oberflächenspektren

Das formale Problem bei der Berechnung von Partikelgrößenspektren besteht darin,

$$\beta^{\text{Aer}}(\lambda, m) = \int_0^\infty dr \frac{d\sigma_{\text{Rck}}^{\text{Aer}}}{d\Omega}(r, \lambda, m) \frac{dN^{\text{Aer}}}{dr}(r), \quad (8.13)$$

nach  $dN^{\text{Aer}}/dr(r)$  aufzulösen. Die Größenverteilung  $dN^{\text{Aer}}/dr(r)$  ist die Anzahl der Partikel im Größenintervall  $[r, r + dr]$ . Gl. 8.13 ist eine Fredholm-Integralgleichung mit dem Kern  $d\sigma_{\text{Rck}}^{\text{Aer}}/d\Omega(r, \lambda, m)$ . Die entsprechende Gleichung für  $\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}(\lambda)$ , Gl. 5.9, liefert keine zusätzliche Information, da  $\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}(\lambda)$  nach Gl. 8.12 aus  $\beta^{\text{Aer}}(\lambda)$  berechnet wird und daher keine unabhängige Meßgröße ist. Die genauere Analyse zeigt jedoch, daß die direkte Inversion von Gl. 8.13 aus mehreren Gründen nicht zu befriedigenden Ergebnissen führt [z.B. Twomey, 1977; Müller und Quentzel, 1985; Rodgers, 1976]. Erstens ist die Funktion  $\beta^{\text{Aer}}(\lambda)$  im Fall der vorliegenden Aerosol-Lidar-Messungen für nur drei Wellenlängen bekannt. Zweitens besitzen typische Kerne  $d\sigma_{\text{Rck}}^{\text{Aer}}/d\Omega(r, \lambda, m)$  breite Maxima. Das hat zur Folge, daß man eine unbegrenzte Anzahl von Größenverteilungen  $dN^{\text{Aer}}/dr(r)$  finden kann, die mit  $\beta^{\text{Aer}}(\lambda)$  im Rahmen der Meßfehler  $\mathcal{E}(\beta^{\text{Aer}})$  verträglich sind. Drittens ist der Kern selbst zunächst nicht bekannt, da er von Form, Orientierung, Zusammensetzung und Brechungsindex der Partikel abhängt.

### 8.5.1 Aerosol-Modell

Aus den geschilderten Gründen muß für die Bestimmung einer physikalisch sinnvollen Größenverteilung zusätzliche Information in die Auswertung einfließen. Hierzu ist ein einfaches, nulldimensionales Aerosol-Modell entwickelt worden. Die Konzeption des Modells basiert auf den Arbeiten von Hamill *et al.* [1982] und Larsen [1992]. Die folgenden Annahmen bilden die Grundlage des Modells:

- Das stratosphärische Aerosol ist dominiert von sphärischen Partikeln. Diese Annahme ist gerechtfertigt, wenn das Aerosol in der flüssigen Phase vorliegt. Die Gültigkeit dieser Annahme während des Meßzeitraums im Winter 1992/93 wird bestätigt durch eine reduzierte Volumendepolarisation in der vulkanischen Aerosolschicht. Für sphärische Partikel liefert die Mie-Theorie den Kern

$$\frac{d\sigma_{\text{Rck}}^{\text{Aer}}}{d\Omega}(r, \lambda, m) = \pi r^2 Q^{\text{Rck}}\left(\frac{2\pi r}{\lambda}, m\right)$$

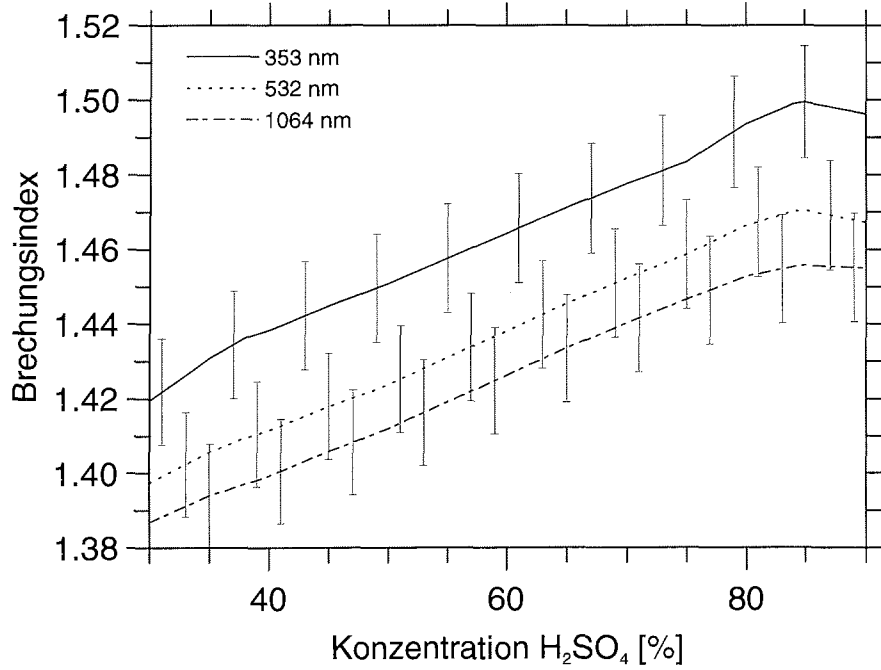
(vgl. Abschnitt 5.3).

- Die tatsächliche Größenverteilung kann durch eine monomodale Lognormal-Verteilung nach Gl. 2.1 approximiert werden. *In-situ*-Untersuchungen z.B. von Deshler [1993] zeigen, daß sich die dominierende Mode des vulkanischen Aerosols im Winter 1991/92 gut in dieser Form parametrisieren läßt. Über den Winter 1992/93 sind mir keine *in-situ*-Ergebnisse bekannt.
- Die stratosphärischen Aerosolpartikel bestehen aus verdünnter Schwefelsäure und befinden sich im Gleichgewicht mit stratosphärischem Wasserdampf [Hamill *et al.*, 1982]. Zahlreiche *in-situ*-Messungen bestätigen den hohen Anteil von  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$  am stratosphärischen Aerosol [z.B. Dye *et al.*, 1992]. Da die Zeitkonstante für das Einstellen des  $\text{H}_2\text{O}$ -Gleichgewichts in der Größenordnung von Sekunden liegt und das Mischungsverhältnis von  $\text{H}_2\text{SO}_4$  gegenüber  $\text{H}_2\text{O}$  etwa acht Größenordnungen geringer ist, wird sich auf der Zeitskala der Beobachtungsperiode ein Gleichgewicht des Schwefelsäureaerosols nur in bezug auf Verdunstung und Kondensation von  $\text{H}_2\text{O}$ -Molekülen einstellen können [Turco *et al.*, 1979].
- Die Erhöhung des Sättigungsdampfdruckes aufgrund der gekrümmten Tröpfchenoberfläche (Kelvin-Effekt) kann vernachlässigt werden. Nach Untersuchungen von Steele und Hamill [1981] ist der Einfluß des Kelvin-Effektes für Partikel, deren Radien größer als  $0,05 \mu\text{m}$  sind, gering.
- Der Extinktionsquerschnitt für Streuung an  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Tröpfchen wird dominiert vom Streuquerschnitt, und der Imaginärteil des Brechungsindex  $\Im(m)$  kann auf null gesetzt werden. Laboruntersuchungen von Palmer und Williams [1975] zeigen, daß  $\Im(m)$  für die Aerosol-Lidar-Wellenlängen von 353, 532 und 1064 nm um mindestens fünf Größenordnungen kleiner als  $\Re(m - 1)$  ist.

Eingabedaten für das Modell sind der stratosphärische  $\text{H}_2\text{O}$ -Partialdruck  $p_{\text{H}_2\text{O}}$  und die Temperatur  $T$  sowie die Parameter der Lognormal-Verteilung  $\mathcal{N}^{\text{Aer}}$ ,  $\bar{r}$  und  $s$ . Die Stratosphärentemperaturen und -drücke liegen in Form der Radiosondenprofile mit ausreichender Genauigkeit vor. Da der Feuchtesensor der Sonde in der Stratosphäre keine verlässlichen Werte liefert, wird ein höhenkonstantes  $\text{H}_2\text{O}$ -Volumenmischungsverhältnis von  $X_{\text{H}_2\text{O}}^{\text{V}} = 5 \text{ ppmv}$  für die Bestimmung des Wasserdampfpartialdrucks  $p_{\text{H}_2\text{O}} = p X_{\text{H}_2\text{O}}^{\text{V}}$  zugrunde gelegt [Russell *et al.*, 1984a; Ovarlez und Ovarlez, 1993].

Der Realteil des Brechungsindex  $m$  für eine bestimmte  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration wird durch Inter- und Extrapolation der von Palmer und Williams [1975] veröffentlichten Daten bestimmt. Mittels der umgeformten Lorentz-Lorenz-Gleichung

$$m(T) = \sqrt{\frac{2(m^2(T_0) - 1)\rho_{\text{H}_2\text{SO}_4}(T) + (m^2(T_0) + 2)\rho_{\text{H}_2\text{SO}_4}(T_0)}{(m^2(T_0) + 2)\rho_{\text{H}_2\text{SO}_4}(T_0) - (m^2(T_0) - 1)\rho_{\text{H}_2\text{SO}_4}(T)}} \quad (8.14)$$



**Abbildung 8.8:** Die Abhängigkeit des reellen Brechungsindex von der Schwefelsäurekonzentration für die drei Aerosol-Lidar-Wellenlängen 353, 532 und 1064 nm. Die Brechungsindizes basieren auf Messungen von Palmer und Williams [1975]. Die Kurven sind für eine Temperatur von 200 K berechnet worden. Der relative Fehler ist auf 5% abgeschätzt worden.

wird  $m$  von der Temperatur  $T_0 = 300$  K, bei der die Labormessungen durchgeführt worden sind, auf Stratosphärentemperaturen umgerechnet, wobei  $\rho_{\text{H}_2\text{SO}_4}(T)$  die Dichte der Schwefelsäure bei der Temperatur  $T$  bezeichnet [Steele und Hamill, 1981; Lax, 1967]. In Abb. 8.8 ist für die drei Aerosol-Lidar-Wellenlängen die Abhängigkeit des reellen Brechungsindex von der  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Konzentration dargestellt. Die Kurven sind für eine Stratosphärentemperatur von 200 K berechnet.

### 8.5.2 Bestimmung von Partikelgrößenverteilungen

Die Berechnung von Partikelgrößenverteilungen geschieht nun durch Vergleich von Rückstreuoeffizienten, die anhand des Aerosol-Modells bestimmt worden sind, mit den Rückstreuoeffizienten, die man aus der Auswertung der Aerosol-Lidar-Daten erhält. Zunächst werden die Modellrückstreuoeffizienten für die Lidar-Wellenlängen nach Gl. 8.13 numerisch berechnet,

$$\hat{\beta}^{\text{Aer}}(\lambda, \mathcal{N}^{\text{Aer}}, \bar{r}, s) = \mathcal{N}^{\text{Aer}} \hat{\beta}_0^{\text{Aer}}(\lambda, \bar{r}, s) \quad (8.15)$$

$$\hat{\beta}_0^{\text{Aer}}(\lambda, \bar{r}, s) = \Delta r \sum_{i=1}^R \pi r_i^2 Q^{\text{Bck}}\left(\frac{2\pi r_i}{\lambda}, m\right) \frac{1}{\sqrt{2\pi r_i \ln s}} \exp\left(-\frac{\ln^2(r_i/\bar{r})}{2 \ln^2 s}\right).$$

Hierbei ist

$$\begin{aligned} \Delta r &= 0,01 \lambda / (2\pi) \\ r_i &= [\bar{r} / (10 s), \bar{r} / (10 s) + \Delta r, \bar{r} / (10 s) + 2 \Delta r, \dots, \bar{r} (10 s)]. \end{aligned} \quad (8.16)$$

Die Summenberechnung in Gl. 8.15 wird auf das Intervall  $[r/(10s), r(10s)]$  um den Modenradius  $\bar{r}$  begrenzt, da die Gültigkeit der Parametrisierung nach Gl. 2.1 außerhalb dieses Radiusbereiches nicht durch *in-situ*-Untersuchungen gestützt werden kann. Die Schrittweite  $\Delta r$  ergibt sich aus der Bedingung, daß die Approximierung der Integration in Gl. 8.13 durch eine Summation in Gl. 8.15 eine Abweichung von nicht mehr als 1% verursachen sollte. Die Parameter der Lognormal-Verteilung  $\mathcal{N}^{\text{Aer}}$ ,  $\bar{r}$  und  $s$  werden durch Bestimmung des minimalen Abstandsquadrats  $\chi^2(\bar{r}, s)$  von Modelldaten  $\hat{\beta}^{\text{Aer}}(\lambda, \mathcal{N}^{\text{Aer}}, \bar{r}, s)$  und Meßdaten  $\beta^{\text{Aer}}(\lambda)$  bestimmt. Da der Rückstreukoeffizient  $\hat{\beta}^{\text{Aer}}(\lambda, \mathcal{N}^{\text{Aer}}, \bar{r}, s)$  nichtlinear von  $\bar{r}$  und  $s$  abhängt, können deren Fehler  $\mathcal{E}(\bar{r})$  und  $\mathcal{E}(s)$  nicht analytisch berechnet werden [Press *et al.*, 1992]. Um dennoch ein Maß für die Qualität der Anpassung zu erhalten, wird die Bestimmung des Abstandsquadrats nicht mit dem tatsächlichen Meßwert  $\beta^{\text{Aer}}(\lambda)$ , sondern mit einem Satz  $\beta_m^{\text{Aer}}(\lambda)$  von  $M = 100$  normalverteilten Werten durchgeführt, deren Mittel mit  $\beta^{\text{Aer}}(\lambda)$  und deren Standardabweichung  $\mathcal{S}(\beta_m^{\text{Aer}}(\lambda))$  mit  $\mathcal{E}(\beta^{\text{Aer}}(\lambda))$  übereinstimmt,

$$\begin{aligned} \langle \beta_m^{\text{Aer}}(\lambda) \rangle &= \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M \beta_m^{\text{Aer}}(\lambda) = \beta^{\text{Aer}}(\lambda) \\ \mathcal{S}(\beta_m^{\text{Aer}}(\lambda)) &= \sqrt{\frac{1}{M} \sum_{m=1}^M (\beta_m^{\text{Aer}}(\lambda) - \langle \beta_m^{\text{Aer}}(\lambda) \rangle)^2} = \mathcal{E}(\beta^{\text{Aer}}(\lambda)) . \end{aligned}$$

Der Rückstreukoeffizient  $\hat{\beta}^{\text{Aer}}(\lambda, \mathcal{N}^{\text{Aer}}, \bar{r}, s)$  ist dagegen linear in  $\mathcal{N}^{\text{Aer}}$ . Die Minimierung bezüglich der Teilchendichte kann analytisch durchgeführt werden, und man erhält als Abstandsquadrat

$$\chi_m^2(\bar{r}, s) = \sum_{i=1}^L \left( \frac{f(\bar{r}, s) \hat{\beta}_0^{\text{Aer}}(\lambda_i, \bar{r}, s) - \beta_m^{\text{Aer}}(\lambda_i)}{\mathcal{E}(\beta_m^{\text{Aer}}(\lambda_i))} \right)^2 , \quad (8.17)$$

wobei

$$f(\bar{r}, s) = \frac{\sum_{i=1}^L \hat{\beta}_0^{\text{Aer}}(\lambda_i, \bar{r}, s) \beta_m^{\text{Aer}}(\lambda_i) / (\mathcal{E}(\beta_m^{\text{Aer}}(\lambda_i)))^2}{\sum_{i=1}^L (\hat{\beta}_0^{\text{Aer}}(\lambda_i, \bar{r}, s))^2 / (\mathcal{E}(\beta_m^{\text{Aer}}(\lambda_i)))^2} . \quad (8.18)$$

Summiert wird über die Anzahl der Lidar-Wellenlängen  $L = 3$ . Die Werte von  $\bar{r}$  und  $s$ , für die der Ausdruck 8.17 sein Minimum annimmt, bezeichne ich im folgenden mit  $\bar{r}_m$  und  $s_m$ . Da die Berechnung der  $\chi_m^2(\bar{r}, s)$  numerisch aufwendig ist, kann diese Minimierung nur auf dem diskreten Gitter

$$\begin{aligned} \bar{r} &= 0,005, \dots, 5 \mu\text{m} \\ s &= 1,1, \dots, 3,0 \end{aligned} \quad (8.19)$$

mit einer multiplikativen Schrittweite von 1,05 für  $\bar{r}$  und einer additiven Schrittweite von 0,05 für  $s$  durchgeführt werden. Die Partikelteilchendichte folgt nun aus der Kenntnis von  $\bar{r}_m$  und  $s_m$  nach Gl. 8.18,

$$\mathcal{N}^{\text{Aer}} = f(\bar{r}_m, s_m) .$$

Die Prozedur wird für jeden der  $\beta_m^{\text{Aer}}$ -Werte ( $m = 1, \dots, M$ ) durchgeführt. Die Kovarianzmatrix

$$\mathcal{S}_{ij}^2 = \langle (X_i - \langle X_i \rangle) (X_j - \langle X_j \rangle) \rangle$$

für  $X_1 = \mathcal{N}^{\text{Aer}}$ ,  $X_2 = \bar{r}$  und  $X_3 = s$  enthält Standardabweichungen und Korrelationen der Parameter  $\mathcal{N}^{\text{Aer}}$ ,  $\bar{r}$  und  $s$ . Liefert das Verfahren ein Ergebnis auf dem Rand des Gitterbereiches (Gl. 8.19), wird das Resultat verworfen. Das Ergebnis  $\mathcal{N}^{\text{Aer}}$ ,  $\bar{r}$  und  $s$  berechnet sich schließlich durch Bildung des geometrischen Mittels über die  $M$  Werte  $\mathcal{N}_m^{\text{Aer}}$ ,  $\bar{r}_m$  und  $s_m$ . Diese Analyse wird für jedes Höhenniveau durchgeführt, auf dem die Volumendepolarisation unter einen Wert von 0,013 fällt. Die Randbedingung garantiert, daß die Voraussetzung für die Anwendung der Mie-Theorie — die sphärische Gestalt der stratosphärischen Aerosolpartikel — zutrifft.

### 8.5.3 Bestimmung von Partikeloberflächen- und -volumenverteilungen

Die Oberflächen- und Volumendichte ergeben sich direkt aus der Kenntnis der Parameter  $\mathcal{N}^{\text{Aer}}$ ,  $\bar{r}$  und  $s$ , da die Momente einer Lognormal-Verteilung analytisch berechenbar sind (vgl. Gl. 2.2). Die Oberflächendichte  $\mathcal{A}$  und Volumendichte  $\mathcal{V}$  sind daher gegeben durch

$$\begin{aligned}\mathcal{A} &= 4\pi \mathcal{N}^{\text{Aer}} \bar{r}^2 \exp\left(2 \ln^2(s)\right) \\ \mathcal{V} &= \frac{4}{3} \pi \mathcal{N}^{\text{Aer}} \bar{r}^3 \exp\left(\frac{9}{2} \ln^2(s)\right) .\end{aligned}\quad (8.20)$$

Gl. 8.20 bezeichnet man als Hatch-Choate-Gleichungen [Reist, 1984]. Mit den Massendichten von Luft und Schwefelsäure,  $\rho_L$  und  $\rho_{\text{H}_2\text{SO}_4}$ , folgt hieraus das Massenmischungsverhältnis

$$X_{\text{H}_2\text{SO}_4}^M = \mathcal{V} \frac{\rho_{\text{H}_2\text{SO}_4}}{\rho_L} .$$

## 8.6 Koexistenztemperaturen

Bei der Analyse der Aerosol-Lidar-Daten ist der Vergleich der Atmosphärentemperatur mit den Koexistenztemperaturen von NAT und Eis ein wichtiges Kriterium für die Unterscheidung zwischen PSW Typ I, PSW Typ II und  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosolen. Für die Berechnung der Koexistenztemperaturen ist die Kenntnis der Temperaturabhängigkeit der  $\text{HNO}_3$ - und  $\text{H}_2\text{O}$ -Sättigungsdampfdrücke erforderlich.

Nach neuesten Laboruntersuchungen von Marti und Mauersberger [1993] läßt sich die Koexistenztemperatur von Eis im Bereich zwischen 170 und 253 K in der Form

$$T_{\text{Eis}} = \frac{A}{\ln(p_{\text{H}_2\text{O}}/1 \text{ Pa}) - B}$$

$$A = -6132,9 \text{ K} \pm 1,8 \text{ K}$$

$$B = 28,868 \pm 0,025$$

parametrisieren.  $p_{\text{H}_2\text{O}}$  bezeichnet den  $\text{H}_2\text{O}$ -Partialdruck.

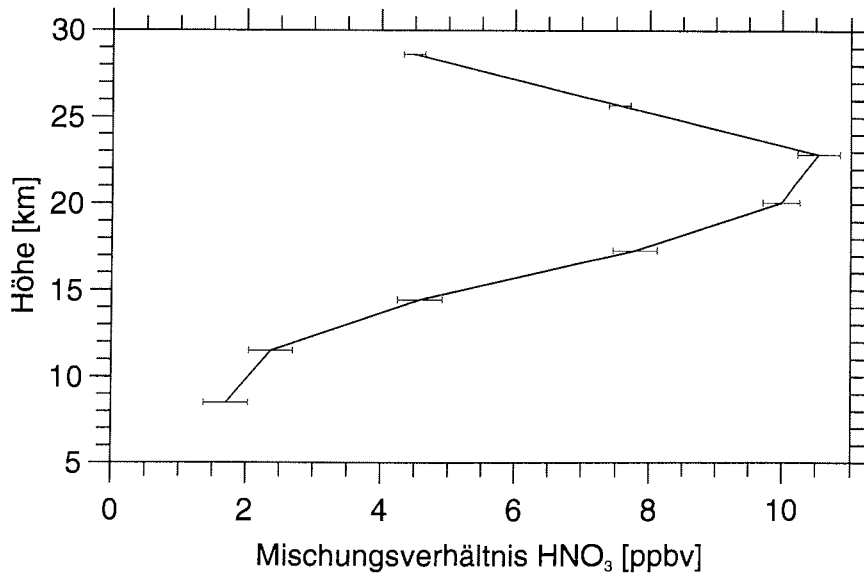


Abbildung 8.9: Das Höhenprofil des HNO<sub>3</sub>-Mischungsverhältnisses im zonalen Monatsmittel für Januar 1979 auf 76°N. Die Daten basieren auf LIMS-Messungen [Gille und Russell, 1984].

