

Untersuchung der stratosphärischen Aerosolschicht über Nordnorwegen mit dem ALOMAR RMR Lidar

Dissertation zur Erlangung des akademischen Grades
doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.)
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der
Universität Rostock

vorgelegt von
Arvid Langenbach,
geboren am 26. September 1986 in Hagenow,
aus Rostock

1. Gutachter: Prof. Dr. Franz-Josef Lübken, Universität Rostock
2. Gutachter: Prof. Dr. Martin Riese, Forschungszentrum Jülich

Arbeit eingereicht am 21.01.2020
Arbeit verteidigt am: 19.06.2020

Abstract

The stratospheric aerosol layer is of fundamental importance for the radiative balance of the atmosphere and the ozone chemistry. The layer is located between the tropopause and about 30 km. Extensive datasets of its development and constitution in the northern high latitudes are rare. The Rayleigh Mie Raman (RMR) Lidar at the Arctic Lidar Observatory for Middle Atmosphere Research (ALOMAR) in northern Norway (69°N, 16°E) is a state-of-the-art remote sensing instrument, which routinely measures temperatures since 1997 and winds since 2009. The newly developed retrieval for stratospheric aerosols is based on backscattered signal at different wavelengths and the use of multiple scattering processes. For nighttime measurements backscatter ratios are calculated from elastic backscattered signals at 1064, 532 or 355 nm and inelastic backscattered signals at 387 or 608 nm. For daytime measurements an approximated backscatter ratio is derived from color ratios and application of a correction function of elastic scattering. The result is a first time dataset of stratospheric aerosol throughout the year. The resolution of the data is about five minutes in time and 150 meter in altitude, which is unmatched. In total, the dataset consists of 7490 hours.

While investigating long term changes the impact of three volcanic eruptions and one major wildfire on the lower aerosol layer has been identified. In volcanically quiescent periods, no long term change in the aerosol layer was found. A dedicated seasonal cycle of the aerosol layer with lower altitudes in winter and higher altitudes in summer, where aerosol reaches as high as 34 km, is found. For the first time multiple sharp background aerosol layers of less than 1 km vertical thickness, that partly move in parallel to each other over several days, have been observed.

Kurzfassung

Die stratosphärische Aerosolschicht hat eine fundamentale Bedeutung für die Strahlungsbilanz der Atmosphäre und die Ozonchemie. Sie reicht von der Tropopause bis in eine Höhe von über 30 km. Umfangreiche Daten über ihre Ausprägung und Beschaffenheit in den nördlichen polaren Breiten existieren kaum. Das Rayleigh Mie Raman (RMR) Lidar im Arctic Lidar Observatory for Middle Atmosphere Research (ALOMAR) in Nordnorwegen (69°N, 16°E) ist ein hochmodernes Fernerkundungsgerät, dass seit 1997 routinemäßig Temperaturen und seit 2009 auch Winde misst. Die Auswertemethodik für stratosphärische Aerosole beruht auf der Messung der Rückstreuung bei unterschiedlichen Wellenlängen und der Nutzung verschiedener Streuprozesse. Für Nachtmessungen werden Rückstreuverhältnisse der Aerosole aus dem elastisch rückgestreuten Signal bei 1064, 532 oder 355 nm und dem inelastisch rückgestreuten Signal bei 387 oder 608 nm bestimmt. Für Tagmessungen wird ein Farbverhältnis aus elastisch rückgestreuten Signalen mit Hilfe einer Korrekturfunktion zu einem Profil des Rückstreuverhältnisses approximiert. So erhält man erstmals einen Datensatz in hohen Breiten, der das komplette Jahr abdeckt. Die Daten liegen in einer bisher unerreichten Auflösung von fünf Minuten und 150 Metern vor. Insgesamt umfasst der Datensatz 7490 Stunden.

Bei der Untersuchung der langfristigen Variabilität konnte der Einfluss mehrerer Vulkanausbrüche sowie eines großen Waldbrandes auf die untere Aerosolschicht festgestellt werden. In vulkanisch ruhigen Perioden ist keine langfristige Veränderung der Aerosolschicht zu erkennen. Es ergibt sich ein dezidierter Jahresgang wobei sich die Aerosolschicht im Winter in geringeren Höhen als im Sommer befindet. In Sommer konnte bis in 34 km Höhe Aerosol nachgewiesen werden. Es wurde erstmals ein hochdynamischer Zustand der Aerosolschicht mit mehreren, teils weniger als einem Kilometer dünnen Schichten beschrieben.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Die stratosphärische Aerosolschicht	5
2.1	Quellen stratosphärischen Aerosols	5
2.1.1	Vulkanausbrüche	7
2.1.2	Carbonylsulfid (OCS)	8
2.1.3	Schwefeldioxid (SO ₂)	9
2.2	Transport	9
2.3	Schwefelchemie	10
2.4	Mikrophysikalische Prozesse der Aerosolpartikel	12
2.4.1	Bildung	12
2.4.2	Wachstum	13
2.4.3	Abbau	13
2.5	Polare Stratosphärenwolken	14
3	Aerosolmessung mit Lidar	17
3.1	Streumechanismen in der Atmosphäre	18
3.1.1	Molekülstreuung	19
3.1.2	Partikelstreuung	21
3.2	Lidar-Theorie	22
3.2.1	Lidargleichung	22
3.2.2	Transmission und Extinktion	24
3.2.3	Lidarverhältnis	25
3.2.4	Klett-Algorithmus	26
3.2.5	Raman-Lidar	28
3.3	Bestimmung von Aerosolparametern	29
3.3.1	Aerosol Rückstreuverhältnis	29
3.3.2	Farbverhältnis	32
3.3.3	Aerosol-Rückstreu- und Extinktionskoeffizient	32
3.4	Das ALOMAR RMR Lidar	33
3.4.1	Aufbau	33
3.4.2	Optische Bank	35
3.5	Andere Methoden zur stratosphärischen Aerosolmessung	36

4	Bestimmung der stratosphärischen Aerosolschicht über ALOMAR	39
4.1	Datenprozessierung	39
4.1.1	Korrekturen und Umrechnungen	39
4.1.2	Kombination von Kanälen	41
4.2	Validierung der Auswertemethodik	43
4.2.1	Rayleigh-Extinktion	44
4.2.2	Ozon-Extinktion	45
4.2.3	Stratosphärisches Aerosolprofil und Vorwärtsstreuung	47
4.3	Messung am 15. Januar 2017 als Beispiel	49
5	Berechnung des Rückstreuverhältnisses unter Tageslichtbedingungen	53
5.1	Messungen mit Tag- und Nachtanteilen	53
5.2	Ausschließliche Tagmessungen	55
6	Der ALOMAR Datensatz für stratosphärisches Aerosol	61
6.1	Mess- und Datenstatistik von 2000 bis 2018	61
6.2	Jährliche und tägliche Mess- und Datenstatistik	62
7	Beobachtungen der Aerosolschicht über ALOMAR von 2000 bis 2018	67
7.1	Langzeitvariabilität	67
7.1.1	Vulkanisch gestörte Perioden	69
7.1.2	Vergleich mit dem RMR-Lidar in Kühlungsborn	74
7.2	Mittlerer Jahresgang	76
7.3	Mittlerer Tagesgang	79
7.4	Polare Stratosphärenwolken	83
7.4.1	Langfristiges Auftreten von PSC über ALOMAR	84
7.4.2	Beobachtung von PSC Typ II im Januar/Februar 2018	87
7.5	Aerosol in größeren Höhen	88
7.6	Die stratosphärische Aerosolschicht im Februar 2018	89
8	Zusammenfassung und Ausblick	93
A	Anhang	97
A.1	Einfluss des Ozon-Mischungsverhältnisses auf das Rückstreuverhältnis	97
A.2	Untersuchung zum Jahresgang beim Rückstreuverhältnis R_{387}^{355}	98
A.3	Beobachtung der Aerosolschicht über ALOMAR - Ergänzungen	100
A.3.1	Mittlerer Jahresgang	100
A.3.2	Mittlerer Tagesgang	104
A.3.3	Polare Stratosphärenwolken	105
	Abkürzungsverzeichnis	109
	Abbildungsverzeichnis	111

Tabellenverzeichnis	115
Literaturverzeichnis	117

1 Einleitung

Die Atmosphäre der Erde besteht aus einer Mischung verschiedener Gase, Flüssigkeiten und Feststoffe. Die am häufigsten vorkommenden Gase sind Stickstoff (N_2) mit einem Anteil von 78 Prozent, Sauerstoff (O_2) mit einem Anteil von 21 Prozent und das Edelgas Argon (Ar) mit einem Anteil von 1 Prozent. Daneben existieren weitere Gase in kleineren Mengen in der Atmosphäre, die sogenannten Spurengase. Dazu zählen beispielsweise Kohlenstoffdioxid (CO_2), Methan (CH_4), Ozon (O_3) oder Distickstoffmonoxid (N_2O). Die festen Stoffe in der Atmosphäre werden Aerosolpartikel genannt. Aerosol ist ein Kunstwort und wird aus den lateinischen Begriffen für Luft, *aer* und Lösung, *solutio* gebildet. Es bezeichnet allgemein ein Gemisch aus festen oder flüssigen Partikeln und einem Gas. Aerosolpartikel in der Atmosphäre sind zum Beispiel Rußpartikel, Staub, Meersalz und auch organische Teilchen wie Pollen oder Bakterien.

Die Erdatmosphäre besteht aus mehreren Schichten. Oberhalb der untersten Schicht, der Troposphäre, in der sich der Großteil des Wettergeschehens abspielt, schließt sich ab ungefähr acht bis 18 Kilometern die Stratosphäre an. Hier nimmt die Temperatur mit der Höhe zu, was auf die Absorption von ultravioletter Strahlung durch Ozon (O_3) zurückzuführen ist. Die Erwärmung ist in der Ozonschicht (in 15 bis 30 Kilometer Höhe) am größten, die Temperatur steigt dort von etwa -60 °C auf 0 °C an. Durch die geringe Temperatur an der Tropopause, der Grenze zwischen Troposphäre und Stratosphäre, kondensiert Wasser dort fast vollständig aus, was zur Folge hat, dass die Luft in der Stratosphäre sehr trocken ist. In einer Höhe von ungefähr 50 Kilometern schließt sich die Mesosphäre an, in der der Temperaturgradient wieder negativ ist. In der Stratosphäre existiert eine globale Aerosolschicht in circa 15 bis 30 Kilometer Höhe. Diese Aerosolschicht besteht aus Lösungströpfchen mit 75 prozentiger Schwefelsäure (H_2SO_4). Das Maximum der Anzahlgrößenverteilung liegt bei 0.1 bis 0.3 μm . Die Quelle dieser Tröpfchen sind hauptsächlich Carbonylsulfid (OCS) und Kohlenstoffdisulfid (CS_2), welche zu Schwefeldioxid (SO_2) reagieren. In mehreren Schritten wird das SO_2 in der Stratosphäre in Schwefelsäure umgewandelt.

Eine Hauptquelle für Schwefel in der Stratosphäre sind starke Vulkanausbrüche, die große Mengen Schwefel direkt in die Stratosphäre injizieren können. Beispielsweise der Ausbruch des Tambora auf der indonesischen Insel Sumbawa im Jahr 1815, der eine globale Abkühlung von 0.5 °C im darauf folgenden Jahr zur Folge hatte, wodurch das Jahr 1816 als „Jahr ohne Sommer“ in die Geschichte einging. Durch die extreme Aerosolbeladung im Anschluss an die Eruption des Krakatau im Jahr 1883 färbte sich der Himmel weltweit auffällig rot, was Edward Munch inspirierte den Himmel in seinem berühmten Gemälde „Der Schrei“ rot zu malen. Vulkanausbrüche dominieren den langfristigen zeitlichen Verlauf der Aerosolbeladung und maskieren dadurch Veränderungen, die nicht durch Vulkane zu erklären sind.

Erste direkte Messungen der stratosphärischen Aerosolschicht führte Christian Junge mit ballongetragenen Instrumenten Anfang der 1960er Jahre durch. Er entdeckte eine stabile Schicht, die konstant in Raum und Zeit ist und hauptsächlich aus Schwefelpartikeln besteht. Daher wird die stratosphärische Aerosolschicht auch oft als „Junge-Schicht“ bezeichnet.

Das Aerosol beeinflusst den Strahlungshaushalt in der Stratosphäre durch die Extinktion kurzwelliger solarer Strahlung und langwelliger terrestrischer Strahlung. Dies führt effektiv zu einer Abkühlung der Troposphäre und einer Erwärmung der Stratosphäre. Da auch die Verweildauer von Luftmassen in der Stratosphäre sehr hoch ist, wird die stratosphärische Aerosolschicht oft in Zusammenhang mit Geo-Engineering genannt. Die Idee dabei ist, die Aerosolschicht durch zusätzlichen Schwefel aktiv zu manipulieren, um der globalen Erwärmung entgegen zu wirken. Die Auswirkungen solchen Handels sind allerdings noch wenig erforscht und die Folgen auf die Strahlungsbilanz der Erde unabsehbar.

Die Aerosolpartikel haben ebenso Einfluss die Photolyseraten chemischer Reaktionen in der Stratosphäre. Auf der Oberfläche und innerhalb der Partikel laufen heterogene chemische Reaktionen ab, die die chemische Komposition der Stratosphäre wesentlich beeinflussen. Die Aerosolpartikel dienen auch als Nukleationskeime für polare Stratosphärenwolken und tragen somit zur Bildung des Ozonlochs bei.



Abbildung 1.0.1: Das ALOMAR Observatorium auf dem Berg Ramnan (380 m ü. NN) im September 2006.

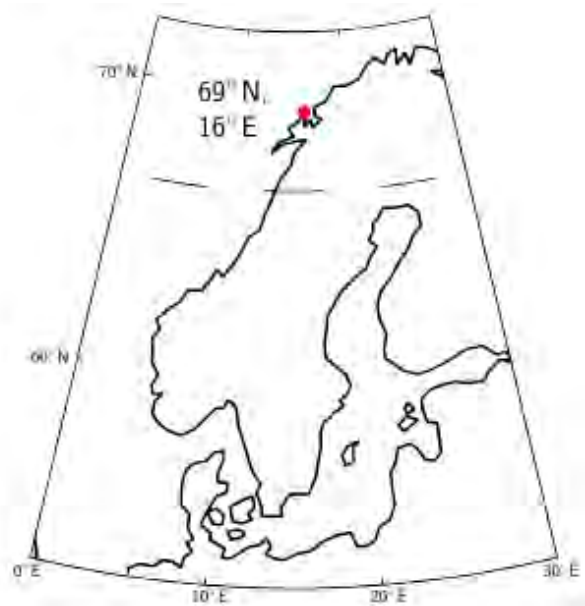


Abbildung 1.0.2: Karte von Skandinavien mit der Position des ALOMAR Observatoriums als rotem Punkt auf der Insel Andøya in Nordnorwegen.

In dieser Arbeit wird die stratosphärische Aerosolschicht mit Hilfe eines Lidars untersucht. Das Lidar sendet gepulstes Licht verschiedener Wellenlängen in die Atmosphäre und empfängt das durch unterschiedliche Streuprozesse rückgestreute Licht mittels eines Teleskops. Das verwendete Rayleigh-Mie-Raman Lidar befindet sich im Arctic Lidar Observatory for Middle Atmosphere Research (ALOMAR) Observatorium in Nordnorwegen und ist seit 1994 in Betrieb.

Zielsetzung dieser Arbeit

Ziel ist es die stratosphärische Aerosolschicht zeitlich auf verschiedenen Skalen zu untersuchen. Dazu soll zunächst eine Methodik entwickelt und validiert werden, um Rückstreupprofile der Aerosolschicht zu bestimmen. Im ersten Schritt ist es das Ziel, die Methodik für Messungen bei Nacht zu implementieren. Danach soll dies auf Messungen bei Tageslicht erweitert werden, was von entscheidender Bedeutung ist um die stratosphärische Aerosolschicht über ALOMAR ganzjährig zu beobachten. Im Anschluss sollen Rückstreukoeffizienten und Extinktionskoeffizienten der Aerosole bestimmt werden. Auf dieser Basis ist es möglich Eigenschaften der Aerosolpartikel wie beispielsweise den Radius zu berechnen. Diese Berechnungen der Teilchengrößen sind nicht Teil dieser Arbeit, welche zum Ziel hat, die benötigten Grundlagen zu liefern und die generelle Fähigkeit zu demonstrieren, mit dem ALOMAR RMR Lidars die stratosphärische Aerosolschicht untersuchen zu können. Mit den gewonnenen Daten können sowohl kurzfristige Effekte von wenigen Stunden sowie langfristige Veränderungen über Jahrzehnte festgestellt werden. Außerdem soll der Einfluss vulkanischer Eruptionen auf die Rückstreuung, ebenso wie polare Stratosphärenwolken untersucht werden.

2 Die stratosphärische Aerosolschicht

Die Erdatmosphäre ist die schützende Gashölle unseres Planeten. Sie bietet Sauerstoff zum Atmen, filtert kurzwellige Strahlung aus dem Weltraum und sorgt durch den natürlichen Treibhauseffekt für Temperaturen, bei denen sich das Leben auf der Erde entwickeln konnte. Vertikal ist die Atmosphäre in verschiedene Schichten, auch als Sphären bezeichnet, eingeteilt, die durch sogenannte Pausen voneinander getrennt werden. Diese Pausen befinden sich in Höhen mit einer Umkehr des Vorzeichens des Temperaturgradienten. Die Stratosphäre stellt die zweite Etage in der Gliederung der Erdatmosphäre dar. Sie ist, im Gegensatz zur darunter liegenden Troposphäre und der darüber liegenden Mesosphäre, durch einen positiven Temperaturgradienten gekennzeichnet. In der unteren Stratosphäre, zwischen der Tropopause und ungefähr 30 km befindet sich eine Schicht von Aerosolpartikeln. Ein Aerosol ist streng genommen definiert als Lösung von feinen Partikeln und einem Gas. Allgemein gebräuchlich ist mit der Bezeichnung „Aerosol“ allerdings lediglich die Partikelkomponente gemeint (Seinfeld u. Pandis, 2006). Die ersten in situ Messungen mit Ballonen wurden von der Gruppe um Christian Junge durchgeführt (Junge u. Manson, 1961), die eine definierte Schicht zwischen 15 und 25 km Höhe finden konnte, mit einem Maximum der Partikelkonzentration bei 20 km (Junge et al., 1961a,b). Die Fernerkundung der Aerosolschicht begann ungefähr ein Jahrzehnt später mittels Lidar (Bartusek u. Gambling, 1971). Globale Beobachtungen durch Satelliten starteten gegen Ende der 1970er Jahre¹.

In diesem Kapitel werden die physikalischen und chemischen Prozesse beschrieben, die für die stratosphärische Aerosolschicht eine Rolle spielen. Zunächst werden die einzelnen Quellen für stratosphärisches Aerosol beleuchtet. Anschließend werden der Transport in der Atmosphäre sowie die zugrunde liegende Chemie beschrieben. Die Mikrophysik der Aerosolpartikel wird ebenso erläutert wie die Entwicklung der stratosphärischen Aerosolschicht in den letzten Jahrzehnten. Als Einstieg und Überblick über diese Themen dient hier Abbildung 2.0.1. Viele der in den folgenden Abschnitten erläuterten Prozesse sind darin schematisch dargestellt.

2.1 Quellen stratosphärischen Aerosols

Stratosphärisches Aerosol entstammt dem Eintrag von Aerosol und von Vorläufergasen in die Stratosphäre. Zu den wichtigsten dieser Gase zählen Carbonylsulfid (OCS) und Schwefeldioxid (SO₂) (Crutzen, 1976). Auch troposphärische Schwefelpartikel tragen zum Erhalt der Aerosolschicht bei (Brock et al., 1995) und gelangen wie OCS und SO₂ hauptsächlich über die „Tropical Transition Layer“ (TTL) in die Stratosphäre (Fueglistaler et al., 2009). Während die Luft in der TTL aufsteigt, wird ein großer Teil der enthaltenen Aerosole und der löslichen Schwefelverbindungen von Eiskristallen aufgenommen und damit aus der aufsteigenden Luft entfernt. Im Gegensatz dazu erreichen unlösliche Gase wie OCS die Stratosphäre beinahe verlustfrei. Die

¹Ein Überblick findet sich in Thomason u. Peter (2006) und Kremser et al. (2016)

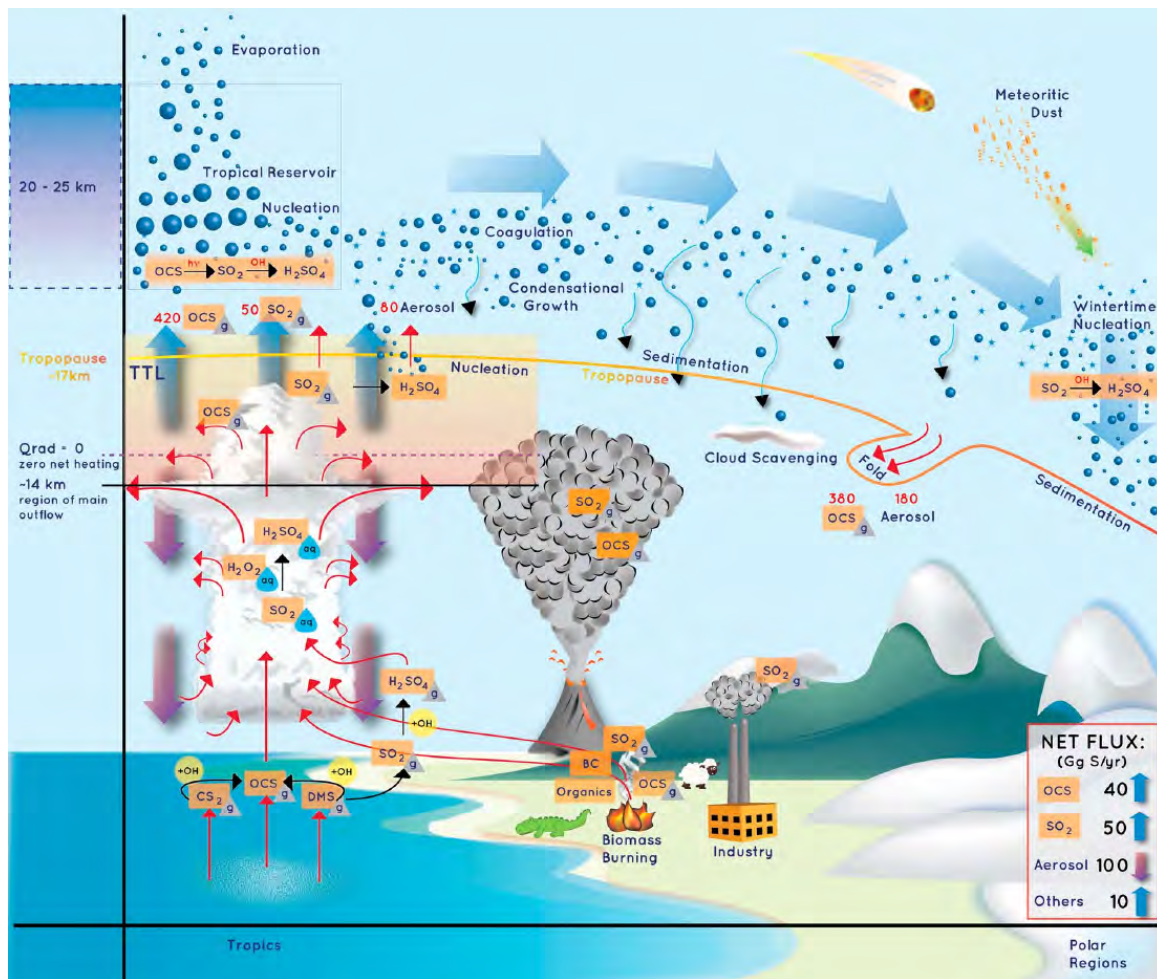


Abbildung 2.0.1: Schema der für den Lebenszyklus und die Verteilung stratosphärischer Aerosole relevanter Prozesse. Große blaue Pfeile zeigen großskalige Zirkulation, kleine rote Pfeile stellen Transportprozesse dar, während schwarze Pfeile die Umwandlung zwischen verschiedenen chemischen Verbindungen anzeigen. Der Aggregatzustand der Verbindungen wird durch ein graues Dreieck (gasförmig) oder einen blauen Tropfen (wässrig) repräsentiert und ist jeweils unten rechts an der Verbindung angefügt. Dünne blaue Pfeile zeigen die Sedimentation von Aerosol aus der Stratosphäre in die Troposphäre. Basierend auf Simulationen von Sheng et al. (2015) stellen rote Zahlen den Fluss von Carbonylsulfid (OCS) und Schwefeldioxid (SO₂) sowie den Fluss von Aerosol in Gg S/yr dar. Im grauen Kasten rechts unten im Bild ist der Nettofluss von schwefelhaltigen Verbindungen über die Tropopause abgebildet (Sheng et al., 2015). Andere chemische Verbindungen in der Abbildung sind Kohlenstoffdisulfid (CS₂), Schwefelsäure (H₂SO₄) und Ruß (BC). Die Grafik ist aus Kremser et al. (2016) übernommen.

transportierte Menge an Schwefel hängt somit von der Verweildauer in der TTL, dem Detrainment Level², der Dehydrierung und der Effizienz der Auswaschung ab (Aschmann et al., 2011, Dinh u. Fueglistaler, 2014, Sinnhuber u. Folkins, 2006).

Die Gesamtmasse an schwefelhaltigen Verbindungen, die während vulkanisch ruhigen Perioden die Tropopause überqueren und anschließend in Aerosol umgewandelt werden, wurde in SPARC (2006) mit 64.2 Gg S/a

²Vermischung der aufsteigenden Luft mit der Umgebung

angegeben, was 820 Tonnen pro Tag entspricht³. In einer aktuelleren Modellstudie unter Verwendung des „coupled aerosol Solar Climate Ozone Links chemistry-climate model“ (SOCOL-AER) Modells (Sheng et al., 2015) wird der Nettofluss von Schwefel von der Troposphäre in die Stratosphäre mit 103 Gg S/a angegeben, was 1152 Tonnen pro Tag entspricht. Dies ist die aktuell beste Abschätzung des Schwefelflusses aus der Troposphäre in die Stratosphäre, welche jedoch lediglich auf einer einzelnen Modellstudie basiert.