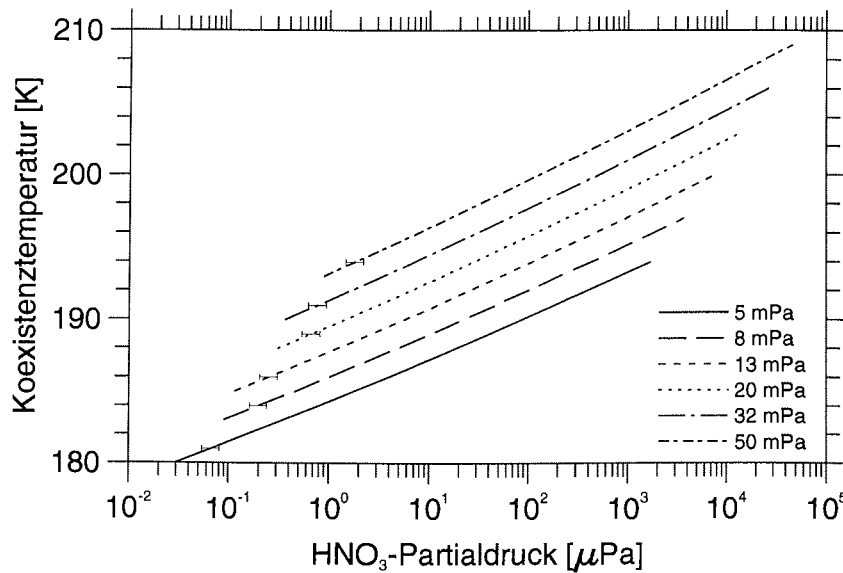


Abbildung 8.10: Die Koexistenztemperatur von NAT als Funktion des HNO<sub>3</sub>-Partialdruckes.  $T_{\text{NAT}}$  ist berechnet für sechs H<sub>2</sub>O-Partialdrücke zwischen 5 und 50 mPa [Hanson und Mauersberger, 1988].

Sättigungsdampfdrücke von  $\text{HNO}_3$  und  $\text{H}_2\text{O}$  über NAT sind in Laboruntersuchungen von Hanson und Mauersberger [1988] bestimmt worden. Nach ihrer Parametrisierung ist die Koexistenztemperatur  $T_{\text{NAT}}$  gegeben durch

$$\begin{aligned} \frac{T_{\text{NAT}}}{1 \text{ K}} = & -\frac{108,3 - 2,784 \ln(p_{\text{H}_2\text{O}}/1 \text{ Pa}) - \ln(p_{\text{HNO}_3}/1 \text{ Pa})}{5,088 \cdot 10^{-2} - 1,76 \cdot 10^{-3} \ln(p_{\text{H}_2\text{O}}/1 \text{ Pa})} \quad (8.21) \\ & + \left( \left( \frac{108,3 - 2,784 \ln(p_{\text{H}_2\text{O}}/1 \text{ Pa}) - \ln(p_{\text{HNO}_3}/1 \text{ Pa})}{5,088 \cdot 10^{-2} - 1,76 \cdot 10^{-3} \ln(p_{\text{H}_2\text{O}}/1 \text{ Pa})} \right)^2 \right. \\ & \left. + \frac{26242}{2,544 \cdot 10^{-2} - 8,8 \cdot 10^{-4} \ln(p_{\text{H}_2\text{O}}/1 \text{ Pa})} \right)^{\frac{1}{2}}. \end{aligned}$$

Für die vorliegende Arbeit verwende ich ein  $\text{HNO}_3$ -Profil, das auf LIMS-Satellitenmessungen der polaren Stratosphäre basiert [Gille und Russell, 1984]. Abb. 8.9 zeigt das Profil. Es handelt sich um den zonalen Mittelwert des  $\text{HNO}_3$ -Mischungsverhältnisses für Januar 1979 auf  $76^\circ\text{N}$ . Das stratosphärische  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnis zeigt demgegenüber eine nur geringe Höhenabhängigkeit [z.B. Russell *et al.*, 1984a; Ovarlez und Ovarlez, 1993]. Ich nehme daher einen höhenkonstanten Wert von 5 ppmv an.

Unter Verwendung von Gl. 8.21 erhält man die in Abb. 8.10 dargestellten  $\text{HNO}_3$ -Sättigungsdampfdrücke. Es werden sechs Kurven für  $\text{H}_2\text{O}$ -Partialdrücke zwischen 5 und 50 mPa gezeigt. Da NAT nur unter bestimmten  $\text{H}_2\text{O}$ - und  $\text{HNO}_3$ -Partialdrücken thermodynamisch stabil ist, existiert nicht für alle Werte der Druckskala ein Wert der Koexistenztemperatur.



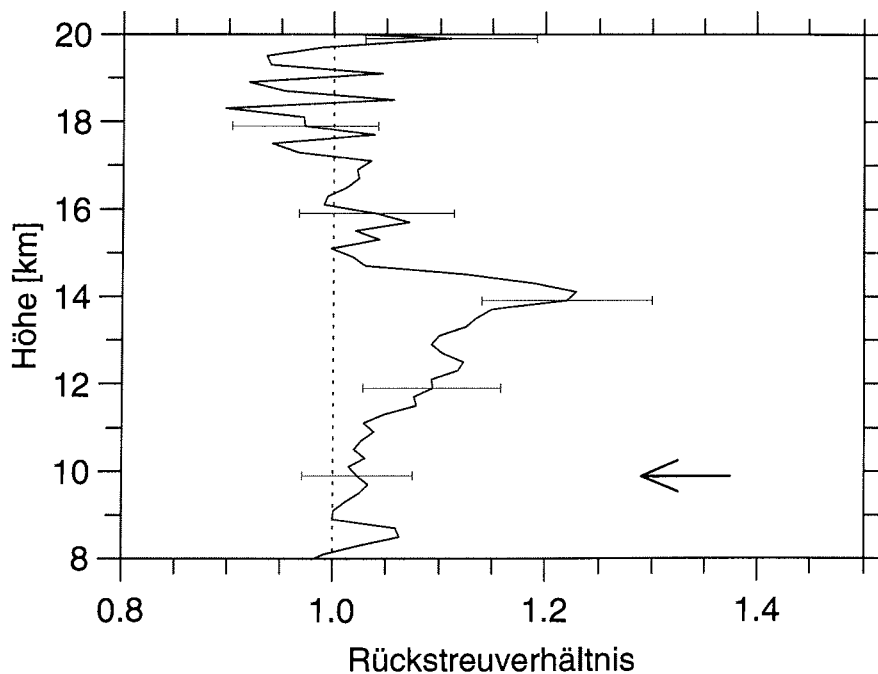
# Kapitel 9

## Ergebnisse, deren Interpretation und Bewertung

In den folgenden Abschnitten werden die Ergebnisse der zwei Meßkampagnen vorgestellt, die in den Wintern 1991/92 und 1992/93 mit dem Mehrwellenlängen-Lidar in Ny-Ålesund durchgeführt worden sind [Beyerle und Neuber, 1993; Beyerle *et al.*, 1993]. Die Resultate werden interpretiert und auf dem Hintergrund des derzeitigen wissenschaftlichen Kenntnisstands bewertet.

Für die zeitliche und räumliche Entwicklung des stratosphärischen Aerosols sind dynamische Prozesse in der polaren Stratosphäre von großer Bedeutung. Ich beginne dieses Kapitel daher mit der Beschreibung der Stratosphärendynamik während der beiden Meßzeiträume. Meine Darstellung stützt sich auf die Stratosphärenanalysen des Instituts für Meteorologie der Freien Universität Berlin, die in den Beilagen zur Berliner Wetterkarte veröffentlicht sind [Naujokat *et al.*, 1992; Naujokat *et al.*, 1993]. Die weiteren Abschnitte sind der Darstellung und Interpretation der Lidar-Messungen des vulkanischen Aerosols und der PSW gewidmet. Polare stratosphärische Wolken wurden im Winter 1991/92 in Ny-Ålesund mit einer unbedeutenden Ausnahme nicht beobachtet, die Diskussion konzentriert sich daher auf die Beobachtungen im Januar 1993. Zum Vergleich wird eine Auswertung von PSW-Beobachtungen des DIAL-Lidars vom Januar 1989 und Januar 1990 vorgestellt. In bezug auf das vulkanische Aerosol dagegen ist der Winter 1991/92 interessanter als der des folgenden Jahres. Die Ausbildung des Polarwirbels im November 1991 und die daraus resultierende Isolierung der polaren Luftmassen in der mittleren Stratosphäre führt zu einem starken meridionalen Gradienten des Aerosolgehalts. Dieser Gradient erlaubt es, anhand von Korrelationsuntersuchungen Aufschlüsse über dynamische Prozesse in der mittleren und unteren Stratosphäre zu gewinnen.

Im folgenden werde ich auf eine Diskussion des stratosphärischen Hintergrund-aerosols verzichten. Hierfür sind zwei Gründe verantwortlich. Erstens ist während des gesamten Meßzeitraums die polare Stratosphäre durch vulkanisches Aerosol dominiert; das Massenmischungsverhältnis von  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosol im Winter 1991/92 ist im Vergleich zum Vorwinter um fast zwei Größenordnungen erhöht [z.B. Deshler, 1993]. Zweitens reicht die Nachweisgenauigkeit des Aerosol-Lidars für Untersuchungen des Hintergrundaerosols nicht aus.



**Abbildung 9.1:** Das Rückstreuverhältnis bei einer Wellenlänge von 353 nm vom 11. August 1991. Die dem Profil zugrunde liegende Meßzeit beträgt etwa 70 Minuten. In einer Höhe von etwa 14 km sind Spuren vulkanischen Aerosols erkennbar. Die Tropopausenhöhe ist mit einem Pfeil markiert.

## 9.1 Stratosphärendynamik in den Wintern 1991/92 und 1992/93

Der polare Wirbel des Winters 1991/92 ist charakterisiert durch Störungen der Zirkulation und geographische Verlagerungen des Wirbelzentrums mit der Folge von Erwärmungen und Teilungen des Vortex. Nach den Analysen des Instituts für Meteorologie der Freien Universität Berlin bildet sich im November 1991 ein stabiler, kalter Polarwirbel aus, doch schon Ende November wird eine vorübergehende Teilung des Wirbels beobachtet [Naujokat *et al.*, 1992]. Nach einer stabilen Phase, die von Ende Dezember bis Anfang Januar anhält, kommt es Mitte Januar 1992 in Folge einer Störung der polaren Zirkulation zu einer starken Erwärmung in der mittleren Stratosphäre. Auf dem 10 hPa-Druckniveau wird ein Temperaturanstieg von über 60 K innerhalb von vier Tagen beobachtet; im Monatsmittel werden Abweichungen von mehr als 30 K registriert. Der Polarwirbel verstärkt sich zwar gegen Ende des Monats wieder, doch kommt es im Lauf des Februar 1992 mehrfach zu einer Teilung des Vortex. Schon Mitte März beginnt die Frühjahrserwärmung, die schließlich zum Zusammenbruch des Wirbels führt.

Der Wirbel des folgenden Winters 1992/93 zeichnet sich durch eine stabile, kalte Phase aus, die von November 1992 bis Ende Januar 1993 anhält [Naujokat *et al.*, 1993]. Trotz einer zeitweisen Teilung des Vortex während des Jahreswechsels bleibt der Wirbel stabil mit der Folge tiefer Stratosphärentemperaturen, sodaß während

des Januar 1993 häufig polare stratosphärische Wolken über Spitzbergen beobachtet werden. Eine schwache Stratosphärenwärmung im Februar führt zu einer Verschiebung des Kältezentrum bis in mittlere Breiten, verursacht aber keinen Zusammenbruch der Zirkulation. Der Beginn der Frühjahrserwärmung setzt frühzeitig Anfang März ein, doch erst Anfang April kann sich die endgültige Erwärmung mit dem Zusammenbruch des Polarwirbels und Beginn der Ostwindzirkulation durchsetzen.

## 9.2 Vulkanisches Aerosol

Der stratosphärische Aerosolhaushalt ist während der Meßperiode dominiert vom  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosol vulkanischen Ursprungs. Die Eruption des philippinischen Vulkans Mt. Pinatubo im Juni 1991 hat einen Eintrag von etwa 20 Mt  $\text{SO}_2$  in die untere und mittlere Stratosphäre zur Folge [Bluth *et al.*, 1992; Goldman *et al.*, 1992]. Der Haupteintrag erfolgt im Höhenbereich zwischen 20 und 25 km. Mit einer Zeitkonstanten von etwa drei bis vier Wochen wird Schwefeldioxid zu  $\text{H}_2\text{SO}_4$  oxidiert und kondensiert als Schwefelsäureaerosol aus [Deshler *et al.*, 1991]. Die globale Verteilung der Aerosolwolke erfolgt zunächst in zonaler Richtung. Innerhalb von nur 22 Tagen umrundet die Wolkenfront den Globus in westlicher Richtung [Bluth *et al.*, 1992]. Der meridionale Transport geht langsamer vonstatten. In der unteren Stratosphäre der Nordhemisphäre allerdings breitet sich das vulkanische Aerosol innerhalb von wenigen Wochen über mittlere Breiten bis in die Arktis aus [Jäger, 1992; Neuber *et al.*, 1993].

### 9.2.1 Sommer 1991

Erste Spuren stratosphärischen Aerosols über Spitzbergen, das auf die Eruption des Mt. Pinatubo zurückzuführen ist, werden während einer einwöchigen Meßkampagne in Ny-Ålesund im August 1991 detektiert [Neuber *et al.*, 1992a]. Zu diesem Zeitpunkt ist das Aerosol-Lidar noch nicht betriebsbereit, die Messungen werden mit dem Tageslichtdetektor des Ozon-Lidars auf der Wellenlänge von 353 nm durchgeführt. Abb. 9.1 zeigt das Rückstreuverhältnis als Funktion der Höhe am 11. August 1991. In der unteren Stratosphäre im Höhenbereich um 14 km ist ein schwaches Aerosolsignal mit einem maximalen Rückstreuverhältnis von 1,2 erkennbar. Beim Vergleich von Abb. 9.1 mit anderen dieses Kapitels ist zu berücksichtigen, daß das Rückstreuverhältnis aufgrund der unterschiedlichen Wellenlängenabhängigkeit von Molekül- und Aerosolstreuung bei 353 nm etwa um den Faktor 3 bis 4 geringer ist als bei 532 nm. Die Signalqualität ist zusätzlich durch das hohe Signal-zu-Rausch-Verhältnis einer Tageslichtmessung beeinträchtigt.

Der Nachweis von vulkanischem Aerosol in der arktischen Stratosphäre zu einem Zeitpunkt weniger als acht Wochen nach dem Ausbruch des Vulkans ist ein Indiz für die Existenz schneller meridionaler Transportprozesse in der unteren Stratosphäre [Neuber *et al.*, 1993]. In der mittleren Stratosphäre dagegen, im Höhenbereich zwischen 20 und 25 km, in den der größte Teil des vulkanischen Materials injiziert worden ist, sind zu diesem Zeitpunkt keine Aerosole nachweisbar [Bluth *et al.*, 1992]. In diesem Höhenbereich kann das vulkanische Aerosol die Polargebiete bis zur Ausbildung des Polarwirbels im November 1991 nicht erreichen.

Die Beobachtung eines schnellen Meridionaltransports in der unteren Stratosphäre wird durch Lidar-Messungen in mittleren Breiten unterstützt. Jäger [1992] berichtet von ersten Spuren des vulkanischen Aerosols über Garmisch-Partenkirchen bereits im Juli 1991 in Höhen zwischen 15 und 17 km.

### 9.2.2 Winter 1991/92

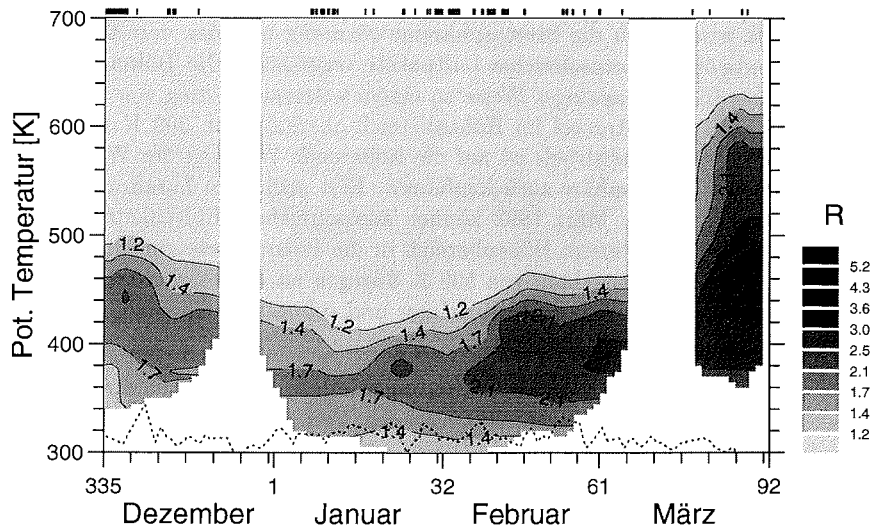
Der Winter 1991/92 stellt sich als außerordentlich interessant für die Untersuchung dynamischer Prozesse in der unteren und mittleren Stratosphäre dar. Bis zum Zeitpunkt der Ausbildung des Polarwirbels im November 1991 können in der unteren Stratosphäre unterhalb des isentropischen Niveaus von 500 K nur die Vorläufer der vulkanischen Aerosolwolke in die Polarregionen vordringen. Oberhalb von 500 K ist die Stratosphäre im wesentlichen unberührt von vulkanischem Aerosol. Die Folge dieser Entwicklung ist die Ausbildung eines Gradienten im Aerosolmassenmischungsverhältnis über die Wirbelgrenzen hinweg. Diese Unterschiede im Aerosolgehalt polarer und subpolarer Luftpakete ermöglichen die Detektion von Störungen der Zirkulation anhand der Aerosol-Lidar-Messungen.

#### Zeitliche und räumliche Entwicklung

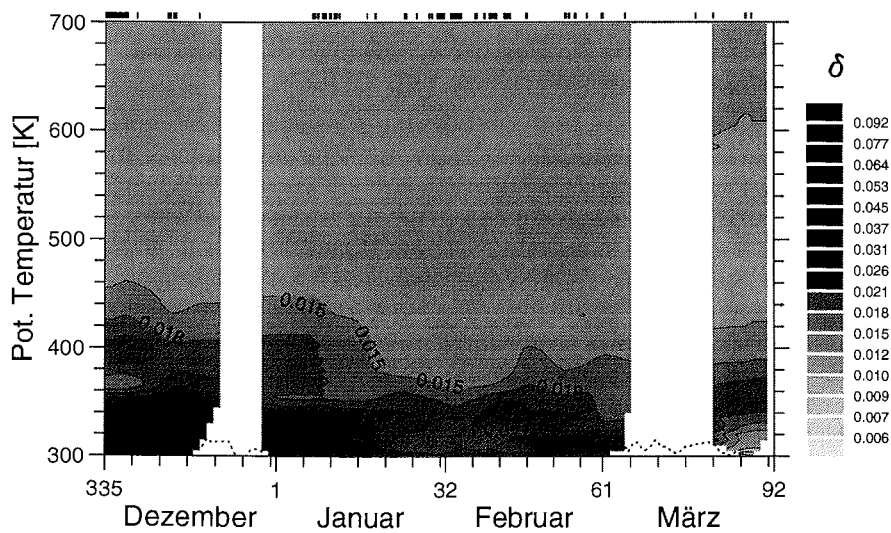
Der Meßbetrieb des Aerosol-Lidars im Rahmen der EASOE-Kampagne beginnt am 25. November 1991 und dauert mit zwei längeren Unterbrechungen bis zum 27. März 1992. Während dieser Zeitperiode ist die untere Stratosphäre dominiert von einer etwa acht Kilometer starken Aerosolschicht. Die zeitliche Entwicklung des Rückstreuverhältnisses  $R$  während des Winters im Höhenbereich zwischen 300 und 700 K potentieller Temperatur ist in Abb. 9.2 dargestellt. Die Isoplethen markieren Werte gleichen Rückstreuverhältnisses. Es wird eine multiplikative Schrittweite von 1,2 benutzt, um Werte von  $R$  nahe eins unterscheiden zu können. Am oberen Rand der Abbildung sind die Betriebszeiten des Lidars markiert. Die Meßreihen weisen zwei Lücken auf. Zwischen Weihnachten und Neujahr ruht der Meßbetrieb und eine zweiwöchige Meßpause im März ist durch technische Probleme des Nd:YAG-Lasers verursacht. Die Tropopausenhöhe ist als unterbrochene Linie eingezeichnet.

Während der stabilen Phase des Polarwirbels zeigen die Lidar-Messungen eine breite Schicht vulkanischen Aerosols in der unteren Stratosphäre im Höhenbereich zwischen 300 und 450 K. Das mittlere Profil des Rückstreuverhältnisses für diesen Zeitraum besitzt einen Maximalwert von 2,0 mit einer Standardabweichung von 0,4 in einer Höhe von 370 K. Mitte Januar und im Laufe des Februar steigt  $R$  auf Werte um 2 bzw. 2,5 an. Ab Mitte Februar sind Aerosole auch oberhalb von 460 K wieder nachweisbar, nachdem sich die Schichtobergrenze im Januar bei etwa 440 K befunden hat. Um den 20. März nimmt der Aerosolgehalt der unteren Stratosphäre stark zu. Eine ausgeprägte Schicht mit  $R \approx 2$  erscheint nun auch in Höhen über 550 K.

Die Höhenvariation, die das Maximum des Rückstreuverhältnisses zeigt, ist nicht das Ergebnis von Vertikaltransport. Andernfalls würde man konstante Maximalwerte von  $R$  während des Winters erwarten, da  $R$  in bezug auf Vertikalbewegungen eine konservative Größe ist. Horizontale Transportprozesse führen aerosolreiche



**Abbildung 9.2:** Die zeitliche Entwicklung des Rückstreuverhältnisses bei 532 nm im Winter 1991/92 als Funktion der potentiellen Temperatur. Die Isoplethen besitzen eine multiplikative Schrittweite von 1,2, um Werte von  $R$  nahe eins unterscheiden zu können. Als unterbrochene Linie ist die Tropopausenhöhe eingezeichnet. Die Symbole oberhalb der Abbildung markieren die Betriebszeiten des Lidars.



**Abbildung 9.3:** Die zeitliche Entwicklung der Volumendepolarisation bei 532 nm im Winter 1991/92 als Funktion der potentiellen Temperatur. Die Isoplethen besitzen eine multiplikative Schrittweite von 1,2. Hohe Depolarisationswerte unterhalb der Tropopause sind von Cirren verursacht worden.

bzw. -arme Luftpakete heran und verursachen auf diese Weise eine Verschiebung des Maximums. Die Zunahme des Rückstreuverhältnisses in der zweiten Hälfte des Januar 1992 wird durch die Stratosphärenenerwärmung und das damit verbundene Einfließen subpolarer, aerosolreicher Luftpakete verursacht. Die Teilung des Vortex Mitte Februar führt in analoger Weise zu einem weiteren Anstieg von  $R$ . Das Fehlen von vulkanischem Aerosol im Höhenbereich oberhalb von 500 K während der stabilen Phase des Polarwirbels ist auf die isolierende Wirkung der Wirbelgrenzen in der mittleren Stratosphäre zurückzuführen. Erst nach dem Zusammenbruch der Zirkulation gegen Ende März 1992 können aerosolreichere Luftpakete aus subpolaren Breiten auch in diesem Höhenbereich in die Polargebiete eindringen. In der unteren Stratosphäre unterhalb von 500 K dagegen ist der Wirbel schwächer ausgebildet und ein Austausch von Luft polarer und subpolarer Herkunft während des gesamten Winters 1991/92 möglich.

Die Vorstellung einer wirksamen Isolierung durch die Wirbelgrenzen in der mittleren Stratosphäre wird unterstützt durch den Vergleich der Aerosolbelastung — ausgedrückt durch das Rückstreuverhältnis — und der potentiellen Wirbelstärke  $Q$ , die als Maß für den reziproken Abstand vom Wirbelzentrum interpretiert werden kann (vgl. Abschnitt 10.2).

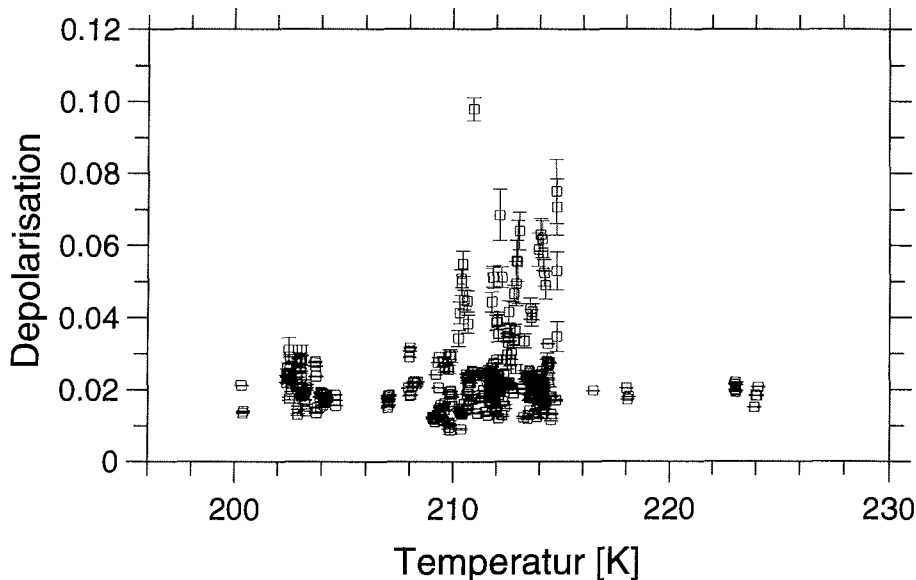
### Eigenschaften des Aerosols

Die Frage, ob das Schwefelsäureaerosol in kristalliner oder flüssiger Form vorliegt, ist im Zusammenhang mit der Entstehung der PSW von Bedeutung. Da das  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Partikel als Nukleationskeim für NAT-Bildung dient, beeinflusst der Aggregatzustand die Kompatibilität zwischen Schwefelsäureaerosol und NAT und damit die für das Ausfrieren erforderlichen Temperaturen. Experimentelle Befunde deuten auf die Möglichkeit hin, daß das  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosol trotz einer Unterkühlung von mehr als 40 K in der flüssigen Phase bleibt [Dye *et al.*, 1992].

Lidar-Messungen können in diesem Zusammenhang durch Bestimmung der Depolarisation des Rückstreusignales Aufschlüsse über Abweichungen von der sphärischen Gestalt der Partikel liefern. Die zeitliche Entwicklung der Volumendepolarisation im Winter 1991/92 ist in Abb. 9.3 dargestellt. Hohe Depolarisationen unterhalb der Tropopause werden durch das Auftreten von Cirren verursacht. Während der stabilen Phase des Polarwirbels beobachtet man in der Hauptschicht der Aerosolwolke Werte im Bereich um  $\delta^{\text{Ray}} = 0,0141$ , den Wert der molekularen Depolarisation. Die untersten Schichten direkt oberhalb der Tropopause sind dagegen charakterisiert durch eine Zunahme der Depolarisation. Nach dem Aufbruch des Wirbels im März sind im Höhenbereich um 20 km wiederum deutlich reduzierte Werte der Volumendepolarisation zu beobachten.

Die erhöhte Volumendepolarisation in der untersten Schicht des Vulkanaerosols ist verursacht durch Streuung an asphärischen Partikeln. Es stellt sich die Frage, ob in dieser Schicht das Schwefelsäureaerosol ausgefroren ist und in kristalliner Form vorliegt. Wäre dies der Fall, würde man eine Korrelation zwischen der beobachteten Depolarisation und der Temperatur erwarten.

In Abb. 9.4 ist die Volumendepolarisation als Mittel über die isentropischen Niveaus von  $350 \pm 10$  K (etwa  $12 \pm 0,5$  km) aufgetragen gegen die Temperatur. Aus



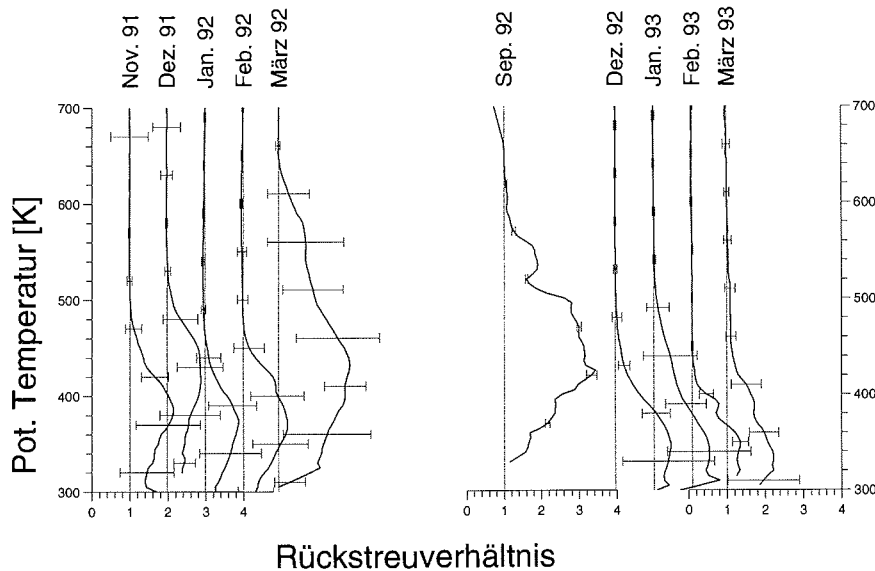
**Abbildung 9.4:** Depolarisation als Funktion der Temperatur im Winter 1991/92. Die Depolarisationswerte sind gemittelt über die isentropischen Niveaus  $350 \pm 10$  K ( $12 \pm 0,5$  km). Der lineare Korrelationskoeffizient beträgt 0,07 mit einer Signifikanz von 0,14.

dem Wert des linearen Korrelationskoeffizienten von 0,07 folgt, daß eine Temperaturabhängigkeit der Depolarisation nicht existiert. *In-situ*-Untersuchungen, die im Juli und August 1991 in Laramie, Wyoming stattfanden, lassen den Schluß zu, daß in der untersten Schicht der Aerosolwolke Reste vulkanischer Aschepartikel für die erhöhten Depolarisationswerte verantwortlich sind [Sheridan *et al.*, 1992]. Die Partikelradien müssen im Submikrometerbereich liegen, da größere Teilchen aus der Aerosolschicht innerhalb weniger Wochen durch Sedimentation entfernt worden sind [Sheridan *et al.*, 1992].

### 9.2.3 Sommer 1992

Während des Sommers 1992 können mit dem Aerosol-Lidar keine Messungen durchgeführt werden, da der Mehrwellenlängendetektor nicht für Tageslichtmessungen eingerichtet ist. Während einer einwöchigen Meßkampagne im September 1992 werden jedoch mit dem Tageslichtdetektor des DIAL-Lidars auf der Wellenlänge 532 nm Profile aufgenommen. Eine Bestimmung der Volumendepolarisation ist in dieser Meßkonfiguration nicht möglich.

Abb. 9.5 zeigt das gemittelte Profil des Rückstreuverhältnisses bei 532 nm im Monat September 1992 zusammen mit den Monatsmitteln der Wintermonate 1991/92 und 1992/93. Mehr als ein Jahr nach dem Ausbruch des Mt. Pinatubo liefert das vulkanische Aerosol im Höhenbereich zwischen 350 und 550 K ein stärkeres Rückstreusignal als während des Winters 1991/92. Die Ursache hierfür ist, daß erst nach dem Einsetzen der Frühjahrserwärmung und dem Zusammenbruch der polaren Zirkulation im März 1992 sich aerosolreiche Luftpakete aus subpolaren Breiten über das gesamte Polargebiet ausdehnen können.



**Abbildung 9.5:** Monatsmittel des Rückstreuverhältnisses als Funktion der potentiellen Temperatur bei einer Wellenlänge von 532 nm im Zeitraum zwischen November 1991 und März 1993. Der Berechnung der Winterprofile liegen jeweils über 50 Meßstunden zugrunde, für das Septemberprofil stehen nur 3–4 Meßstunden zur Verfügung. Die Fehlerbalken zeigen die Schwankung der Einzelprofile. Die Profile sind in horizontaler Richtung proportional ihrem zeitlichem Abstand versetzt.

Mit Beginn des Polarwinters 1992/93 kühlt sich die Stratosphäre diabatisch ab und es kommt zu einer Abwärtsbewegung stratosphärischer Luftschichten. Daher findet man das Maximum des Rückstreuverhältnisses im Dezember 1992 auf einem um etwa 70 K niedrigeren isentropischen Niveau als im September. Eine vergleichbare Absinkbewegung läßt sich auch in der zeitlichen Entwicklung des Ozonmischungsverhältnisses nachweisen [von der Gathen *et al.*, 1993].

Die deutliche Überhöhung des Profils vom Januar 1993 im Höhenbereich zwischen 400 und 500 K ist auf das Auftreten von polaren stratosphärischen Wolken zurückzuführen. Die PSW-Beobachtungen im Januar 1993 werden im folgenden noch ausführlich dargestellt werden.

#### 9.2.4 Winter 1992/93

Die Beobachtung der vulkanischen Aerosolschicht im Winter 1992/93 liefert wenig Informationen hinsichtlich der Stratosphärendynamik. In Abb. 9.6 ist die Schicht des vulkanischen Aerosols anhand des Rückstreuverhältnisses bei 532 nm im Bereich zwischen der Tropopause und 425 K erkennbar. Die untersten Schichten der Aerosolwolke reichen bis zur Tropopause. Das mittlere Profil von  $R$  für diesen Zeitraum beträgt im Maximum 2,4 mit einer Standardabweichung von 0,3 in einer Höhe von 345 K. Die gegenüber dem Vorwinter etwas geringere Standardabweichung ist Ausdruck der reduzierten Variabilität der Aerosolschicht während des Winters 1992/93.



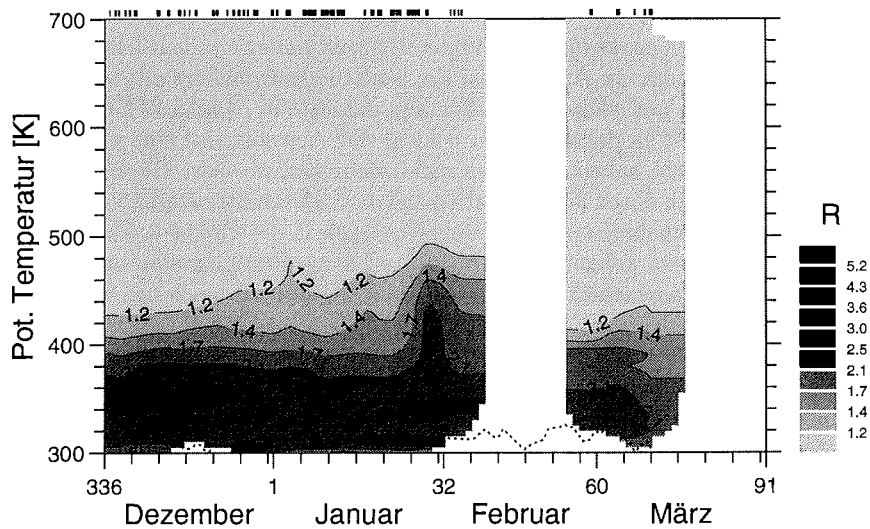
Die Strukturen im Höhenbereich um 500 K im Januar 1993 sind auf PSW zurückzuführen.

Die Depolarisationsmessung im Winter 1992/93 liefert ein deutlich anderes Bild als die des Vorjahres. In Abb. 9.7 ist die zeitliche Entwicklung der Volumendepolarisation bei 532 nm während des Winters dargestellt. Asphärische Partikel, die im Winter 1991/92 in der untersten Schicht der Aerosolwolke eine erhöhte Depolarisation verursacht haben, sind nun nicht mehr nachweisbar. Diese Partikel sind sehr wahrscheinlich durch Sedimentation aus der unteren Stratosphäre entfernt worden. Unter der Annahme einer Fallgeschwindigkeit in der Größenordnung von 2 km pro Jahr erhält man anhand von Abb. 2.3 effektive Partikelradien im Bereich um  $0,5 \mu\text{m}$ . In der Hauptschicht der Aerosolwolke im Höhenbereich um 350 K werden Depolarisationswerte deutlich unter  $\delta^{\text{Ray}} = 0,0141$  nachgewiesen. Dies bedeutet, daß in diesem Höhenbereich sphärische Partikel dominieren. Ein großer Teil, wenn nicht sogar die Gesamtheit des  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosols liegt daher trotz einer Unterkühlung von über 40 K in der flüssigen Phase vor. Dieses Ergebnis ist im Einklang mit Resultaten von Modellrechnungen [Jensen *et al.*, 1991] und *in-situ*-Messungen [Dye *et al.*, 1992]. Der Aggregatzustand des Aerosols ist von entscheidender Bedeutung für das Ausfrieren von  $\text{HNO}_3$  bei tiefen Stratosphärentemperaturen. Dieser Prozeß findet im Januar 1993 im Höhenbereich zwischen 400 und 500 K potentieller Temperatur statt. In Abb. 9.7 ist er im genannten Höhenbereich an einer erhöhten Depolarisation erkennbar. Die PSW-Beobachtungen und ihre Interpretation werden im folgenden noch genauer dargestellt werden.

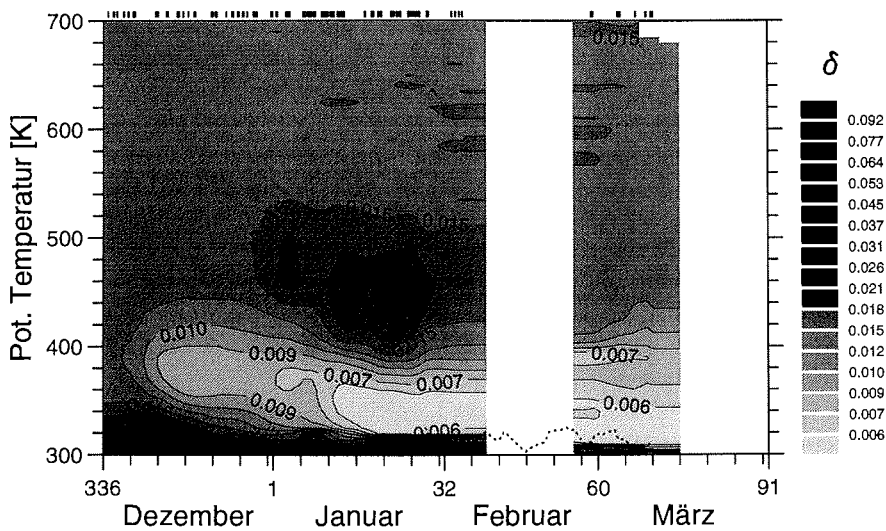
## Größenspektren

Die Lidar-Messungen des Winters 1992/93 im infraroten, sichtbaren und ultravioletten Spektralbereich erlauben eine Berechnung von Größenverteilungen des vulkanischen Aerosols nach dem in Abschnitt 8.5 beschriebenen Verfahren. Die Abb. 9.9, 9.10 und 9.11 zeigen das Ergebnis der Berechnungen. Den Darstellung liegen Einzelprofile zugrunde, die durch Zusammenfassung von jeweils 6 Meßstunden berechnet worden sind. Da nur diejenigen Profile für die Bestimmung der Größenspektren herangezogen werden, für die die Volumendepolarisation unter den Wert 0,013 fällt, steht im Januar oberhalb von 400 K nur wenig Datenmaterial zur Verfügung. PSW vom Typ Ia lassen hier die Depolarisationswerte über den genannten Schwellenwert ansteigen.

Für die Bewertung der Abbildungen sind die Fehler von  $\mathcal{N}^{\text{Aer}}$ ,  $\bar{r}$  und  $\mathcal{A}$  zu berücksichtigen. In Abb. 9.8 sind die Fehler von  $\ln(\mathcal{N}^{\text{Aer}})$ ,  $\ln(\bar{r})$  und  $\ln(\mathcal{A})$  dargestellt. Ein Wert für  $\mathcal{E}(\ln(\mathcal{N}^{\text{Aer}}))$  von eins bedeutet beispielsweise, daß die tatsächliche Teilchenzahldichte mit einer Wahrscheinlichkeit von 68,3% im Intervall  $[\mathcal{N}^{\text{Aer}}/e, \mathcal{N}^{\text{Aer}}e]$  zu finden ist. Ich wähle die logarithmische Darstellung, da Teilchenzahldichte, Modenradius und Oberflächendichte ausschließlich positive Werte annehmen und ihre Fehler zum Teil sehr groß werden. Der im Vergleich zu  $\mathcal{E}(\ln(\mathcal{N}^{\text{Aer}}))$  deutlich geringere Fehler von  $\mathcal{A}$  ist auf die Antikorrelation zwischen  $\mathcal{N}^{\text{Aer}}$  und  $\bar{r}$  zurückzuführen (vgl. Paragraph 8.5.2). Bei diesen Überlegungen bleiben Quellen für systematische Fehler, wie z.B. Beiträge von nichtsphärischen Partikeln, unberücksichtigt. Aus Abb. 9.8 läßt sich ablesen, daß die Teilchenzahldichte mit einem Fehler von bis zu einer Größenordnung behaftet ist. Modenradius und Oberflächendichte sind mit



**Abbildung 9.6:** Die zeitliche Entwicklung des Rückstreuverhältnisses bei 532 nm im Winter 1992/93. Die Schicht des vulkanischen Aerosols reicht von der Tropopause, die als unterbrochene Linie dargestellt ist, bis auf das isentropische Niveau von 425 K. Im Januar 1993 treten in Höhen zwischen 400 und 500 K PSW auf.



**Abbildung 9.7:** Die zeitliche Entwicklung der Volumendepolarisation bei einer Wellenlänge von 532 nm im Winter 1992/93. Die vulkanische Aerosolschicht ist dominiert von Schwefelsäuretröpfchen, die nur gering depolarisieren. Im Höhenbereich zwischen 400 und 500 K lassen PSW vom Typ Ia die Depolarisationswerte ansteigen.

einer Unsicherheit von etwa einem Faktor zwei verbunden. Dies ist bei der nun folgenden Diskussion zu berücksichtigen.

Da mir keine *in-situ*-Messungen der Größenspektren vulkanischer Aerosole für den Winter 1992/93 zur Verfügung stehen, greife ich für die Bewertung der Lidar-Messungen auf die Ergebnisse von Ballonsondierungen zurück, die im Rahmen von EASOE im Winter 1991/92 in Kiruna (68°N, 20°O) und Thule (77°N, 69°W) durchgeführt worden sind [Deshler, 1993; Larsen, 1992]. Deshler berechnet Modenradien zwischen 0,07 und 0,13  $\mu\text{m}$  in 13 km (etwa 360 K), zwischen 0,11 und 0,17  $\mu\text{m}$  in 16 km (etwa 405 K) und zwischen 0,05 und 0,35  $\mu\text{m}$  in 19 km Höhe (etwa 460 K). Die Teilchenzahldichten in den genannten Höhenniveaus betragen 21–42  $\text{cm}^{-3}$ , 13–18  $\text{cm}^{-3}$  und 11–31  $\text{cm}^{-3}$ . Alle Werte beziehen sich auf die dominierende Mode des Größenspektrums.