2.1.1 Vulkanausbrüche

Große vulkanische Eruptionen können SO₂ und Asche direkt in die Stratosphäre bringen. Dies führt zu erhöhten Aerosolkonzentrationen, die über Jahre andauern können. Wegen dieses starken Einflusses ist es bei der Untersuchung der stratosphärischen Aerosolschicht üblich, zwischen vulkanisch ruhigen Perioden und Perioden mit Vulkaneinfluss zu unterscheiden. Der Einfluss von Vulkanausbrüchen auf die stratosphärische Aerosolschicht und ihr Beitrag zu stratosphärischem Schwefel hängt von der Stärke des Ausbruchs und der geografischen Position des Vulkans ab. Zur Einordnung der Ausbruchsstärke dient heute der „volcanic explosivity index“ VEI, der ein Maß für die relative Explosivität des Ausbruchs darstellt (Newhall u. Self, 1982). Dieser basiert auf dem Volumen an Tephra⁴, dass bei der Eruption frei wird. Dieses Volumen korreliert mit der Stärke der Eruption. Die Klassifikationen eines Vulkanausbruchs mittels VEI lauten (Newhall u. Self, 1982):

- VEI 0: nicht explosiv, Vorkommen: kontinuierlich
- VEI 1: klein, Vorkommen: täglich
- VEI 2: mäßig, Vorkommen: alle zwei Wochen
- VEI 3: mäßig bis groß, Vorkommen: alle 3 Monate
- VEI 4: groß, Vorkommen: alle 18 Monate
- VEI 5 - 8: sehr groß, Vorkommen: alle 12 Jahre (VEI 5) bis 50000 Jahre (VEI 8)

Vulkane emittieren bei einem Ausbruch eine sehr variable Mischung aus Asche, SO₂, Wasserdampf, Kohlendioxid (CO₂), Salzsäure (HCl) und Schwefelwasserstoff (H₂S) und anderen vulkanischen Gasen. Einige Verbindungen werden schon in der Troposphäre effektiv ausgewaschen, beispielsweise HCl. Vulkanische Asche weist eine sehr breite Größenverteilung auf, die vom Submikrometerbereich bis in den Millimeterbereich reicht (Rose u. Durant, 2009). Diese Asche sedimentiert schnell aus, verbleibt daher nur relativ kurz in der Stratosphäre und hat somit keinen signifikanten Einfluss auf das Klima (Bertrand et al., 2003).

Der zeitliche Verlauf der Aerosol- und Schwefelbeladung in den letzten Jahrzehnten wird von großen Vulkanausbrüchen bestimmt. Die beiden wichtigsten Ausbrüche in diesem Zeitraum waren der des El Chichón 1982 (VEI 5) und der des Pinatubo 1991 (VEI 6). Beim Ausbruch des Pinatubo wurden 18 bis 19 Tg SO₂ in die Stratosphäre injiziert (Guo et al., 2004). Dies führte zu einer Aerosolbeladung von 19 bis 30 Tg (Baran u. Foot, 1994, Lambert et al., 1993, McCormick u. Veiga, 1992). Diese Aerosolmenge entspricht 3.7

³Unter der Annahme eines 75% Massenanteils von H₂SO₄ am Aerosol gilt: Eine Tonne pro Tag entspricht 0.0894 Gg S/a (Kremser et al., 2016).

⁴Unverfestigtes, fragmentiertes Gestein

bis 6.7 Tg Schwefel (Dhomse et al., 2014) und damit 30 bis 60 Mal der Masse bei Hintergrundbedingungen von 115 bis 130 Gg Schwefel (Sheng et al., 2015). Diese großen Eruptionen kommen relativ selten vor. Seit 1991 gab es kein vergleichbares Ereignis. Allerdings lassen sich sowohl historische als auch aktuelle Entwicklungen des stratosphärischen Aerosols an Vulkanausbrüche knüpfen, da diese die Hauptquelle für Schwefeldioxid in der Stratosphäre sind (Deshler et al., 2003, Vernier et al., 2011a). Nach der Eruption des Pinatubo bis zum Jahr 2002 wurden keine größeren Ausbrüche registriert. Im Jahr 1998 war die Aerosolbeladung wieder auf dem gleichen Niveau wie vor dem Ausbruch des Pinatubo (Robock, 2000). Im Anschluss, von 1999 bis 2002, wurden die niedrigsten Werte der Aerosolbeladung seit Beginn der Messungen festgestellt (Deshler et al., 2006). Danach fanden in den Tropen mehrere mittelschwere Vulkanausbrüche (VEI bis 4) statt. Diese werden für den moderaten Anstieg der Aerosolbeladung bis 2012 verantwortlich gemacht (Vernier et al., 2011a). Obwohl diese Ausbrüche weit weniger stark aus El Chichón und Pinatubo waren und ihr Einfluss auf die stratosphärische Aerosolbeladung deutlich kleiner ist, hatten auch die Ausbrüche in diesem Zeitraum einen messbaren Einfluss auf die stratosphärische Aerosolschicht (Andersson et al., 2015, Fyfe et al., 2013, Santer et al., 2014, 2015).

2.1.2 Carbonylsulfid (OCS)

Durch den Transport von OCS in die Stratosphäre bleibt die stratosphärische Aerosolschicht in Zeiten ohne vulkanische Einflüsse erhalten, da OCS die am längsten in der Atmosphäre verbleibende, schwefelhaltige Verbindung ist (Brühl et al., 2012, Crutzen, 1976, Sheng et al., 2015). Die Menge an transportiertem OCS ist dabei vom gesamten Massenfluss über die Tropopause abhängig und basiert auf einem konstanten troposphärischen OCS-Mischungsverhältnis. Die wichtigsten Quellen für OCS in der Troposphäre sind die Ozeane, indem sie einerseits OCS direkt emittieren und andererseits kurzlebige schwefelhaltige Verbindungen wie Kohlenstoffdisulfid (CS_2) und Dimethylsulfid (DMS) emittieren, die anschließend zu OCS reagieren (siehe auch Kapitel 2.3). Weitere Quellen für OCS sind die Verbrennung von Biomasse, das Ausgasen von Vulkanen, anthropogene Emissionen⁵ und Feuchtgebiete⁶ (Kettle et al., 2002). Die dominierende Senke für OCS in der Troposphäre ist das Pflanzenwachstum. Dies und der Verlauf der Meeresströmungen begründet auch den saisonalen Verlauf der OCS-Konzentration. Während der Wachstumsphase nehmen Pflanzen OCS auf und sorgen daher für ein Konzentrationsminimum auf der Nordhemisphäre im Spätsommer und auf der Südhemisphäre im Winter (Kettle et al., 2002).

In der Stratosphäre werden die höchsten OCS-Konzentrationen direkt über der tropischen Tropopause gemessen und nehmen von dort stark mit der Höhe und der geografischen Breite ab (Barkley et al., 2008). Während in vorindustriellen Zeiten OCS-Konzentrationen von 330 bis 370 ppt⁷ in der Troposphäre vorherrschend waren (SPARC, 2006), werden heute 500 ppt gemessen (Aydin et al., 2014).

OCS stellt in vulkanisch ruhigen Perioden die bedeutendste Quelle für stratosphärischen Schwefel dar. Modellstudien ergeben einen Anteil zwischen 56 % (Sheng et al., 2015) und 70 % (Brühl et al., 2012) von stratosphärischen Aerosol aus, das mit Schwefel aus OCS gebildet wurde.

⁵Auch Quelle für CS_2 und DMS

⁶Auch Quelle für CS_2 und DMS

⁷parts per trillion

2.1.3 Schwefeldioxid (SO₂)

Die SO₂-Menge in der Stratosphäre ist stark von vulkanischen Einflüssen geprägt. SO₂-Mischungsverhältnisse steigen in Folge eines Ausbruchs stark an (Höpfner et al., 2013). Nicht vulkanische Quellen hingegen sind weniger gut verstanden und mit großen Unsicherheiten beladen (Brühl et al., 2012, Solomon et al., 2011). In Perioden ohne vulkanische Beeinflussung liegen die gemessenen Mischungsverhältnisse zwischen 40 und 100 ppt. Die höchsten Werte werden dabei in der untersten Stratosphäre der nördlichen mittleren Breiten festgestellt, wobei das Mischungsverhältnis mit der Höhe abnimmt und bei circa 25 km ein Minimum erreicht (Höpfner et al., 2013). Bis in 35 km steigt das Mischungsverhältnis von SO₂ auf ein Maximum mit circa 50 ppt an. Dies ist auf die photochemische Produktion von SO₂ aus OCS zurück zu führen (Brühl et al., 2012). Oberhalb von 35 km beginnt die Dissoziation von H₂SO₄ zu SO₂ durch die Absorption von sichtbarem Licht (Lane u. Kjaergaard, 2008), was zu einem weiteren Anstieg des SO₂-Mischungsverhältnisses führt.

In Höhen zwischen 8 und 15 km, also dem Übergangsbereich von Troposphäre zu Stratosphäre⁸, sind die SO₂-Mischungsverhältnisse sehr variabel. Hier werden Werte von 5-20 ppt in den südlichen mittleren Breiten, 8-120 ppt in den Tropen und 5-800 ppt in den nördlichen mittleren Breiten gemessen (Höpfner et al., 2015). Diese starken Schwankungen werden mit dem Eintrag verschmutzter troposphärischer Luft in die UTLS-Region in Verbindung gebracht.

2.2 Transport

Schwefel, der nicht durch Vulkane direkt in die Stratosphäre emittiert wird, kann über drei Wege dorthin gelangen (siehe Abbildung 2.0.1):

- Direkte Injektion von troposphärischer Luft durch starke Konvektion in den Tropen, weswegen die Luft die Tropopause überqueren kann.
- Transport entlang der Isentropen⁹ von der TTL in die unterste, außertropische Stratosphäre.
- Transport, der die Isentropen kreuzt von der TTL in die tropische Stratosphäre durch langsamen, strahlungsgetriebenen Aufstieg

Die TTL spielt also für den Schwefeltransport in die Stratosphäre eine besondere Rolle. Diese Luftschicht befindet sich zwischen den oberen Grenzen hoch reichender konvektiver Wolken und der Tropopause. In der TTL findet kein konvektiver Aufstieg mehr statt und eine Luftmasse kann nur weiter aufsteigen, indem sie sich durch Strahlungsabsorption erwärmt. Dieser Transport läuft sehr langsam ab. Es kann Wochen bis einige Monate dauern, bis die Luft auf diese Weise die Tropopause überquert (Fueglistaler et al., 2009). Während dieser langen Transportzeit auf dem Weg zur Tropopause nimmt die Temperatur ab. Damit sinkt auch der Wasserdampf-sättigungsdampfdruck. Dies hat eine Dehydration der Luftmasse zur Folge und damit werden wasserlösliche Verbindungen ausgewaschen, während unlösliche Stoffe die Stratosphäre ohne Verluste erreichen können (Kremser et al., 2016).

⁸auch mit UTLS-„upper troposphere lower stratosphere“ bezeichnet

⁹Flächen gleicher potentieller Temperatur

Gelangt troposphärische Luft im Gegensatz dazu durch starke Konvektion direkt in die Stratosphäre, verläuft der Schwefeltransport sehr viel schneller. Auf diese Weise erreichen auch lösliche Verbindungen die Stratosphäre.

Einen besonderen Transportweg stellt die Antizyklone des asiatischen Monsuns dar. Diese gilt als mögliche Route für verschmutzte Luft aus dem asiatischen Raum, um in die Stratosphäre zu gelangen (Randel et al., 2010). Die Folge ist, dass die Zusammensetzung der Luft in der unteren Stratosphäre durch Emissionen aus Asien beeinflusst wird (Vogel et al., 2015). Dies zeigt sich auch in einer kürzlich beschriebenen Aerosolschicht in der untersten Stratosphäre über Asien (ATAL¹⁰) (Vernier et al., 2011b, Yu et al., 2015).

Sind die schwefelhaltigen Verbindungen und Aerosole in der Stratosphäre angelangt, werden sie durch starke zonale Winde schnell in zonaler Richtung gleichmäßig verteilt. Der vertikale und meridionale Transport in der Stratosphäre wird von der Brewer-Dobson-Zirkulation (BDC¹¹) bestimmt (Butchart, 2014, Holton et al., 1995). Die BDC entsteht durch das Brechen von aufwärts gerichteten Wellen in der Stratosphäre, welches zu einer diabatischen, residuellen Zirkulation führt (Holton, 2004). Geprägt ist diese Zirkulation von einem Aufsteigen über den Tropen, einer polwärts gerichteten Bewegung außerhalb der Tropen und einem Absinken der Luft in hohen Breiten, besonders über dem Polarwirbel (McIntyre u. Palmer, 1983). Dies spiegelt sich in einer sehr geringen Aerosolbeladung der Luft innerhalb des Polarwirbels wieder, im Vergleich zur umgebenden Luft (Thomason u. Poole, 1993). Außerdem ist der Transport der Aerosole und der Vorläufergase in die Außertropen von der quasi-biennalen Oszillation (QBO¹²) abhängig (Baldwin et al., 2001). Es zeigt sich, dass der polwärts gerichtete Transport in der Westwindphase der Oszillation stärker ausgeprägt ist (Jäger, 2005).

Durch den langsamen, diabatischen Aufstieg der Luft in niedrigen Breiten und Abstieg in hohen Breiten, kann Luft, die die Stratosphäre in den Tropen erreicht hat dort für Jahre im aufsteigenden Ast der BDC verbleiben. Luft hingegen, die entlang der Isentropen von der tropischen Troposphäre in die außertropische Stratosphäre transportiert wurde, wird innerhalb einiger Monate wieder zurück in die Troposphäre absinken (Holton et al., 1995). Dies trifft auch auf Schwefel zu, der direkt durch Vulkanausbrüche in die Stratosphäre injiziert wurde. Bei einem Ausbruch in hohen Breiten, bleibt das Aerosol in der Hemisphäre des Ausbruchs und kehrt innerhalb von Monaten wieder in die Troposphäre zurück. Wird das Aerosol aber in die tropische Stratosphäre emittiert, kann es jahrelang dort verbleiben und sich in beiden Hemisphären ausbreiten (Robock, 2000). Aktuelle Beispiele hierfür sind die Ausbrüche des El Chichón 1983 und des Pinatubo 1991.

2.3 Schwefelchemie

In der Erdatmosphäre verlaufen chemische Reaktionen in der Regel von niedrigen zu höheren Oxidationszahlen¹³. Die Oxidationszahl beschreibt allgemein die Ladung eines Atoms innerhalb einer chemischen Verbindung die vorliegen würde, wenn die Verbindung aus einatomigen Ionen bestehen würde (Jakubke et al., 2001). So beträgt beispielsweise die Oxidationszahl des Schwefelatoms in Schwefeldioxid +4 und der beiden Sauerstoffatome -2. Schwefel kann in einer breiten Vielfalt in organischen und anorganischen

¹⁰ engl. „Asian Tropopause Aerosol Layer“

¹¹ engl. „Brewer-Dobson Circulation“

¹² engl. „quasi biennial Oscillation“

¹³ Ausnahmen stellen Photodissoziationen von oxidierten Schwefelverbindungen dar.

Verbindungen vorkommen und dabei Oxidationszahlen von -2 bis +6 aufweisen (Seinfeld u. Pandis, 2006). Schwefelverbindungen und Reaktionen, die zur Bildung des gasförmigen Vorläufers der stratosphärischen Aerosole, der Schwefelsäure (H_2SO_4), führen, sind in Abbildung 2.3.1 dargestellt. Im rechten Teil sind Reaktionen mit Schwefel im wässrigen Zustand dargestellt. SO_2 (S^{+4}) kann in Wolken-, Nebel- oder Regentropfen gelöst werden und mittels verschiedener Reaktionspartner zu S^{+6} oxidiert werden. Im zentralen Teil sind die Reaktionen gezeigt, bei denen der Schwefel in der Gasphase vorliegt. Hier ist zu erkennen, wie die Bildung der Schwefelsäure abläuft. Da die Oxidationszahl bei chemischen Umwandlungen in der Atmosphäre nur größer wird, wird jede Schwefelverbindung, die an der Erdoberfläche in die Atmosphäre entlassen wird und nicht sofort wieder an der Erdoberfläche in Senken abgebaut wird, letztendlich zu H_2SO_4 reagieren. Ist Wasserdampf vorhanden, wird diese Schwefelsäure dann zu Aerosol kondensieren (siehe Kapitel 2.4). In der Troposphäre wird dieses Aerosol jedoch effektiv ausgewaschen (Kremser et al., 2016).

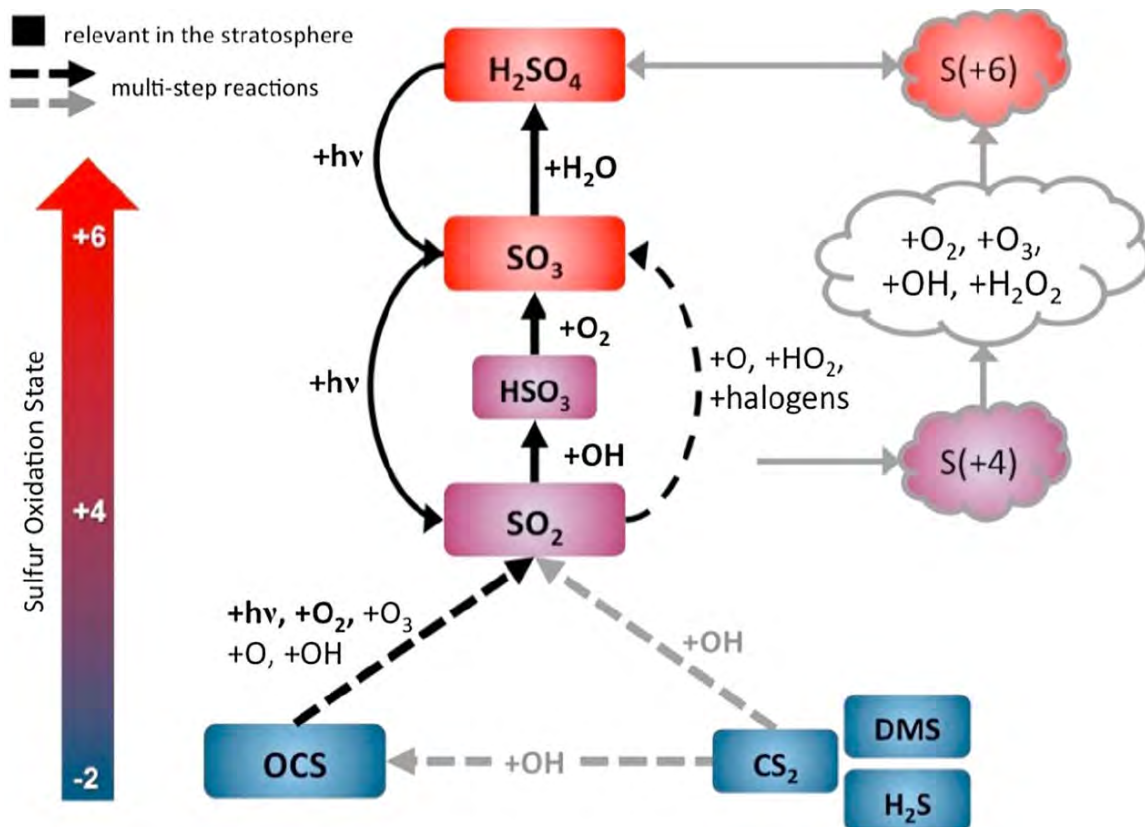


Abbildung 2.3.1: Schema der Schwefelchemie in der Atmosphäre. Die Farbcodierung bezieht sich auf die Oxidationszahl der jeweiligen Schwefelverbindungen. Schwarze Pfeile zeigen Reaktionen, die in der Stratosphäre relevant sind, während graue Pfeile Reaktionen darstellen, die hauptsächlich in der Troposphäre bedeutend sind. Umwandlungen, die über mehrere Schritte verlaufen, mit Zwischenprodukten, die nicht dargestellt sind, werden durch gestrichelte Pfeile gekennzeichnet. Andere chemische Verbindungen in der Abbildung sind Carbonylsulfid (OCS), Kohlenstoffdisulfid (CS₂), Dimethylsulfid (DMS), Schwefelwasserstoff (H₂S), Hydroxyl-Radikal (OH), Ozon (O₃), Wasserstoffperoxid (H₂O₂), Hydrogensulfid (HSO₃), Schwefeltrioxid (SO₃) und Schwefelsäure (H₂SO₄). Die Grafik ist aus Kremser et al. (2016) übernommen.

Für die Betrachtung des Schwefelkreislaufs reicht es nicht aus, nur atmosphärische Prozesse zu betrachten. Schwefel wird in Lebewesen als Oxidationsmittel und Energieträger im Rahmen des Stoffwechsels benötigt. Biochemische Reaktionen gleichen die oxidierenden Reaktionen in der Atmosphäre aus und stellen reduzierte (S^{-2}) Schwefelverbindungen wie OCS bereit, die sonst in der Atmosphäre kaum vorkommen würden. Somit würde, abgesehen von großen Vulkanausbrüchen, kaum Schwefel die Stratosphäre erreichen (Kremser et al., 2016).

Reduzierte Schwefelverbindungen in der Atmosphäre reagieren meist schnell mit dem Hydroxyl-Radikal (OH) und daher ist ihre Lebensdauer kürzer als die Transportzeit in die Stratosphäre¹⁴. In der Grenzschicht ist die Lebensdauer von SO_2 in verschmutzten Bedingungen teilweise kürzer als ein Tag (Lee et al., 2011). Dies begrenzt die Menge an anthropogenem Schwefel, der in die Stratosphäre gelangen kann. Die Umwandlung von SO_2 zu H_2SO_4 geschieht in der Atmosphäre auf unterschiedlichen Wegen. In der freien Troposphäre und der unteren Stratosphäre dominiert die Reaktion von SO_2 mit OH. Hier liegt die Lebensdauer typischerweise im Bereich von Tagen bis einigen Wochen (Rex et al., 2014). Wird SO_2 in Wolkentröpfchen aufgenommen, läuft die Reaktion von SO_2 zu H_2SO_4 deutlich schneller ab als in der Gasphase (siehe Abbildung 2.3.1 rechts). In der wässrigen Form kann das SO_2 auf mehreren Wegen weiter oxidiert werden, beispielsweise mit Ozon (O_3), Wasserstoffperoxid (H_2O_2) oder Sauerstoff (O_2). Unter diesen Bedingungen reduziert sich die Lebensdauer von SO_2 auf Tage oder sogar auf nur einige Stunden (Lelieveld, 1993).

Die wichtigste Reaktionsart von OCS zu SO_2 ist die Photodissoziation (Sheng et al., 2015). 80 % der Reaktionen in der Stratosphäre laufen auf diese Art ab. Die Umwandlung mittels O (17 %) und OH (3 %) folgen dahinter. Die Dissoziation von OCS läuft im ultravioletten Bereich ab, wobei die Photolyserate mit der Höhe zunimmt (Chin u. Davis, 1995). Die SO_2 -Konzentrationen weisen ein Maximum in der Stratosphäre in 25 km in den Tropen auf, welches der Photolyse von OCS zugeschrieben wird (Höpfner et al., 2013). Oberhalb von 35 km beginnt die Dissoziation von H_2SO_4 zu SO_2 durch die Absorption von sichtbarem Licht (Lane u. Kjaergaard, 2008).

2.4 Mikrophysikalische Prozesse der Aerosolpartikel

Die Lebensdauer und Zusammensetzung der stratosphärischen Aerosolpartikel ist im Wesentlichen von fünf mikrophysikalischen Prozessen abhängig: Nukleation, Koagulation, Kondensation, Verdampfung und Sedimentation (Seinfeld u. Pandis, 2006). Diese Prozesse bestimmen die Aerosolanzahl sowie die Größenverteilung der Partikel. Sie sorgen in ihrem Zusammenspiel für eine deutlich ausgeprägte Schicht mit einem Maximum bei circa 20 km (Deshler, 2008). In den folgenden Abschnitten werden die Prozesse kurz beschrieben und eingeordnet.

2.4.1 Bildung

Aerosolpartikel in der Stratosphäre werden durch binäre, homogene Nukleation gebildet (Vehkamäki et al., 2002). Dabei nukleieren Schwefelsäure und Wasserdampf zusammen zu kleinen Tröpfchen, die dann zu ungefähr 75 Prozent aus H_2SO_4 bestehen. Dies liegt daran, dass H_2SO_4 in der Stratosphäre generell

¹⁴Reaktionsraten aus Sander et al. (2011)

übersättigt ist und die Schwefelsäure daher schnell kondensiert. Außerdem ist relativ viel Wasserdampf vorhanden, was die Co-Kondensation der beiden Gase antreibt (Curtius et al., 2005).

Die Bedingungen der unteren Stratosphäre, nämlich geringe Temperaturen, kleine Partikeloberflächen und hohe relative Feuchten¹⁵ begünstigen die binäre, homogene Nukleation zur Bildung der Aerosolpartikel. Das Einsetzen des Übergangs von der Gasphase zur Tröpfchenbildung wird durch das Vorhandensein von Kondensationskeimen noch beschleunigt und ist dann bei deutlich niedrigeren Sättigungen möglich. Solche Kondensationskeime können beispielsweise Ionen oder Staubpartikel von Meteoren sein (Merikanto et al., 2007). Die Nukleation von stratosphärischem Aerosol findet hauptsächlich in der TTL statt (Brock et al., 1995), besonders im unteren Bereich der TTL (Weigel et al., 2011) und in der mittleren polaren Stratosphäre (Campbell et al., 2014).

2.4.2 Wachstum

Die durch Nukleation gebildeten Aerosolpartikel können durch Koagulation und Kondensation weiter wachsen. Koagulation beschreibt dabei den Prozess der Kollision verschiedener Partikel, die sich anschließend zu einem größeren Teilchen verbinden. Die Wachstumsrate mittels Koagulation hängt daher hauptsächlich von der Anzahlkonzentration der Partikel ab und ist höher, je mehr Partikel vorhanden sind. Daher findet Koagulation vorwiegend in einem kurzen Zeitraum nach der Nukleation der Tröpfchen statt (Deshler, 2008). Im Gegensatz dazu läuft das Wachstum durch Kondensation über die gesamte Lebensdauer der Aerosolpartikel ab. Dabei nimmt das nukleierte Tröpfchen weitere Wasser- und H_2SO_4 -Moleküle auf. Dieser Prozess ist maßgeblich durch die Aufnahme von H_2SO_4 bestimmt und damit von der Konzentration von Schwefelsäure und der umgebenden Temperatur. Da größere Partikel eine schwächere zufällige Bewegung aufweisen, finden weniger Kollisionen statt und die Rate der Koagulation wird reduziert. Je größer ein Aerosolpartikel also ist, desto langsamer wird er weiter wachsen (Jacob, 1999).

Die Wachstumsrate der Aerosolpartikel in der Stratosphäre ist nicht sehr gut erforscht. Gemessene Raten zeigen Werte um 0.1 nm pro Stunde (Lee et al., 2011). Für Partikel größer als 10 nm wird die Anzahlkonzentration von der Koagulation und nicht von der Nukleation bestimmt (English et al., 2011).

2.4.3 Abbau

Der Abbau von stratosphärischen Aerosolpartikeln geschieht auf zwei Wegen. Durch Verdampfung gehen die Tröpfchen in die Gasphase über und durch Sedimentation können sie die Stratosphäre unwiederbringlich nach unten verlassen und in die Troposphäre herab sinken. Sedimentation spielt insbesondere nach großen Vulkanausbrüchen eine wichtige Rolle, da große Partikel schnell sedimentieren und damit Schwefel aus der Stratosphäre auswaschen.

Aerosolpartikel werden in der tropischen Stratosphäre mit der BDC aufwärts transportiert (siehe Kapitel 2.2). Größere Teilchen werden dabei langsamer nach oben gelangen. Sie können auch, wenn sie zu groß und damit zu schwer sind, absinken. Stratosphärische Aerosolpartikel haben demnach in vulkanisch ruhigen Zeiten typischerweise einen Radius kleiner als 200 nm (SPARC, 2006). Je höher die Partikel steigen, desto größer wird die Umgebungstemperatur in der Stratosphäre. In ungefähr 32 bis 35 km ist es so warm, dass die Tröpfchen verdampfen. Hier geht somit der gesamte Schwefel in die Gasphase über und die

¹⁵relative Feuchten in der unteren Stratosphäre von 0.8 bis 1.2 (Chauhan et al., 2009)

Anzahlkonzentration der Aerosole nimmt stark ab (Khaykin et al., 2017). Der gasförmige Schwefel wird dann in höhere Breiten transportiert wo er absinkt und damit wieder kältere Temperaturen vorfindet, die eine erneute Bildung von Aerosolpartikeln begünstigen (Campbell et al., 2014).

2.5 Polare Stratosphärenwolken

Polare Stratosphärenwolken oder PSC¹⁶ treten in Höhen von 15 bis 30 km in polaren Breiten auf. Nach ihrer optischen Erscheinung werden sie auch als Perlmutterwolken bezeichnet. PSC stellen eine weitere Kategorie stratosphärischen Aerosols dar. Sie sind stark von der Temperatur abhängig und können sich über den gesamten sichtbaren Himmel ausdehnen.

PSC werden nach ihrer Zusammensetzung in verschiedene Kategorien eingeteilt. PSC Typ I bestehen maßgeblich aus Salpetersäure (HNO_3) und Wasser. Diese Kategorie wird weiter in Typ Ia, bestehend aus Salpetersäuretrihydrat (NAT^{17}) und Wasser sowie Typ Ib, bestehend aus Schwefelsäure, Salpetersäure und Wasser. PSC vom Typ II bestehen aus Wassereisteilchen, die bis auf einige Mikrometer anwachsen können. Es existieren mehrere Theorien zur Entstehung von PSC. Generell wird angenommen, dass stratosphärische Aerosolpartikel als Kondensationskeime für PSC-Teilchen dienen (Crutzen u. Arnold, 1986). Die Schwefelsäuretröpfchen unterkühlen und bilden zwischen 215 K und 195 K die thermodynamisch stabile Phase des Schwefelsäuretrihydrats (SAT^{18}). Fällt die Temperatur auf 195 K, kondensieren HNO_3 und H_2O auf den SAT-Teilchen und bilden NAT. Sinkt die Temperatur weiter auf unter 187 K, bilden sich um die NAT-Partikel, die jetzt als Kondensationskeime dienen, Eiskristalle. Diese Vorstellung ist jedoch umstritten, da der Phasenübergang von flüssiger Schwefelsäure zu festem SAT aufgrund sehr niedriger Gefrierzeiten praktisch nicht stattfinden kann (Tolbert, 1994).

Eine andere Theorie beschreibt den Bildungsweg über Salpetersäuredihydrat (NAD^{19}). NAD bildet sich bei Temperaturen von zwei bis vier Kelvin unterhalb der Existenztemperatur von NAT (Worsnop et al., 1993). Flüssige Aerosolpartikel können ebenfalls als Kondensationskeime dienen (Dye et al., 1992). Geht man davon aus, dass Aerosole bis 195 K flüssig bleiben, so ändert sich bei diesen Temperaturen die chemische Zusammensetzung des Aerosols durch die Aufnahme von H_2O und HNO_3 . Diese Tröpfchen wachsen als ternäre Lösung ($\text{H}_2\text{SO}_4 + \text{HNO}_3 + \text{H}_2\text{O}$), bis sie zu NAT kristallisieren (Molina et al., 1993). Beschrieben wird auch die Bildung einer binären unterkühlten Lösung aus H_2O und HNO_3 mit Spuren von Schwefelsäure (STS^{20}) (Tabazadeh et al., 1994). STS-Tröpfchen wachsen bei niedrigeren Temperaturen als NAT an. Die unterschiedlichen Bildungsprozesse von PSC-Teilchen sind zusammenfassend in Koop et al. (1997) beschrieben.

PSC treten in der Antarktis mit deutlich größerer Wahrscheinlichkeit auf, da die zur Bildung benötigten niedrigen Temperaturen häufiger erreicht werden. Grund dafür ist der im Vergleich zur Arktis stärker ausgeprägte und stabilere Polarwirbel. PSC werden in der Antarktis den ganzen Winter von Juni bis September beobachtet, während sie in der Arktis hauptsächlich im Januar registriert werden (Pawson et al., 1995). Über der Arktis haben PSC eine Lebensdauer von Tagen bis Wochen, während sie über der Antarktis

¹⁶engl: „polar stratospheric cloud“

¹⁷engl: „nitric acid trihydrate“

¹⁸engl: „sulfuric acid trihydrate“

¹⁹engl: „nitric acid dihydrate“

²⁰engl: „supercooled ternary solution“

Wochen bis Monate überdauern können. Typ II PSC, die sehr niedrige Bildungstemperaturen benötigen, findet man in der Arktis nur sehr selten, in der Antarktis kommt dieser Typ häufiger vor. Ein weiterer Unterschied bezüglich der Hemisphären liegt in der Region des Auftretens der PSC. Während in der Arktis PSC meist am Rand des Polarwirbels, bei ungefähr 70° nördlicher Breite gefunden wurden, treten sie in der Antarktis näher am Pol auf (Tie et al., 1996).

Eine wichtige Bedeutung von PSC liegt in ihrem Beitrag zum arktischen Ozonabbau. Auf der Oberfläche der PSC-Teilchen laufen heterogene chemische Reaktionen ab, die dafür sorgen, dass H_2O und NO_2 aus der polaren Stratosphäre entfernt werden. Das Fehlen dieser Substanzen führt zu einer Anreicherung von Chlor aus Fluorchlorkohlenwasserstoffen (FCKW) im Polarwirbel. Erreicht im Frühjahr wieder Sonnenlicht die Polarregionen, setzt dies einen Reaktionszyklus in Gang, bei dem durch Chlorverbindungen effektiv Ozon zerstört wird. Die Folge ist die Reduzierung der stratosphärischen Ozonschicht über der Antarktis um bis zu 50 Prozents, das sogenannte Ozonloch. Auch in der Nordhemisphäre ist der Effekt, wenn auch lokaler und weniger stark ausgeprägt, zu beobachten. Eine ausführliche Beschreibung der Entstehung des Ozonlochs ist in Solomon et al. (1986) und Solomon (1999) zu finden.

3 Aerosolmessung mit Lidar

Das Akronym Lidar steht für „light detection and ranging“ und beschreibt sowohl eine Messmethode, als auch das Gerät, dass diese Methode verwendet. Ein Lidar ist aktives Fernerkundungsgerät. Die meisten Geräte sind bodengebunden, wobei einige auch auf Flugzeugen, Ballonen oder Satelliten zum Einsatz kommen. Ein gepulster Laserstrahl wird dabei in die Atmosphäre gesandt. Das ausgesendete Licht wird an Luftmolekülen, Aerosolen und Metallatomen gestreut und dieses Streulicht wird zu einem kleinen Teil mit einem Teleskop gesammelt und in ein geeignetes System zur Detektion weitergeleitet, welches zeitlich aufgelöst die Anzahl der gestreuten Photonen aufnimmt, die Zählrate. Die Zeitdifferenz zwischen dem Aussenden des Lichtpulses und der Detektion des rückgestreuten Signals t , lässt auf die Höhe z schließen, in welcher das Licht gestreut wurde.

$$z = \frac{t \cdot c_{Luft}}{2} \cdot \cos \theta \quad (3.1)$$

Hierbei ist c_{Luft} die Lichtgeschwindigkeit in Luft und θ der Winkel unter dem das Licht in die Atmosphäre gesendet wird. In Abbildung 3.0.1 ist das Messprinzip des Lidars schematisch vereinfacht dargestellt. Rechts in Abbildung 3.0.1 ist ein idealisiertes Messprofil gezeigt. Darin erkennt man sowohl den exponentiellen Abfall der Zählrate mit der Luftdichte, als auch Maxima in den Höhen der dargestellten Wolkenschichten, die eine höhere Rückstreuung zur Folge haben.

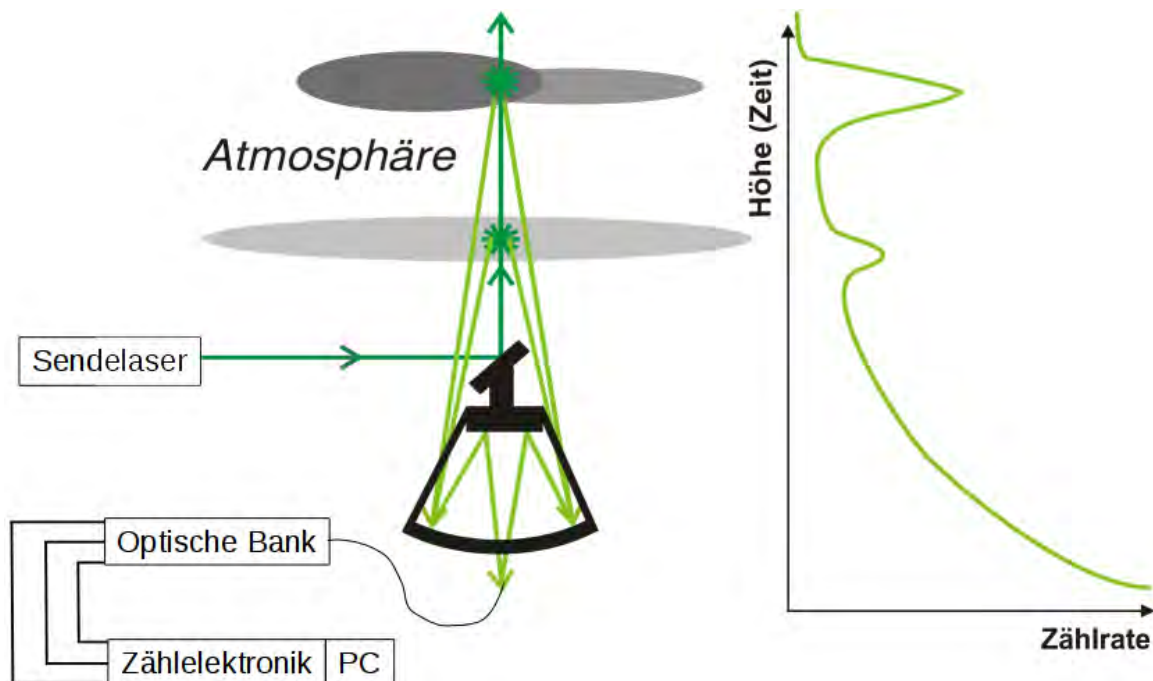


Abbildung 3.0.1: Schema des Funktionsprinzips eines Lidars. Nach Schöch (2001).

Die Intensität des rückgestreuten Lichts lässt Rückschlüsse auf den Volumenrückstreukoeffizienten zu. Dieser ist das Produkt aus Streuquerschnitt und Anzahldichte. Nimmt man einen konstanten Streuquerschnitt im untersuchten Volumen an, ist der Volumenrückstreukoeffizient proportional zur Dichte der streuenden Partikel. Mit Zuhilfenahme der entfernungsabhängigen, quadratischen Abnahme des empfangenen, rückgestreuten Signals, kann das Rückstreuprofil direkt in ein Dichteprofil der Atmosphäre umgerechnet werden (Hauchecorne u. Chanin, 1980, Kent u. Wright, 1970).

In diesem Kapitel wird erläutert, wie Aerosole in der Stratosphäre mit einem Lidar gemessen werden. Dazu werden zunächst die Grundlagen des Lidars eingeführt. Anschließend wird das ALOMAR RMR Lidar genau vorgestellt und gezeigt, wie wichtige Aerosolparameter berechnet werden können. Weiterhin werden in diesem Kapitel andere Lidars und Techniken zur stratosphärischen Aerosolmessung vorgestellt.

3.1 Streumechanismen in der Atmosphäre

Bei einem Lidar wird ausgesendete Laserstrahlung in der Atmosphäre abgeschwächt. Diese Abschwächung, oder Extinktion kann durch Prozesse wie Absorption oder Streuung hervorgerufen werden. Die Photonen wechselwirken dabei mit Molekülen und Partikeln. Ein Teil der Strahlung wird zurück in Richtung Erdoberfläche gestreut und dort von einem Teleskop aufgefangen. Streuung beschreibt ganz allgemein eine Wechselwirkung zwischen elektromagnetischer Strahlung und einem Objekt, dem Streuzentrum. Durch Absorption eines Photons wird ein Elektron auf ein höheres Energieniveau gehoben, um anschließend unter Emission eines Photons wieder in einen niedrigeren Zustand zurück zu fallen. Das Niveau dieses Endzustands ist dabei von entscheidender Bedeutung. Entspricht dieser exakt dem Ausgangszustand des Elektrons und hat das emittierte Photon damit die gleiche Wellenlänge wie das anregende Photon, spricht man von elastischer Streuung ($\Delta\lambda = 0$). Sind Endzustand und Ausgangszustand nicht identisch, wird das emittierte Photon eine vom anregenden Photon unterschiedliche Wellenlänge haben, hier spricht man von einem inelastischen Streuprozess ($\Delta\lambda \neq 0$).

Das Streuvermögen hängt von Teilchengröße, geometrischer Form und Brechungsindex ab. Streumechanismen lassen sich durch den Teilchengrößenparameter x klassifizieren. Dieser beschreibt das Verhältnis von Radius des Streuzentrums r und der Wellenlänge der einfallenden Strahlung λ :

$$x = \frac{2\pi r}{\lambda}, \quad (3.2)$$

Demnach gilt:

$$\begin{array}{lll} x < 0.8 & \rightarrow & \text{Rayleigh-Streuung} \\ 0.8 < x < 10 & \rightarrow & \text{Mie-Streuung} \\ x > 10 & \rightarrow & \text{Geometrische Optik} \end{array}$$

Im Falle der Rayleigh-Streuung, also wenn die Wellenlänge λ sehr viel größer ist als der Radius des Streuzentrums, kann man die Streustrahlung als Abstrahlung eines Hertzschen Dipols auffassen, der durch die einfallende Strahlung (oszillierendes E-Feld) zu Schwingungen angeregt wird.

Bei der Mie-Streuung ($r \sim \lambda$), die die Streuung an kugelförmigen Teilchen beschreibt, entstehen durch die einfallende Welle in unterschiedlichen Teilen (Multipole) des Streuzentrums kohärente Sekundärwellen, die sich durch Interferenz in bestimmten Streurichtungen verstärken oder auslöschen. Dadurch fällt die

Streurichtung der einzelnen Streuprozesse sehr verschieden aus. Je größer das Teilchen, desto mehr Vorwärtsstreuung tritt bei Rayleigh- und Mie-Streuung auf. In den folgenden Abschnitten werden die einzelnen Streumechanismen physikalisch genauer beschrieben.

3.1.1 Molekülstreuung

In diesem Abschnitt soll die Streuung von Licht an Molekülen beschrieben werden. Durch ein einfallendes Photon wird ein Elektron auf ein virtuelles Niveau gehoben. Anschließend fällt das Elektron in einen reellen Endzustand zurück. Abhängig vom Niveau des Endzustands treten verschiedene Formen von Molekülstreuung auf. Dies ist schematisch in Abbildung 3.1.1 dargestellt. Die Notation von Streumechanismen an Molekülen ist nicht trivial. Eine detaillierte Begriffsdefinition findet sich in Young (1981). Danach beinhaltet Molekülstreuung die beiden Prozesse Vibrations-Raman-Streuung und Rayleigh-Streuung. Rayleigh-Streuung besteht des weiteren besteht nach Young (1981) aus Rotations-Raman-Streuung und der Cabannes-Streuung. Die Bezeichnung Rayleigh-Streuung geht auf die Arbeiten von Lord Rayleigh zurück (Rayleigh, 1871, 1899), der noch keine Unterscheidung zwischen Rotations-Raman-Streuung und Cabannes-Streuung feststellen konnte.

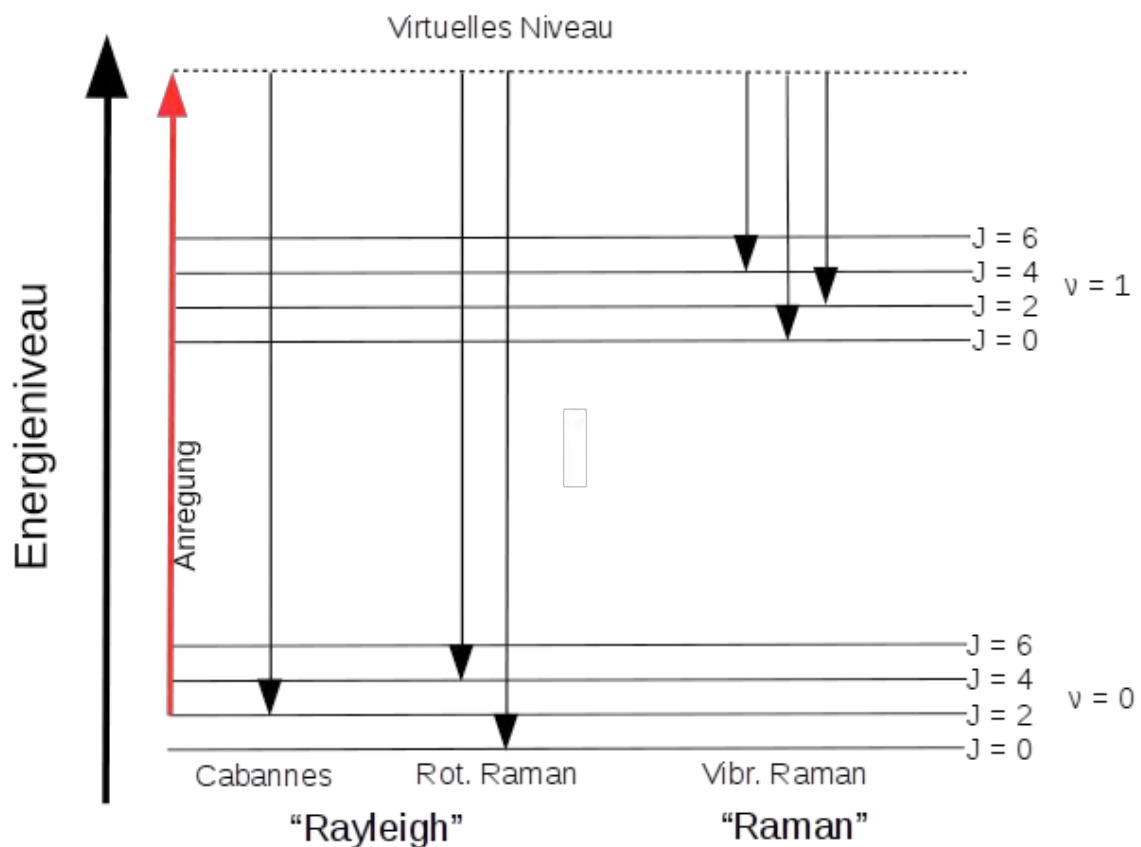


Abbildung 3.1.1: Quantenmechanische Übersicht der Streuprozesse. Die Notation der Streuprozesse geht auf Young (1981) zurück. In jedem Fall wird ein Elektron mit Rotationsquantenzahl $J = 2$ und Vibrationsquantenzahl $\nu = 0$ angeregt (roter Pfeil).

Im Folgenden werden die in Abbildung 3.1.1 gezeigten Streuprozess kurz beschrieben:

- **Cabannes-Streuung:**

Stimmen Anfangs- und Endzustand des angeregten Elektrons überein, spricht man von Cabannes-Streuung. Hier stimmen sowohl Vibrations- als auch Rotationsquantenzahlen überein. Die Wellenlänge des ausgesendeten Lichts ist bei diesem elastischen Streuprozess, abgesehen von Dopplerverschiebung oder Druckverbreiterung, identisch mit der des empfangenen. Der Cabannes-Streuquerschnitt $\sigma_{ray,180^\circ}(\lambda)$ an Luftmolekülen liegt im Bereich von $10^{-32} \text{ m}^2/\text{sr}$ (Bates, 1984). Er ist allgemein gegeben durch (Elterman, 1968):

$$\sigma_{ray,180^\circ}(\lambda) = \frac{d\sigma_{ray}(\lambda, \theta(180^\circ))}{d\Omega} = \frac{\pi^2(n^2 - 1)^2}{N^2\lambda^4} \cdot \left(\frac{6 + 3\delta}{6 - 7\delta} \right), \quad (3.3)$$

wobei $\theta(180^\circ)$ den Streuwinkel von 180° , also Rückwärtsstreuung, n den Brechungsindex, N die Anzahldichte der Moleküle, λ die Wellenlänge und δ den Depolarisationsfaktor für Luft ($\delta = 0.035$) beschreibt. Entscheidend in Formel 3.3 ist die λ^{-4} -Abhängigkeit des Streuquerschnitts. Die Rückstreuung eines Moleküls nimmt demnach stark mit der Wellenlänge des einfallenden Lichts ab.

- **Rotations-Raman-Streuung:**

Unterscheiden sich die Rotationsquantenzahlen J des Anfangs- und des Endzustands, liegt Rotations-Raman-Streuung vor. Die Vibrationsquantenzahlen sind identisch. Die Wellenlänge des gestreuten Lichts ist von der Wellenlänge des empfangenen Lichts um $\Delta\lambda$ verschoben. Die Verschiebung ist abhängig vom Streuzentrum und der Änderung der Rotationsquantenzahl. Im Falle einer Laserwellenlänge von 532 nm und Streuung an Stickstoff (N_2) beträgt $\Delta\lambda = 0.34 \text{ nm}$ ($\Delta J = 2$) (Hyatt et al., 1973).

- **Vibrations-Raman-Streuung:**

Bei dieser Form der Molekülstreuung unterscheiden sich die Vibrationsquantenzahlen ν des Anfangs- und des Endzustands. Es handelt sich um einen inelastischen Streuprozess, demzufolge die Wellenlänge des emittierten Lichts in Vergleich zum einfallenden Licht verändert ist (Raman, 1928). Die Verschiebung ist spezifisch für das streuende Molekül. Bei einer Laserwellenlänge von 532 nm und Streuung an N_2 beträgt $\Delta\lambda = 75.8 \text{ nm}$ ($\Delta\nu = 1$) (Rasetti, 1929). Da der Streuquerschnitt im Vergleich zur Cabannes-Streuung kleiner ist ($10^{-35} \text{ m}^2/\text{sr}$) (Hyatt et al., 1973), ist der Anteil des durch Vibrations-Raman-Streuung frequenzverschobenen Lichts um mehrere Größenordnungen geringer. Auch hier ergibt sich eine λ^{-4} -Abhängigkeit des Streuquerschnitts (Inaba, 1976). Die Vibrations-Raman-Linien sind ebenfalls von Rotations-Raman-Linien umgeben, die durch zusätzliche Änderung der Rotationsquantenzahlen ΔJ verursacht werden.

Da die Anzahldichte der Moleküle mit der Höhe exponentiell abnimmt, verringert sich die Anzahl der rückgestreuten Photonen sehr schnell. Deswegen kann ein Lidar, abhängig von seiner Leistung und Sensitivität, Molekülstreuung maximal bis in eine Höhe von ungefähr 90 km nutzen.

Im Rahmen dieser Arbeit werden Messungen mit einer spektralen Auflösung von minimal circa 5 pm bei Licht mit 532 nm analysiert. Die Dopplerverbreiterung beträgt circa 2 pm bei dieser Wellenlänge, daher spielt die spektrale Verbreiterung des an den Molekülen rückgestreuten Lichtes, die aufgrund der thermischen Bewegung der Moleküle auftritt, keine Rolle.

3.1.2 Partikelstreuung

Findet elastische Streuung an Partikeln statt, die größer als 1 nm sind, spricht man von Partikelstreuung. Diese Form der Streuung ist nur für wenige, spezielle Teilchenformen analytisch lösbar. Für Aerosoluntersuchungen ist die Streuung an einer homogenen Kugel am wichtigsten. Diese wird durch die Mie-Theorie beschrieben (Mie, 1908). Mie-Streuung ist sowohl vom Streuwinkel- als auch vom Teilchengrößenparameter abhängig, siehe Gleichung 3.2. Für kleine Teilchen ($x \ll 1$) zeigt die Rückstreuung eine r^6 -Abhängigkeit und wie bei der Rayleigh-Streuung eine λ^{-4} -Abhängigkeit auf. Diese verschwindet im Bereich der Mie-Streuung. Bei größeren Streuzentren nimmt die Vorwärtsstreuung zu Lasten des rückwärts gestreuten Anteils zu. Es entsteht eine ausgeprägte Vorwärts-Streucharakteristik und die der Rayleigh-Streuung ähnliche Symmetrie gilt nicht mehr. Der Rückstreuquerschnitt von Aerosolen ist also stark von ihrer Größe und der Form abhängig. Für sphärische Partikel mit einem Radius von 50 nm beträgt der Rückstreuquerschnitt $10^{-19} \text{ m}^2/\text{sr}$ (Baumgarten, 2001).

Eine schematische Darstellung der unterschiedlichen Bereiche des Teilchengrößenparameters und damit der Streuprozesse ist in Abbildung 3.1.2 gezeigt.