Im gleichen Zeitraum sind in Thule vom Dänischen Meteorologischen Institut in Zusammenarbeit mit der *University of Wyoming* ebenfalls mit ballongetragenen Sonden Aerosolbeobachtungen durchgeführt worden [Larsen, 1992]. Bei fünf Ballonaufstiegen zwischen dem 12. Januar 1992 und dem 5. Februar 1992 werden im Höhenbereich 375–400 K Teilchenzahldichten zwischen 40 und 230  $\text{cm}^{-3}$  und Modenradien zwischen 0,12 und 0,20  $\mu\text{m}$  beobachtet. Im Bereich 400–425 K findet Larsen Teilchenzahldichten zwischen 20 und 130  $\text{cm}^{-3}$  und Modenradien zwischen 0,11 und 0,23  $\mu\text{m}$  und im Bereich 425–450 K Teilchenzahldichten zwischen 30 und 130  $\text{cm}^{-3}$  und Modenradien um 0,17  $\mu\text{m}$  [Larsen, 1992].

Die Abb. 9.9, 9.10 und 9.11 zeigen die aus den Lidar-Daten des Winters 1992/93 abgeleiteten Größenspektren. In Abb. 9.9 ist der Modenradius im Dezember 1992 und Januar 1993 als Funktion der potentiellen Temperatur dargestellt. Die Modenradien liegen bei 0,1  $\mu\text{m}$  im Höhenbereich der maximalen Rückstreuverhältnisse zwischen 340 und 400 K (vgl. Abb. 9.6). Im oberen Bereich der Aerosolschicht nehmen die Partikelradien um bis zu einem Faktor zwei zu. Der Vergleich mit den *in-situ*-Daten des Vorwinters zeigt, daß im Rahmen der Fehler eine Veränderung der Partikelradien nicht festgestellt werden kann. Hierbei ist zu berücksichtigen, daß Partikel mit einem Radius von 0,1  $\mu\text{m}$  im betrachteten Höhenbereich innerhalb eines Jahres um etwa 1 km, Partikel mit einem Radius von 0,2  $\mu\text{m}$  um etwa 2 km sedimentieren (vgl. Abb. 2.3). Ab Mitte Januar 1993 treten im Höhenbereich um 370 K im Vergleich zum Vormonat geringfügig erhöhte Modenradien auf. Darunter, auf einer Höhe von etwa 330 K, wächst  $\bar{r}$  sogar bis fast auf 0,4  $\mu\text{m}$  an. Eine mögliche Erklärung hierfür könnte die Aufnahme von  $\text{H}_2\text{O}$  durch das Schwefelsäureaerosol unter den im Januar vorherrschenden tiefen Temperaturen darstellen [Dye *et al.*, 1992; Peter, 1993]. Modellrechnungen liefern für diesen Prozeß einen Anstieg der Partikelradien um bis zu einen Faktor zwei.

Abb. 9.10 zeigt die Teilchenzahldichten im Winter 1992/93 als Funktion der potentiellen Temperatur. In der Schicht maximaler Rückstreuung und darüber (vgl. Abb. 9.6), oberhalb von etwa 350 K, betragen die berechneten Partikeldichten zwischen 100 und 500  $\text{cm}^{-3}$ . Die Dichten sind damit etwa um eine Größenordnung höher als die Werte, die Deshler mittels *in-situ*-Meßmethoden bestimmt [Deshler, 1993]. Da aus physikalischen Gründen eine Zunahme von  $\mathcal{N}^{\text{Aer}}$  im Beobachtungszeitraum ausgeschlossen werden kann, ist diese Diskrepanz auf den Fehler in der Bestimmung von  $\mathcal{N}^{\text{Aer}}$  zurückzuführen, der nach Abb. 9.8 mehr als eine Zehnerpotenz betragen kann. Für diese Interpretation spricht, daß auch Larsen, der ein ähnliches Ver-

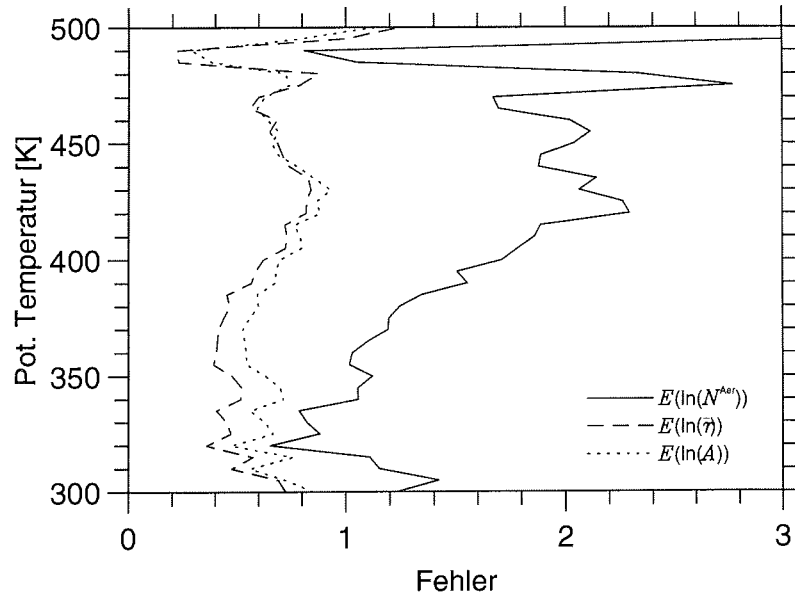


Abbildung 9.8: Die Fehler des Logarithmus von  $N^{Aer}$ ,  $\bar{r}$  und  $A$ .

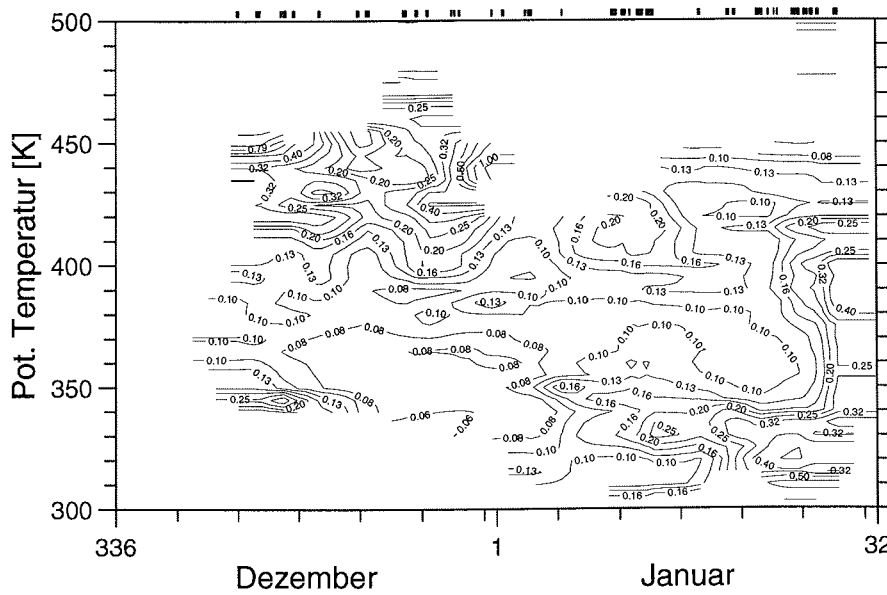


Abbildung 9.9: Der Modenradius  $\bar{r}$  als Funktion der potentiellen Temperatur in den Monaten Dezember 1992 und Januar 1993.  $\bar{r}$  ist angegeben in  $\mu m$ .

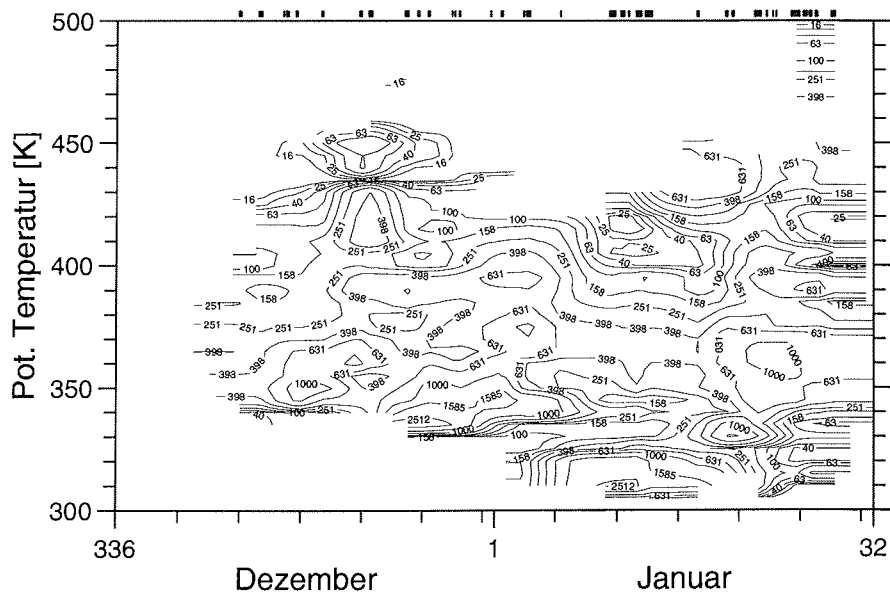


Abbildung 9.10: Die Teilchenzahldichte  $N^{Aer}$  als Funktion der potentiellen Temperatur in den Monaten Dezember 1992 und Januar 1993.  $N^{Aer}$  ist angegeben in  $cm^{-3}$ .

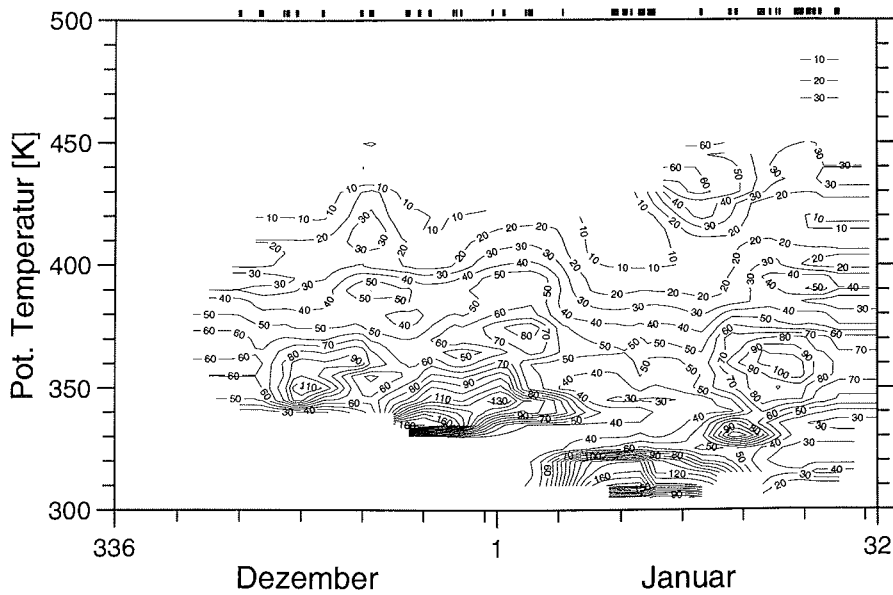


Abbildung 9.11: Die Oberflächendichte  $A$  als Funktion der potentiellen Temperatur in den Monaten Dezember 1992 und Januar 1993.  $A$  ist angegeben in  $\mu m^2/cm^3$ .

fahren zur Ableitung der Größenspektren benutzt, aus seinen Messungen mit den Lidar-Ergebnissen vergleichbare Teilchendichten ableitet [Larsen, 1992]. Dichten über  $1000 \text{ cm}^{-3}$ , die in Abb. 9.10 unterhalb von etwa 350 K zu finden sind, müssen als Artefakt des Berechnungsverfahrens interpretiert werden. Als Ursache für diese — auch unter Berücksichtigung der Fehler — unrealistisch hohen Werte kommen troposphärische Einflüsse in Betracht, die in diesem Höhenbereich zu einem Ansteigen des  $\text{H}_2\text{O}$ -Mischungsverhältnisses über den im Aerosolmodell benutzten Wert von 5 ppmv führen.

Abb. 9.11 zeigt die resultierende Partikeloberflächendichte  $\mathcal{A}$  als Funktion der potentiellen Temperatur. Im Bereich der Schicht der vulkanischen Aerosole findet man Werte von  $\mathcal{A}$  zwischen 30 bis  $100 \mu\text{m}^2/\text{cm}^3$ . Aus dem Vergleich diese Oberflächendichten mit den Resultaten von Larsen [1992] ergibt sich, daß im Rahmen der Fehler keine Veränderung der Oberflächendichte zwischen Winter 1991/92 und 1992/93 erkennbar ist. Die gegen Ende Januar in Höhen bis 500 K auftretenden PSW führen auf dem 370 K-Niveau zu ansteigenden Oberflächendichten (vgl. Abschnitt 9.3). Es handelt sich hier um PSW vom Typ Ib, die eine geringe Depolarisation aufweisen und daher mit in den analysierten Datensatz aufgenommen worden sind. Bei der Interpretation der PSW-Daten ist allerdings zu berücksichtigen, daß die Bestimmung des Brechungsindex für NAT-Partikel, der für die Berechnung der Größenverteilungen benötigt wird, mit einem großen systematischen Fehler behaftet ist (vgl. Paragraph 8.5.1).

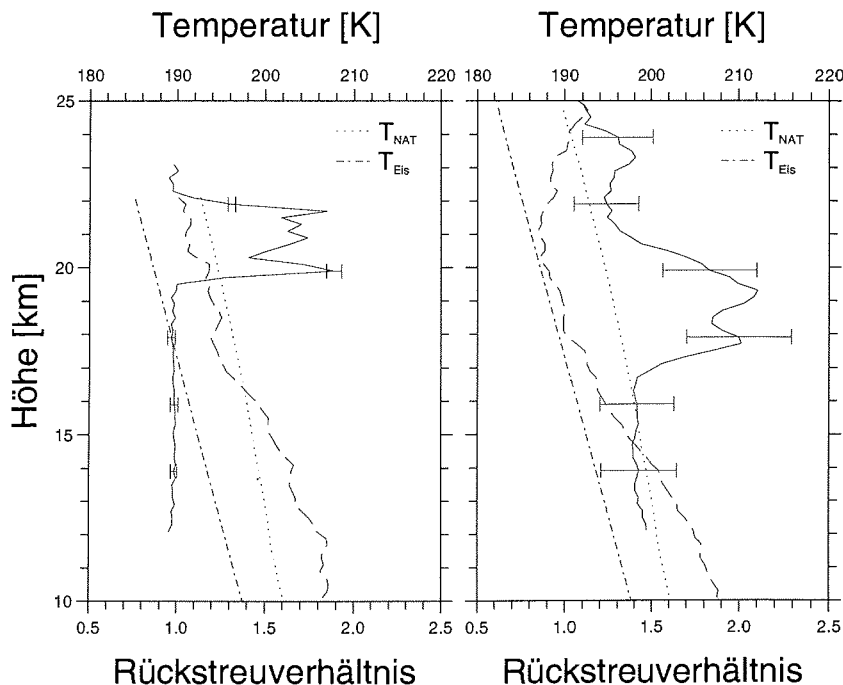
## 9.3 Polare stratosphärische Wolken

Im Hinblick auf die Beobachtung polarer stratosphärischer Wolken ist der Winter 1992/93 wesentlich ergiebiger als der des Vorjahres. Im EASOE-Winter 1991/92 werden mit Ausnahme eines schwachen Signals am 6. Dezember 1991 in Ny-Ålesund keine PSW beobachtet. Die im Januar 1993 auftretenden PSW ermöglichen die ersten Beobachtungen von polaren stratosphärischen Wolken seit Januar 1989 und Januar 1990.

In den folgenden Abschnitten beschäftige ich mich zunächst mit den PSW-Beobachtungen, die in den Wintern 1988/89 und 1989/90 mit dem Ozon-DIAL-Lidar durchgeführt worden sind, und wende mich dann der Diskussion der Ergebnisse vom Januar 1993 zu.

### 9.3.1 Januar 1989 und Januar 1990

Schon im Januar 1989 und Januar 1990 sind polare stratosphärische Wolken in Ny-Ålesund mit dem DIAL-Lidar beobachtet worden [Krüger, 1990; Neuber *et al.*, 1991]. Als Beispiel zeige ich in Abb. 9.12 das Rückstreuverhältnis als Funktion der Höhe vom 12. Januar 1989 (links) und 27. Januar 1990 (rechts). Diese Messungen sind mit dem Referenzkanal des DIAL-Lidars bei einer Wellenlänge von 353 nm durchgeführt worden. Als unterbrochene Linien sind die stratosphärischen Temperaturprofile vom 10. Januar 1989 und 27. Januar 1990 eingezeichnet. Aerosole werden



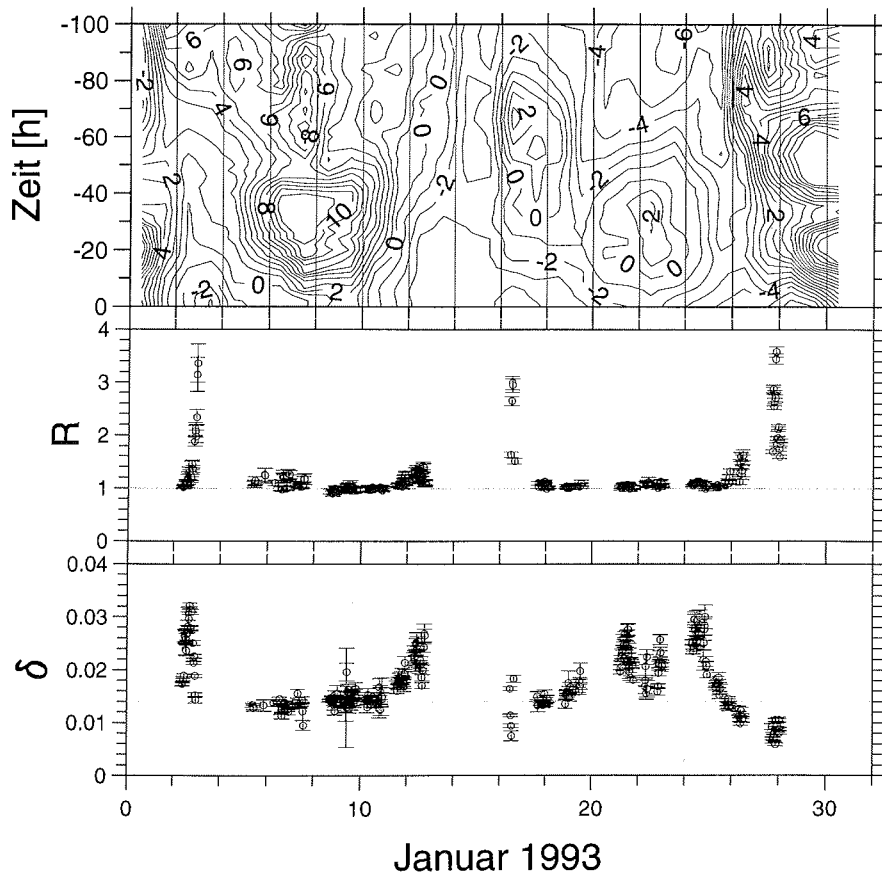
**Abbildung 9.12:** Höhenprofile des Rückstreuverhältnisses im Januar 1989 (links) und Januar 1990 (rechts). Den Profilen liegen Messungen zugrunde, die mit dem DIAL-Lidar auf der Referenzwellenlänge von 353 nm am 12. Januar 1989 und am 27. Januar 1990 durchgeführt worden sind. Die Meßzeit beträgt jeweils 25 min. Als unterbrochene Linien sind die Temperaturprofile vom 10. Januar 1989 (links) und 27. Januar 1990 (rechts) eingezeichnet. Zusätzlich sind die Koexistenztemperaturen von NAT und Eis markiert.

in den Höhenbereichen beobachtet, in denen die Temperatur unter die Koexistenztemperatur von NAT fällt. Es handelt sich daher bei den beobachteten Aerosolen mit hoher Wahrscheinlichkeit um PSW vom Typ I.

### 9.3.2 Januar 1993

Im Januar 1993 werden im Höhenbereich zwischen 400 und 500 K (etwa 15 und 21 km) polare stratosphärische Wolken beobachtet (vgl. Abb. 9.6). Ein deutliches PSW-Signal wird am 3. Januar beobachtet. Nach einer etwa achttägigen Pause tauchen PSW dann wieder ab dem 11. Januar auf. Die Stratosphärentemperaturen bleiben ab diesem Zeitpunkt bis zum Monatsende unterhalb der Koexistenztemperatur von NAT. Die Phase der PSW-Beobachtungen hält mit kürzeren Unterbrechungen bis Ende Januar an.

Für die Darstellung der PSW-Beobachtungen vom Januar 1993 wähle ich eine Form, die die Bedingungen, unter denen PSW entstehen, berücksichtigt. Der mittlere und untere Teil von Abb. 9.13 stellt die zeitliche Entwicklung des Rückstreu-



**Abbildung 9.13:** Polare stratosphärische Wolken im Januar 1993. Der mittlere und untere Teil der Graphik zeigt den Rückstreukoeffizienten und die Volumendepolarisation auf dem potentiellen Temperaturniveau von 475 K gemittelt über 20 K. Die jeweiligen Werte für eine aerosolfreie Atmosphäre sind als gepunktete Linie markiert. Jeder Datenpunkt entspricht einer Meßdauer von etwa 25 min. Der obere Teil der Graphik zeigt die Differenz zwischen Temperatur und Koexistenztemperatur von NAT entlang einer Trajektorie. Dargestellt sind die letzten 100 h vor Ankunft des Luftpakets über Ny-Ålesund.

koeffizienten und der Volumendepolarisation bei einer potentiellen Temperatur von 475 K dar. Das 475 K-Niveau entspricht etwa einer Höhe von 20 km. Dieser Höhenbereich wird betrachtet, da zum einen dort die PSW auftreten und der Einfluß des vulkanischen Aerosols gering ist. Zum anderen liegen mir für dieses isentropische Niveau Trajektorien vor. Jeder Datenpunkt ist durch Mittelung über einen Höhenbereich von 20 K berechnet worden.