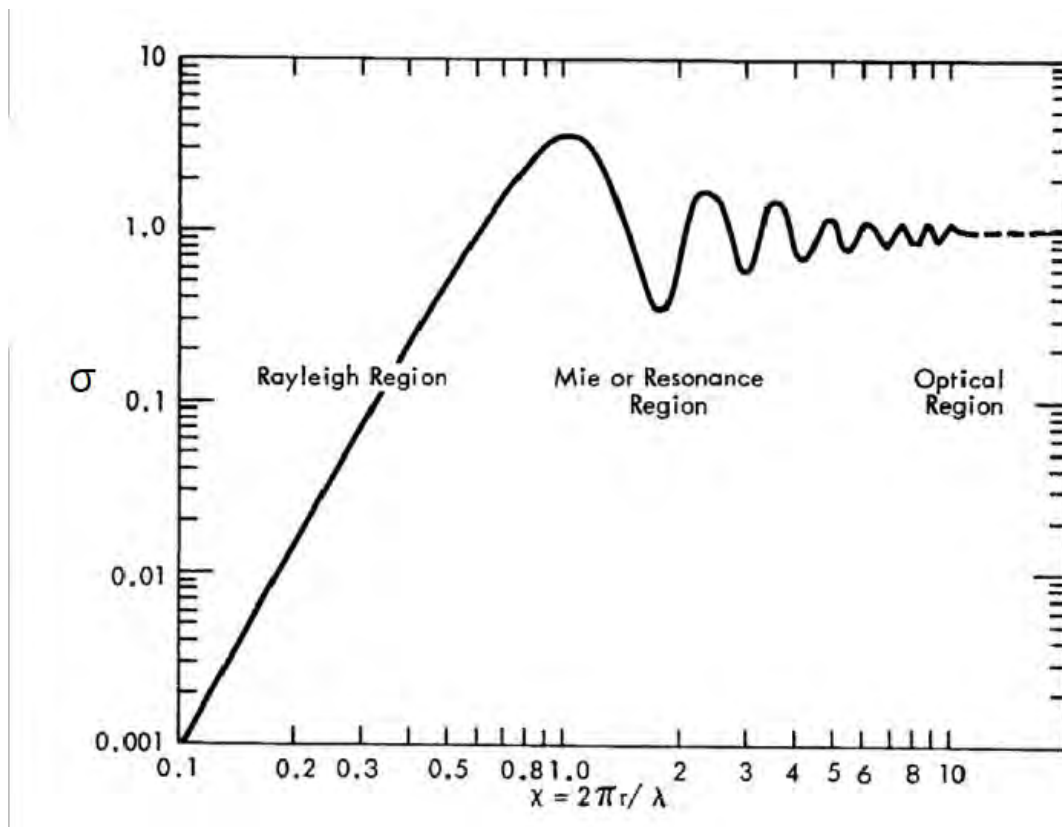


Abbildung 3.1.2: Schematische Darstellung des Streuquerschnitts in Abhängigkeit der Teilchengrößenparameters nach Skolnik (1980).

Für die Rayleigh-Streuung ist zu erkennen, dass der Streuquerschnitt σ bei größeren Teilchengrößenparametern stark zunimmt. Die Rückstreuung nimmt in diesem Bereich demnach für größere Streuzentren (r^6 -Abhängigkeit) oder für kürzere Wellenlängen (λ^{-4} -Abhängigkeit) zu. Je größer die einfallende Wellenlänge ist, desto kleiner wird die Rückstreuung von Molekülen ausfallen. Bei größeren Partikeln im Bereich der

Mie-Streuung ist diese Abhängigkeit nicht mehr gegeben. Die Rückstreuung ist für Licht mit verschiedenen einfallenden Wellenlängen ähnlich groß.

Im weiteren Verlauf dieser Arbeit wird der Begriff der Rayleigh-Streuung für den physikalischen Prozess der Cabannes-Streuung verwendet und der Begriff Raman-Streuung bezieht sich auf den Prozess der Vibrations-Raman-Streuung. Weiterhin werden Rayleigh- und Mie-Streuung als elastische Streuung bezeichnet, während Vibrations-Raman-Streuung als inelastische Streuung bezeichnet wird. Einige Merkmale der beschriebenen Streumechanismen, die auch das ALOMAR RMR Lidar nutzt, sind in Tabelle 3.1 zusammengefasst.

Streuprozess	Streuzentrum	σ in m^2/sr	$\Delta\lambda$ in nm	Referenz
Rayleigh (Cabannes)	Luftmoleküle	10^{-32}	0	(Bates, 1984)
Rotations-Raman	Luftmoleküle	10^{-35} (N_2)	0.34 (N_2)	(Hyatt et al., 1973)
Vibrations-Raman	Luftmoleküle	10^{-35} (N_2)	75.8 (N_2)	(Rasetti, 1929)
Partikel (Mie)	Aerosole	10^{-19} ($r=50$ nm)	0	(Baumgarten, 2001)

Tabelle 3.1: Übersicht über atmosphärische Streuprozesse, die das ALOMAR RMR Lidar nutzt. Die jeweiligen Streuquerschnitte σ sowie die Verschiebungen der Wellenlänge $\Delta\lambda$ beziehen sich auf eine Laserwellenlänge von 532 nm.

3.2 Lidar-Theorie

In diesem Abschnitt werden einige theoretische Zusammenhänge vorgestellt, die die Grundlagen für die Auswertung von Lidarmessungen darstellen. Zunächst wird die Lidargleichung eingeführt und einzelne Terme erklärt, dann werden verschiedene wichtige Größen vorgestellt, bevor der Klett-Algorithmus genauer beschrieben wird, der eine stabile Lösung für die Extinktion von Aerosolen aus Lidardaten ermöglicht.

3.2.1 Lidargleichung

Die Lidar-Gleichung ist die fundamentale Gleichung der Laser-Fernerkundung. Sie setzt die Intensität des empfangenen Signals mit der Energie des Lasers, der Übertragung des Lichts in der Atmosphäre, der Wechselwirkung zwischen Licht und Objekten sowie technischen Details des Systems wie Geometrie und Effizienz, in Zusammenhang. Sie lautet:

$$N_S(\lambda, z) = \underbrace{\left(\frac{P_L(\lambda_L) \Delta t}{h \cdot \frac{c}{\lambda_L}} \right)}_A \underbrace{(\beta(\lambda, \lambda_L, z) \Delta z)}_B \underbrace{\left(\frac{A}{r^2} \right)}_C \underbrace{(T(\lambda_L, z) T(\lambda, z))}_D \underbrace{((\eta(\lambda, \lambda_L) G(r)))}_E + \underbrace{N_B \Delta t_r}_F \quad (3.4)$$

Hierbei ist N_S die Anzahl der detektierten Photonen einer bestimmten Wellenlänge λ aus einer bestimmten Höhe $z = r/\cos(\theta)$. Im Folgendem sollen die einzelnen Terme der Lidar-Gleichung genauer erläutert werden.

■ Term A: Anzahl emittierter Photonen

Im Zähler des Term steht das Produkt aus mittlerer Pulsleistung $P_L(\lambda_L)$ und Länge des Laserpulses Δt , also die transmittierte Energie eines Pulses. Im Nenner steht hingegen das Produkt aus Planck-Konstante h und Frequenz des Lasers als Quotient aus Lichtgeschwindigkeit c und Wellenlänge λ_L . Der

Nenner von Term A beschreibt also die Energie eines einzelnen Photons, das der Laser transmittiert. Term A stellt demnach die Anzahl der Photonen dar, die während eines Pulses emittiert werden.

▪ **Term B: Wahrscheinlichkeit für Streuung eines Photons**

Der Term beschreibt die Wahrscheinlichkeit, dass ein Photon in einem bestimmten Raumwinkel zurück gestreut wird. Er setzt sich zusammen aus dem Volumenrückstreuoeffizienten $\beta(\lambda, \lambda_L, z)$ und einem Höhenbereich Δz . Der Volumenrückstreuoeffizient stellt die Wahrscheinlichkeit für ein Photon dar, auf einer Längeneinheit in die Wellenlänge λ zurück gestreut zu werden. Er ist definiert als:

$$\beta(\lambda, \lambda_L, z) = \sum_i \left[\frac{d\sigma_i(\lambda_L)}{d\Omega} n_i(z) p_i(\lambda) \right] \quad (3.5)$$

mit:

$\frac{d\sigma_i(\lambda_L)}{d\Omega}$	Rückstreuquerschnitt eines Partikels
$n_i(z)$	Anzahldichte der Streuspezies i
$p_i(\lambda)$	Wahrscheinlichkeit, dass gestreute Photonen die Wellenlänge λ haben

▪ **Term C: Wahrscheinlichkeit, das Teleskop zu erreichen**

Die Wahrscheinlichkeit, dass das gestreute Photon vom Teleskop aufgefangen wird, ergibt sich aus der Empfangsoberfläche A des Teleskops und der Höhe z , in der das Photon gestreut wird.

▪ **Term D: Transmission des Lichts**

$T(\lambda_L, z)T(\lambda, z)$ entspricht der atmosphärischen Durchlässigkeit für die ausgesendete Wellenlänge λ_L und der zurück gestreuten Wellenlänge λ . Diese lauten explizit:

$$T(\lambda_L, z) = \exp \left[- \int_0^z \alpha(\lambda_L, r) dr \right] \quad (3.6)$$

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

Damit gilt:

$$T(\lambda_L, z)T(\lambda, z) = \exp \left[- \left(\int_0^z \alpha(\lambda_L, r) dr + \int_0^z \alpha(\lambda, r) dr \right) \right] \quad (3.8)$$

und für $\lambda = \lambda_L$:

$$T(\lambda_L, z)T(\lambda, z) = \exp \left[-2 \int_0^z \alpha(\lambda, r) dr \right] \quad (3.9)$$

Dabei ist jeweils $\alpha(\lambda, r)$ der Extinktionskoeffizient:

$$\alpha(\lambda, r) = \sum_i [\sigma_{i,ext}(\lambda) n_i(r)] \quad (3.10)$$

Hier steht σ_{ext} für den Extinktionsquerschnitt. Die Transmission sowie die Extinktion in der Lidaranwendung wird genauer in Abschnitt 3.2.2 erläutert.

▪ **Term E: Effizienz des Systems**

Die optische Effizienz der verbauten Hardware des Lidars stellt der Term $\eta(\lambda, \lambda_L)$ dar. $G(z)$ ist ein

geometrischer Formfaktor, der sich auf die Fläche der Überlappung zwischen Laserstrahl und Sichtfeld der Empfangsoptik bezieht.

▪ **Term F: Hintergrund**

N_B stellt die erwartete Photonenzahl des Hintergrundes pro Zeiteinheit Δt_r dar. Diese beträgt etwa 333 ns. Daraus ergibt sich die Länge einer Wegeinheit Δz zu 50 Meter nach:

$$2 \cdot \Delta z = c_{Luft} \cdot \Delta t_r \quad (3.11)$$

3.2.2 Transmission und Extinktion

Die Transmission und Extinktion von Licht auf dessen Weg durch die Atmosphäre sind bei einem Lidar von elementarer Bedeutung. In diesem Abschnitt werden diese Größen nach Kovalev u. Eichinger (2004) beschrieben.

Die Transmission $T(h)$ einer Schicht der Dicke h kann für eine bestimmte Wellenlänge als Verhältnis des ausgehenden Strahlungsflusses F zum eingehenden Strahlungsfluss F_0 beschrieben werden:

$$T(h) = \frac{F}{F_0} \quad (3.12)$$

$T(h)$ kann dabei Werte von 0 für eine komplett abschwächende Schicht bis 1 für eine komplett durchlässige Schicht annehmen, in der keine Streuung oder Absorption vorkommt. In einem heterogenen Medium kann die Transmission sich ortsabhängig ändern. Um diese Änderung beschreiben zu können, wird die Extinktionskoeffizientenfunktion $\alpha(r)$ eingeführt, die für jedes Wegelement dr die Wahrscheinlichkeit der Streuung oder Absorption eines Photons beschreibt. Die Änderung des Strahlungsflusses ist dann eine Funktion von $\alpha(r)$:

$$dF(r) = -\alpha(r)F(r)dr \quad (3.13)$$

Aus diesem Ausdruck lässt sich das Beer-Lambert-Bouger-Gesetz ableiten, dass den eingehenden und den ausgehenden Strahlungsfluss miteinander in Beziehung setzt:

$$F = F_0 \cdot \exp\left(-\int_0^h \alpha(r)dr\right) \quad (3.14)$$

Durch Einsetzen von Gleichung 3.12 in Gleichung 3.14 ergibt sich für die Transmission:

$$T(h) = \exp\left(-\int_0^h \alpha(r)dr\right) \quad (3.15)$$

Das Integral in Gleichung 3.15 stellt die gesamte Extinktion durch die Schicht dar und wird daher auch genutzt um die optische Dicke τ_α einer Schicht zu beschreiben:

$$\tau_\alpha = \int_0^h \alpha(r)dr \quad (3.16)$$

Da inelastische Streuung vergleichsweise klein ist und vernachlässigt werden kann, kann der Extinktionskoeffizient als Summe aus dem elastischen Rückstreukoeffizienten $\beta(r)$ und dem Absorptionskoeffizienten $\alpha_{Abs}(r)$ ausgedrückt werden:

$$\alpha(r) = \beta(r) + \alpha_{Abs}(r) \quad (3.17)$$

Absorption und Streuung schwanken mit der Größe, der Konzentration und dem Brechungsindex der Streuzentren. All diese Parameter sind unter Umständen nicht bekannt. Zusätzlich kompliziert wird das Problem wenn unterschiedliche Arten von Partikel zur Extinktion beitragen. Den Extinktionskoeffizienten zu bestimmen, kann demnach sehr schwierig sein. Allerdings lassen sich durch bestimmte Annahmen über die Atmosphäre Rückschlüsse auf das Verhältnis von Extinktion und Rückstreuung ziehen, dem sogenannten Lidarverhältnis.

3.2.3 Lidarverhältnis

Die physikalische Bedeutung eines gemessenen Lidarsignals zu erkennen, ist ein sogenanntes inverses Problem. Es muss eine Inversion durchgeführt werden, um die optischen Parameter der atmosphärischen Bestandteile zu bestimmen, die den Lidarmessungen zugrunde liegen. Es ist nicht möglich, aus einem einzelnen elastisch rückgestreuten Lidarsignal die einzelnen Anteile von Extinktion und Rückstreuung zum Signal zu bestimmen, da das Verhältnis des entfernungsabhängigen Rückstreukoeffizienten $\beta(r)$ zum ebenfalls entfernungsabhängigen Extinktionskoeffizienten $\alpha(r)$ mit der Zusammensetzung des Messvolumens entlang der Entfernung r variiert. Daher wird das sogenannte Lidarverhältnis L eingeführt, welches das Verhältnis aus Extinktion und Rückstreuung darstellt:

$$L(r) = \frac{\alpha(r)}{\beta(r)} \quad (3.18)$$

mit Gleichung 3.17 erhält man für das Lidarverhältnis:

$$L(r) = 1 + \frac{\alpha_{Abs}(r)}{\beta(r)} \quad (3.19)$$

Je größer das Lidarverhältnis angenommen wird, desto höher ist der Anteil der Absorption an der gesamten Extinktion. Das Werte für $L(r)$ typischerweise im zweistelligen Bereich liegen, zeigt das für Aerosole der Großteil der Extinktion durch Absorption verursacht wird.

Das Lidarverhältnis wird zur Lösung der Unterbestimmtheit der Lidargleichung verwendet (siehe Kapitel 3.2.4). Es wird entweder als konstant mit der Höhe angenommen, beispielsweise in Khaykin et al. (2017), Ridley et al. (2014), Sakai et al. (2016), oder es wird ein Höhenprofil für L angenommen (z.B. in Bingen et al. (2017), Trickl et al. (2013)). Der Zusammenhang zwischen Extinktion und Rückstreuung kann auch geschrieben werden als:

$$\beta(r) = B_0 \alpha^k(r), \quad (3.20)$$

mit B_0 und k als Konstanten (Klett, 1981). Die Konstante k ist dabei wellenlängenabhängig und wird von den mikrophysikalischen Parametern der Aerosole im Messvolumen beeinflusst. Für Cirruswolken nimmt sie beispielsweise Werte zwischen 0.67 und 1 an (Ansmann et al., 1992).

Das Lidarverhältnis ist für die meisten elastischen Lidaranwendungen eine wichtige unbekannte Größe. Die Qualität der Inversion hängt oft von der Genauigkeit der Annahmen zum Lidarverhältnis ab. Für stratosphärische Aerosole reichen die angenommenen Werte für das Lidarverhältnis bei Wellenlängen zwischen 355 nm und 1064 nm von 30 sr in vulkanisch ruhigen Perioden bis 60 sr für Zeiten mit Einfluss durch große Vulkanausbrüche (Chazette et al., 1995, Jäger u. Deshler, 2002, Jäger et al., 1995). Für PSC Typ I wurden Werte zwischen 56 sr und 135 sr und für PSC Typ II Lidarverhältnisse zwischen 16 sr und 42 sr bestimmt (Reichardt et al., 2004).

Für Moleküstreuung ist das Lidarverhältnis mit der Höhe konstant und beträgt (Fernald, 1984):

$$L_M = \frac{8}{3}\pi \quad (3.21)$$

3.2.4 Klett-Algorithmus

Die in Kapitel 3.1 beschriebenen Streuprozesse und die Lidargleichung 3.4 bilden den Ausgangspunkt für die mathematischen Methoden zur Bestimmung von Aerosolparametern in der Atmosphäre. Stellt man die Lidargleichung nur für das elastisch rückgestreute Signal auf, ist sie unterbestimmt und Aerosolrückstreuoeffizient und Aerosolextinktionskoeffizient können nicht unabhängig voneinander bestimmt werden. Klett (1981) konnte erstmals eine stabile Lösung für die Rückstreu- und Extinktionskoeffizienten von Aerosolen finden. Dieser sogenannte Klett-Algorithmus, oder Fernald-Klett-Inversion (Fernald, 1984, Klett, 1985), wird hier zunächst kurz vorgestellt.

Der Klett-Algorithmus geht von einem angenommenen Extinktionskoeffizienten an der Obergrenze der Aerosolschicht aus und invertiert das Signal zurück zum Instrument. Dieser Startwert kann angenommen oder gemessen werden. Wenn Moleküstreuung im Vergleich zu Aerosolstreuung vernachlässigt werden kann und unter der Annahme elastischer Einfachstreuung, kann die Lidargleichung in der folgenden Form geschrieben werden (Wandinger, 2005):

$$P(r) = F_S \beta(r) \frac{G(r)}{r^2} \cdot \exp\left(-2 \int_0^r \alpha(r') dr'\right) \quad (3.22)$$

$P(r)$ ist dabei die empfangene Leistung aus Entfernung r , F_S eine Systemkonstante, $\beta(r)$ der Rückstreuoeffizient, $G(r)$ die Überlappfunktion zwischen Laserstrahl und Teleskopsichtfeld und $\exp\left(-2 \int_0^r \alpha(r') dr'\right)$ stellt mit dem Extinktionskoeffizienten $\alpha(r)$ die integrierte Extinktion des Signals vom Instrument zum Streuvolumen und zurück dar. Betrachtet man nur Bereiche mit vollständiger Überlappung ab einer Höhe r_0 gilt $G(r) = 1$ und damit wird Gleichung 3.22 zu:

$$P(r) = F_S \beta(r) \frac{T_{r_0}^2}{r^2} \cdot \exp\left(-2 \int_{r_0}^r \alpha(r') dr'\right) \quad (3.23)$$

mit $T_{r_0}^2$ für die unbekannte Transmission von $r = 0$ bis r_0 . Die Einführung des Lidarverhältnisses aus Gleichung 3.19 erlaubt es, Gleichung 3.23 ohne die Abhängigkeit vom Rückstreuoeffizienten zu schreiben:

$$P(r) = F_S \frac{\alpha(r)}{L(r)} \frac{T_{r_0}^2}{r^2} \cdot \exp\left(-2 \int_{r_0}^r \alpha(r') dr'\right) \quad (3.24)$$

Nimmt man an, dass die Partikel entlang der Messstrecke einander ähneln, kann das Lidarverhältnis als Konstante S_P angesehen werden:

$$L(r) = L_P \quad (3.25)$$

Diese Annahme kann ungenau sein, wenn eine präzise Bestimmung der Extinktion nötig ist, sie ist aber genau genug, wenn die Variation der Streuzentren relativ klein ist (Kovalev u. Eichinger, 2004). Mit der Annahme eines festen Lidarverhältnisses, können die Unbekannten in der Messung in einer Konstante zusammengefasst werden:

$$F_L = \frac{F_S T_{r_0}^2}{L_P} \quad (3.26)$$

Gleichung 3.24 kann dann wie folgt geschrieben werden:

$$P(r) = F_L \frac{\alpha(r)}{r^2} \cdot \exp\left(-2 \int_{r_0}^r \alpha(r') dr'\right) \quad (3.27)$$

Im nächsten Schritt wird das entfernungskorrigierte Signal $Z(r)$ eingeführt, für das gilt:

$$Z(r) = P(r) \cdot r^2 \quad (3.28)$$

Damit wird Gleichung 3.27 zu:

$$Z(r) = F_L \alpha(r) \cdot \exp\left(-2 \int_{r_0}^r \alpha(r') dr'\right) \quad (3.29)$$

Wie bereits beschrieben muss nun der Extinktionskoeffizient $\alpha(r_b)$ in einer Referenzhöhe r_b als bekannt vorausgesetzt werden. Dann kann die Konstante F_L folgendermaßen ausgedrückt werden:

$$F_L = \frac{Z(r_b)}{\alpha(r_b) \cdot \exp\left(-2 \int_{r_0}^{r_b} \alpha(r') dr'\right)} \quad (3.30)$$

Dies eingesetzt in Gleichung 3.29 ergibt für das entfernungskorrigierte Signal:

$$Z(r) = \frac{Z(r_b) \cdot \alpha(r) \cdot \exp\left(-2 \int_{r_0}^r \alpha(r') dr'\right)}{\alpha(r_b) \cdot \exp\left(-2 \int_{r_0}^{r_b} \alpha(r') dr'\right)} \quad (3.31)$$

Sortiert man diesen Ausdruck um nach dem Verhältnis aus entfernungskorrigiertem Signal $Z(r_b)$ an der Referenzhöhe r_b zu Extinktionskoeffizient $\alpha(r_b)$ an der Referenzhöhe, erhält man:

$$\frac{Z(r_b)}{\alpha(r_b)} = \frac{Z(r)}{\alpha(r)} \cdot \frac{\exp\left(-2 \int_{r_0}^{r_b} \alpha(r') dr'\right)}{\exp\left(-2 \int_{r_0}^r \alpha(r') dr'\right)}, \quad (3.32)$$

was auch geschrieben werden kann als:

$$\frac{Z(r_b)}{\alpha(r_b)} = \frac{Z(r)}{\alpha(r)} \cdot \exp\left(-2 \int_r^{r_b} \alpha(r') dr'\right) \quad (3.33)$$

Durch Differentiation des natürlichen Logarithmus auf beiden Seiten dieser Gleichung ergibt sich eine Bernoullische Differenzialgleichung deren Lösung

$$\alpha(r) = \frac{Z(r)}{\frac{Z(r_b)}{\alpha(r_b)} + 2 \int_r^{r_b} Z(r') dr'} \quad (3.34)$$

darstellt. Somit erhält man den entfernungsabhängige Extinktionskoeffizient nur mittels des entfernungskorrigierten Signals und des Extinktionskoeffizienten in der Referenzhöhe.

3.2.5 Raman-Lidar

Wird neben der elastischen Rückstreuung an Aerosolen und Molekülen zusätzlich die inelastische Rückstreuung bedingt durch Raman-Streuung an N₂-Molekülen gemessen, kann die Raman-Lidar Methode angewandt werden. Diese benötigt aufgrund der gemessenen inelastischen Rückstreuung keine Annahme über das Lidarverhältnis und ermöglicht damit die Berechnung eines Extinktionskoeffizienten unabhängig vom Rückstreckkoeffizienten. Unter Einbeziehen der Raman-Streuung hat die Lidargleichung für Höhen mit vollständiger Überlappung zwischen Laserstrahl und Teleskopsichtfeld die Form:

$$P(r, \lambda_R) = F_S \beta_R(r, \lambda_0) \frac{1}{r^2} \cdot \exp \left(- \int_0^r \alpha(r', \lambda_0) + \alpha(r', \lambda_R) dr' \right) \quad (3.35)$$

Dabei ist $\alpha(r', \lambda_0)$ die Extinktion des emittieren Laserlichts mit Wellenlänge λ_0 auf dem Weg zum Streuzentrum und $\alpha(r', \lambda_R)$ die Extinktion des inelastisch rückgestreuten Lichts mit Wellenlänge λ_R zum Instrument. Der Raman-Rückstreckkoeffizient $\beta_R(r, \lambda_0)$ ist gegeben durch (Ansmann et al., 1992):

$$\beta_R(r, \lambda_0) = N_R(r) \frac{d\sigma_R}{d\Omega}(\pi, \lambda_0) \quad (3.36)$$

mit $N_R(r)$ als der Anzahldicke des streuenden Gases und $\frac{d\sigma_R}{d\Omega}(\pi, \lambda_0)$ als Raman-Wirkungsquerschnitt für das rückgestreute Licht. Da Extinktion die Summe aus Streuung und Absorption darstellt und sowohl bei Molekülen als auch Aerosolen auftritt, kann der Extinktionskoeffizient $\alpha(r, \lambda)$ auch in einzelne Komponenten aufgeteilt notiert werden:

$$\alpha(r, \lambda) = \alpha_{Aer, Str}(r, \lambda) + \alpha_{Aer, Abs}(r, \lambda) + \alpha_{Mol, Str}(r, \lambda) + \alpha_{Mol, Abs}(r, \lambda) \quad (3.37)$$

Werden beide Abschwächungsprozesse zusammengefasst, ergibt sich:

$$\alpha(r, \lambda) = \alpha_{Aer}(r, \lambda) + \alpha_{Mol}(r, \lambda) \quad (3.38)$$

Durch Einsetzen von 3.38 und 3.36 in die Lidargleichung 3.35 erhält man:

$$\alpha_{Aer}(r, \lambda_0) + \alpha_{Aer}(r, \lambda_R) = \frac{d}{dr} \cdot \ln \left[\frac{N_R(r)}{P(r, \lambda_R) r^2} \right] - \alpha_{Mol}(r, \lambda_0) + \alpha_{Mol}(r, \lambda_R) \quad (3.39)$$

Die spektrale Abhängigkeit der Partikelstreuung ist gegeben durch:

$$\frac{\alpha_{Aer}(\lambda_0)}{\alpha_{Aer}(\lambda_R)} = \left(\frac{\lambda_R}{\lambda_0} \right)^k \quad (3.40)$$

mit dem Wellenlängenparameter k (siehe Kapitel 3.2.3). Die Vorgabe von k ist hier nicht kritisch. Bei typischen Werten zwischen 0 und 1 ergibt sich ein relativer Fehler, der kleiner als 5 Prozent ist (Ansmann, 1999). Damit folgt nach Ansmann et al. (1990):

$$\alpha_{Aer}(r, \lambda_0) = \frac{\frac{d}{dr} \cdot \ln \left[\frac{N_R(r)}{P(r, \lambda_R) r^2} \right] - \alpha_{Mol}(r, \lambda_0) + \alpha_{Mol}(r, \lambda_R)}{1 + \left(\frac{\lambda_0}{\lambda_R} \right)^k} \quad (3.41)$$

Diese Lösung hat gegenüber dem Klett-Algorithmus den großen Vorteil, dass sie deutlich weniger fehleranfällig für a priori Annahmen wie beispielsweise das Lidarverhältnis.