Vom 10. bis 13. und vom 20. bis 26. Januar findet man erhöhte Depolarisation bei nur geringfügiger Aerosolrückstreuung. Am 17. und am 28. Januar steigt bei gleichzeitig reduzierter Volumendepolarisation das Rückstreuverhältnis auf Werte über 3 an. Dieses zeitliche Verhalten von  $R$  und  $\delta$  läßt den Schluß zu, daß im Januar 1993 zwei Klassen von PSW auftreten. Die Lidar-Beobachtungen sind vergleichbar mit den von Browell *et al.* [1990] beschriebenen Untersuchungen, in denen die beiden



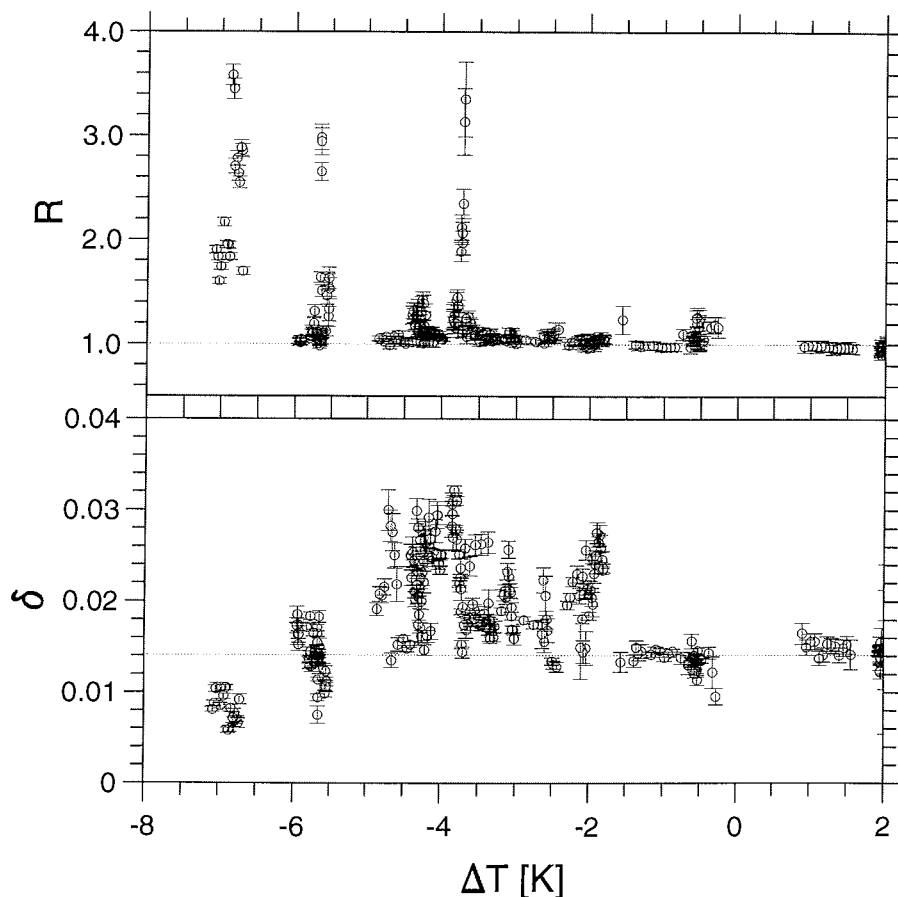
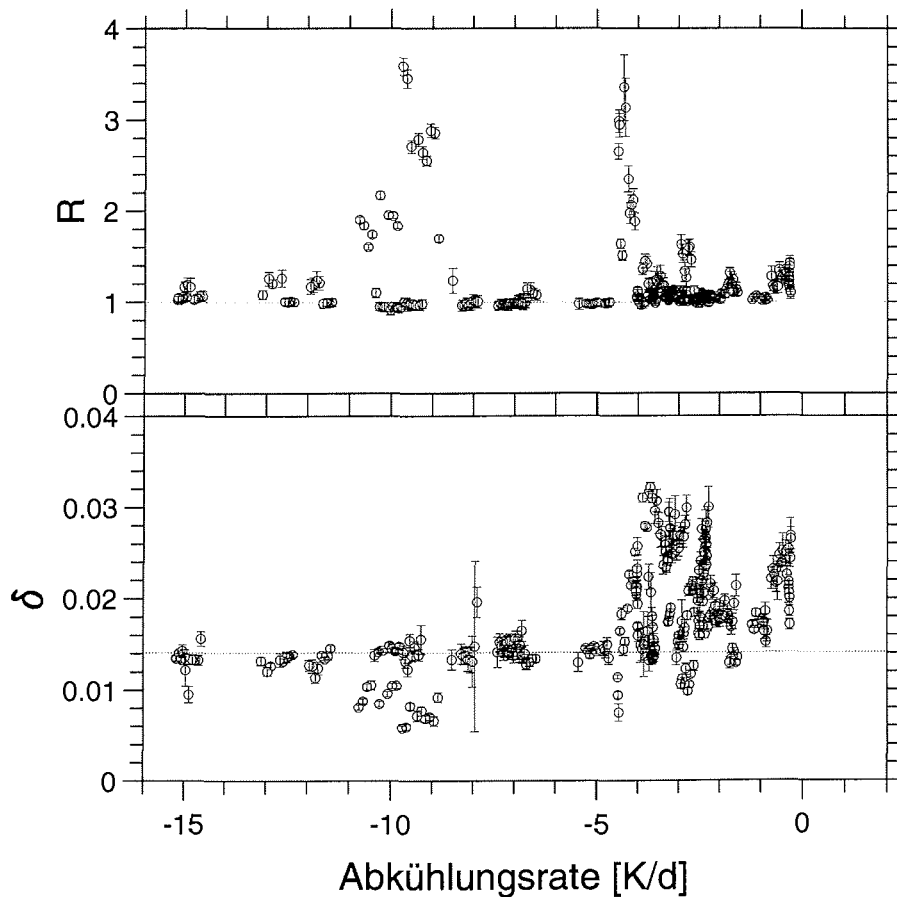


Abbildung 9.14: Das Rückstreuverhältnis (oben) und die Volumendepolarisation (unten) bei einer Wellenlänge von 532 nm als Funktion der Differenz zwischen Temperatur und Koexistenztemperatur von NAT. Die Werte sind durch Mittelung über 20 K in einer Höhe von 475 K berechnet worden.

Klassen als PSW Typ Ia und PSW Typ Ib bezeichnet werden. Die Messung vom 3. Januar scheint zunächst aus dieser Klassifikation herauszufallen, da sowohl  $R$  als auch  $\delta$  erhöhte Werte zeigen. Eine größere zeitliche Auflösung der Messung von diesem Tag ergibt jedoch, daß das Rückstreuverhältnis erst zu einem Zeitpunkt zu steigen beginnt, an dem  $\delta$  schon wieder geringer wird. Es handelt sich hier folglich um eine PSW vom Typ Ia in unmittelbarer räumlicher Koexistenz einer PSW vom Typ Ib.

Der obere Teil von Abb. 9.13 zeigt die Temperaturentwicklung des Luftpakets, in dem die PSW beobachtet wird. Als Isoplethen ist die Differenz zwischen Temperatur und Koexistenztemperatur von NAT  $\Delta T = T - T_{\text{NAT}}$  aufgetragen. Die Koexistenztemperatur wird unter der Annahme eines stratosphärischen Wasserdampf-mischungsverhältnisses von 5 ppmv und eines  $\text{HNO}_3$ -Profils mit maximal 10 ppbv berechnet [Gille und Russell, 1984]. Die Temperaturdaten basieren auf Trajektorienrechnungen, die Bjørn Knudsen vom dänischen Meteorologischen Institut durch-



**Abbildung 9.15:** Das Rückstreuverhältnis (oben) und die Volumendepolarisation (unten) bei einer Wellenlänge von 532 nm als Funktion der adiabatischen Abkühlungsrate. Die Abkühlungsrate wird durch Bestimmung einer mittleren Abkühlung während der letzten 24 h vor Ankunft über Ny-Ålesund aus den Trajektoriendaten berechnet.

geführt hat und die im Rahmen des Datenaustauschs der EASOE-Kampagne über das NILU-Datenzentrum zur Verfügung gestellt worden sind [Knudsen *et al.*, 1992]. Dargestellt werden die letzten 100 h vor Ankunft des Luftpakets in Ny-Ålesund. Der Vergleich der zeitlichen Entwicklung von  $\Delta T$  mit  $R$  und  $\delta$  zeigt, daß  $\Delta T < 0$  eine notwendige, aber keine hinreichende Bedingung für das Auftreten von PSW ist.

In Abb. 9.14 ist das Rückstreuverhältnis und die Depolarisation als Funktion der Unterkühlung  $\Delta T$  aufgetragen. Identifiziert man die Kombination  $R < 2$  und  $\delta > 0,03$  mit PSW Typ Ia und die Kombination  $R > 2$  und  $\delta < 0,03$  mit PSW Typ Ib, so erhält man aus Abb. 9.14 eine Unterkühlung von etwa  $\Delta T_{\text{NAT Ia}} = -1$  bis  $-2$  K für PSW Ia und eine Unterkühlung von  $\Delta T_{\text{NAT Ib}} = -3$  K für PSW Ib. Anhand Abb. 8.10 läßt sich aus der Unterkühlung die  $\text{HNO}_3$ -Übersättigung bestimmen. Damit ergibt sich, daß Typ Ia bei einer  $\text{HNO}_3$ -Übersättigung von etwa 2,0 bis 4,2 und Typ Ib bei einer  $\text{HNO}_3$ -Übersättigung von etwa 8,8 entstehen. Dieses Resultat ist ein Hinweis auf eine schlechte Kompatibilität zwischen NAT und Schwefelsäureaerosol.

Modellrechnungen von Peter [1993] liefern unter Annahme einer geringen Kompatibilität von  $m = 0,88$  eine Unterkühlung von  $-2,1$  und  $-3,0$  K für Typ Ia und Ib. Unter Annahme einer guten Kompatibilität ( $m = 0,95$ ) liefert das Modell deutlich geringere Unterkühlungen von  $-1,2$  und  $-1,3$  K. Bei der Beurteilung dieser Zahlen ist zu berücksichtigen, daß  $T_{\text{NAT}}$  vom  $\text{H}_2\text{O}$ - und  $\text{HNO}_3$ -Mischungsverhältnis abhängt. So wird beispielsweise durch eine Erhöhung des Wassermischungsverhältnisses von 5 ppmv auf 7 ppmv die Koexistenztemperatur  $T_{\text{NAT}}$  um 1,4 K angehoben (berechnet für 10 ppmv  $\text{HNO}_3$  in einer Höhe von 50 hPa). Die Differenz  $\Delta T_{\text{NAT Ia}} - \Delta T_{\text{NAT Ib}}$  ist davon jedoch nicht berührt.

Neben der Übersättigung, die durch die Unterkühlung bestimmt wird, hat auch die adiabatische Abkühlungsrate  $dT/dt$  einen wesentlichen Einfluß auf die NAT-Partikelbildung, wie Abb. 9.15 belegt. Abb. 9.15 zeigt in analoger Weise zu Abb. 9.14 Rückstreuverhältnis und Depolarisation, nun jedoch aufgetragen gegen die adiabatische Abkühlungsrate  $dT/dt$ .  $dT/dt$  wird aus der Temperaturgeschichte der Rückwärtstrajektorien durch Anpassen einer konstanten Abkühlung während der letzten 24 h vor Ankunft des Luftpakets in Ny-Ålesund bestimmt. Mit der oben eingeführten Signatur in  $R$  und  $\delta$  für die beiden PSW-Klassen findet man für Typ Ia Abkühlungsraten zwischen  $-2$  und  $-4$  K/d sowie für Typ Ib Raten unter  $-6$  K/d.

## 9.4 Fazit

Die Analyse der räumlichen und zeitlichen Verteilung des vulkanischen Aerosols zeigt, daß der polare Vortex im Winter 1991/92 zu einer effektiven Isolation stratosphärischer Luftmassen oberhalb eines isentropischen Niveaus von etwa 500 K geführt hat. Unterhalb dieser Höhe ist ein Austausch von Luft aus dem inneren Bereich des Wirbel und von Luft subpolarer Herkunft möglich.

Im folgenden Winter 1992/93 ist ein signifikanter Unterschied im Aerosolgehalt polarer und subpolarer Luft nicht mehr vorhanden. Daher können Austauschprozesse über die Vortexgrenzen hinweg anhand der Aerosol-Lidar-Daten nicht festgestellt werden. Die Untersuchung der stratosphärischen Dynamik mit Hilfe der potentiellen Wirbelstärke gibt jedoch Hinweise darauf, daß der Polarwirbel im Winter 1992/93 während des Zeitraums vom Dezember 1992 bis Februar 1993 — im Unterschied zum Vorjahr — bis in die untere Stratosphäre in Höhen unter 400 K durch eine hohe Stabilität charakterisiert gewesen ist [Naujokat *et al.*, 1993].

Eine Analyse der Größenspektren des vulkanischen Aerosols liefert Oberflächendichten zwischen 50 und 100  $\mu\text{m}^2/\text{cm}^3$  im Höhenbereich zwischen 350 und 400 K.

Die Auswertung der Aerosol-Lidar-Messungen im Januar 1993 zeigt, daß PSW vom Typ Ia und vom Typ Ib beobachtet worden sind. Für den Entstehungsprozeß der PSW-Partikel sind sowohl die Unterkühlung als auch die Abkühlungsrate von Bedeutung. Nach der Analyse, die mit den Januar-Daten durchgeführt worden ist, findet man PSW vom Typ Ia bei Unterkühlungen zwischen  $-1$  und  $-2$  K und Abkühlungsraten von  $-2$  und  $-4$  K/d. Typ Ib-Partikel entstehen dagegen bei Unterkühlungen von etwa  $-3$  K und Abkühlungsraten von unter  $-6$  K/d. Unterkühlungen von  $-1$  K bzw.  $-3$  K entsprechen einer erforderlichen  $\text{HNO}_3$ -Übersättigung von 2 bzw. 9. Es muß daher von einer schlechten Kompatibilität zwischen NAT und dem  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosol ausgegangen werden.



## Kapitel 10

# Vergleich der Ergebnisse mit Resultaten anderer Messungen

Die bisher diskutierten Ergebnisse der Lidar-Messungen in den Wintern 1991/92 und 1992/93 zeigen, daß die zeitliche und räumliche Entwicklung der vulkanischen Aerosolschicht von der polaren Zirkulation in der arktischen Stratosphäre wesentlich beeinflusst wird. In Kapitel 9 sind Meßresultate, die in Ny-Ålesund gesammelt worden sind, auf der Basis von Rückwärtstrajektorien beschrieben und interpretiert worden. Ein komplementäres Verfahren der Datenanalyse besteht darin, die Ergebnisse von Beobachtungen, die an verschiedenen geographischen Orten in einem vergleichbaren Zeitraum vorgenommen worden sind, miteinander in Beziehung zu setzen.

Bevor ich mich einer derartigen Analyse mit Meßergebnissen der Lidar-Stationen Andøya und Aberystwyth für den Winter 1991/92 zuwende, diskutiere ich im ersten Teil dieses Kapitels den Vergleich der Aerosol-Lidar-Daten mit Resultaten von Photometer-Messungen, die seit 1991 in Ny-Ålesund durchgeführt werden [Herber, 1993].

### 10.1 Optische Dicke

Sonnenphotometer gehören zu den passiven Fernerkundungsinstrumenten. Sie ermöglichen die Bestimmung der atmosphärischen Transmission in definierten Wellenlängenbereichen vom nahen IR bis nahen UV [Herber, 1992]. Die Intensität der Solarstrahlung wird mit einem Halbleiterdetektor bestimmt. Interferenzfilter mit schmalen Durchlaßkurven werden in den Strahlengang gebracht und die entsprechenden Detektorintensitäten aufgezeichnet [Herber, 1992].

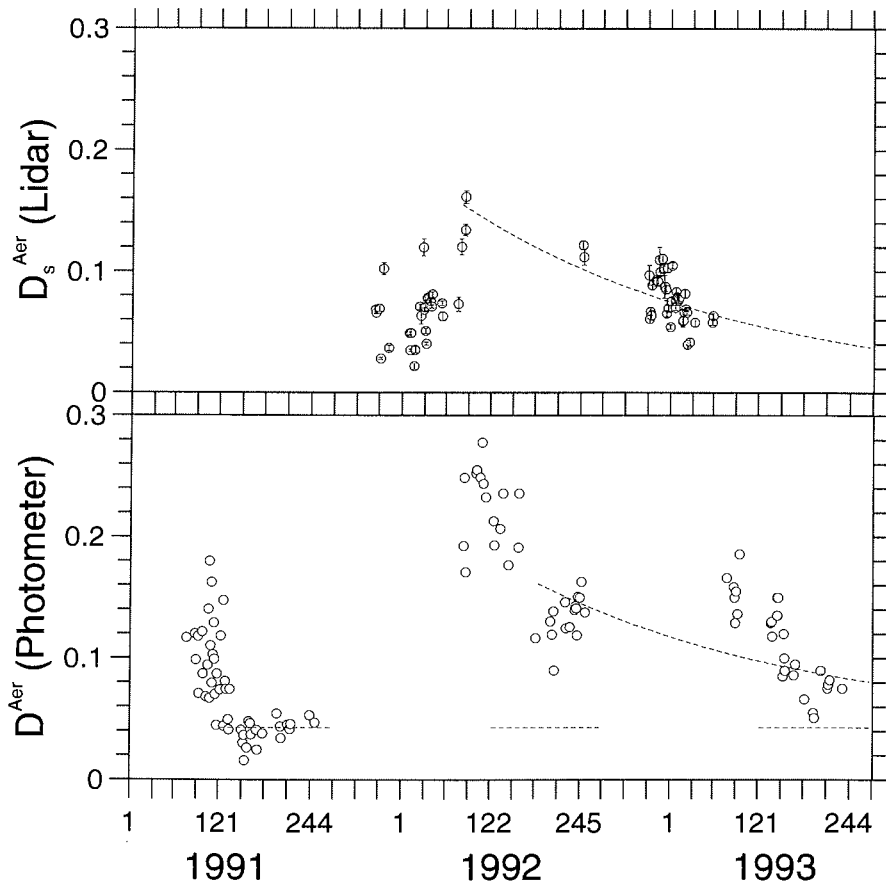
Aus dem Vergleich zwischen der am Erdboden gemessenen und der extraterrestrischen Intensität des Solarspektrums berechnet sich die Transmission der Atmosphäre. Stehen Meßdaten für verschiedene Azimutwinkel zur Verfügung, kann durch Extrapolation die optische Dicke der Atmosphäre bestimmt werden. Unter der Voraussetzung, daß die durch Molekülstreuung und -absorption verursachte Extinktion bekannt ist, kann der durch Aerosole verursachte Beitrag zur optischen Dicke berechnet werden. Bei geringer troposphärischer Aerosolbelastung oder auch

bei bekanntem Extinktionsverhalten des troposphärischen Aerosols lassen sich aus der Wellenlängenabhängigkeit der optischen Dicke auch Aussagen über stratosphärische Aerosole ableiten [Herber, 1992].

Seit Frühjahr 1991 werden an der Koldewey-Station in Ny-Ålesund Sonnenphotometer-Messungen durchgeführt [Herber, 1992; Herber, 1993]. Die Meßzeiten umfassen jeweils die Monate März bis September. Mit dem Sonnenphotometer wird die optische Dicke der gesamten Atmosphäre  $D^{\text{Aer}}(\lambda)$  in ausgewählten Spektralbereichen zwischen 380 und 1100 nm bestimmt. Der Meßfehler beträgt etwa 0,008 während der Frühjahrsmonate und 0,005 im Sommer [Herber, 1993]. Für den Vergleich mit den Aerosol-Lidar-Daten sind die Photometer-Daten durch Interpolation zwischen den Wellenlängen 476 und 581 nm bzw. 490 und 574 nm auf die Lidar-Wellenlänge von 532 nm umgerechnet worden [Herber, 1993]. Photometer- und Lidar-Messungen ergänzen sich in bezug auf die Meßperioden, da das Aerosol-Lidar nicht unter Tageslichtbedingungen und daher nur während der Wintermonate betrieben worden ist.

Die beiden Datensätze sind allerdings nicht direkt vergleichbar. Aus den Lidar-Daten, die einen eingeschränkten Höhenbereich von der Tropopause bis etwa 30 km Höhe überdecken, läßt sich nur die optische Dicke der Stratosphäre  $D_s^{\text{Aer}}(\lambda)$  berechnen.  $D_s^{\text{Aer}}(\lambda)$  ergibt sich nach Gl. 8.11 durch Integration der Partikelextinktionskoeffizienten  $\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}(\lambda, z)$  über die Höhe  $z$ . Die Integration beginnt 1 km oberhalb der Tropopausenhöhe  $z_T$  und endet bei etwa 30 km (vgl. Abschnitt 8.4). Für die Berechnung von  $D_s^{\text{Aer}}$  am 21., 26. und 27. März 1992 sowie am 3. und 4. September 1992 wird ab  $z_0 = z_T + 3$  km integriert, da an diesen Tagen unterhalb von  $z_0$  keine auswertbaren Lidar-Signale zur Verfügung stehen, diese Werte aber für die folgende Diskussion von besonderer Bedeutung sind. Im Januar 1993 führt das Auftreten von polaren stratosphärischen Wolken zu einer Verdopplung der optischen Dicken  $D_s^{\text{Aer}}$ . Um den Beitrag der PSW zur optischen Dicke von dem Beitrag der vulkanischen Aerosole zu separieren, wird für diesen Zeitraum Gl. 8.11 nur auf denjenigen Höhenniveaus ausgewertet, auf denen die Lufttemperatur die Koexistenztemperatur von NAT übersteigt. Bei der Bewertung der folgenden Diskussion ist zu berücksichtigen, daß  $\alpha_{\text{Ext}}^{\text{Aer}}$  und damit  $D_s^{\text{Aer}}$  mit einem systematischen Fehler von größenordnungsmäßig 50% behaftet ist (vgl. Abschnitt 8.3.1). Abb. 10.1 zeigt die aus den Photometer-Daten berechnete optische Dicke des Aerosols  $D^{\text{Aer}}$  (unten) und die optische Dicke des stratosphärischen Aerosols  $D_s^{\text{Aer}}$  (oben), die aus den Lidar-Messungen ermittelt worden ist. Dargestellt ist die zeitliche Entwicklung in den Jahren 1991 bis 1993 für eine Wellenlänge von 532 nm. Der Meßort ist in beiden Fällen Ny-Ålesund.

Ich diskutiere zunächst die Photometer-Daten. Die im Frühjahr jedes Jahres beobachtete Erhöhung der optischen Dicke um mehr als 0,1 ist auf eine Zunahme der troposphärischen Aerosolbelastung während der Wintermonate zurückzuführen. Dieses Phänomen bezeichnet man als *Arctic haze* [z.B. Blanchet und List, 1984]. Im folgenden betrachte ich nur die Zeitabschnitte nach dem Abklingen des *Arctic haze* zwischen April/Mai und September. Der Mittelwert von  $D^{\text{Aer}}$  steigt von  $0,043 \pm 0,014$  im Sommer 1991 auf  $0,133 \pm 0,018$  im Sommer 1992 und ist im Sommer 1993 wieder auf  $0,082 \pm 0,018$  zurückgegangen. Der Zuwachs der optischen Dicke von  $0,090 \pm 0,023$  zwischen Sommer 1991 und Sommer 1992 wird durch vulkanisches Aerosol verursacht, das sich seit der Eruption des Mt. Pinatubo im Juni 1991 in der Stratosphäre befindet. Unter der Annahme, daß im Sommer 1991 der stratosphäri-



**Abbildung 10.1:** Optische Dicke des stratosphärischen Aerosols (oben) und des Aerosols der Gesamtatmosphäre (unten) bei einer Wellenlänge von 532 nm in den Jahren 1991 bis 1993. Die Messungen sind mit einem Sonnenphotometer (unten) und einem Aerosol-Lidar (oben) in Ny-Ålesund durchgeführt worden. Die Bedeutung der unterbrochenen Linien wird im Text erläutert.

sche Beitrag zur optischen Dicke  $D^{\text{Aer}}$  vernachlässigbar ist, kann die optische Dicke der Troposphäre in den Sommern 1992 und 1993 aus den Photometer-Messungen des Sommers 1991 zu  $D^{\text{Aer}} \approx D_t^{\text{Aer}} \approx 0,043$  abgeschätzt werden. Die horizontalen, unterbrochenen Linien in Abb. 10.1 markieren diesen troposphärischen Beitrag. Subtrahiert man  $D_t^{\text{Aer}}$  von den Sommer-Meßdaten in den Jahren 1992 und 1993 und paßt das Ergebnis einer Exponentialfunktion an, ergibt sich eine Zeitkonstante von etwa  $347 \pm 8$  Tagen.

Die aus den Lidar-Daten abgeleitete optische Dicke  $D_s^{\text{Aer}}$  erreicht ihren Maximalwert erst Ende März 1992, mehr als neun Monate nach dem Ausbruch des Mt. Pinatubo. Da die Lidar-Messungen am 27. März 1992 beendet worden sind, kann aber nicht ausgeschlossen werden, daß  $D_s^{\text{Aer}}$  in den folgenden Wochen noch weiter angestiegen ist. Mit Ausnahme der Tage 25. und 26. November 1991, 6. Dezember 1992 und 29. Januar 1992, an denen Störungen der polaren Zirkulation aerosolreiche Luft subpolare Herkunft über Ny-Ålesund geführt haben, steigt die optische Dicke im

Winter 1991/92 zwar deutlich an, bleibt aber auf Werte unter 0,08 beschränkt. Nach dem Aufbrechen des Polarwirbels am 20. März 1992 verdoppelt sich die optische Dicke der Stratosphäre innerhalb weniger Tage auf Werte um 0,16. Die nächsten Lidar-Daten stehen erst wieder am 3. und 4. September 1992 zur Verfügung.  $D_s^{\text{Aer}}$  ist im Verlauf von fünf Monaten um etwa 0,04 zurückgegangen. Während des Winters 1992/93 variiert  $D_s^{\text{Aer}}$  zwischen 0,06 und 0,11; aufgrund der homogeneren Verteilung des vulkanischen Aerosols in der Stratosphäre sind die Schwankungen geringer als im Vorwinter. Die Anpassung einer Exponentialfunktion durch alle Datenpunkte seit dem 20. März 1992, dem Zeitpunkt des Zusammenbruchs der polaren Zirkulation, liefert eine Abklingzeit von etwa  $352 \pm 12$  Tagen. In der Literatur werden Werte zwischen 270 und 340 Tagen als Zeitkonstanten für das Verschwinden stratosphärischer Aerosolschichten vulkanischen Ursprungs angegeben [z.B. Sedlacek *et al.*, 1983].

## 10.2 Aerosol-Rückstreuprofile mehrerer Lidar-Stationen

Im Rahmen der EASOE-Kampagne des Winters 1991/92 sind an sechs Orten zwischen  $44^\circ\text{N}$  und  $79^\circ\text{N}$  Lidar-Beobachtungen durchgeführt worden [Neuber *et al.*, 1993]. Die Lidar-Daten stehen in Form von Zeitreihen der Rückstreu- und Depolarisationsprofile auf der EASOE-Datenbank am norwegischen Institut für Atmosphärenforschung (NILU) zur Verfügung. Für die folgende Diskussion wähle ich drei Lidar-Stationen aus. Aberystwyth ( $52^\circ\text{N}$ ,  $4^\circ\text{W}$ ) befindet sich während der gesamten Meßkampagne außerhalb des Polarwirbels, Ny-Ålesund ( $79^\circ\text{N}$ ,  $11^\circ\text{O}$ ) dagegen bis auf wenige Ausnahmen innerhalb des Polarwirbels. Über Andøya ( $69^\circ\text{N}$ ,  $16^\circ\text{O}$ ) liegt häufig der Randbereich des Wirbels. Andøya bietet daher die Möglichkeit, sowohl Luftpakete aus dem inneren Bereich des Vortex als auch Luft subpolarer Herkunft zu beobachten. Ein quantitativer Vergleich der Daten ist möglich, da alle betrachteten Lidar-Systeme mit einer Emissionswellenlänge von 532 nm auf der Basis eines Nd:YAG-Lasers arbeiten.

Abb. 10.2 zeigt die zeitliche Entwicklung des Rückstreuverhältnisses bei 532 nm zwischen Dezember 1991 und März 1992 über Aberystwyth. Das Maximum des Rückstreuverhältnisses liegt während der gesamten Meßperiode bei etwa  $R = 5$  bis  $R = 6$  in einer Höhe um 500 K. Spuren vulkanischen Aerosols werden bis in Höhen von 800 K nachgewiesen. Das über den Meßzeitraum gemittelte Profil von  $R$  nimmt seinen Maximalwert von  $R = 5,1 \pm 1,3$  in einer Höhe von 500 K an. Die geringe Variabilität ist ein Hinweis auf die Homogenität des vulkanischen Aerosols in dieser Höhenschicht. Oberhalb dieser Höhe wird die Schicht mit Werten für  $S(R)/R$  von bis zu eins deutlich inhomogener. Abb. 10.3 zeigt die zeitliche Entwicklung von  $R$  über Andøya. Die höchsten Werte von  $R$  liegen im Dezember 1991 bei etwa 480 K und sinken im Laufe des Winters auf etwa 400 K ab. Das Maximum des gemittelten  $R$ -Profils beträgt  $2,4 \pm 1,0$  und befindet sich in einer Höhe von 435 K. Am 12. und 13. Februar 1992 ist eine starke Zunahme der Aerosolbelastung im Höhenbereich zwischen 400 und 540 K zu verzeichnen. Eine Trajektorienanalyse belegt, daß hierfür das Einfließen subpolarer Luft verantwortlich ist. Das Höhenprofil von  $R$  als Funktion der Zeit für Ny-Ålesund ist in Abb. 9.2 gezeigt worden. Beim Vergleich



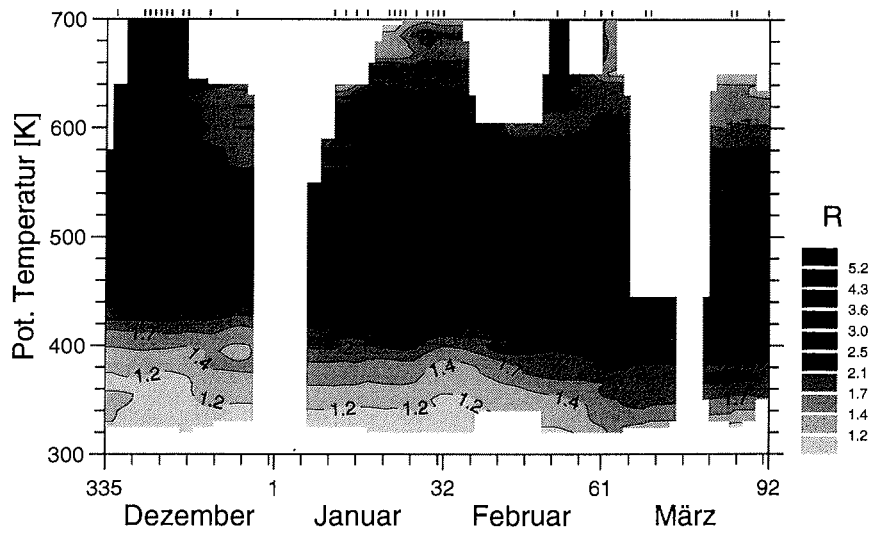


Abbildung 10.2: Die zeitliche Entwicklung des Rückstreuverhältnisses als Funktion der potentiellen Temperatur im Winter 1991/92 über Aberystwyth. Die Messungen sind bei einer Wellenlänge von 532 nm durchgeführt worden. Für die Isoplethen wird eine multiplikative Schrittweite von 1,2 verwendet. Punkte über der Abbildung markieren die Betriebszeiten des Lidars.

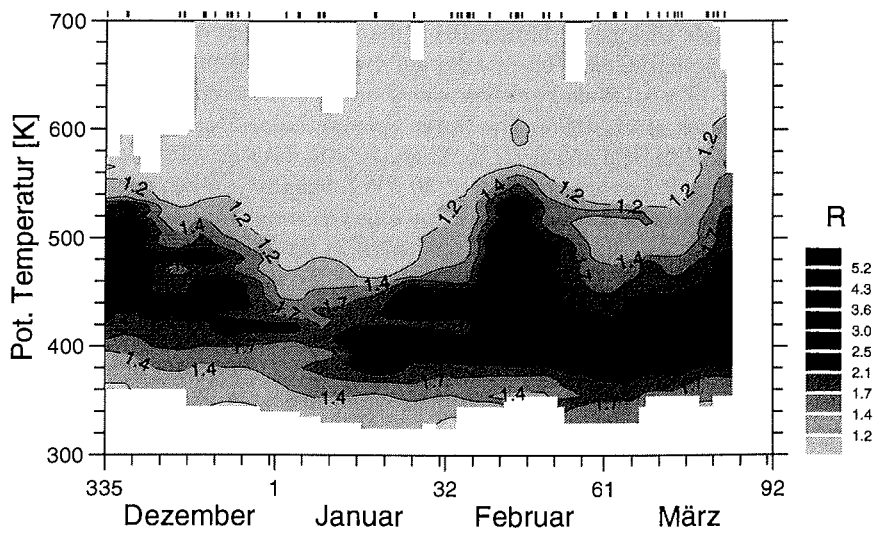
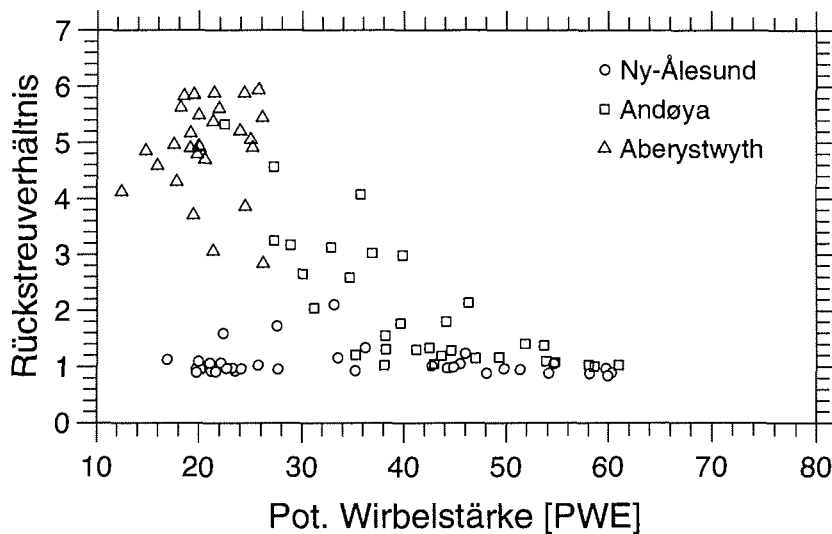


Abbildung 10.3: Wie Abb. 10.2, jedoch für die Lidar-Station Andøya.



**Abbildung 10.4:** Das Rückstreuverhältnis als Funktion der potentiellen Wirbelstärke auf dem isentropischen Niveau von 475 K bei einer Wellenlänge von 532 nm. Die Daten basieren auf Lidar-Messungen in den Monaten Dezember 1991 bis März 1992. Jeder Datenpunkt stellt den Tagesmittelwert über den Höhenbereich zwischen 460 bis 490 K dar.

von Abb. 10.2 und 10.3 mit Abb. 9.2 zeigt sich, daß die Maximalwerte von  $R$  mit der Entfernung vom Zentrum des Polarwirbels zunehmen. Ebenso steigt die Höhe, in der maximale  $R$  auftreten, von etwa 375 K über Ny-Ålesund auf etwa 500 K über Aberystwyth an.

Für die folgende Diskussion betrachte ich die Abhängigkeit des Rückstreuverhältnisses von der potentiellen Wirbelstärke auf zwei isentropischen Niveaus, 425 und 475 K. In Abb. 10.4 ist  $R$  als Funktion von  $Q$  auf dem isentropischen Niveau 475 K dargestellt [Neuber *et al.*, 1993]. Die Daten der drei Lidar-Stationen sind als unterschiedliche Punktsymbole markiert. In Aberystwyth, das sich während der Meßperiode außerhalb des Polarwirbels mit  $Q < 30$  PWE befindet, sinken die beobachteten Werte von  $R$  nicht unter 2,7. In Ny-Ålesund dagegen steigt  $R$  nicht über diesen Wert an. Die relativen Variationen  $S(R)/R$  sind mit 0,24 für Ny-Ålesund und mit 0,17 für Aberystwyth deutlich geringer als der Wert von 0,57 in Andøya. Andøya befindet sich im Randbereich des Vortex und es werden daher dort sowohl Luftpakete, die aus dem Vortex stammen, als auch Luft subpolarer Herkunft beobachtet. Ein weiterer Hinweis auf die Randlage Andøyas sind Werte von  $Q$ , die zwischen 30 und über 60 PWE variieren. Andererseits ist festzustellen, daß in Andøya sehr hohe Werte von  $Q$  beobachtet worden sind. Hierfür ist die Tatsache verantwortlich, daß die Position des Wirbelzentrums sich im Winter 1991/92 wiederholt vom geographischen Nordpol weg in Richtung Nordskandinavien verlagert hat [Naujokat *et al.*, 1992]. Nach Abb. 10.4 befindet sich die Position der Wirbelgrenze auf der Isentrope 475 K im Bereich um 40 PWE. Dieser Wert ist in Übereinstimmung mit Untersuchungen von Knudsen *et al.* [1992].

Analog zu Abb. 10.4 ist in Abb. 10.5  $R$  als Funktion von  $Q$  auf dem isentropischen

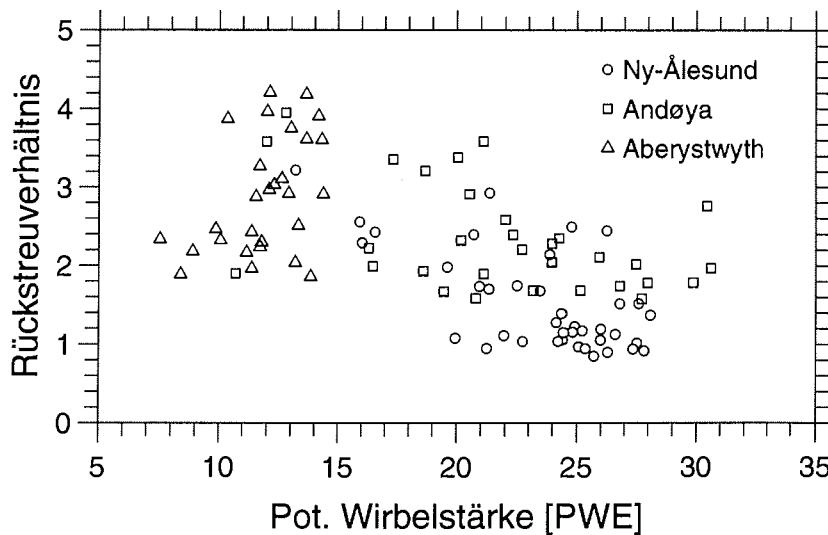


Abbildung 10.5: Wie Abb. 10.4, jedoch für das isentropische Niveau 425 K.

Niveau von 425 K dargestellt. Dieses Niveau entspricht etwa einer Höhe von 17 km. In diesem Höhenbereich ist nur eine geringe Abnahme von  $R$  in Richtung auf das Vortexzentrum zu beobachten. Eine Wirbelgrenze kann daher nicht erkannt werden.

Aus diesen Beobachtungsergebnissen lassen sich die folgenden Schlußfolgerungen ableiten [Neuber *et al.*, 1993]. Bei der Diskussion der zeitlichen und räumlichen Entwicklung des Aerosolgehalts in der unteren und mittleren Stratosphäre sind zwei Höhenbereiche klar zu unterscheiden, der Bereich zwischen Tropopause und dem isentropischen Niveau von 500 K und der Bereich oberhalb von 500 K. Im Höhenbereich oberhalb von 500 K isoliert der Polarwirbel während der gesamten Meßperiode im Winter 1991/92 die aerosolreiche, subpolare Luft von aerosolarmer Luft aus dem inneren Bereich des Vortex. Die Lidar-Daten aus Aberystwyth belegen den hohen Gehalt an vulkanischem Aerosol in mittleren Breiten. Die Schicht ist weder in vertikaler noch in horizontaler Richtung homogen. Es treten wiederholt mehrere übereinanderliegende Schichten auf. Die einzelnen Schichten zeigen eine deutliche Wolkenstruktur, d.h. der Aerosolgehalt ändert sich auf einer Zeitskala von wenigen Stunden. Die Isolation durch den Polarwirbel oberhalb von 500 K im Zeitraum von Mitte Dezember 1991 bis Mitte Februar 1992 ist sehr effektiv und besteht bis zum endgültigen Zusammenbruch des Vortex im März 1992. Daher werden während der stabilen Phase der polaren Zirkulation in Ny-Ålesund nie und in Andøya nur Anfang Dezember und Mitte Februar vulkanisches Aerosol oberhalb von 550 K beobachtet.

Im Höhenbereich zwischen der Tropopause und 500 K dagegen ist die polare Zirkulation schwächer ausgebildet und ein Austausch von Luftpaketen über die Vortexgrenzen hinweg ist möglich. Die Beobachtungen erster Spuren der vulkanischen Aerosole über Spitzbergen im August 1991 sind als Indiz für die unterschiedliche dynamischen Bedingungen in der unteren Stratosphäre zu werten. Störungen der polaren Zirkulation treten in diesem Höhenbereich während des Winters mehrfach

auf [Naujokat *et al.*, 1992]. Die Stratosphärenenerwärmung Mitte Januar 1992 ist in Ny-Ålesund (Abb. 9.2) und Andøya (Abb. 10.3) als Anstieg von  $R$  auf dem 400 K Niveau erkennbar. Noch deutlicher wirken sich die Störungen im Februar auf die Aerosolbelastung der unteren Stratosphäre in Ny-Ålesund um 400 K und in Andøya um 450 K aus.

Nach dem Aufbrechen der Polarwirbels Ende März 1992 ist die isolierende Wirkung auch oberhalb von 500 K aufgehoben und aerosolreiche Luft aus mittleren Breiten kann in die polare Stratosphäre eindringen.

# Anhang A

## Verzeichnis der Aerosol-Lidar-Meßtage

Die folgende Tabelle gibt einen Überblick über die in den Wintern 1991/92 und 1992/93 durchgeführten Lidar-Messungen. Für jeden Meßtag sind die Anzahl der Meßstunden angegeben. Die aktiven Detektionskanäle — vier Wellenlängenkanäle und ein Depolarisationskanal bei 532 nm — sind markiert.