Der Rückstreukoeffizient für Aerosolpartikel $\beta_{Aer}(r, \lambda_0)$ lässt sich ausgehend von dem Verhältnis

$$\frac{P(r_0, \lambda_R) P(r, \lambda_0)}{P(r_0, \lambda_0) P(r, \lambda_R)} \quad (3.42)$$

durch Einsetzen der dazugehörigen Lidargleichungen bestimmen (Ansmann et al., 1992):

$$\begin{aligned} \beta_{Aer}(r, \lambda_0) = & -\beta_{Mol}(r, \lambda_0) + [\beta_{Aer}(r_0, \lambda_0) + \beta_{Mol}(r_0, \lambda_0)] \\ & \times \frac{P(r_0, \lambda_R) P(r, \lambda_0) N_R(r)}{P(r_0, \lambda_0) P(r, \lambda_R) N_R(r_0)} \\ & \times \frac{\exp \left(- \int_{r_0}^r [\alpha_{Aer}(r', \lambda_R) + \alpha_{Mol}(r', \lambda_R)] dr' \right)}{\exp \left(- \int_{r_0}^r [\alpha_{Aer}(r', \lambda_0) + \alpha_{Mol}(r', \lambda_0)] dr' \right)} \end{aligned} \quad (3.43)$$

Der Rückstreukoeffizient für Aerosole und Moleküle muss laut 3.43 in einer Referenzhöhe vorgegeben werden. In dieser Höhe soll die Partikelstreuung im Vergleich zur Molekülstreuung gering sein.

3.3 Bestimmung von Aerosolparametern

Um Aerosolparameter aus den mittels Lidar gewonnen Informationen ableiten zu können, werden die in Kapitel 3.1 vorgestellten Streumechanismen, sowie die in Kapitel 3.2 erläuterten theoretischen Grundlagen genutzt. In den folgenden Abschnitten wird die Berechnung einiger wichtiger Aerosolparameter vorgestellt, wie sie für diese Arbeit durchgeführt wurde.

3.3.1 Aerosol Rückstreuverhältnis

Zur Beschreibung von Aerosolen aus Lidardaten muss die Streueigenschaften der Aerosole von denen der Moleküle getrennt werden. Um das Streuverhalten von Aerosolen zu beschreiben, eignet sich das Rückstreuverhältnis R . Dieses stellt das Verhältnis der Summe aus Rückstreuung von Aerosolen β_{Aer} und

Molekülen β_{Mol} zur Rückstreuung von Molekülen dar:

$$R = \frac{\beta_{Aer}(\lambda, r) + \beta_{Mol}(\lambda, r)}{\beta_{Mol}(\lambda, r)} = 1 + \frac{\beta_{Aer}(\lambda, r)}{\beta_{Mol}(\lambda, r)} \quad (3.44)$$

Daraus folgt, dass für die Abwesenheit von Aerosol $R = 1$ gilt. Die Rückstreukoeffizienten sind proportional zu den korrigierten Lidarsignalen S^λ . Damit kann Gleichung 3.44 geschrieben werden als:

$$R = \frac{S_m^\lambda + S_a^\lambda}{S_m^\lambda} = \frac{S^\lambda}{S_m^\lambda} \quad (3.45)$$

Dabei ist die Herausforderung die Bestimmung des rein molekularen Rückstreusignals S_m^λ , da das vom Lidar empfangene Signal Anteile aus Streuung an Aerosolen und Molekülen beinhaltet. Dafür wird das Signal eines Kanals verwendet, der Raman-Streuung an Stickstoff misst, da Raman-Streuung nur an Molekülen auftritt (Raman, 1928). Dieses inelastische Rückstreusignal bei der Wellenlänge λ_i ist damit gleichbedeutend mit der molekularen Rückstreuung. Die vom Lidar gemessenen Signale müssen hier also in zwei Gruppen unterteilt werden. Die Gruppe der elastisch rückgestreuten Signale S^{λ_e} , die auf Rayleigh- und Mie-Streuung bei der Wellenlänge λ_e beruhen und die Gruppe der inelastisch rückgestreuten Signale S^{λ_i} , die auf Raman-Streuung beruhen. Für letztere Gruppe gilt:

$$S^{\lambda_i} = S_m^{\lambda_i}, \quad (3.46)$$

da die Rückstreuung nur an Molekülen stattfindet.

Dieser Ansatz setzt allerdings eine gleich große Signalstärke für das elastische wie für das inelastische Signal voraus. Dies ist in der Realität nicht gegeben, da der Raman-Streuquerschnitt um mehrere Größenordnungen kleiner ist und damit das Signal ebenfalls deutlich geringer ausfällt. Da beide Signale jedoch auf Molekülstreuung beruhen, sind sie proportional zueinander und können aufeinander normiert werden. Diese Normierung muss in einer aerosolfreien Höschicht z_F durchgeführt werden, um einen möglichen Einfluss der Aerosole auf die Normierung und damit eine Verfälschung der Berechnung des Rückstreuverhältnisses zu vermeiden. In dieser Höhe gilt:

$$S^{\lambda_e} \Big|_{z=z_F} = S_m^{\lambda_e} \Big|_{z=z_F}, \quad (3.47)$$

Die Normierungshöhe ist in anderen Arbeiten bei 30 km und darüber anschließend angegeben (Barnes u. Hofmann, 1997, Khaykin et al., 2017, McCormick et al., 1984). In dieser Arbeit liegt die Referenzhöhe bei 34 km bis 38 km. In diesem Bereich ist das inelastische Signal noch ausreichend groß und die gesamte Aerosolschicht befindet sich darunter. Zusätzlich zu dieser relativ hohen Referenzhöhe findet die Normierung in zwei Schritten statt. Zunächst wird das mittlere Signalverhältnis über den Bereich der Referenzhöhe gebildet, anschließend werden Werte dieses Verhältnisses aussortiert, die weiter als eine Standardabweichung vom Mittelwert des Signalverhältnisses im Referenzbereich abweichen. Somit wird der Einfluss von Aerosol, welches eventuell bis in die Referenzhöhe reicht, minimiert (Langenbach et al., 2019). Die Normierung lässt sich durch eine Proportionalitätskonstante F ausdrücken:

$$F_{\lambda_i}^{\lambda_e} = \left\langle \frac{S^{\lambda_e}}{S^{\lambda_i}} \right\rangle_{z=z_F} \quad (3.48)$$

Damit kann $S_m^{\lambda_e}$ in jeder Höhe wie folgt bestimmt werden:

$$S_m^{\lambda_e} = F_{\lambda_i}^{\lambda_e} \cdot S^{\lambda_i} \quad (3.49)$$

Gleichung 3.44 ändert sich also zu:

$$R_{\lambda_i}^{\lambda_e} = \frac{S^{\lambda_e}}{F_{\lambda_i}^{\lambda_e} \cdot S^{\lambda_i}} \quad (3.50)$$

Abbildung 3.3.1 stellt die eben vorgestellte Herleitung zusätzlich schematisch dar.

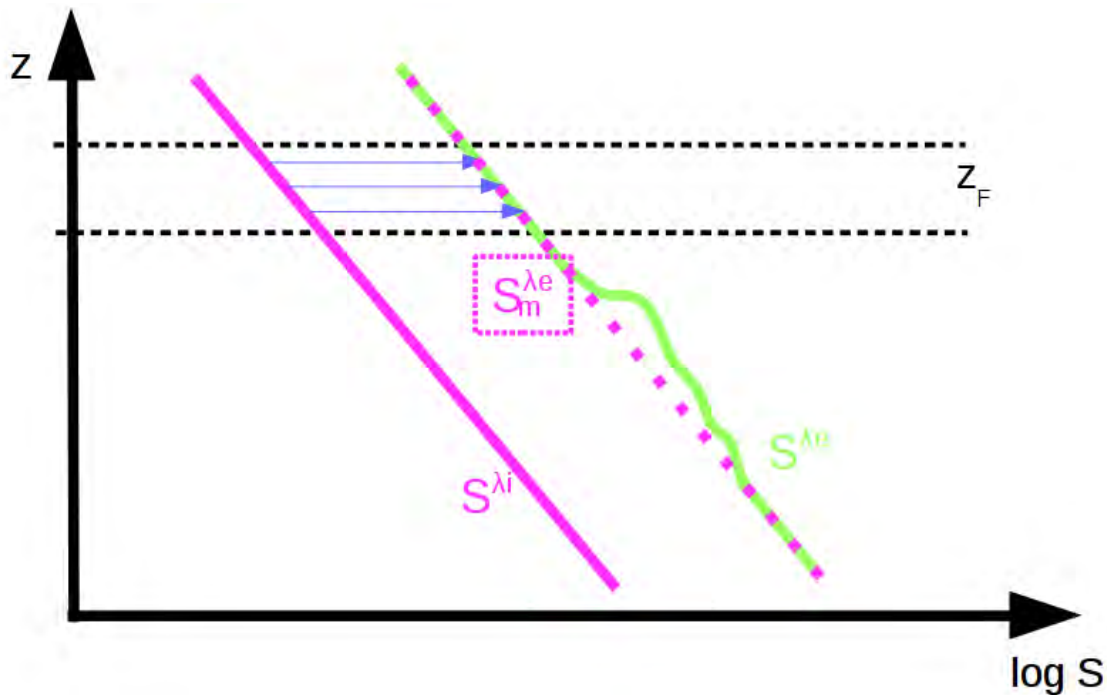


Abbildung 3.3.1: Schema zur Berechnung des Rückstreuverhältnisses R . Dargestellt sind logarithmisch aufgetragene Signale aus Raman-Streuung (S^{λ_i} , pink) und aus Rayleigh- und Mie-Streuung (S^{λ_e} , grün) über die Höhe z . Im oberen Bereich deuten blaue Pfeile die Normierung durch den Faktor $F_{\lambda_i}^{\lambda_e}$ im Höhenbereich z_F an. Durch die Normierung wird das Molekülsignal $S_m^{\lambda_e}$ bestimmt (pink, gestrichelt), mit dem das Rückstreuverhältnis berechnet werden kann. Der dargestellte Unterschied zwischen $S_m^{\lambda_e}$ und S^{λ_e} wird durch Rückstreuung von Aerosolen verursacht und im Rückstreuverhältnis wieder gegeben.

In Abbildung 3.1.2 wurde die Abhängigkeit des Streuquerschnitts vom Teilchengrößenparameter und damit der Wellenlänge des Lasers gezeigt. In Bezug auf das Rückstreuverhältnis hat dies die Auswirkung, dass eine größere Wellenlänge eine geringere molekulare Rückstreuung zur Folge hat, während die Partikelrückstreuung von der Laserwellenlänge weniger beeinflusst wird. Daraus folgt ein größeres Rückstreuverhältnis je größer die Wellenlänge des elastisch rückgestreuten Signals ist. Dieser Zusammenhang wird in späteren Auswertungen bei der Wahl der optimalen Wellenlängen von Belang.

3.3.2 Farbverhältnis

Äquivalent zu Gleichung 3.50 wird das Farbverhältnis C definiert:

$$C_{\lambda_{e'}}^{\lambda_e} = \frac{S^{\lambda_e}}{F_{\lambda_{e'}}^{\lambda_e} \cdot S^{\lambda_{e'}}}, \quad (3.51)$$

mit λ_e und $\lambda_{e'}$ als zwei unterschiedliche, elastisch rückgestreute Laserwellenlängen. Das Farbverhältnis beschreibt also das Verhältnis der Signale von zwei elastisch rückgestreuten Wellenlängen. Mögliche Kombinationen sind C_{355}^{1064} , C_{532}^{1064} und C_{355}^{532} . Auch beim Farbverhältnis müssen die Signale zueinander normiert werden. Dies geschieht äquivalent zum Rückstreuverhältnis in einem Höhenbereich z_F von 34 bis 38 km.

3.3.3 Aerosol-Rückstreu- und Extinktionskoeffizient

Wird das Rückstreuverhältnis mit dem aktuellen Zustand der Atmosphäre verknüpft, ist es möglich den Rückstreuoeffizienten der Aerosole und unter weiteren Annahmen auch den Extinktionskoeffizienten zu bestimmen. Aus Gleichung 3.44 folgt:

$$\beta_{Aer}(\lambda, r) = (R - 1) \cdot \beta_{Mol}(\lambda, r) \quad (3.52)$$

Der Rückstreuoeffizient für Molekülstreuung berechnet sich aus der aktuellen Luftdichte $\rho(r)$ und dem elastischen Streuquerschnitt von Luft σ für Rückwärtsstreuung:

$$\beta_{Mol}(\lambda, r) = \rho(r) \cdot \left. \frac{d\sigma}{d\Omega} \right|_{180^\circ}(\lambda) \quad (3.53)$$

Eingesetzt in Gleichung 3.52 ergibt sich für den Aerosol-Rückstreuoeffizienten:

$$\beta_{Aer}(\lambda, r) = (R - 1) \cdot \rho(r) \cdot \left. \frac{d\sigma}{d\Omega} \right|_{180^\circ}(\lambda) \quad (3.54)$$

Mit dem in Gleichung 3.19 definierten Lidarverhältnis L lässt sich der Aerosol-Extinktionskoeffizient leicht berechnen. Das Lidarverhältnis wird hier zunächst als höhenkonstant angenommen:

$$\alpha_{Aer}(\lambda, r) = (R - 1) \cdot \rho(r) \cdot \left. \frac{d\sigma}{d\Omega} \right|_{180^\circ}(\lambda) \cdot L \quad (3.55)$$

Die zur Berechnung nötige Luftdichte wird aus Daten des Integrated Forecasting System des European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF) für die Position des ALOMAR Observatoriums gewonnen. Das Lidarverhältnis ist von der genutzten Wellenlänge abhängig und wird aus Aerosolsimulationen des Modells WACCM¹ errechnet. Die daraus gewonnen Werte sind:

$$\begin{aligned} \lambda = 355 \text{ nm} &\rightarrow L_{355} = 43.9697 \\ \lambda = 532 \text{ nm} &\rightarrow L_{532} = 57.1076 \\ \lambda = 1064 \text{ nm} &\rightarrow L_{1064} = 37.9379 \end{aligned}$$

¹ „Whole Atmosphere Community Climate Model“

In die Simulation von WACCM gehen bestimmte Annahmen über die Beschaffenheit der Aerosole ein. Diese gemachten Annahmen, wie beispielsweise für den Brechungsindex oder die Größenverteilung der Aerosolpartikel, haben Einfluss auf die errechneten Lidarverhältnisse und damit auf den Extinktionskoeffizienten. Dieser Umstand stellt die Allgemeingültigkeit der Ergebnisse in Frage. Daher werden die berechneten Werte für die Extinktionskoeffizienten in dieser Arbeit nicht vorgestellt. Es werden in späteren Kapitel ausschließlich die bestimmten Rückstreuverhältnisse und Rückstreukoeffizienten präsentiert.

3.4 Das ALOMAR RMR Lidar

Das verwendete Lidar ist ein RMR Lidar. RMR steht für die dabei genutzten Streuprozesse Rayleigh, Mie und Raman. Das Lidar ist Bestandteil des ALOMAR Observatoriums (*Arctic Lidar Observatory for Middle Atmosphere Research*) im Norden der norwegischen Insel Andøya unweit der Stadt Andenes. ALOMAR befindet sich auf dem Berg Ramnan in 380 Meter Höhe über dem Meeresspiegel. Das Instrument ist aufgrund seiner abgeschiedenen Lage in der Arktis sehr komplex, da ein hoher Automatisierungsgrad und eine große Verlässlichkeit nötig ist. Daher wird das Lidar hier nur kurz beschrieben, genauere Beschreibungen des Systems und einzelner Untersysteme sind in Fiedler u. von Cossart (1999), von Zahn et al. (2000), Fiedler et al. (2008) und Baumgarten (2010) zu finden.

3.4.1 Aufbau

Ein Lidar wird gemäß den verschiedenen Aufgaben in drei Bereiche gegliedert: Sendezweig, Empfangszweig und Nachweiszweig. Der Sendezweig umfasst den Sendelaser und die Auskoppelspiegel, die den Laserstrahl in die Atmosphäre leiten. Der Empfangszweig besteht aus dem Teleskop mit der Fokalbox, in der das Licht in die Glasfaser eingekoppelt wird, und der Glasfaser selber. Die Komponenten auf der optischen Bank bilden zusammen mit der Zählelektronik den Nachweiszweig. Eine schematische Übersicht des ALOMAR RMR Lidars ist in Abbildung 3.4.1 dargestellt. Das System besteht aus zwei identischen Lasern² und zwei Teleskopen, um das rückgestreute Licht aufzufangen. Dieses wird dann auf ein einzelnes System zur Detektion geleitet.

Die beiden Nd:YAG³ Laser emittieren durch Frequenzverdopplung und Frequenzverdreifachung Licht in drei Wellenlängen gleichzeitig (1064 nm, 532 nm und 355 nm). Die Laser werden spektral stabilisiert, indem sie durch einen Seedlaser⁴ zur Emission auf dessen Wellenlänge (1064 nm) angeregt werden. Der Seedlaser ist dabei auf eine Absorptionslinie von Jod stabilisiert. Die Laserpulse sind ungefähr 10 ns lang und die Pulswiederholfrequenz beträgt 30 Hz. Ein Puls hat dabei eine Energie von circa 1.6 J, was einer maximalen Leistung von 160 MW entspricht. Um die Divergenz des Laserstrahls zu reduzieren, wird er durch ein Aufweitungsteleskop⁵ auf 20 cm verbreitert. Die Divergenz des Strahls beträgt dann weniger als 70 μ rad. Das Licht wird anschließend über mehrere motorisierte Spiegel (BGM⁶) an einen Punkt oberhalb der Empfangsteleskope geleitet und von dort in die Atmosphäre emittiert. Der Laserstrahl wird also coaxial zum Gesichtsfeld der Teleskope ausgesendet, um die Überlappung von Gesichtsfeld der Teleskope und

²Quanta-Ray PRO-290-30 von Spectra Physics

³Neodym-dotierter Yttrium-Aluminium-Granat, Nd:Y₃Al₅O₁₂

⁴Prometheus 100NE von Innolight GmbH

⁵AWT in Abbildung 3.4.1

⁶engl. „beam guiding mirror“ - strahlleitende Spiegel

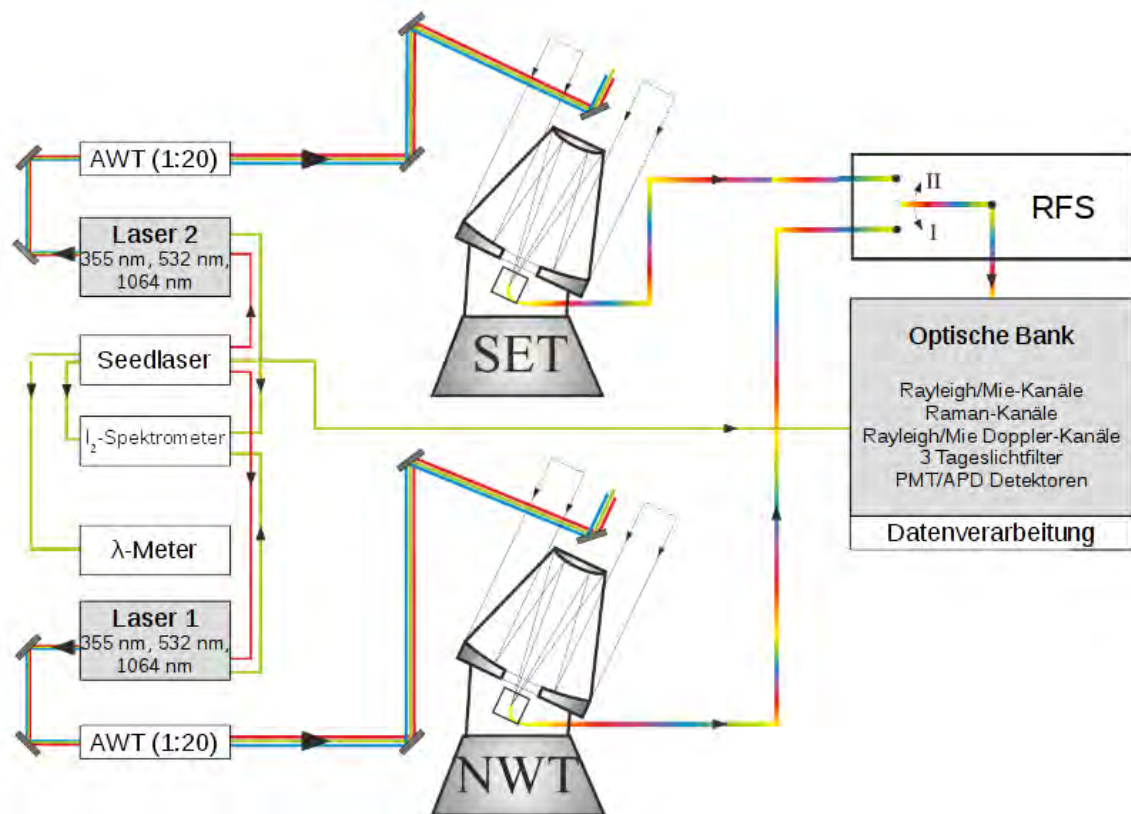


Abbildung 3.4.1: Übersicht des ALOMAR RMR Lidar Aufbaus. Nach Hildebrand (2014). Details werden im Text beschrieben.

Laserstrahl zu maximieren. Dadurch wird ein sehr kleines Gesichtsfeld der Teleskope möglich (voller Öffnungswinkel 180 μ rad bis 2013, 100 μ rad seitdem), was zu einer effektiven Unterdrückung des solaren Untergrundes führt und dafür sorgt, dass das Lidar möglichst wenig Sonnenlicht empfängt. Im Messbetrieb sorgen thermische Verformungen des Systems jedoch dafür, dass der Strahl von der Teleskopblickrichtung abweicht. Der Laserstrahl muss also auch räumlich stabilisiert werden. Dazu nimmt eine CCD-Kamera⁷ ein Bild des Laserstrahls in ungefähr einem Kilometer Höhe auf. Daraus wird der Intensitätsschwerpunkt des rückgestreuten Lichts bestimmt und falls dieser von der Sollposition abweicht, wird er durch eine Anpassung der Position der BGM korrigiert.

Bei den Teleskopen handelt es sich um Cassegrain-Teleskope mit einem Durchmesser von 1.8 m. Diese können um bis zu 30° aus dem Zenit geneigt werden und sind in verschiedene Richtungen schwenkbar. Das NWT⁸ kann Beobachtungen im Nord-West-Quadranten und das SET⁹ Beobachtungen im Süd-Ost-Quadranten durchführen. Dadurch können zum Beispiel Untersuchungen in Volumen durchgeführt werden, die gleichzeitig von raketentragenen in situ Experimenten untersucht werden (Baumgarten et al., 2002). Das empfangene Licht der Teleskope wird in eine Glasfaser eingekoppelt und auf die optische Bank geleitet.

⁷ engl. „charged coupled device“ - ladungsgekoppeltes Bauteil

⁸ North-West-Telescope

⁹ South-East-Telescope

Rotations-Raman-Streuung an Stickstoff der emittierten Wellenlänge 532 nm. Steigt die Sonne auf über -5° wechselt das Lidar automatisch in die Tageslichtkonfiguration. Hierbei können nur noch die elastisch rückgestreuten Wellenlängen detektiert werden (355 nm, 532 nm und 1064 nm), da der Rückstreuoeffizient der inelastischen Streuprozesse deutlich kleiner ist (siehe Kapitel 3.1.1) und in Anwesenheit von Sonnenlicht nicht mehr detektiert werden kann. Wird das Lidar in Tageslichtkonfiguration betrieben, wird das Licht durch Etalons geleitet. Diese Tageslichtfilter sind in Abbildung 3.4.2 durch graue Rechtecke dargestellt und machen Messungen bei Tageslicht erst möglich.

Für die meisten Wellenlängen sind mehrere Detektoren vorhanden, die über unterschiedliche Sensitivität verfügen. Davor sind teilweise reflektierende Strahlteiler aufgebaut, die die ankommenden Photonen auf die verschiedenen Detektoren aufteilen. Das ist notwendig, da der Messbereich des Lidars, der von zwei bis ungefähr 90 km reicht, zu groß für einen einzelnen Detektor ist. Die Sensitivität zwischen drei Detektoren gleicher Wellenlänge verhält sich ungefähr im Verhältnis 1:30:900, wobei der Kanal für die größte Höhe auch die größte Sensitivität aufweist. Die Kanäle werden nach verschiedenen Zeiten nach dem Aussenden des Laserpulses aktiviert und nehmen so nur Licht ab einer bestimmten Höhe auf. Insgesamt existieren 17 Detektoren für acht Wellenlängen. Die Detektoren sind PMTs¹¹ und empfindlichere APDs¹² welche die Intensität des Lichts und damit die Anzahl der Photonen in Spannungspulse umwandeln. Diese Pulse werden dann von der Elektronik in Abhängigkeit von der Laufzeit des Lichts gezählt und abgespeichert. Die Temperatur im Raum der optischen Bank wird konstant gehalten, um thermische Expansion zu verhindern, die die Justage des Systems beeinflussen würde.

3.5 Andere Methoden zur stratosphärischen Aerosolmessung

Neben Lidarmessungen, die vertikal aufgelöste Messungen der Rückstreuung von Aerosolen liefern, werden stratosphärische Aerosole auch durch in situ Instrumente untersucht. Diese werden von Ballonen oder Flugzeugen getragen und können Partikelgrößenverteilungen direkt messen. Daraus lassen sich weitere Größen wie die Oberflächendichte und die Volumendichte ableiten. Die Größe der Aerosolpartikel wird dabei aus der Intensität des gestreuten Lichtes abgeleitet, wobei kugelförmige Partikel und Mie-Streuung angenommen werden. Da die Messinstrumente auf Ballonen und vereinzelt auch auf Flugzeugen installiert werden müssen, unterliegen die Messungen räumlichen und zeitlichen Einschränkungen.