Datum	Meßzeit [h]	308 nm	353 nm	532 nm	Depol.	1064 nm
25. 11. 1991	6,2			×	×	
26. 11. 1991	11,6			×	×	
30. 11. 1991	6,2	×	×	×	×	
1. 12. 1991	12,9	×	×	×	×	
2. 12. 1991	11,1	×	×	×	×	
3. 12. 1991	9,3	×	×	×	×	
4. 12. 1991	10,2	×	×	×	×	
6. 12. 1991	1,3	×	×	×	×	
12. 12. 1991	4,9	×	×	×	×	
13. 12. 1991	4,9	×	×	×	×	
17. 12. 1991	1,8	×	×	×	×	
6. 1. 1992	2,7	×	×			
7. 1. 1992	11,1	×	×	×	×	
8. 1. 1992	2,7	×	×	×	×	
9. 1. 1992	7,1	×	×	×	×	
10. 1. 1992	6,7	×	×	×	×	
11. 1. 1992	9,3	×	×	×	×	
12. 1. 1992	1,3	×	×	×	×	
17. 1. 1992	0,9	×	×	×	×	
18. 1. 1992	0,9	×	×	×	×	
19. 1. 1992	0,4	×	×	×	×	
24. 1. 1992	5,8	×	×	×	×	
26. 1. 1992	0,4	×	×	×	×	
28. 1. 1992	1,3	×	×	×	×	

Datum	Meßzeit [h]	308 nm	353 nm	532 nm	Depol.	1064 nm
29. 1. 1992	0,9	×	×	×	×	
30. 1. 1992	9,3	×	×	×	×	
31. 1. 1992	3,1	×	×	×	×	
1. 2. 1992	3,1	×	×	×	×	
2. 2. 1992	8,4	×	×	×	×	
3. 2. 1992	8,4	×	×	×	×	
6. 2. 1992	3,1	×	×	×	×	
7. 2. 1992	1,3	×	×	×	×	
8. 2. 1992	3,6	×	×	×	×	
9. 2. 1992	11,6	×	×	×	×	
10. 2. 1992	5,8	×	×	×	×	
11. 2. 1992	7,6	×	×	×	×	
12. 2. 1992	9,8	×	×	×	×	
13. 2. 1992	3,1	×	×			
15. 2. 1992	4,0	×	×	×	×	
22. 2. 1992	0,4	×	×	×	×	
23. 2. 1992	8,4	×	×	×	×	
24. 2. 1992	1,3	×	×	×	×	
25. 2. 1992	0,9	×	×	×	×	
27. 2. 1992	0,9	×	×	×	×	
29. 2. 1992	4,4	×	×	×	×	
1. 3. 1992	2,2	×	×	×	×	
5. 3. 1992	1,3	×	×	×	×	
7. 3. 1992	0,9	×	×			
12. 3. 1992	0,4	×	×			
17. 3. 1992	1,3	×	×	×	×	
21. 3. 1992	3,1	×	×	×	×	
22. 3. 1992	4,0	×	×			
23. 3. 1992	1,3	×	×			
25. 3. 1992	1,8	×	×			
26. 3. 1992	4,0	×	×	×	×	
27. 3. 1992	2,7	×	×	×	×	
3. 9. 1992	2,6			×		
4. 9. 1992	0,7			×		
1. 12. 1992	0,4			×		
2. 12. 1992	1,1			×	×	
3. 12. 1992	1,9			×	×	
4. 12. 1992	2,2			×	×	
5. 12. 1992	1,5			×	×	
6. 12. 1992	4,4			×	×	
10. 12. 1992	2,6	×	×	×	×	×
11. 12. 1992	0,4	×	×	×	×	×
12. 12. 1992	3,3	×	×	×	×	×
14. 12. 1992	4,4	×	×	×	×	×
15. 12. 1992	2,6	×	×	×	×	×
16. 12. 1992	0,4	×	×	×	×	

Datum	Meßzeit [h]	308 nm	353 nm	532 nm	Depol.	1064 nm
17. 12. 1992	3,7	×	×	×	×	×
20. 12. 1992	3,3	×	×	×	×	×
21. 12. 1992	5,9	×	×	×	×	×
23. 12. 1992	0,4	×	×	×	×	×
24. 12. 1992	5,2	×	×	×	×	×
25. 12. 1992	3,7	×	×	×	×	×
26. 12. 1992	3,3	×	×	×	×	×
27. 12. 1992	2,2	×	×	×	×	×
28. 12. 1992	5,2	×	×	×	×	×
29. 12. 1992	5,9	×	×	×	×	×
1. 1. 1993	3,3	×	×	×	×	×
3. 1. 1993	10,7	×	×	×	×	×
4. 1. 1993	0,4	×	×	×	×	×
6. 1. 1993	2,2	×	×	×	×	×
7. 1. 1993	7,0	×	×	×	×	×
8. 1. 1993	4,8	×	×	×	×	×
9. 1. 1993	5,2	×	×	×	×	×
10. 1. 1993	10,7	×	×	×	×	×
11. 1. 1993	8,5	×	×	×	×	×
12. 1. 1993	7,8	×	×	×	×	×
13. 1. 1993	9,6	×	×	×	×	×
17. 1. 1993	1,9	×	×	×	×	×
18. 1. 1993	4,4	×	×	×	×	×
19. 1. 1993	4,1	×	×	×	×	×
20. 1. 1993	4,1	×	×	×	×	×
22. 1. 1993	11,1	×	×	×	×	×
23. 1. 1993	5,9	×	×	×	×	×
24. 1. 1993	1,1	×	×	×	×	×
25. 1. 1993	10,4	×	×	×	×	×
26. 1. 1993	5,9	×	×	×	×	×
27. 1. 1993	3,3	×	×	×	×	×
28. 1. 1993	5,2	×	×	×	×	×
29. 1. 1993	1,5	×	×	×	×	×
2. 2. 1993	1,5	×	×	×	×	×
3. 2. 1993	1,9	×	×	×	×	×
4. 2. 1993	1,1	×	×	×	×	×
27. 2. 1993	3,0	×	×	×	×	×
28. 2. 1993	3,7	×	×	×	×	×
4. 3. 1993	4,4	×	×	×	×	×
5. 3. 1993	1,1	×	×	×	×	×
7. 3. 1993	1,1	×	×	×	×	×
8. 3. 1993	1,5	×	×	×	×	×
9. 3. 1993	3,0	×	×	×	×	×
10. 3. 1993	3,7	×	×	×	×	×
11. 3. 1993	3,0	×	×	×	×	×





## Anhang B

### Fehlerberechnung im Klett-Verfahren

Das Klett-Verfahren liefert als Lösung der Lidar-Gleichung für den Partikelrückstreukoeffizienten (Gl. 8.9)

$$\beta^{\text{Aer}}(z_i) = \frac{\mathcal{Z}(z_i)}{\mathcal{N}(z_i)} - \beta^{\text{Ray}}(z_i),$$

wobei

$$\begin{aligned}\mathcal{Z}(z_i) &= \exp\left(\ln(z_i^2 P(z_i)) - \ln(z_N^2 P(z_N))\right) \\ &\quad - 2 \Delta z \sum_{j=i}^N \left[ (L^{\text{Ray}} - L^{\text{Aer}}(z_j)) \beta^{\text{Ray}}(z_j) + \alpha_{\text{Abs}}^{\text{Mol}}(z_j) \right] \\ \mathcal{N}(z_i) &= C + 2 \Delta z \sum_{j=i}^N L^{\text{Aer}}(z_j) \mathcal{Z}(z_j).\end{aligned}$$

Für die Berechnung des Fehlers von  $\beta^{\text{Aer}}(z_i)$  ist die Kenntnis der folgenden vier Terme erforderlich,

- $\partial\beta^{\text{Aer}}/\partial P$ ,
- $\partial\beta^{\text{Aer}}/\partial\beta^{\text{Ray}}$ ,
- $\partial\beta^{\text{Aer}}/\partial\alpha_{\text{Abs}}^{\text{Mol}}$  und
- $\partial\beta^{\text{Aer}}/\partial L^{\text{Aer}}$ .

Im folgenden verwende ich die Abkürzungen

$$\begin{aligned}\epsilon_{ij} &= \begin{cases} 1 & : j \geq i \\ 0 & : j < i \end{cases} \\ \delta_{ij} &= \begin{cases} 1 & : j = i \\ 0 & : j \neq i \end{cases} \\ P_i &= P(z_i)\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\beta_i^{\text{Ray}} &= \beta^{\text{Ray}}(z_i) \\
\alpha_{\text{Abs } i}^{\text{Mol}} &= \alpha_{\text{Abs}}^{\text{Mol}}(z_i) \\
L_i^{\text{Aer}} &= L^{\text{Aer}}(z_i) \\
\mathcal{N}_i &= \mathcal{N}(z_i) \\
\mathcal{Z}_i &= \mathcal{Z}(z_i).
\end{aligned}$$

Unter der Annahme, daß die Integrationskonstante  $C$  als konstant angesehen werden kann, sind die Differentialquotienten gegeben durch die Ausdrücke

$$\begin{aligned}
\frac{\partial \beta_i^{\text{Aer}}}{\partial P_j} &= \frac{\mathcal{N}_i \mathcal{Z}_i \delta_{ij} / P_j - 2 \Delta z \mathcal{Z}_i \mathcal{Z}_j L_j^{\text{Aer}} \epsilon_{ij} / P_j}{\mathcal{N}_i^2} && \text{falls } i < N, j < N \\
\frac{\partial \beta_i^{\text{Aer}}}{\partial P_j} &= \frac{-\mathcal{N}_i \mathcal{Z}_i / P_j + 2 \Delta z \mathcal{Z}_i \sum_{k=i}^{N-1} (L_k^{\text{Aer}} \mathcal{Z}_k) / P_j}{\mathcal{N}_i^2} && \text{falls } i < N, j = N \\
\frac{\partial \beta_i^{\text{Aer}}}{\partial P_j} &= 0 && \text{sonst} \\
\frac{\partial \beta_i^{\text{Aer}}}{\partial \beta_j^{\text{Ray}}} &= \frac{-2 \Delta z \mathcal{N}_i \mathcal{Z}_i (L_j^{\text{Ray}} - L_j^{\text{Aer}}) \epsilon_{ij} + 4 (\Delta z)^2 \mathcal{Z}_i (L_j^{\text{Ray}} - L_j^{\text{Aer}}) \sum_{k=i}^j L_k^{\text{Aer}} \mathcal{Z}_k}{\mathcal{N}_i^2} \\
&\quad - \delta_{ij} \\
\frac{\partial \beta_i^{\text{Aer}}}{\partial L_j^{\text{Aer}}} &= \frac{2 \Delta z \mathcal{N}_i \mathcal{Z}_i \beta_j^{\text{Ray}} \epsilon_{ij} - 2 \Delta z \mathcal{Z}_i (\mathcal{Z}_j \epsilon_{ij} + 2 \Delta z \beta_j^{\text{Ray}} \sum_{k=i}^j L_k^{\text{Aer}} \mathcal{Z}_k)}{\mathcal{N}_i^2} \\
\frac{\partial \beta_i^{\text{Aer}}}{\partial \alpha_{\text{Abs } j}^{\text{Mol}}} &= \frac{-2 \Delta z \mathcal{N}_i \mathcal{Z}_i \epsilon_{ij} + 4 (\Delta z)^2 \mathcal{Z}_i \sum_{k=i}^j L_k^{\text{Aer}} \mathcal{Z}_k}{\mathcal{N}_i^2}
\end{aligned}$$

## Anhang C

### Herleitung der Depolarisationsgleichungen

Dieser Abschnitt enthält eine Herleitung der Gl. 8.5 und 8.6. Im folgenden werde ich mehrmals von der Identität

$$x = \frac{1-y}{1+y} \Leftrightarrow y = \frac{1-x}{1+x} \quad (\text{C.1})$$

Gebrauch machen.

Sei  $\vec{P}^a = (P, P, 0, 0)$  der Stokes-Vektor einer vollständig linear polarisierten Lichtwelle. Diese Welle möge durch Streuung oder diffuse Reflexion teilweise depolarisiert werden. Dieser Vorgang wird durch eine Müller-Matrix der Form

$$A = \begin{pmatrix} A_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & A_{22} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & A_{33} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & A_{44} \end{pmatrix} \quad (\text{C.2})$$

beschrieben [Clarke und Grainger, 1971]. Ein optisches Element, das eine Müller-Matrix nach Gl. C.2 besitzt, bezeichne ich im folgenden als Depolarisator. Die durch  $A$  verursachte Depolarisation der Lichtwelle ist

$$\begin{aligned} \delta^a &= \frac{A_{11}P - A_{22}P}{A_{11}P + A_{22}P} \\ &= \frac{1 - A_{22}/A_{11}}{1 + A_{22}/A_{11}} \end{aligned}$$

Eine Umformung liefert

$$\frac{A_{22}}{A_{11}} = \frac{1 - \delta^a}{1 + \delta^a} \quad (\text{C.3})$$

Analog gilt für den Depolarisator  $B$

$$\frac{B_{22}}{B_{11}} = \frac{1 - \delta^b}{1 + \delta^b} \quad (\text{C.4})$$

Ich betrachte im folgenden einen Lichtstrahl, der nacheinander mit zwei Depolarisatoren wechselwirkt. Die resultierende Depolarisation ist

$$\delta^c = \frac{1 - (B_{22} A_{22}) / (B_{11} A_{11})}{1 + (B_{22} A_{22}) / (B_{11} A_{11})}. \quad (\text{C.5})$$

Einsetzen von Gl. C.3 und C.4 in Gl. C.5 ergibt

$$\frac{1 - \delta^c}{1 + \delta^c} = \frac{1 - \delta^b}{1 + \delta^a} \frac{1 - \delta^b}{1 + \delta^a}.$$

Auflösen dieser Gleichung nach  $\delta^b$  liefert das gewünschte Ergebnis

$$\begin{aligned} \delta^b &= \frac{(1 - \delta^a)(1 + \delta^c) - (1 + \delta^a)(1 - \delta^c)}{(1 - \delta^a)(1 + \delta^c) + (1 + \delta^a)(1 - \delta^c)} \\ &= \frac{\delta^c - \delta^a}{1 - \delta^c \delta^a}. \end{aligned}$$

Für die Herleitung von Gl. 8.6 setze ich voraus, daß sich das von Partikeln und Molekülen der Atmosphäre gestreute Licht sich inkohärent überlagert. Diese Annahme ist gerechtfertigt, da in der Atmosphäre keine räumliche Korrelation zwischen Partikeln und Molekülen existiert. Die Streumatrix erhält man daher als Summe der Rayleigh- und Partikelstreumatrix,

$$F = F^{\text{Ray}} + F^{\text{Aer}}. \quad (\text{C.6})$$

Das Rückstreuverhältnis  $R$  ist das Verhältnis zwischen der zurückgestreuten Gesamtintensität und dem Rayleigh-Anteil an der Gesamtintensität,

$$R = \frac{F_{11}^{\text{Ray}} + F_{11}^{\text{Aer}}}{F_{11}^{\text{Ray}}}.$$

Die Volumendepolarisation  $\delta$  für einen vollständig linear polarisierten Emissionsstrahl  $\vec{P} = (P, P, 0, 0)$  ist mit Gl. C.6 gegeben durch

$$\delta = \frac{F_{11}^{\text{Ray}} + F_{11}^{\text{Aer}} - F_{22}^{\text{Ray}} - F_{22}^{\text{Aer}}}{F_{11}^{\text{Ray}} + F_{11}^{\text{Aer}} + F_{22}^{\text{Ray}} + F_{22}^{\text{Aer}}}.$$

Mit Gl. C.7 und der Definition für  $\delta^{\text{Ray}}$  und  $\delta^{\text{Aer}}$

$$\begin{aligned} \delta^{\text{Ray}} &= \frac{F_{11}^{\text{Ray}} - F_{22}^{\text{Ray}}}{F_{11}^{\text{Ray}} + F_{22}^{\text{Ray}}} \\ \delta^{\text{Aer}} &= \frac{F_{11}^{\text{Aer}} - F_{22}^{\text{Aer}}}{F_{11}^{\text{Aer}} + F_{22}^{\text{Aer}}} \end{aligned}$$

erhält man die Beziehung

$$\begin{aligned} \frac{1 - \delta}{1 + \delta} &= \frac{F_{22}^{\text{Ray}} + F_{22}^{\text{Aer}}}{F_{11}^{\text{Ray}} + F_{11}^{\text{Aer}}} \\ &= \frac{1}{R} \left( \frac{1 - \delta^{\text{Ray}}}{1 + \delta^{\text{Ray}}} + (R - 1) \frac{1 - \delta^{\text{Aer}}}{1 + \delta^{\text{Aer}}} \right). \end{aligned}$$

Auflösen nach  $\delta^{\text{Aer}}$  ergibt das gewünschte Resultat

$$\delta^{\text{Aer}} = \frac{(1 + \delta^{\text{Ray}}) \delta R - (1 + \delta) \delta^{\text{Ray}}}{(1 + \delta^{\text{Ray}}) R - (1 + \delta)}.$$

## Literatur

- Anderson, R., Polarization and atmospheric backscatter coefficient measurements, *Appl. Opt.*, 28, (5), S. 865–874, 1989.
- Anderson, J. G., D. W. Toohey und W. H. Brune, Free radicals within the Antarctic vortex: The role of CFCs in Antarctic ozone loss, *Science*, 51, S. 39–46, 1991.
- Anderson, S. M. und K. Mauersberger, Laser measurements of ozone absorption cross sections in the Chappuis band, *Geophys. Res. Letts.*, 19, (9), S. 933–936, 1992.
- Andrews, D. G., *Middle atmosphere dynamics*, Academic Press, London, 1987.
- Ansmann, A., U. Wandinger und C. Weitkamp, One-year observations of Mount-Pinatubo aerosol with an advanced Raman lidar over Germany at 53.5°N, *Geophys. Res. Letts.*, 20, (8), S. 711–714, 1993.
- Arnold, F., Multi-ion complexes in the stratosphere — implications for trace gases and aerosols, *Nature*, 284, S. 610–611, 1980.
- Bevington, P. R., *Data reduction and error analysis for the physical sciences*, McGraw-Hill, New York, 1969.
- Beyerle, G., R. Neuber, O. Schrems, F. Wittrock und B. Knudsen, Multiwavelength lidar measurements of stratospheric aerosols above Spitsbergen during winter 1992/93, *Geophys. Res. Letts.*, im Druck, 1993.
- Beyerle, G. und R. Neuber, The stratospheric aerosol content above Spitsbergen during winter 1991/92, *Geophys. Res. Letts.*, im Druck, 1993.
- Blanchet, J.-P. und R. List, On the optical properties of Arctic haze, in: *Aerosols and their climatic effects*, herausgegeben von H. E. Gerber und A. Deepak, S. 179–196, A. Deepak Publ., Hampton, 1984.
- Bluth, G. J. S., S. D. Doiron, C. C. Schnetzler, A. J. Krueger und L. S. Walter, Global tracking of the SO<sub>2</sub> clouds from the June, 1991 Mount Pinatubo eruptions, *Geophys. Res. Letts.*, 19, (2), S. 151–154, 1992.
- Bohren, C. F. und D. R. Huffman, *Absorption and scattering of light by small particles*, John Wiley & Sons, New York, 1983.
- Born, M. und E. Wolf, *Principles of Optics*, Pergamon Press, Oxford, 1980.
- Bronstein, I. N. und K. A. Semendjajew, *Taschenbuch der Mathematik*, Verlag Harri Deutsch, Thun, 1981.
- Browell, E. V., C. F. Butler, S. Ismail, P. A. Robinette, A. F. Carter, N. S. Higdon, O. B. Toon, M. R. Schoeberl und A. F. Tuck, Airborne lidar observations in the wintertime Arctic stratosphere: Polar stratospheric clouds, *Geophys. Res. Letts.*, 19, (9), S. 385–388, 1990.
- Chylek, P., G. W. Grams und R. G. Pinnick, Light scattering by irregular randomly oriented particles, *Science*, 193, S. 480–482, 1976.
- Clarke, D. und J. F. Grainger, *Polarized light and optical measurement*, Pergamon Press, Oxford, 1971.
- Continuum, *Operation and maintenance manual NY60 & 61*, Continuum, 3150 Central Expressway Santa Clara, CA 95051, August 1990.
- Continuum, *Telefonische Mitteilung*, 1993.
- Crutzen, P. J., The possible importance of CSO for the sulfate layer of the stratosphere, *Geophys. Res. Letts.*, 3, (2), S. 73–76, 1976.
- Crutzen, P. J. und F. Arnold, Nitric acid cloud formation in the cold Antarctic stratosphere: A major cause for springtime 'ozone hole', *Nature*, 324, S. 651–655,

- 1986.
- Deirmendjian, D., On volcanic and other particulate turbidity anomalies, *Adv. Geophys.*, 13, S. 267–296, 1973.
- Deshler, T., In situ measurements of the size distribution of the Pinatubo aerosol over Kiruna on four days between 18 January and 13 February 1992, *Geophys. Res. Letts.*, im Druck, 1993.
- Deshler, T., D. J. Hofmann, B. J. Johnson und W. R. Rozier, Balloonborne measurements of the Pinatubo aerosol size distribution at Laramie, Wyoming during summer of 1991, *Geophys. Res. Letts.*, 19, (2), S. 199–202, 1991.
- Dye, J. E., D. Baumgardner, B. W. Gandrud, S. R. Kawa, K. K. Kelly, M. Loewenstein, G. V. Ferry, K. R. Chan und B. L. Gary, Particle size distributions in Arctic polar stratospheric clouds, growth and freezing of sulfuric acid droplets, and implications for cloud formation, *J. Geophys. Res.*, 97, (D8), S. 8015–8034, 1992.
- EMI, Photomultipliers, Thorn Emi Electron Tubes Limited, Bury Street Ruislip, Middlesex HA4 7TA, England, 1986.
- EOS, Pinatubo cloud measured, *EOS Trans. AGU*, Juli 1991.
- Fahey, D. W., K. K. Kelly, S. R. Kawa, A. F. Tuck, M. Loewenstein, K. R. Chan und L. E. Heidt, Observations of denitrification and dehydration in the winter polar stratospheres, *Nature*, 344, S. 321–324, 1990.
- Francis, P. und S. Self, Der Ausbruch des Krakatau, in: *Vulkanismus: Naturgewalt, Klimafaktor und kosmische Formkraft*, herausgegeben von H. Pichler, S. 56–68, Spektrum der Wissenschaft Verlagsgesellschaft, Heidelberg, 1988.
- von der Gathen, P., R. Fabian, B. M. Knudsen und R. Neuber, Ozone loss in the Arctic polar vortex between 430 K and 520 K during February 1993, Poster, XVIII General Assembly of the Europ. Geophys. Soc., Wiesbaden, 1993.
- Gille, J. C. und J. M. Russell, The limb infrared monitor of the stratosphere: Experiment description, performance, and results, *J. Geophys. Res.*, 89, (D4), S. 5125–5140, 1984.
- Goldman, A., F. J. Murcray, C. P. Rinsland, R. D. Blatherwick, S. J. David, F. H. Murcray und D. G. Murcray, Mt. Pinatubo SO<sub>2</sub> column measurements from Mauna Loa, *Geophys. Res. Letts.*, 19, (2), S. 183–186, 1992.
- Griggs, M., Absorptions coefficients of ozone in the ultraviolet and visible region, *J. Chem. Phys.*, 49, (2), S. 857–859, 1968.
- Halpert, M. S., C. F. Ropelewski, T. R. Karl, J. K. Angell, L. L. Stowe, R. R. Heim, A. J. Miller und D. R. Rodenhuis, 1992 brings return to moderate global temperatures, *EOS, Trans.*, 74, (38), S. 433, 1993.
- Hamill, P., O. B. Toon und C. S. Kiang, Microphysical processes affecting stratospheric aerosol particles, *J. Atmos. Sci.*, 34, S. 1104–1119, 1977.
- Hamill, P., R. P. Turco, C. S. Kiang, O. B. Toon und R. C. Whitten, An analysis of various nucleation mechanisms for sulfate particles in the stratosphere, *J. Aerosol Sci.*, 13, (6), S. 561–585, 1982.
- Hanson, D. und K. Mauersberger, Laboratory studies of the nitric acid trihydrate: Implications for the south polar stratosphere, *Geophys. Res. Letts.*, 15, (8), S. 855–858, 1988.
- Harshvardhan, A. Arking, M. D. King und M.-D. Chou, Impact of the El Chichón stratospheric aerosol layer on northern hemisphere temperatures, in: *Aerosols and their climatic effects*, herausgegeben von H. E. Gerber und A. Deepak, S. 261–273,