Im Gegensatz dazu können satellitengetragene Messinstrumente globale Aerosolverteilungen bestimmen, die einen großen Zeitraum abdecken. Dabei werden meist solare Okkultationsmessungen genutzt, um optische Parameter der Aerosole zu ermitteln. Das Ergebnis ist eine monatlich erstellte, globale Karte der stratosphärischen Aerosolverteilung. Nachteil einer solchen Messtechnik ist allerdings, dass die Messung über einen großen räumlichen Bereich gemittelt werden muss und sich somit nur bedingt zum Vergleich mit lokalen Messungen eignet.

Eine Übersicht der verschiedenen Methoden der stratosphärischen Aerosolmessungen findet sich in Tabelle 3.2.

¹¹engl: „photomultiplier tubes“

¹²engl: „avalanche photodiodes“

Messtechnik (Messgröße)	Instrument	Zeitraum	Position	Referenz
satellitengetragen (Extinktion)	SAGE II GOMOS OSIRIS	1985 bis 2005 2002 bis 2012 2001 bis 2015	global global global	Thomason et al. (2008) Kyrölä et al. (2004) Bourassa et al. (2007)
flugzeuggetragen (Größenverteilung)	CARIBIC	1997 bis 2002	60°N bis 90°N	Hermann u. Wiedensohler (2001)
ballongetragen (Größenverteilung)	UWOPC	seit 1971	41°N, 105°W	Deshler et al. (2003)
Lidar (Rückstreuung)	Ny Alesund Haute Provence Garmisch Mauna Loa	seit 1991 seit 1991 seit 1977 seit 1975	78°N, 11°O 44°N, 6°O 47°N, 11°O 19°N, 155°W	Hoffmann et al. (2010) Khaykin et al. (2017) Trickl et al. (2013) Barnes u. Hofmann (1997)

Tabelle 3.2: Übersicht über Messtechniken zur stratosphärischen Aerosolmessung (Auswahl).

Auch am Standort des Leibniz Instituts für Atmosphärenphysik (IAP) in Kühlungsborn (54°N, 11.7°O) wird ein RMR-Lidar betrieben. Seit 1997 wird es zur Bestimmung von Temperaturen, Nachtleuchtenden Wolken sowie troposphärischen und stratosphärischen Aerosolen genutzt. Die Emission erfolgt mit einer Wiederholrate von 30 Hz bei einer Wellenlänge von 532 nm. Detektiert werden sowohl rückgestreute Photonen bei 532 nm als auch die an Stickstoff inelastisch rückgestreuten Photonen bei 608 nm. Im Rahmen dieser Arbeit wird ein Teil des Datensatzes des Lidars in Kühlungsborn mit den Daten des ALOMAR RMR Lidars verglichen.

4 Bestimmung der stratosphärischen Aerosolschicht über ALOMAR

Das ALOMAR RMR Lidar wird seit Juni 1994 zur Untersuchung der Atmosphäre genutzt. Seitdem wurden Sendezweig, Empfangszweig und Nachweiszweig kontinuierlich erweitert und verbessert. In dieser Arbeit wird der Messzeitraum vom Jahr 2000 bis zum Jahr 2018 betrachtet. In dieser Zeit wurde das Lidar insgesamt 12530 Stunden betrieben. Im folgenden Kapitel wird die Prozessierung der gewonnenen Daten beschrieben. Außerdem wird dargestellt, welche Schritte zur Validierung der Auswertemethodik unternommen wurden. Anhand einer Beispielmessung wird das Ergebnis der Datenanalyse vorgestellt.

4.1 Datenprozessierung

4.1.1 Korrekturen und Umrechnungen

Die gesammelten Rohdaten aus der Lidarmessung haben zunächst eine Höhenauflösung von 50 m. Für jeden Zeitschritt von ungefähr 33 Sekunden werden die gesammelten Photonen von 1000 Laserschüssen aufsummiert. Diese Daten werden auch als Level0-Daten bezeichnet. Sie werden für beide Systeme und jeweils 17 Kanäle mit einem freien Zeit- und Höhenraster gespeichert.

Die dann folgende Datenprozessierung korrigiert bestimmte instrumentelle Effekte. Außerdem werden die Daten auf ein festes Zeit- und Höhengitter umgerechnet. Dies wird in den folgenden Punkten genauer beschrieben.

- **Totzeitkorrektur:**

Das RMR Lidar nutzt PMTs und APDs als Detektoren, um die von den Teleskopen empfangenen Photonen zu zählen. Nachdem ein Photon detektiert wurde, muss eine minimale Zeitspanne vergehen, bevor ein weiteres Photon detektiert werden kann. Wenn zwei Photonen innerhalb einer kürzeren Zeit am Detektor ankommen, kann das zweite Photon nicht gezählt werden. Diese Totzeit τ beträgt für die verwendeten Detektoren zwischen 4 und 50 ns. Die korrigierte Anzahl an gezählten Photonen N wird aus der Totzeit und der Zählrate N_c berechnet (Kovalev u. Eichinger, 2004):

$$N = \frac{N_c}{1 - \tau \cdot N_c} \quad (4.1)$$

Da die Zählraten für eine bestimmte Messdauer angegeben werden, haben sowohl N als auch N_c die Einheit $1/s$. Da der Effekt der Totzeitkorrektur von der Zählrate abhängt, ist er stark höhenabhängig und am stärksten an der untersten Kante der Kanäle, wo die Zählrate am größten ist. Er kann dort bis zu fünf Prozent des Signals ausmachen (Schöch, 2007).

- **Subtraktion des Hintergrundes:**

Die Teleskope sammeln neben dem emittierten Laserlicht auch Photonen anderer Quellen ein. Dies können gestreute solare Photonen, Licht von Sternen oder Nachthimmelsleuchten sein. Aus Höhen größer als 100 km wird kein Laserlicht mehr empfangen. Daher kann das mittlere Signal aus dieser Höhenschicht als Hintergrundsignal aufgefasst werden. Dieser Hintergrund wird vom Signal in darunter liegenden Höhen abgezogen.

- **Korrektur der Rayleigh-Extinktion:**

Auf seinem Weg durch die Atmosphäre wird das Laserlicht stetig durch Extinktion abgeschwächt. Es werden also Photonen durch Streuung an Luftmolekülen aus dem Laserstrahl heraus gestreut. Das zurück gestreute Licht auf dem Weg zum Teleskop erfährt den selben Effekt. Die Stärke dieses Effekts hängt einerseits von der Luftdichte und damit von der Höhe ab (Penndorf, 1957). Andererseits spielt die Wellenlänge des Lichtes eine wichtige Rolle, da der Rayleigh-Streuquerschnitt von dieser abhängt (siehe Kapitel 3.1.1). Je geringer die Wellenlänge, desto stärker ist die Rayleigh-Extinktion. Ab 40 km kann die Rayleigh-Extinktion wegen der geringen Luftdichte vernachlässigt werden. Darunter wird die Rayleigh-Extinktion korrigiert, indem Luftdichteprofile des ECMWF heran gezogen werden. Diese werden aus dem Integrated Forecasting System (IFS) des ECMWF auf stündlicher Basis für die Position des Lidars extrahiert.

- **Korrektur der Ozon-Extinktion:**

Die Ozonschicht in der Stratosphäre schwächt das Lidarsignal durch Extinktion ebenfalls ab. Im Wellenlängenbereich des Lidars haben die Chappuis-Banden zwischen 400 und 900 nm einen Einfluss auf das Signal. Dies betrifft demnach die detektierten Photonen der beiden Wellenlängen 532 nm und 608 nm (Brion et al., 1998). Der Effekt wird mittels O_3 -Absorptionsquerschnitten aus Gorshelev et al. (2014) korrigiert. Außerdem werden Profile der Ozon-Mischungsverhältnisse über ALOMAR benötigt. In einer ersten Auswertung wurde dafür zunächst Daten aus einem mittleren Jahresgang der O_3 -Mischungsverhältnisse verwendet (Rosenlof et al., 2015). Es zeigte sich allerdings, dass dieses Vorgehen zu unrealistischen Rückstreuverhältnissen führt, da das wirkliche Ozonprofil signifikant vom klimatologischen Mittel abweicht. Für die Auswertung werden daher, wie bei der Rayleigh-Extinktion, stundengenaue ECMWF-Daten der Ozon-Mischungsverhältnisse für die Position von ALOMAR verwendet, was zu einer deutlichen Verbesserung der Qualität der Ergebnisse führt.

- **Umrechnung auf festes Zeit- und Höhenraster:**

Sowohl die gespeicherten Lidardaten als auch sämtliche verwendete Modelldaten werden auf ein festes Zeitraster umgerechnet. Dieses hat eine Auflösung von fünf Minuten und orientiert sich an der koordinierten Weltzeit (UTC). Das bedeutet, dass ein Zeitschritt nach der Umrechnung immer am nächstgelegenen glatten Zeitpunkt startet (z.B 10:00 Uhr oder 23:35 Uhr). Auch die bisherige Entfernungsauflösung von 50 m wird umgerechnet. Dabei wird in Betracht gezogen, dass die Teleskope bei der Messung aus dem Zenit heraus bis zu 30° geschwenkt werden können. In diesem Fall entspricht die Entfernung des Streuvorgangs vom Teleskop nicht mehr der absoluten Höhe, wie es der Fall ist, wenn der Laserstrahl senkrecht in die Atmosphäre emittiert wird. Bei der Prozessierung wird die korrekte Höhe, aus der das Photon zurück gestreut wurde, aus der Laufzeit und dem Neigungswinkel des Teleskops ermittelt. Die Höhenauflösung ändert sich nach der Umrechnung auf 150 m.

4.1.2 Kombination von Kanälen

Wie in Kapitel 3.4.2 beschrieben, existieren mehrere Kanäle mit unterschiedlicher Sensitivität für unterschiedliche Höhenschichten pro Wellenlänge. Die optische Bank des RMR Lidars ist vereinfacht noch einmal in Abbildung 4.1.1 dargestellt. Die Abbildung ist dabei auf die Kanäle reduziert worden, die für diese Arbeit verwendet werden. Dies trifft nicht auf die Kanäle zu, die Rotations-Raman-Streuung nutzen und Photonen der Wellenlängen 529 und 530 nm detektieren.

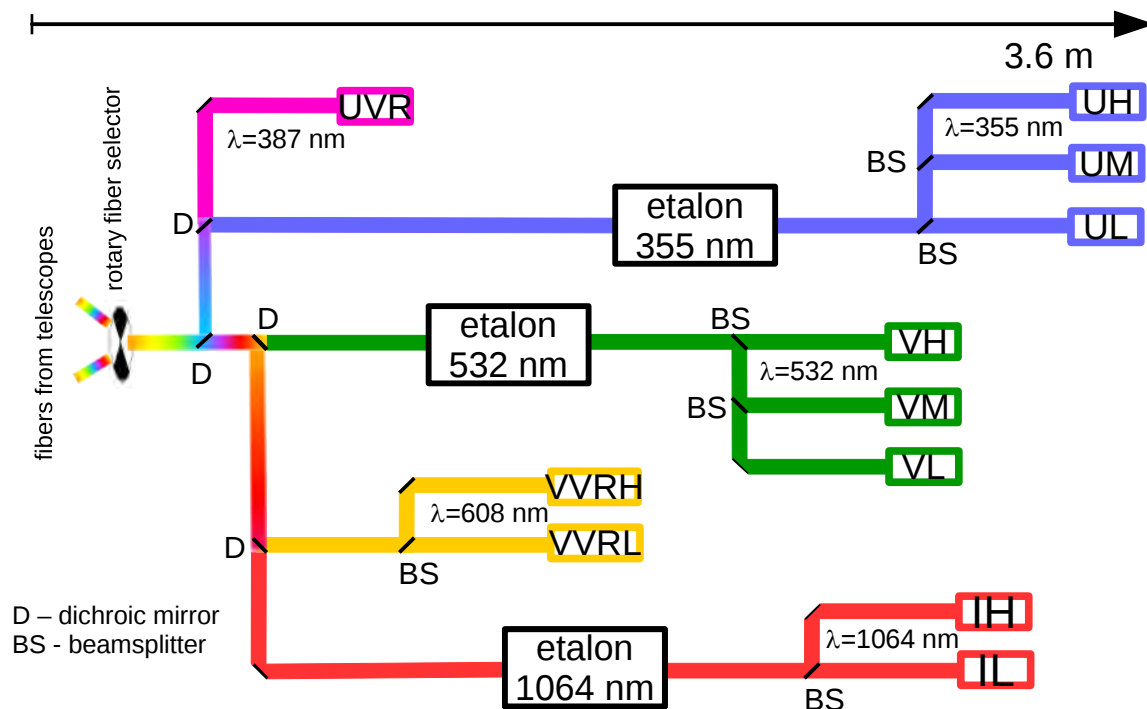


Abbildung 4.1.1: Vereinfachter schematischer Aufbau der optischen Bank des ALOMAR-RMR Lidars. Das von den Teleskopen gesammelte Licht wird links in die optische Bank eingespeist. Dann wird es nach Wellenlänge durch dichroitische Spiegel (D) und nach Intensität durch Strahlteiler (BS) aufgeteilt. Wird das Lidar in Tageslichtkonfiguration betrieben, wird das Licht durch Etalons geleitet, um den solaren Hintergrund zu unterdrücken. Am Ende jedes Detektionszweiges werden die Photonen durch APDs und PMTs in elektrische Impulse umgewandelt. Die Namen der Detektoren werden wie folgt gebildet: der erste Buchstabe steht für den Spektralbereich (I - infrarot, V - sichtbar, U - ultraviolett) und der letzte für die Sensitivität (L - niedrig (low), M - mittel, H - hoch). Die Buchstaben VR stehen für Vibrations-Raman-Streuung.

Da es für die weitere Analyse der Lidardaten hinsichtlich stratosphärischem Aerosol von Vorteil ist mit einem durchgängigen Signalprofil zu arbeiten, werden die Kanäle für die verschiedenen Höhen bei gleicher Wellenlänge miteinander kombiniert. Dazu wird das Signal des niedrigeren Kanals auf das des höheren Kanals normiert. Dies geschieht im Höhenbereich in dem beide Kanäle ein ausreichendes Signal mit einer relativen Unsicherheit von $\Delta S/S < 0.1$ aufweisen. Die Messunsicherheit ΔS wird aus der Anzahl der gezählten Photonen ermittelt, wobei eine Poisson-Verteilung angenommen wird. Diese Unsicherheit der Rohdaten wird ebenfalls durch die oben beschriebenen Schritte prozessiert.

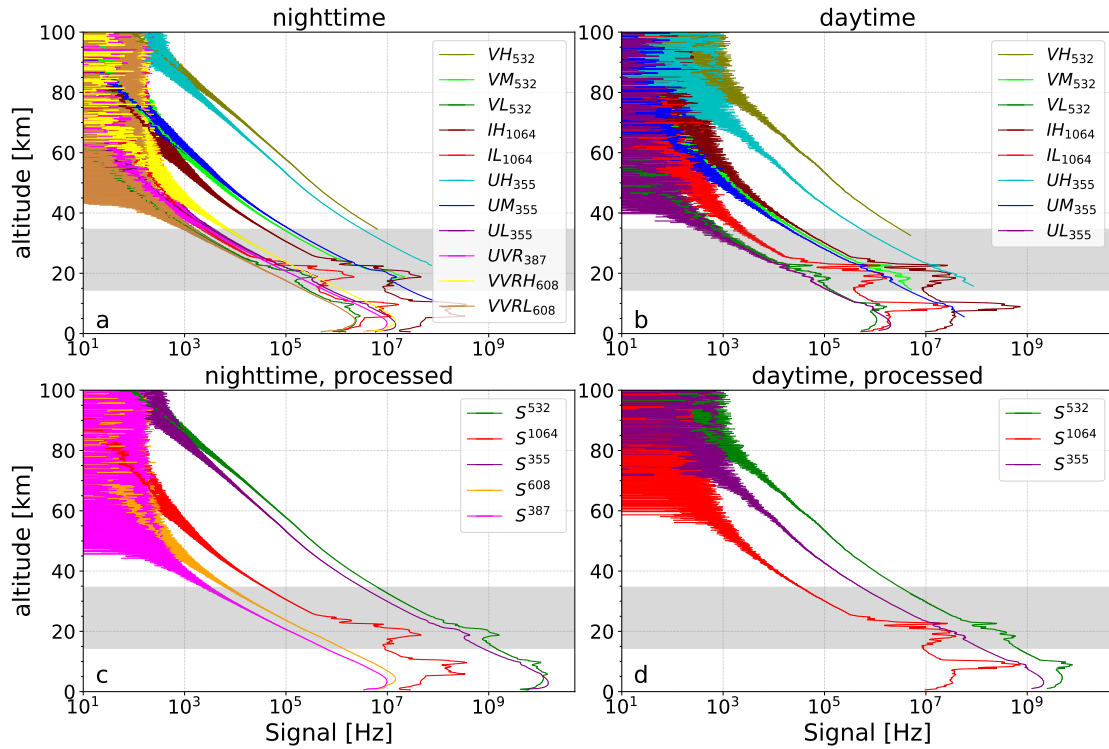


Abbildung 4.1.2: Gemittelte Höhenprofile des Rückstreusignals für verschiedene Kanäle des RMR Lidars für eine 17-stündige Messung im Januar 2018. Die obere Reihe (a und b) zeigt die Zählraten der Kanäle auf der optischen Bank, die untere Reihe (c und d) die berechneten Zählraten der kombinierten Kanäle. Links (a und c) dargestellt sind ungefähr 10 Stunden an Nachtmessungen und rechts (b und d) ungefähr 7 Stunden an Tagesmessungen. Grau hinterlegt ist der Höhenbereich der stratosphärischen Aerosolschicht. Die Erhöhungen in den Rückstreuprofilen (besonders stark bei 1064 nm) sind auf troposphärische Wolken (unter 15 km) und polare Stratosphärenwolken zurück zu führen.

Der Prozess ist in Abbildung 4.1.2 zu erkennen. In der oberen Reihe sind die Rückstreusignale für die einzelnen Kanäle der optischen Bank dargestellt, links für den Messzeitraum mit Nachtkonfiguration (a) und rechts für den Zeitraum mit Tageslichtkonfiguration (b). Man erkennt zunächst, dass bei Tageslichtbedingungen die Ramankanäle nicht betreiben werden und somit nicht dargestellt werden. In der unteren Reihe von Abbildung 4.1.2 sind die Signale der prozessierten Kanäle dargestellt, erneut links für den Messzeitraum mit Nachtkonfiguration (c) und rechts für den Zeitraum mit Tageslichtkonfiguration (d). Es gibt nun für jede Wellenlänge nur noch genau ein Profil. Der grau hinterlegte Bereich in Abbildung 4.1.2 zwischen 15 und 34 km stellt den Höhenbereich der stratosphärischen Aerosolschicht dar. Man erkennt, dass die Unsicherheit der Signale erst darüber stark zunimmt. Bei S^{387} geschieht dies zuerst, und zwar bei ungefähr 40 km. Die Größe der Unsicherheit ist allerdings abhängig von der Länge der Messung. Es handelt sich hier um ungefähr sieben Stunden Messung bei Tageslichtbedingungen. Bei einer kürzeren Messzeit nimmt die Unsicherheit zu. Als Ergebnis einer Lidarmessung bei Tageslichtbedingungen erhält man demnach drei durchgehende Rückstreuprofile: S^{355} , S^{532} und S^{1064} . Bei einer Messung mit Nachtkonfiguration erhält man zusätzlich die Profile S^{387} und S^{608} . Eigenschaften der Kanäle und eine Übersicht der prozessierten Signale sind in Tabelle 4.1 zusammengefasst.

Signal	Kanal auf der optischen Bank	Streuprozess	Tageslichtfähigkeit
S^{355}	UL ₃₅₅ UM ₃₅₅ UH ₃₅₅	elastisch (Rayleigh und Mie)	ja
S^{532}	VL ₅₃₂ VM ₅₃₂ VH ₅₃₂	elastisch (Rayleigh und Mie)	ja
S^{1064}	IL ₁₀₆₄ IH ₁₀₆₄	elastisch (Rayleigh und Mie)	ja
S^{387}	UVR ₃₈₇	inelastisch (Raman)	nein
S^{608}	VVRL ₆₀₈ VVRH ₆₀₈	inelastisch (Raman)	nein

Tabelle 4.1: Überblick über die Messkanäle des ALOMAR RMR Lidars, welche für die Auswertung hinsichtlich der stratosphärischen Aerosole von Belang sind. Indizes bezeichnen die jeweilige Wellenlänge in nm.

4.2 Validierung der Auswertemethodik

Die Methodik zur Berechnung der Rückstreuprofile (Kapitel 3.3), sowie die Qualität der durchgeführten Korrekturen (Kapitel 4.1) werden mit Hilfe einer Simulation überprüft. Dazu werden die Rückstreuesignale einer sechsständigen Messung aus dem Januar 2016 genutzt. Das Signal wird für jeden einzelnen Kanal simuliert, indem Luftdichtewerte aus dem Modell MSISE-00¹ genutzt werden (Picone et al., 2002). Die Dichteprofile aus MSISE-00 werden auf die Lidardaten normiert, womit ein teilsimulierter Datensatz für jeden Kanal entsteht. Dieser ist zunächst komplett frei von Aerosolen. Auch werden beeinflussende Effekte wie die Rayleigh-Extinktion oder Ozon-Extinktion vorerst außer acht gelassen. Der Ansatz ist, diese Effekte einzeln, nacheinander zu simulieren, um ihren Einfluss zu erkennen und die Richtigkeit der Korrekturen zu überprüfen.

Im ersten Schritt werden Daten für Kanäle mit gleicher Wellenlänge miteinander kombiniert, wie in Kapitel 4.1.2 beschrieben. Anschließend wird für verschiedene Wellenlängenkombinationen das Rückstreuverhältnis mittels Formel 3.50 berechnet. Als aerosolfreie Normierungshöhe wird der Bereich zwischen 30.5 km und 34.5 km angenommen. Für jeden Kanal wird ein zeitlich gemitteltes Profil gebildet. Das Ergebnis ist in Abbildung 4.2.1 dargestellt. Links sind die Profile der Rückstreuverhältnisse gezeigt, bei denen S^{355} zur Berechnung genutzt wurde, in der Mitte wurde S^{532} genutzt und rechts S^{1064} . Dabei wurden jeweils die Ramansignale bei 387 nm (lila) und bei 608 nm (grün) benutzt, um die Molekülstreuung zu bestimmen. Somit erhält man sechs Kombinationen von Wellenlängen, aus deren Signalen die Rückstreuverhältnisse berechnet wurden. An der rechten Seite der Abbildung sind die simulierten Effekte aufgelistet, ebenso die Effekte, für welche eine Korrektur durchgeführt wurde. Die Normierungshöhe ist als grau hinterlegter Bereich dargestellt. In den folgenden Abbildungen 4.2.2 bis 4.2.6 ist die Darstellung äquivalent zu Abbildung 4.2.1. In Abbildung 4.2.1 sind sämtliche Rückstreuprofile in jeder Höhe genau gleich eins. Das spiegelt die Erwartung wieder, da in dieser Simulation keinerlei Effekte eingeführt wurden und auch kein Aerosol vorhanden ist. Das Ergebnis zeigt jedoch, dass die Berechnung des Rückstreuverhältnisses und die Kombination der Kanäle

¹ „mass spectrometer and incoherent scatter radar“

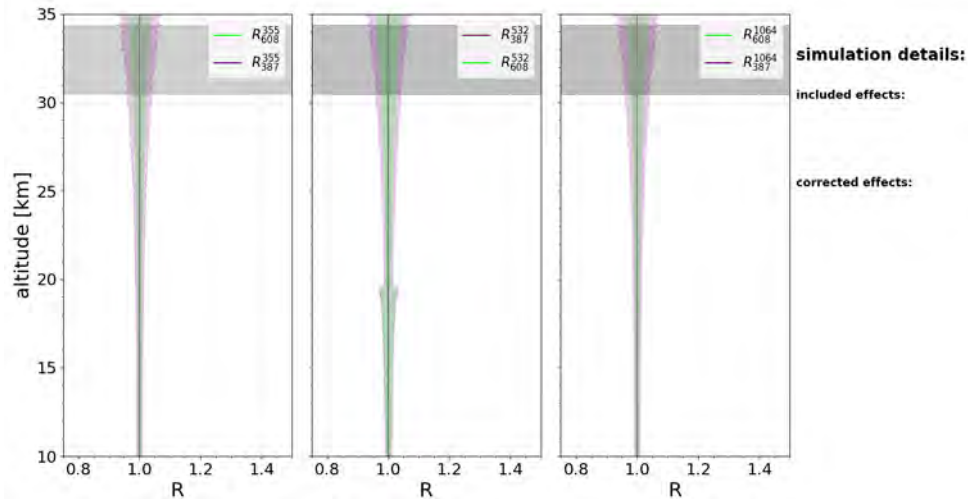


Abbildung 4.2.1: Simulierte Rückstreupprofile verschiedener Signalkombinationen. Rechts auf Basis von S^{1064} , in der Mitte auf Basis von S^{532} und links auf Basis von S^{355} . Details der Simulation stehen rechts. Die Schattierung um die Linien herum gibt die Unsicherheit des Ergebnisses an.

gleicher Wellenlänge richtige Ergebnisse liefert, da sich nach Formel 3.44 für die Abwesenheit von Aerosol $R = 1$ ergibt.

Die Unsicherheit der Simulation wird aus den Signalniveaus der Messung bestimmt. Es wird in jedem Höhenintervall und zu jedem Zeitschritt ein Zufallszahlengenerator genutzt, um die simulierten Daten mit Photonenrauschen zu versehen. Es wird eine Poisson-Verteilung genutzt, deren Erwartungswert vom simulierten Signal vorgegeben wird. Da das Signal-zu-Rausch-Verhältnis (SNR^2) mit der Höhe abnimmt, nimmt die Unsicherheit zu. Die Kombination der Kanäle lässt sich im mittleren Teil von Abbildung 4.2.1 erkennen. In einer Höhe zwischen 19 und 20 km nimmt die Unsicherheit im Signal des Kanals mit der geringsten Sensitivität stark zu, so dass es im größeren Höhen nicht mehr verwendet wird, der Fehler wird dementsprechend wieder kleiner.

4.2.1 Rayleigh-Extinktion

Als erstes wird die Rayleigh-Extinktion simuliert, aber bei der Auswertung nicht berücksichtigt. Das Ergebnis ist in Abbildung 4.2.2 zu sehen. Es ist zu beobachten, dass die Extinktion sich in geringerer Höhe verstärkt. Zurück zu führen ist dies auf die größere Luftdichte in geringerer Höhe und damit mehr Streuung aus dem Strahl.