- A. Deepak Publ., Hampton, 1984.
- Herber, A., Untersuchungen der optischen Eigenschaften des Aerosols in den Polar- gebieten, Dissertation, Universität Leipzig, 1992.
- Herber, A., Persönliche Mitteilung, 1993.
- Hinds, W. C., Aerosol technology, properties, behavior, and measurement of air- borne particles, John Wiley & Sons, New York, 1982.
- Hofmann, D. J., J. M. Rosen, J. W. Harder und J. V. Hereford, Balloon-borne mea- surements of aerosol, condensation nuclei, and cloud particles in the stratosphere at McMurdo station, Antarctica, during the spring of 1987, *J. Geophys. Res.*, 94, (D9), S. 11253–11269, 1989.
- Hofmann, D. J., T. Deshler, F. Arnold und H. Schlager, Balloon observations of nitric acid aerosol formation in the Arctic stratosphere: II. Aerosol, *Geophys. Res. Letts.*, 17, (9), S. 1279–1282, 1990.
- Hofmann, D. J. und J. M. Rosen, On the background stratospheric aerosol layer, *J. Atmos. Sci.*, 38, S. 168–181, 1981.
- Hoskins, B. J., M. E. McIntyre und A. W. Robertson, The use and significance of isentropic potential vorticity maps, *Quart. J. R. Met. Soc.*, 111, S. 877–946, 1985.
- Houghton, J. T., *The physics of atmospheres*, Cambridge University Press, Cam- bridge, 1977.
- van de Hulst, H. C., *Light Scattering by Small Particles*, Dover Publications, New York, 1957.
- Jackson, J. D., *Klassische Elektrodynamik*, Walther de Gruyter, Berlin, 1983.
- Jäger, H., The Pinatubo eruption cloud observed by lidar at Garmisch-Parten- kirchen, *Geophys. Res. Letts.*, 19, (2), S. 191–194, 1992.
- Jensen, E., O. B. Toon und P. Hamill, Homogeneous freezing nucleation of strato- spheric solution droplets, *Geophys. Res. Letts.*, 18, (10), S. 1857–1860, 1991.
- Junge, C., C. Chagnon und J. Manson, Stratospheric aerosols, *J. Meteorol.*, 18, S. 81–108, 1961.
- Junge, C. und J. Manson, Stratospheric aerosol studies, *J. Geophys. Res.*, 66, (7), S. 2163–2182, 1961.
- Kavaya, M. J., Polarization effects on hard target calibration of lidar systems, *Appl. Opt.*, 26, (5), S. 796–804, 1987.
- Kerker, M., *The scattering of light and other electromagnetic radiation*, Academic Press, New York, 1969.
- Kinne, S. und O. B. Toon, Radiative effects of polar stratospheric clouds, *Geophys. Res. Letts.*, 17, (4), S. 373–376, 1990.
- Klett, J. D., Stable analytical inversion solution for processing lidar returns, *Appl. Opt.*, 20, (2), S. 211–220, 1981.
- Klett, J. D., Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratios, *Appl. Opt.*, 24, (11), S. 1638–1643, 1985.
- Knudsen, B. M., P. von der Gathen, G. O. Braathen, R. Fabian, T. S. Jørgenson, E. Kyrö, R. Neuber und M. Rummukainen, Temporal development of the correla- tion between ozone and potential vorticity in the Arctic in the winters of 1988/89, 1989/90, and 1990/91, *Proc. of the Quad. Ozone Symp.*, im Druck, 1992.
- Koehler, B., A. M. Middlebrook und M. A. Tolbert, Characterization of model polar stratospheric cloud films using fourier transform infrared spectroscopy and temperature programmed desorption, *J. Geophys. Res.*, 97, (D8), S. 8065–8074, 1992.

- Krüger, B. C., Observations of polar stratospheric clouds in the Arctic winter 1989 at 79 N, *Geophys. Res. Letts.*, 17, (4), S. 365–368, 1990.
- Labitzke, K. und P. M. McCormick, Stratospheric temperature increases due to Pinatubo aerosols, *Geophys. Res. Letts.*, 19, (2), S. 207–210, 1992.
- Lacis, A., J. Hansen und M. Sato, Climate forcing by stratospheric aerosols, *Geophys. Res. Letts.*, 19, (15), S. 1607–1610, 1992.
- Larsen, N., Stratospheric aerosols, backscatter measurements from Thule, European Arctic Stratospheric Ozone Experiment, Report 92-1, Danish Meteorological Institute, 1992.
- E. Lax (Hrsg.), Taschenbuch für Chemiker und Physiker, Band 1, Springer, Berlin, 1967.
- Lenoble, J., A general survey of the problem of aerosol climatic impact, in: *Aerosols and their climatic effects*, herausgegeben von H. E. Gerber und A. Deepak, S. 279–294, A. Deepak Publ., Hampton, 1984.
- Liljequist, G. H. und K. Cehak, *Allgemeine Meteorologie*, Vieweg & Sohn, Braunschweig, 1974.
- Macleod, H. A., *Thin film optical filters*, Adam Hilger, London, 1969.
- Mahata, P. C. und D. J. Alofs, Insoluble condensation nuclei: The effect of contact angle, surface roughness and adsorption, *J. Atmos. Sci.*, 32, S. 116–122, 1975.
- Marti, J. und K. Mauersberger, A survey and new measurements of ice vapor pressure at temperatures between 170 and 250 K, *Geophys. Res. Letts.*, 20, (5), S. 363–366, 1993.
- McCormick, M. P., H. M. Steele, P. Hamill, W. P. Chu und T. J. Swissler, Polar stratospheric clouds sightings by SAM II, *J. Atmos. Sci.*, 39, S. 1387–1397, 1982.
- McCormick, P. M., P. H. Wang und M. C. Pitts, Background stratospheric aerosol and polar stratospheric cloud reference models, *J. Space Res.*, 13, (1), S. 7–23, 1993.
- McIntyre, M. E. und T. N. Palmer, Breaking planetary waves in the stratosphere, *Nature*, 305, S. 593–600, 1983.
- McPeters, R. D., The atmospheric SO<sub>2</sub> budget for Pinatubo derived from NOAA-11 SBUV/2 spectral data, *Geophys. Res. Letts.*, 20, (18), S. 1971–1974, 1993.
- Measures, R., *Laser Remote Sensing, Fundamentals and Applications*, John Wiley & Sons, New York, 1984.
- Middlebrook, A. M., B. G. Koehler, L. S. McNeill und M. A. Tolbert, Formation of model polar stratospheric cloud films, *Geophys. Res. Letts.*, 19, (24), S. 2417–2420, 1992.
- Mugnai, A. und W. J. Wiscombe, Scattering from nonspherical Chebyshev particles. I: Cross sections, single-scattering albedo, asymmetry factor, and backscattered fraction, *Appl. Opt.*, 25, (7), S. 1235–1244, 1986.
- Müller, H. und H. Quentzel, Information content of multispectral lidar measurements with respect to the aerosol size distribution, *Appl. Opt.*, 24, (5), S. 648–654, 1985.
- Naujokat, B., K. Petzoldt, K. Labitzke, R. Lenschow, B. Rajewski, M. Wiesner und R.-C. Wohlfart, The stratospheric winter 1991/92: The winter of the European Arctic Stratospheric Ozone Experiment, Beilage zur Berliner Wetterkarte, 1992.
- Naujokat, B., K. Petzoldt, K. Labitzke, R. Lenschow, B. Rajewski, M. Wiesner und R.-C. Wohlfart, The stratospheric winter 1992/93: A cold winter with a minor warming and a late final warming, Beilage zur Berliner Wetterkarte, 1993.



- Neuber, R., B. C. Krüger und O. Schrems, Remote measurements of ozone concentrations and aerosols in the Arctic stratosphere, *Fresenius J. Anal. Chem.*, 340, S. 650–653, 1991.
- Neuber, R., G. Beyerle und O. Schrems, LIDAR measurements of stratospheric aerosols in the Arctic, *Ber. Bunsenges. Phys. Chem.*, 96, (3), S. 350–353, 1992a.
- Neuber, R., G. Beyerle, O. Schrems, R. Fabian, B. C. Krüger und P. von der Gathen, Measurements of stratospheric ozone and aerosols above Spitsbergen, *Proc. of the Quad. Ozone Symp.*, im Druck, 1992b.
- Neuber, R., G. Beyerle, G. Fiocco, A. di Sarra, K.-H. Fricke, C. David, S. Godin, L. Stefanutti, G. Vaughan, J.-P. Wolf und B. Knudsen, Latitudinal distribution of stratospheric aerosols during the EASOE winter 1991/92, *Geophys. Res. Letts.*, im Druck, 1993.
- Ovarlez, J. und H. Ovarlez, Stratospheric water vapor content evolution during EASOE, *Geophys. Res. Letts.*, im Druck, 1993.
- Palmer, K. F. und D. Williams, Optical constants of sulfuric acid; Application to the clouds of venus?, *Appl. Opt.*, 14, (1), S. 208–219, 1975.
- Peil, S. und O. Schrems, FTIR spectroscopic studies of low temperature polar stratospheric cloud model surfaces, in: *SPIE, 9th International Conference on Fourier Transform Spectroscopy*, 1993.
- Penndorf, R., Tables of the refractive index for standard air and the Rayleigh scattering coefficient for the spectral region between 0.2 and 20  $\mu$  and their application to atmospheric optics, *J. Opt. Soc. Am.*, 47, (2), S. 176–182, 1957.
- Peter, T., Aerosols and PSCs — inferences regarding heterogeneous processes, *Vortrag auf dem 2nd European Symposium on Polar Stratospheric Ozone*, Schliersee, 1992.
- Peter, T., Persönliche Mitteilung, 1993.
- Pinnick, R. G., J. M. Rosen, und D. J. Hofmann, Stratospheric aerosol measurements III: Optical model calculations, *J. Atmos. Sci.*, 33, S. 304–314, 1976.
- Pinto, J. P., R. P. Turco und O. B. Toon, Self-limiting physical and chemical effects in volcanic eruption clouds, *J. Geophys. Res.*, 94, (D8), S. 11165–11174, 1989.
- Pollack, J. B. und C. P. McKay, The impact of polar stratospheric clouds on the heating rates of the winter polar stratosphere, *J. Atmos. Sci.*, 42, (3), S. 245–262, 1985.
- Press, W. H., S. A. Teucholsky, W. T. Vetterling und B. P. Flannery, *Numerical recipes in C, The art of scientific computing*, 2nd edition, Cambridge University Press, Cambridge, 1992.
- Pruppacher, H. P. und J. D. Klett, *Microphysics of clouds and precipitation*, D. Reidel Publ., Dordrecht, 1978.
- Pueschel, R. F., K. G. Snetsinger, J. K. Goodman, O. B. Toon, G. V. Ferry, V. R. Oberbeck, J. M. Livingston, S. Verma, W. Fong, W. L. Starr und K. R. Chan, Condensed nitrate, sulfate, and chloride in Antarctic stratospheric aerosols, *J. Geophys. Res.*, 94, (D9), S. 11271–11284, 1989.
- Rampino, M. R., S. Self und R. B. Stothers, Volcanic winters, *Ann. Rev. Earth Planet. Sci.*, 16, S. 73–89, 1988.
- RCA, Single photon counting module, General Electric Canada Inc., Electro Optics, P.O.Box 900, Vaudreuil, Canada J7V 7X3, 1991.
- Reist, P. C., *Introduction to aerosol science*, Macmillan Publ., New York, 1984.
- Robock, A. und J. Mao, Winter warming from large volcanic eruptions, *Geophys.*

- Res. Letts., 12, (24), S. 2405–2408, 1992.
- Rodgers, C. D., Retrieval of atmospheric temperatures and composition from remote measurements of thermal radiation, *Rev. Geophys. and Space Phys.*, 14, (4), S. 609–624, 1976.
- Roedel, W., Measurement of sulfuric acid saturation vapor pressure; Implications for aerosol formation by heteromolecular nucleation, *J. Aerosol Sci.*, 10, S. 375–386, 1979.
- Roedel, W., *Physik der Aerosole*, Institut für Umweltphysik, Universität Heidelberg, vorlesungsskript, 1988.
- Rogers, R. R. und M. K. Yau, *A short course in cloud physics*, Pergamon Press, Oxford, 1989.
- Rosen, J. M. und D. J. Hofmann, Optical modeling of stratospheric aerosols: present status, *Appl. Opt.*, 25, (3), S. 410–419, 1986.
- Rosen, J. M. und N. T. Kjöme, Backscattersonde: A new instrument for atmospheric research, *Appl. Opt.*, 30, (12), S. 1552–1561, 1991.
- Russell, P. B., J. C. Gille, E. E. Remsberg, L. L. Gordley, P. L. Bailey, H. Fischer, A. Girard, S. R. Drayson, W. F. J. Evans und J. E. Harries, Validation of water vapor results measured by the limb infrared monitor of the stratosphere experiment on NIMBUS 7, *J. Geophys. Res.*, 89, (D4), S. 5115–5124, 1984a.
- Salawitch, R. J., S. C. Wofsky und M. B. McElroy, Influence of polar stratospheric clouds on the depletion of Antarctic ozone, *Geophys. Res. Letts.*, 15, (8), S. 871–874, 1988.
- Saleh, B., *Photoelectron statistics*, Springer-Verlag, Berlin, 1978.
- Schmincke, H.-U., Transfer von festen, flüssigen und gasförmigen Stoffen aus Vulkanen in die Atmosphäre, *Z. Umweltchem. Ökotox.*, 5, (1), S. 27–44, 1993.
- Schoeberl, M. R., L. R. Lait, P. A. Newman und J. E. Rosenfield, The structure of the polar vortex, *J. Geophys. Res.*, 97, (D8), S. 7859–7882, 1992.
- Schoeberl, M. R. und D. L. Hartmann, The dynamics of the stratospheric polar vortex and its relation to springtime ozone depletions, *Science*, 51, S. 46–52, 1991.
- Schrems, O., S. Peil, K. Jaeger, R. Weller, M. Wierzejewska-Hnat und H. Lorenzen-Schmidt, Heterogeneous and homogeneous chemistry of  $\text{ClO}_y$ ,  $\text{BrO}_y$ , and  $\text{NO}_y$  compounds on polar stratospheric cloud mimics, in: *Environmental research programme; science and technology for environmental protection*, 1993.
- Sedlacek, W. A., E. J. Mroz, A. L. Lazrus und B. W. Gandrud, A decade of stratospheric sulfate measurements compared with observations of volcanic eruptions, *J. Geophys. Res.*, 88, (C6), S. 3741–3776, 1983.
- Seinfeld, J. D., *Atmospheric chemistry and physics of air pollution*, John Wiley & Sons, New York, 1986.
- Self, S. und M. R. Rampino, The 1883 eruption of Krakatau, *Nature*, 294, S. 699–704, 1981.
- Sheridan, P. J., R. C. Schnell, D. J. Hofmann und T. Deshler, Electron microscope studies of Mt. Pinatubo aerosol layers over Laramie, Wyoming during summer 1991, *Geophys. Res. Letts.*, 19, (2), S. 203–206, 1992.
- Shurcliff, W. A., *Polarized light: Production and use*, Harvard University Press, Cambridge, 1962.
- Stanford, J. L. und J. S. Davies, A century of stratospheric cloud reports: 1870–1972, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 55, S. 213–219, 1974.
- Steele, H. M. und P. Hamill, Effects of temperature and humidity on the growth and

- optical properties of sulphuric acid-water droplets in the stratosphere, *J. Aerosol Sci.*, 12, (6), S. 517–528, 1981.
- Steinbrecht, W., Messungen des stratosphärischen Ozons in der Arktis und über dem Äquator mit dem DIAL-Verfahren, Diplomarbeit, Universität München, 1987.
- Steinbrecht, W., Persönliche Mitteilung, 1993.
- Stommel, H. und E. Stommel, 1816: Das Jahr ohne Sommer, in: *Vulkanismus: Naturgewalt, Klimafaktor und kosmische Formkraft*, herausgegeben von H. Pichler, S. 128–135, Spektrum der Wissenschaft Verlagsgesellschaft, Heidelberg, 1988.
- Tabazadeh, A. und R. P. Turco, Stratospheric chlorine injection by volcanic eruptions: HCl scavenging and implications for ozone, *Science*, 260, S. 1082–1086, 1993.
- Thomason, L. W., A diagnostic stratospheric aerosol size distribution inferred from SAGE II measurements, *J. Geophys. Res.*, 96, (D12), S. 22501–22508, 1991.
- Thomason, L. W. und M. T. Osborn, Lidar conversion parameters derived from SAGE II extinction measurements, *Geophys. Res. Letts.*, 19, (16), S. 1655–1658, 1992.
- Tolbert, M. A., M. J. Rossi, R. Malhotra und D. M. Golden, Reaction of chlorine nitrate with hydrogen chloride and water at Antarctic stratospheric temperatures, *Science*, 238, S. 1258, 1987.
- Tolbert, M. A., M. J. Rossi und D. M. Golden, Antarctic ozone depletion chemistry: Reaction of  $N_2O_5$  with  $H_2O$  and HCl on ice surfaces, *Science*, 240, S. 1018, 1988b.
- Tolbert, M. A. und A. M. Middlebrook, Heterogeneous interactions of chlorine nitrate, hydrogen chloride, and nitric acid surfaces at stratospheric temperatures, *Geophys. Res. Letts.*, 15, S. 847–850, 1988a.
- Tolbert, M. A. und A. M. Middlebrook, Fourier transform infrared studies of model polar stratospheric cloud surfaces: Growth and evaporation of ice and nitric acid/ice, *J. Geophys. Res.*, 95, (D13), S. 22423–22431, 1990.
- Toon, O. B., P. Hamill, R. P. Turco und J. Pinto, Condensation of  $HNO_3$  and HCl in the winter polar stratosphere, *Geophys. Res. Letts.*, 13, S. 1284–1286, 1986.
- Toon, O. B., R. P. Turco, J. Jordan, J. Goodman und G. Ferry, Physical processes in polar stratospheric ice clouds, *J. Geophys. Res.*, 94, (D9), S. 11359–11380, 1989.
- Toon, O. B., E. V. Browell, S. Kinne und J. Jordan, An analysis of lidar observations of polar stratospheric clouds, *Geophys. Res. Letts.*, 17, (4), S. 393–396, 1990.
- Turco, R. P., The photochemistry of the stratosphere, in: *The photochemistry of atmospheres; Earth, the other planets, and comets*, herausgegeben von J. S. Levine, Academic Press, Orlando, 1985.
- Turco, R. P., P. Hamill, O. B. Toon, R. C. Whitten und C. S. Kiang, A one-dimensional model describing aerosol formation and evolution in the stratosphere: I. Physical processes and mathematical analogs, *J. Atmos. Sci.*, 36, S. 699–736, 1979.
- Turco, R. P., O. B. Toon, R. C. Whitten, P. Hamill und R. G. Keesee, The 1980 eruptions of Mount St. Helens: Physical and chemical processes in the stratospheric clouds, *J. Geophys. Res.*, 88, (C9), S. 5299–5319, 1983.
- Twomey, S., *Atmospheric Aerosols*, Elsevier Scientific Publ., Amsterdam, 1977.
- USSA, U.S. Standard atmosphere, Washington, 1976.
- Vaisala, DigiCORA MW11 User's Guide, Vaisala, PL 26, SF-00421 Helsinki, Finland, May 1988.
- Werner, J., K. W. Rothe und H. Walther, Monitoring of the stratospheric ozone

- layer by laser radar, *Appl. Phys.*, B 32, S. 113–118, 1983.
- Wilson, J. C., M. R. Stolzenburg, W. E. Clark, M. Loewenstein, G. V. Ferry, K. R. Chan und K. K. Kelly, Stratospheric sulfate aerosol in and near the northern hemisphere polar vortex: The morphology of the sulfate layer, multimodal size distributions, and the effect of denitrification, *J. Geophys. Res.*, 97, (D8), S. 7997–8013, 1992.
- Wiscombe, W. J., Improved Mie scattering algorithms, *Appl. Opt.*, 19, (9), S. 1505–1509, 1980.
- Young, A. T., Revised depolarization correction for atmospheric extinction, *Appl. Opt.*, 19, (20), S. 3427–3428, 1980.
- Young, A. T., Rayleigh scattering, *Appl. Opt.*, 20, (4), S. 533–535, 1981.
- Young, A. T., Rayleigh scattering, *Physics Today*, S. 42–48, January 1982.
- Zolensky, M. E., D. S. McKay und L. A. Kaczor, A tenfold increase in the abundance of large solid particles in the stratosphere, as measured over the period 1976–1984, *J. Geophys. Res.*, 94, (D1), S. 1047–1056, 1989.