Es fällt auf, dass der Effekt das Vorzeichen ändert, je nachdem welche Wellenlängenkombinationen betroffen ist. Ist $\lambda_e < \lambda_i$, führt dies zu $R > 1$, beispielsweise bei R_{608}^{387} . Dieses Verhalten wirkt zuerst kontra intuitiv, da bei der Rayleigh-Extinktion stärkeren Einfluss hat, je kürzer die Wellenlänge ist und damit mehr Signal verloren geht. Die Normierung oberhalb der Aerosolschicht führt jedoch zur beobachteten Erhöhung des Rückstreuverhältnisses nach unten in diesem Fall. Die Signale der ultravioletten Kanäle bei 355 und 387 nm sind von der Rayleigh-Extinktion am stärksten betroffen. Die Kombination aus diesen beiden Signalen ist dennoch kaum beeinflusst, da die Extinktion auf beide Wellenlängen beinahe gleich wirkt und sich bei

²engl: „signal to noise ratio“

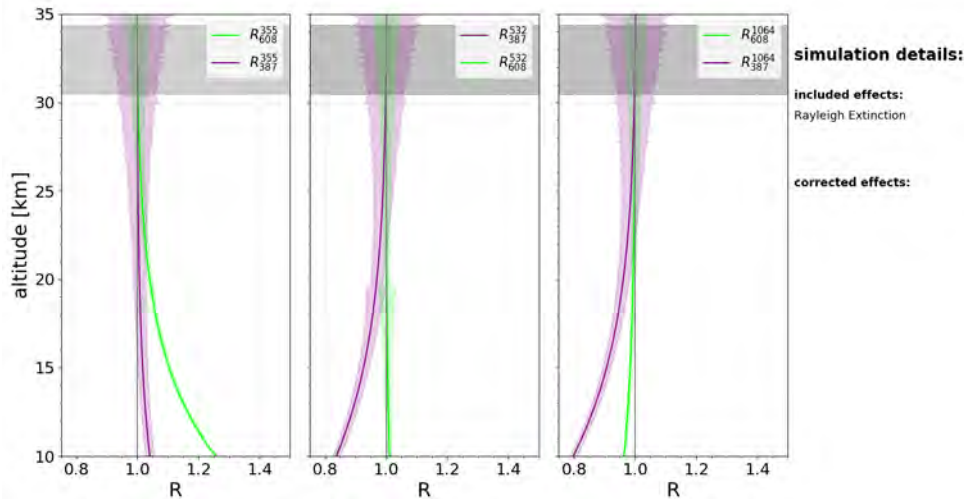


Abbildung 4.2.2: Simulierte Rückstreupprofile verschiedener Signalkombinationen. Rechts auf Basis von S^{1064} , in der Mitte auf Basis von S^{532} und links auf Basis von S^{355} . Bei der Simulation wurde die Rayleigh-Streuung berücksichtigt, diese wurde bei der Auswertung aber vernachlässigt. Die Schattierung um die Linien herum gibt die Unsicherheit des Ergebnisses an.

der Berechnung von R kaum auswirkt. Der Unterschied der verwendeten Wellenlängen ist demnach auch für die Stärke des Einflusses der Rayleigh-Extinktion verantwortlich, je kleiner dieser ist, desto kleiner auch der Einfluss auf das Rückstreuprofil. Das ist auch bei R_{608}^{532} zu sehen. Dieses Profil ist kaum von Extinktion beeinflusst.

Die Korrektur der rückgestreuten Signale wird mit folgender Formel durchgeführt:

$$S_c^\lambda = S^\lambda \cdot \exp(-\sigma_\lambda \cdot N) \quad (4.2)$$

mit S_c^λ dem korrigierten Signal bei der Wellenlänge λ , σ_λ dem Rayleigh-Streuquerschnitt an Luft und N als der Säulenzahldichte. Die Streuquerschnitte werden dabei aus Bates (1984) entnommen und verdoppelt, da das Licht zwei mal durch die Atmosphäre unterwegs ist. Die Simulation mit Rayleigh-Extinktionkorrektur ist in Abbildung 4.2.3 dargestellt. Alle Profile sind mit der Korrektur wieder in allen Höhen gleich eins. Die Korrektur kann also auf die beschriebene Weise zur Analyse verwendet werden.

4.2.2 Ozon-Extinktion

Im nächsten Schritt wird die Ozon-Extinktion betrachtet. In Abbildung 4.2.4 ist der Einfluss der Extinktion von O_3 in der Simulation berücksichtigt. Verwendet wird ein simuliertes Ozon-Monatsmittel des NOAA³ Klimadatensatzes (Rosenlof et al., 2015).

Nur die Signale S^{532} und S^{608} sind durch die Chappuis Banden von Ozon betroffen. Daher bleiben Rückstreuprofile bei denen diese Wellenlängen nicht verwendet wurden unverändert. Wird $\lambda_i = 608$ nm verwendet, weicht das errechnete Rückstreuprofil bei 10 km ungefähr sechs Prozent ab (R_{608}^{355} und R_{608}^{1064}). Im Fall R_{608}^{532}

³ „National oceanic and atmospheric administration“

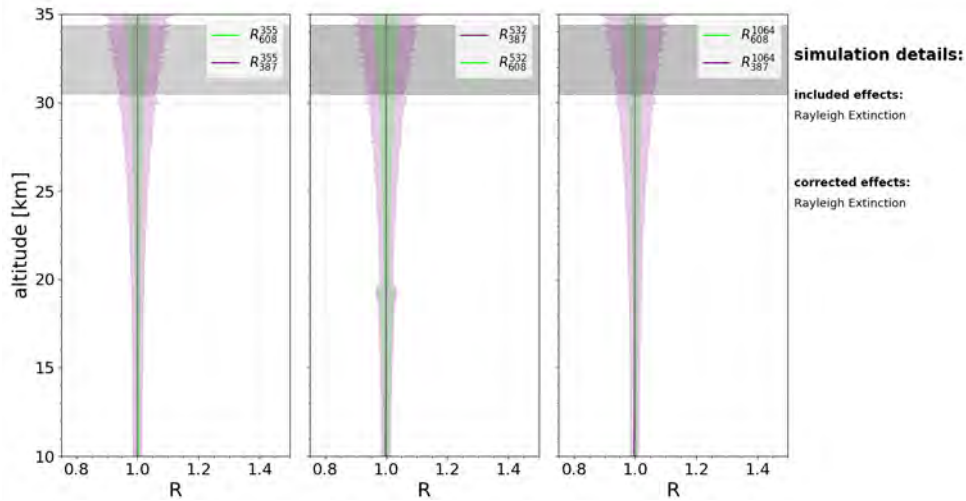


Abbildung 4.2.3: Simulierte Rückstreupprofile verschiedener Signalkombinationen. Rechts auf Basis von S^{1064} , in der Mitte auf Basis von S^{532} und links auf Basis von S^{355} . Bei der Simulation und der Auswertung wurde die Rayleigh-Streuung berücksichtigt. Die Schattierung um die Linien herum gibt die Unsicherheit des Ergebnisses an.

ist der Effekt kleiner, da beide Wellenlängen betroffen sind und damit der Einfluss durch die Verhältnisbildung der Signale reduziert wird..

Die Ozon-Korrektur der rückgestreuten Signale wird mit folgender Formel durchgeführt:

$$S_c^\lambda = S^\lambda \cdot \exp(-\sigma_{O_3} \cdot N \cdot \mu_{O_3}) \quad (4.3)$$

mit σ_{O_3} als dem Ozon-Absorptionsquerschnitt (Gorshlev et al., 2014) und μ_{O_3} , dem Ozon-Mischungsverhältnis. Die Simulation mit O_3 -Extinktionkorrektur ist in Abbildung 4.2.5 dargestellt.

Auch nach dieser Korrektur sind sämtliche Profile in jeder Höhe exakt eins. Somit kann auch die Ozon-Extinktionkorrektur verwendet werden.

Bei der Beschreibung der Korrektur der Ozon-Extinktion in Abschnitt 4.1.1 wurde bereits auf die Notwendigkeit der Benutzung möglichst aktueller Daten für das Ozon-Mischungsverhältnis hingewiesen, da sich das Mischungsverhältnis zum Zeitpunkt der Messung signifikant vom klimatologischen Mittel unterscheiden kann. Um den Einfluss dieser Variabilität zu untersuchen wurde das Rückstreuverhältnis für verschiedene Wellenlängenkombinationen mit unterschiedlichen Ozonprofilen bestimmt. Für diese Profile wurde das zur Simulation verwendete Profil aus Rosenlof et al. (2015) mit Faktoren zwischen 0.1 und 3 multipliziert. Wie zu erwarten ist ein Ozon-Einfluss auch bei sehr großen Mischungsverhältnissen nur bei Rückstreuverhältnissen zu erkennen, die mit Signalen bei 532 oder 608 nm berechnet worden sind. Für R_{608}^{1064} ergeben sich um 20 km herum Abweichungen von ungefähr 0.05 bei einer Verdopplung oder Halbierung von μ_{O_3} . Oberhalb von 25 km haben auch extrem hohe Ozon-Mischungsverhältnisse keinen spürbaren Einfluss mehr auf das Rückstreuverhältnis. Die genauen Ergebnisse dieser Simulationen sind für verschiedene Rückstreuverhältnisse in den Abbildungen A.1.1, A.1.2 und A.1.3 gezeigt.

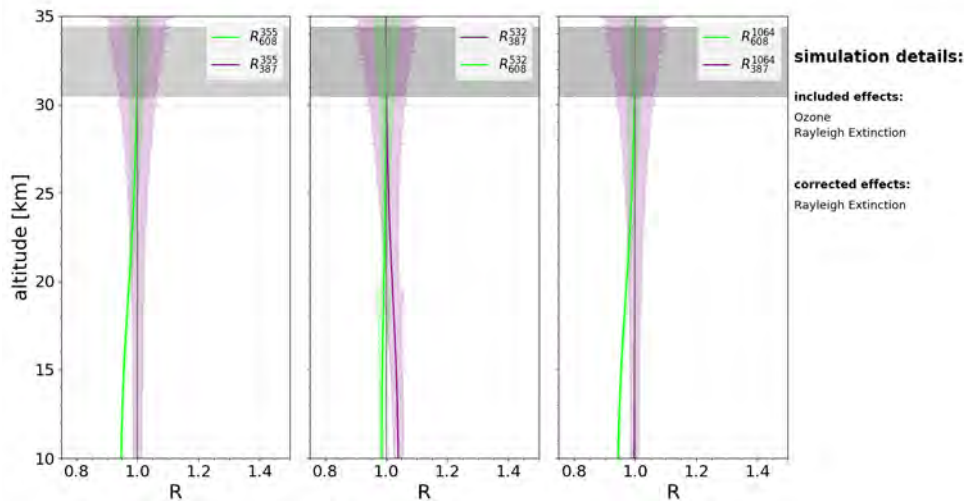


Abbildung 4.2.4: Simulierte Rückstreupprofile verschiedener Signalkombinationen. Rechts auf Basis von S^{1064} , in der Mitte auf Basis von S^{532} und links auf Basis von S^{355} . Bei der Simulation wurde die Rayleigh-Streuung und die Ozon-Extinktion berücksichtigt. Lediglich die Rayleigh-Extinktion wurde bei der Auswertung berücksichtigt. Die Schattierung um die Linien herum gibt die Unsicherheit des Ergebnisses an.

4.2.3 Stratosphärisches Aerosolprofil und Vorwärtsstreuung

Nun wird ein künstliches Aerosolprofil hinzugefügt. In diesem ist Aerosol bis 30 km vorhanden, darüber nicht mehr. Dies erklärt die scharfe Kante in den Profilen der Rückstreuverhältnisse in Abbildung 4.2.6.

In Abbildung 4.2.6 sind die Unterschiede zwischen den einzelnen Feldern der Abbildung interessant. R wird wie erwartet größer, je größer die elastisch gestreute Wellenlänge ist (von links nach rechts in Abbildung 4.2.6). Dies entspricht der Erwartung, da die molekulare Rückstreuung mit größerer Wellenlänge abnimmt und die Aerosolstreuung damit anteilig wächst (siehe Kapitel 3.1), was sich im Rückstreuverhältnis niederschlägt. Eine weitere wichtige Erkenntnis der Simulation ist, dass es keinen Unterschied macht, welche der beiden inelastischen Wellenlängen als Molekülsignal verwendet werden. $R_{387}^{\lambda_e}$ und $R_{608}^{\lambda_e}$ liegen jeweils beinahe direkt übereinander.

Da die Kurven nicht exakt übereinander liegen, ist darin begründet, dass ein weiterer Effekt in der der Abbildung 4.2.6 zugrunde liegenden Simulation berücksichtigt wurde: die Vorwärtsstreuung. Vorwärtsstreuung beschreibt molekulare Streuung in Richtung des Laserstrahls und führt damit zu einer Erhöhung des Signals mit wachsender Entfernung vom Lidar. Die Streuung in Vorwärtsrichtung wirkt stärker bei kürzeren Wellenlängen und je größer der Unterschied der verwendeten Wellenlängen zueinander ist. Vorwärtsstreuung nimmt mit der Luftdichte ab. Der Einfluss der Vorwärtsstreuung ist zu klein, als dass er in Abbildung 4.2.6 zu erkennen wäre. Er ist in der Stratosphäre zu vernachlässigen.

Zusammenfassend ist festzuhalten, dass die Auswertetechnik der Lidarsignale zufriedenstellende Ergebnisse liefert. Berechnete Rückstreuverhältnisprofile geben für verschiedene Wellenlängenkombinationen theoretisch erwartete Verläufe und Merkmale wieder. Kritische Effekte, die das Rückstreuprofil verfälschen können, wie Rayleigh-Extinktion und Ozon-Extinktion werden erfolgreich korrigiert. Vorwärtsstreuung kann vernachlässigt werden. Eine vorgegebene Aerosolbelastung wird durch die Methodik realistisch wiedergegeben.

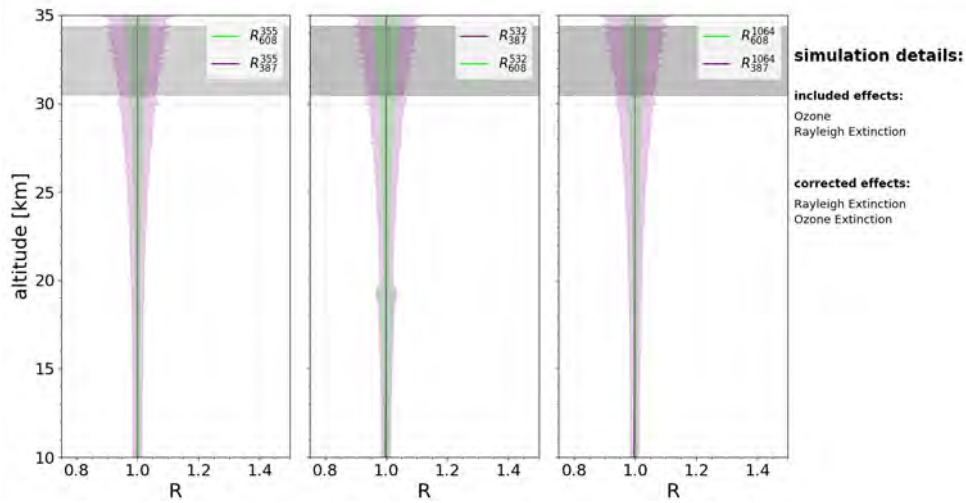


Abbildung 4.2.5: Simulierte Rückstreupprofile verschiedener Signalkombinationen. Rechts auf Basis von S^{1064} , in der Mitte auf Basis von S^{532} und links auf Basis von S^{355} . Bei der Simulation und der Auswertung wurde die Rayleigh-Streuung und die Ozon-Extinktion berücksichtigt. Die Schattierung um die Linien herum gibt die Unsicherheit des Ergebnisses an.

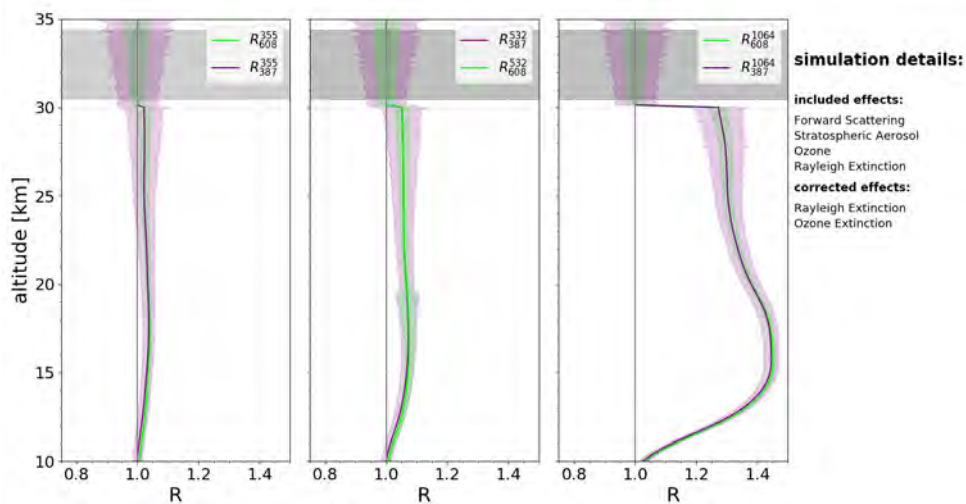


Abbildung 4.2.6: Simulierte Rückstreupprofile verschiedener Signalkombinationen. Rechts auf Basis von S^{1064} , in der Mitte auf Basis von S^{532} und links auf Basis von S^{355} . Bei der Simulation wurde die Rayleigh-Streuung, die Ozon-Extinktion und die Vorwärtsstreuung berücksichtigt. Außerdem wurde ein Aerosolprofil hinzugefügt. Bei der Auswertung wurde die Rayleigh-Streuung und die Ozon-Extinktion berücksichtigt. Die Schattierung um die Linien herum gibt die Unsicherheit des Ergebnisses an.

4.3 Messung am 15. Januar 2017 als Beispiel

In diesem Abschnitt wird eine erste Beispielmessung ausgewertet. Dabei wird die beschriebene Auswertetechnik angewandt und fortgeführt. Die hier beispielhaft vorgestellte Messung fand am 15. Januar 2015 statt, beginnend um 17:05 UTC bis 00:20 UTC am 16. Januar 2015 und dauerte somit ungefähr sieben Stunden. Die komplette Messzeit wurde dabei in Nachtkonfiguration durchgeführt, es waren also zu jeder Zeit zwei inelastisch rückgestreute Signale verfügbar. Die Signale beider Teleskope wurden für die Auswertung summiert. Damit soll erreicht werden, dass ein möglicherweise höheres Signalniveau zu bestimmten Zeiten oder bei einem bestimmten System stärker gewichtet wird. Aus den gewonnenen Daten wurden Rückstreuverhältnisse berechnet und diese über die gesamte Messzeit gemittelt. Das Resultat ist in Abbildung 4.3.1 zu sehen.

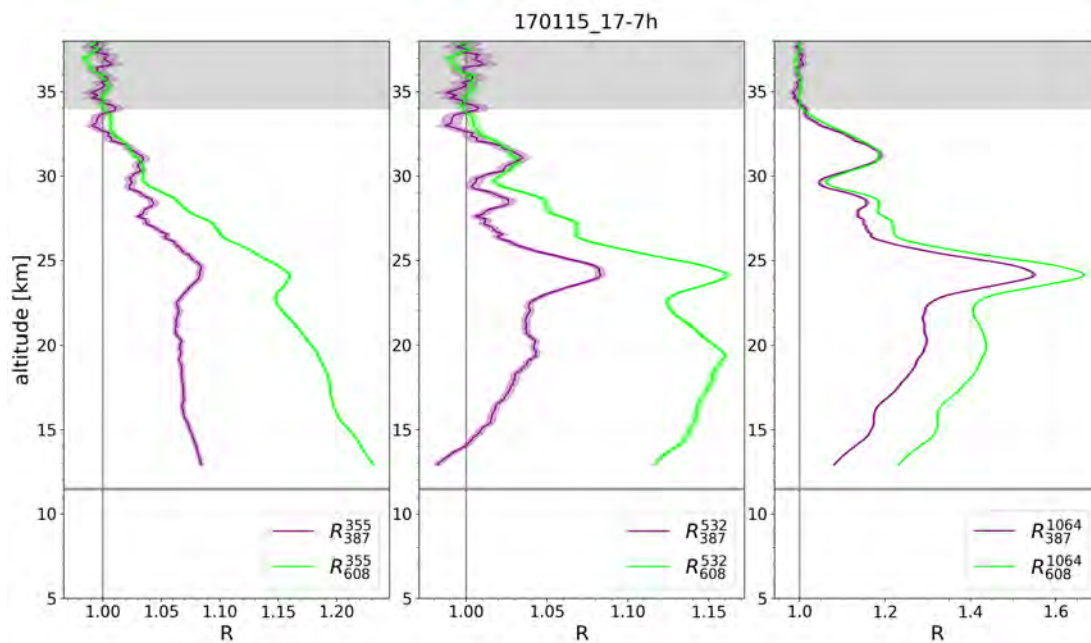


Abbildung 4.3.1: Zeitlich gemittelte Profile verschiedener Rückstreuverhältnisse einer siebenstündigen Messung vom 15. Januar 2017. Die graue Linie bei 11,5 km stellt die Tropopause dar. Im oberen Bereich ist zwischen 34 km und 38 km die Normierungshöhe grau hinterlegt.

In Abbildung 4.3.1 sind die Profile der Rückstreuverhältnisse R_{387}^{355} , R_{608}^{355} , R_{387}^{532} , R_{608}^{532} , R_{387}^{1064} und R_{608}^{1064} gezeigt. Im oberen Bereich der einzelnen Grafiken ist zwischen 34 km und 38 km die Normierungshöhe grau hinterlegt. Die graue Linie in ungefähr 11,5 km Höhe stellt die Tropopause dar. Da in dieser Arbeit nur stratosphärische Aerosole untersucht werden sollen, werden die Daten dementsprechend auf die Stratosphäre eingeschränkt. Dazu werden für jeden Zeitschritt von fünf Minuten während der Messung die jeweils größere aktuelle Höhe der thermischen⁴ und der dynamischen⁵ Tropopause aus ECMWF-Modelldaten gespeichert. Wird die Messung zeitlich gemittelt, wie in Abbildung 4.3.1 geschehen, wird der höchste Wert über die gesamte Messzeit als Tropopause angenommen. Die Daten werden anschließend bis einen Kilometer oberhalb dieser Tropopause maskiert, da sich gezeigt hat, dass regelmäßig sehr große Rückstreuverhältnisse an der

⁴unterstes Niveau, bei dem die vertikale Temperaturgradient ($-dT/dz$) kleiner als 2 K/km ist und in einer Schicht von mindestens 2 km diesen Wert nicht überschreitet

⁵Niveau der 2 pvu Isofläche

Tropopause oder direkt darüber errechnet werden. Diese werden von troposphärischen Wolken verursacht und müssen daher aus der Analyse ausgeschlossen werden.

Alle Profile von R zeigen die Anwesenheit von stratosphärischem Aerosol von der Tropopause bis in 34 km. Das Rückstreuverhältnis ist bei den Profilen, für die S^{1064} verwendet wurde wie erwartet am höchsten. Hier zeigt sich ein absolutes Maximum der Aerosolschicht bei 24 km sowie ein lokales Maximum bei 20 km. Diese Maxima sind auch in allen anderen Profilen zu erkennen, dort aber weniger stark ausgeprägt. Während sich bei R_{387}^{1064} , R_{608}^{1064} , R_{387}^{532} und R_{608}^{532} eine definierte Schicht ergibt, mit abnehmendem Rückstreuverhältnissen vom Maxima zur Normierungshöhe und zur Tropopause, zeigt sich bei R_{387}^{355} und R_{608}^{355} eine Zunahme von oben bis zur Tropopause die in etwa linear verläuft.

Auffällig ist, dass die errechneten Rückstreupprofile für $R_{387}^{\lambda_e}$ und $R_{608}^{\lambda_e}$ nicht übereinstimmen. Es ist eine von oben nach unten zunehmende Abweichung zu erkennen, wobei $R_{608}^{\lambda_e}$ an der Tropopause bis zu 15 Prozent erhöht ist. Der Grund dafür ist die Ozon-Extinktion, die die Wellenlängen bei 532 nm und 608 nm beeinflusst. Die Diskrepanz weist darauf hin, dass sich die wahre O_3 -Extinktion von derjenigen unterscheidet, die zur Datenprozessierung genutzt wurde. Um die Auswirkungen genau abschätzen zu können, müssen drei Fälle unterschieden werden. Im ersten Fall ist die inelastisch rückgestreute Wellenlänge von Ozon-Extinktion betroffen, die elastisch rückgestreute nicht. Dies trifft auf R_{608}^{355} und R_{608}^{1064} zu. In diesem Fall führt die Extinktion wegen der Normierung auf $R = 1$ in der aerosolfreien Höhe z_F zu verminderten R . Wird das reale O_3 -Mischungsverhältnis bei der Korrektur unterschätzt, die Extinktion also nicht vollständig korrigiert, werden die Werte für R zu klein berechnet. Im Gegensatz dazu führt ein Überschätzen von μ_{O_3} bei R_{608}^{355} und R_{608}^{1064} zu erhöhten Rückstreuverhältnissen. Im zweiten Fall sind die Auswirkungen genau gegensätzlich. Ist lediglich die elastische rückgestreute Wellenlänge betroffen (R_{387}^{532}), wird ein Unterschätzen von Ozon zu zu großem R führen, et vice versa. Der dritte Fall betrifft R_{608}^{532} . Da hier beide Wellenlängen durch Ozon absorbiert werden, gleichen sich die Effekte wieder aus und das Rückstreuverhältnis sollte in etwa gleich bleiben. Im hier beschriebenen Fall, der in Abbildung 4.3.1 gezeigt ist, sind R_{608}^{355} und R_{608}^{1064} jeweils zu R_{387}^{355} und R_{387}^{1064} erhöht. Außerdem sind im bei R_{387}^{532} oberhalb der Tropopause bis in 14 km Werte von $R < 1$ zu sehen. Nach der Definition sollte das Rückstreuverhältnis nicht kleiner als eins sein (siehe Formel 3.44). Dafür können zwei unterschiedliche Effekte verantwortlich sein. Erstens ist es möglich, dass das Ozon-Mischungsverhältnis aus den stundengenauen Modelldaten, das zur Korrektur verwendet wurde, zu groß ist. Dies würde zu verringerten Werten von R_{387}^{532} führen, was bei sehr geringer Aerosolbelastung im Bereich der unteren Stratosphäre zu Werten kleiner als eins führen könnte (siehe auch Abbildung A.1.3). Andererseits kann die Extinktion der Aerosole selbst zu Werten von $R < 1$ führen. Durch die Aerosolextinktion verringert sich das elastisch rückgestreute Signal auf dem Weg durch die Aerosolschicht und ist damit unterhalb der Schicht im Vergleich zum normierten, inelastisch rückgestreuten Signal verringert. Daher können oberhalb der Tropopause, wo nur sehr geringe Mengen Aerosol vorhanden sind, Werte kleiner als eins auftreten.

In dieser Arbeit wird hauptsächlich das Rückstreuverhältnis R_{387}^{1064} betrachtet, also $\lambda_e = 1064$ nm und $\lambda_i = 387$ nm. Diese Kombination ist allen anderen überlegen, da einerseits keine der verwendeten Wellenlängen von Ozon-Extinktion beeinflusst wird, was den beschriebenen Einfluss dieser Fehlerquelle minimiert. Da zur Berechnung von R_{387}^{1064} das Signal S^{1064} verwendet wird, ist andererseits der Anteil an Aerosolstreuung und damit auch das Rückstreuverhältnis bei dieser Kombination am größten.

Für die Profile in Abbildung 4.3.1 wurden die Daten zeitlich über die gesamte Messung gemittelt. Führt man diese Mittelung nicht durch, erhält man die in Abbildung 4.3.2 gezeigte Zeit-Höhen-Darstellung. Das Rückstreuverhältnis ist darin farblich codiert. Die Zeitauflösung beträgt fünf Minuten und die Höhenauflösung 150 m.

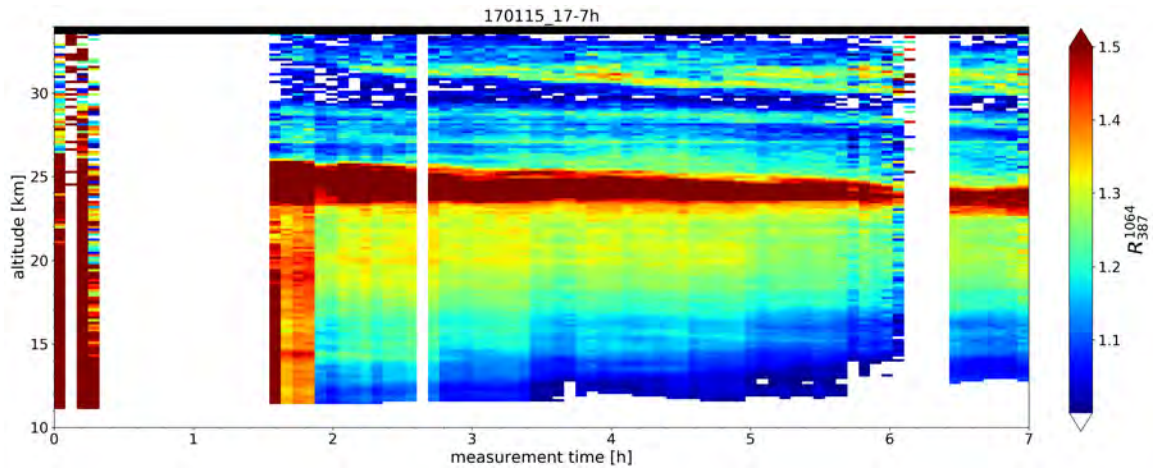


Abbildung 4.3.2: Zeitlich und räumlich aufgelöstes Rückstreuverhältnis R_{387}^{1064} einer siebenstündigen Messung vom 15. Januar 2017. Die Zeitauflösung beträgt fünf Minuten und die Höhenauflösung 150 m. Am unteren Rand bei ungefähr 11 km befindet sich die Tropopause, die Daten sind daher dort maskiert. Schwarze Kästchen am oberen Rand kennzeichnen eine Nachtmessung an diesem Zeitschritt.

Am Verlauf von R_{387}^{1064} mit der Zeit lässt sich gut ein typischer Verlauf einer Messung nachvollziehen, die von instrumentellen Bedingungen und auch vom Wetter beeinflusst wird. Zu Beginn der Messung, zwischen $t = 0$ h und $t = 0.33$ h, war der Himmel über ALOMAR zu einem großen Teil von Wolken bedeckt. Daher war das Signalniveau schlecht und eine zuverlässige Auswertung ist nicht möglich. Im Anschluss wurde das Lidar daher in den Standby-Modus versetzt und die Datenaufnahme gestoppt. Nach einer gut einstündigen Pause klarte der Himmel auf und die Messung wurde wieder aufgenommen. Dann wurden zunächst Positionsscans der beweglichen Spiegel durchgeführt, welche den Laserstrahl in die Atmosphäre emittieren (siehe Kapitel 3.4.1). Dies dient dazu, den Laserstrahl möglichst genau in die Blickrichtung der Teleskope auszurichten und damit das Signal zu maximieren. Während dieser Zeit kann das Signal stark schwanken, was zu den relativ hohen Werten direkt nach der Messlücke führt. Bei $t = 2.75$ h sind für einen Zeitschritt keine Daten verfügbar. Zu diesem Zeitpunkt wurden die Teleskope aus dem Zenit heraus geschwenkt. Danach läuft die Messung bis $t = 6.17$ h weiter, wo sie erneut wegen Wolken unterbrochen werden muss. Man erkennt die nachlassende Qualität der Auswertung in den Zeitschritten direkt davor, da das Signal dort bereits durch Wolken gestört wird. Nach einer kurzen Pause kann das Lidar noch einmal für 35 Minuten betrieben werden, bevor die Messung wegen zunehmender Bedeckung des Himmels abgebrochen werden muss. Über die gesamte Messzeit findet sich eine Aerosolschicht zwischen Tropopause und 34 km. Darin enthalten ist eine stark ausgeprägte, schmale Schicht zwischen 23 km und 26 km, die sich ebenfalls über die gesamte Messzeit hält. Auffällig ist auch eine Schicht von erhöhter Aerosolbelastung oberhalb von 30 km, die sich nach zwei Stunden Messzeit bildet und sich bis zum Ende der Messung weiter ausdehnt.

Die Signale jeder einzelnen Messung werden zur weiteren Analyse jeweils stündlich gemittelt. In der Höhe wird dabei ein gleitendes Mittel über 1.1 km benutzt, um die Daten zu glätten. Dadurch wird die Datenqualität

erhöht. Dies ist für die Messung vom 15. Januar 2017 für R_{387}^{1064} in Abbildung 4.3.3 gezeigt. Zeitschritte mit schlechtem Datenniveau und mit Messlücken, wie zu Beginn der Messung und gegen Ende, werden in dieser gröberen Auflösung aussortiert, während auch schmale Schichten von Aerosol noch gut zu erkennen sind. Dieses Datenprodukt wird für langfristige Analysen der Aerosolschicht verwendet.

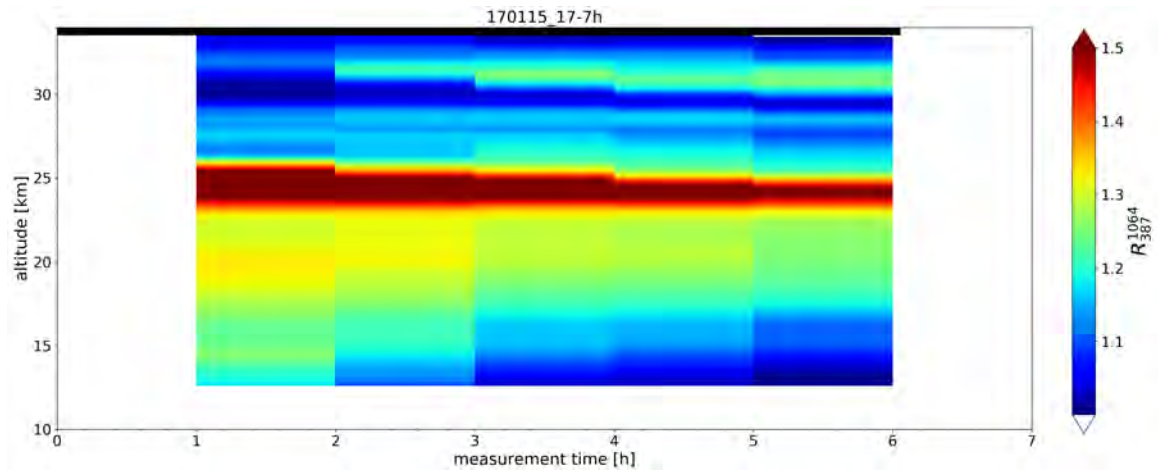


Abbildung 4.3.3: Zeitlich und räumlich aufgelöstes Rückstreuverhältnis R_{387}^{1064} einer siebenstündigen Messung vom 15. Januar 2017. Die Zeitauflösung beträgt eine Stunde. Die Daten sind in der Höhe mit einem 1.1 km gleitenden Mittel geglättet. Die Daten sind nur oberhalb der Tropopause dargestellt. Schwarze Kästchen am oberen Rand kennzeichnen eine Nachtmessung an diesem Zeitschritt.

5 Berechnung des Rückstreuverhältnisses unter Tageslichtbedingungen

Die Tageslichtfähigkeit des ALOMAR-RMR-Lidars erlaubt es unabhängig vom Sonnenstand ganztägig Messungen durchzuführen. Steht die Sonne bei -5° oder darüber wird das SNR bei inelastisch gestreuten Wellenlängen in der Stratosphäre jedoch zu gering, um effektiv Messungen durchführen zu können. Die in Kapitel 3.3 beschriebene Methodik zur Bestimmung des Rückstreuverhältnisses lässt sich dann nicht anwenden, da ein inelastisch gestreutes Signal benötigt wird, um den Anteil der Molekülstreuung zu berechnen. Da sich das Lidar bei 69.3° N, also nördlich des Polarkreises befindet, steht die Sonne zwischen Anfang Mai und Mitte August konstant über -5° , es ist in dieser gesamten Zeitspanne demnach kein inelastisches Signal verfügbar. Um die stratosphärische Aerosolschicht dennoch ganzjährig untersuchen zu können, müssen drei mögliche Arten von Messungen unterschieden werden:

- a Messungen, die zu jedem Zeitschritt in Nachtkonfiguration durchgeführt wurden
- b Messungen, die denen anteilig sowohl Nacht- als auch Tageslichtkonfiguration benutzt wurde
- c Messungen, die zu jedem Zeitschritt in Tageslichtkonfiguration durchgeführt wurden

Ein Beispiel für Messungen von Typ **a** wurde ausführlich in Kapitel 4.3 beschrieben. In diesem Fall kann zu jedem Zeitschritt das inelastische Rückstreusignal als Referenz für die Molekülstreuung dienen. Wie das Rückstreuverhältnis in den Fällen **b** und **c** berechnet werden kann, wird in den folgenden Abschnitten vorgestellt.

5.1 Messungen mit Tag- und Nachtanteilen

Wird im Verlauf einer Messung zwischen Tageslichtkonfiguration und Nachtkonfiguration gewechselt, hat das zur Folge, dass es nur für Teile der Messung korrespondierende, inelastisch rückgestreute Signalprofile gibt, nämlich wenn das Lidar in Nachtkonfiguration betrieben wurde. Die Stärke der Molekülstreuung verändert sich innerhalb eines Messzeitraums von wenigen Stunden bis hin zu einigen Tagen kaum. Derartige Veränderungen kommen durch Dichteschwankungen in der Atmosphäre zustande und haben lediglich bei der Betrachtung größerer Zeiträume eine Bedeutung. In Abbildung 5.1.1 ist beispielhaft das räumlich und zeitlich aufgelöste Signal S^{387} für die längste jemals mit dem ALOMAR RMR Lidar durchgeführte Messung zwischen dem 3. und 11. Februar 2017 dargestellt. Die Messdauer beträgt insgesamt 187 Stunden. Man erkennt, dass das Signal im Verlauf dieser Woche kaum Schwankungen unterworfen ist. Einzelne Veränderungen treten nur auf, wenn troposphärische Wolken das Signal reduzieren. Bei klarem Himmel kann S^{387} als konstant angenommen werden.

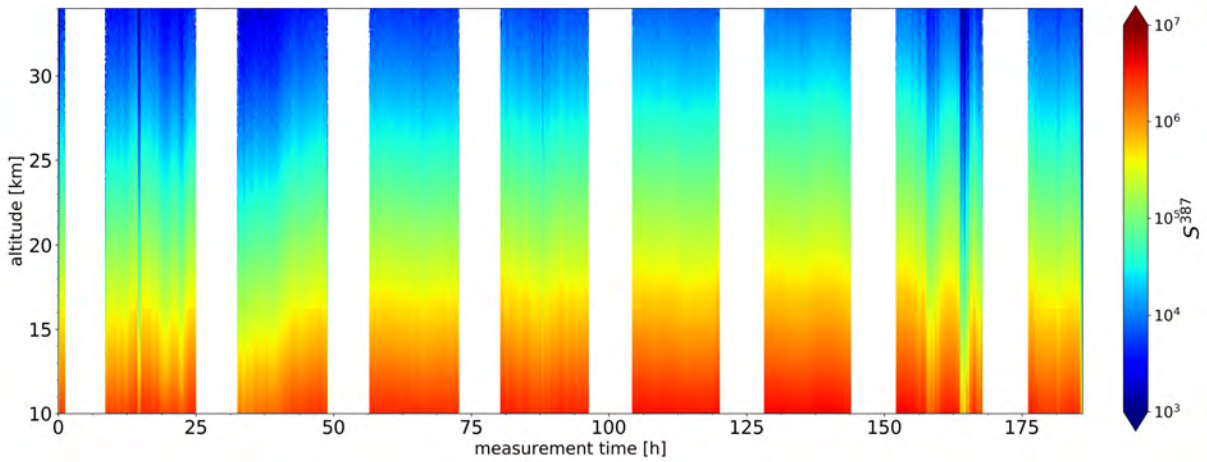


Abbildung 5.1.1: Zeitlich und räumlich aufgelöstes Rückstreusignal S^{387} einer 187-stündigen Messung vom 3. Februar 2017 bis 11. Februar 2017. Die Zeitauflösung beträgt fünf Minuten und die Höhenauflösung 150 Meter.

Daher ist es legitim, aus allen bei Nacht gemessenen Profilen von S^{λ_i} ein zeitlich gemitteltes Profil zu berechnen und mit Hilfe dessen das Rückstreuverhältnis zu jedem Zeitpunkt der Messung zu bestimmen, auch bei Tageslichtkonfiguration. Abbildung 5.1.2 zeigt dieses Vorgehen für eine 96-stündige Messung vom 6. Oktober 2015 bis zum 10. Oktober 2015. Dabei wurden ungefähr 46 Stunden bei Tageslicht gemessen und 51 Stunden bei Nacht. Dargestellt ist der zeitliche Verlauf von R_{387}^{1064} zwischen 10 km und 34 km. Am oberen Rand wird darin die aktuelle Konfiguration angezeigt, wobei ein schwarzes Kästchen für Nachtkonfiguration steht. Wie zu sehen ist, führt die Berechnung des Rückstreuverhältnis unter Nutzung des mittleren S^{387} -Signals zu einer sinnvollen Fortsetzung von R_{387}^{1064} .

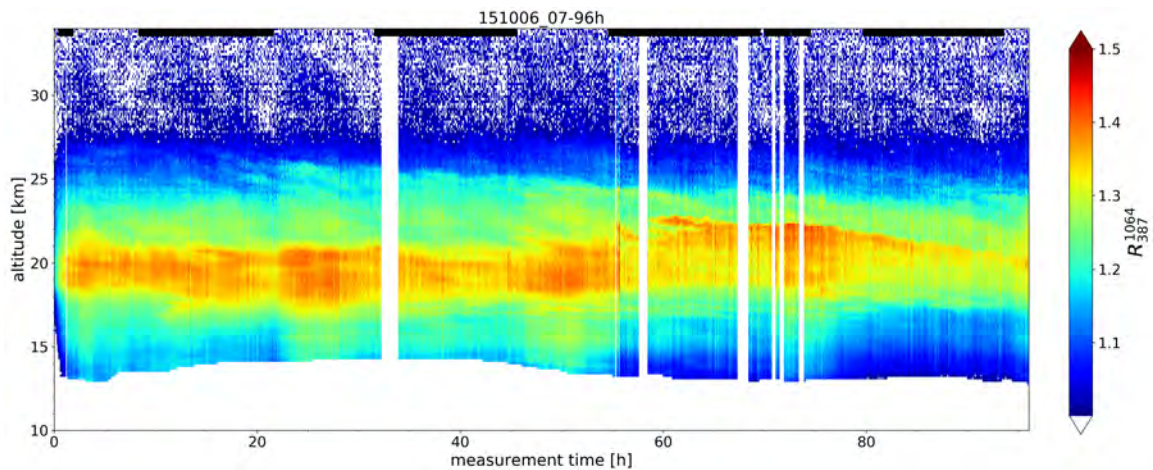


Abbildung 5.1.2: Zeitlich und räumlich aufgelöstes Rückstreuverhältnis R_{387}^{1064} einer 96-stündigen Messung vom 6. Oktober 2015 bis 10. Oktober 2015. Die Zeitauflösung beträgt fünf Minuten, die Höhenauflösung 150 m. Die Daten sind nur oberhalb der Tropopause dargestellt. Schwarze Kästchen am oberen Rand kennzeichnen eine Nachtmessung an diesem Zeitschritt.

5.2 Ausschließliche Tagmessungen

Die eben beschriebene Methodik kann nicht für die Auswertung der Sommermonate benutzt werden, da das Lidar in dieser Zeit dauerhaft mit Tageslichtkonfiguration betrieben werden muss. Es sind somit keine angrenzenden Nachtmessungen verfügbar. In Abschnitt 3.3.2 wurde das Farbverhältnis $C_{\lambda_e}^{\lambda_e}$ eingeführt, welches das Signalverhältnis von zwei der drei elastisch rückgestreuten Wellenlängen darstellt. Das Farbverhältnis ist unabhängig der Messkonfiguration ganzjährig verfügbar. Um auch im Sommer Rückstreuverhältnisse zu errechnen, wird das Farbverhältnis C_{355}^{1064} genutzt, zusammen mit einer empirischen Korrektur. Damit erhält man einen Proxy für das Rückstreuverhältnis R_{387}^{1064} . Beispielhaft wird dieses Vorgehen an der eben bereits kurz beschriebenen Messung vom 6. Oktober 2015 bis 10. Oktober 2015 dargestellt. Obwohl es sich hierbei um eine Messung mit Tag- und Nachtanteilen handelt, ist diese dazu geeignet. Anhand einer solchen Messung lässt sich das Vorgehen anschaulich darstellen und das Ergebnis kann mit dem Rückstreuverhältnis R_{387}^{1064} verglichen werden.

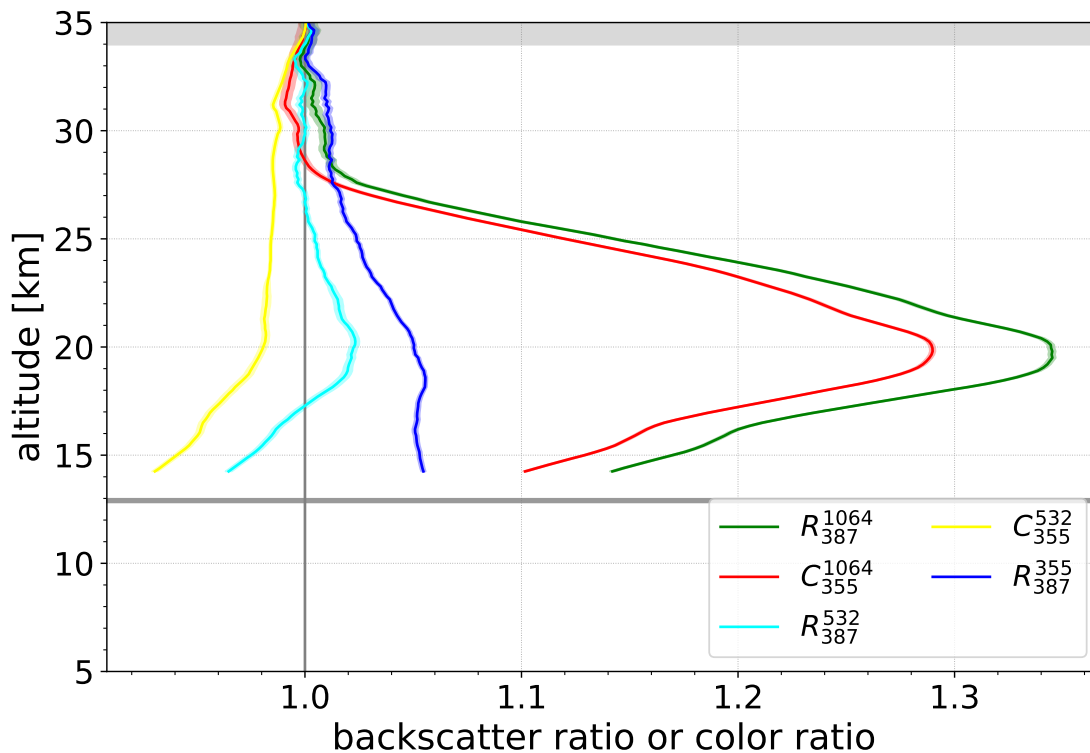


Abbildung 5.2.1: Zeitlich gemittelte Profile von Rückstreuverhältnissen und Farbverhältnissen einer 96-stündigen Messung vom 6. Oktober 2015 bis 10. Oktober 2015. Der graue Bereich am oberen Rand zeigt einen Teil der Normierungshöhe. Die graue Linie bei 13 km stellt die Tropopause dar.

Abbildung 5.2.1 zeigt zeitlich gemittelte Rückstreu- und Farbverhältnisse der oben vorgestellten Messung von Oktober 2015. Im Vergleich von R_{387}^{1064} und C_{355}^{1064} fällt auf, dass C_{355}^{1064} den gleichen vertikalen Verlauf hat wie R_{387}^{1064} aber ungefähr fünf Prozent kleiner ist. Der Unterschied zwischen beiden Kurven liegt im Aerosol Rückstreusignal S_a^{355} begründet, das in S^{355} enthalten ist. Das Farbverhältnis C_{355}^{1064} stellt also einen Proxy für R_{387}^{1064} dar der weniger als fünf Prozent vom wahren Wert von R_{387}^{1064} an der größten Ausprägung der Aerosolschicht abweicht.

Im Folgenden wird beschrieben, wie das Rückstreuverhältnis bei 1064 nm berechnet werden kann, indem das molekulare Signal bei 355 nm berücksichtigt wird. Das Ergebnis ist ein sogenanntes angenähertes Rückstreuverhältnis R_{355}^{1064} .

Dieses wird definiert als:

$$R_{355}^{1064} = \frac{S^{1064}}{F_{355}^{1064} S_m^{355}} \quad (5.1)$$

Mit dem Farbverhältnis C_{355}^{1064} und dem Rückstreuverhältnis R_{387}^{355} kann dies geschrieben werden als:

$$R_{355}^{1064} = \frac{S^{1064}}{F_{355}^{1064} F_{387}^{355} S^{387}} \quad (5.2)$$

$$= \frac{S^{1064}}{F_{355}^{1064} S^{355}} \cdot \frac{S^{355}}{F_{387}^{355} S^{387}} \quad (5.3)$$

$$= C_{355}^{1064} \cdot R_{387}^{355} \quad (5.4)$$

Das angenäherte Rückstreuverhältnis R_{355}^{1064} ist das Produkt aus C_{355}^{1064} und R_{387}^{355} . Aus diesem Grund ist R_{387}^{355} in Abbildung 5.2.1 eingetragen (blau). Der Aerosolanteil in dieser Kurve stellt genau den Unterschied zwischen C_{355}^{1064} und R_{387}^{1064} dar. Da R_{387}^{355} jedoch nicht bei Tageslichtbedingungen verfügbar ist, wird ein langjähriges Mittel aus allen geeigneten R_{387}^{355} Profilen errechnet, die zwischen 2000 und 2018 aufgenommen werden konnten. Diese Methode basiert auf der Beobachtung, dass R_{387}^{355} keine ausgeprägte Schicht erkennen lässt und sich die einzelnen gemessenen Profile nicht deutlich unterscheiden. Da diese einen mittleren Zustand repräsentieren sollen, müssen bestimmte Kriterien erfüllt sein, um sie für die Mittelung zuzulassen. Zunächst werden Messungen in denen PSC registriert werden ausgeschlossen, da diese sehr hohe Rückstreuverhältnisse erzeugen und das Hintergrundaerosol R_{387}^{355} überlagern. Weiterhin muss der Mittelwert des Profils über die Höhe zwischen 1 und 1.1 liegen. Dies trifft auf die allermeisten Messungen zu. Damit werden lediglich Messungen ausgeschlossen, die unrealistische Werte kleiner als eins liefern, möglicherweise durch ein schlechtes Signalniveau. Zusätzlich werden auch Messungen mit hoher Aerosolbeladung ausgeschlossen, die beispielsweise durch den Einfluss von Vulkanausbrüchen entstanden sein können. Um eine hohe Datenqualität zu erreichen, wird die Auswahl auf Messungen beschränkt deren relative Unsicherheit kleiner als ein Prozent ist. Durch diese Prozedur wurde 103 geeignete Messprofile gefunden, die den langjährigen mittleren Zustand der Aerosolschicht wiedergeben. Die Profile sind in Abbildung 5.2.2 gezeigt. Sie decken insgesamt 1789 Stunden Messung ab.

Die einzelnen Profile zeigen eine lineare Abnahme gegen $R = 1$ bei $z = 34$ km. Dieses Verhalten lässt sich sehr gut im mittleren Profil $\bar{R}_{387}^{355}(z)$ erkennen. Es wird daher eine lineare Regression durchgeführt. Das Resultat ist in Abbildung 5.2.2 blau eingezeichnet ($\tilde{R}_{387}^{355}(z)$) und stimmt sehr gut mit $\bar{R}_{387}^{355}(z)$ überein. Die Geradengleichung von $\tilde{R}_{387}^{355}(z)$ lautet:

$$\tilde{R}_{387}^{355}(z) = \frac{z - 407.95 \text{ km}}{-374.16 \text{ km}} \quad (5.5)$$

Dieser Fit wird verwendet, um das angenäherte Rückstreuverhältnis R_{355}^{1064} zu bestimmen:

$$R_{355}^{1064} = C_{355}^{1064} \cdot \tilde{R}_{387}^{355}(z) \quad (5.6)$$

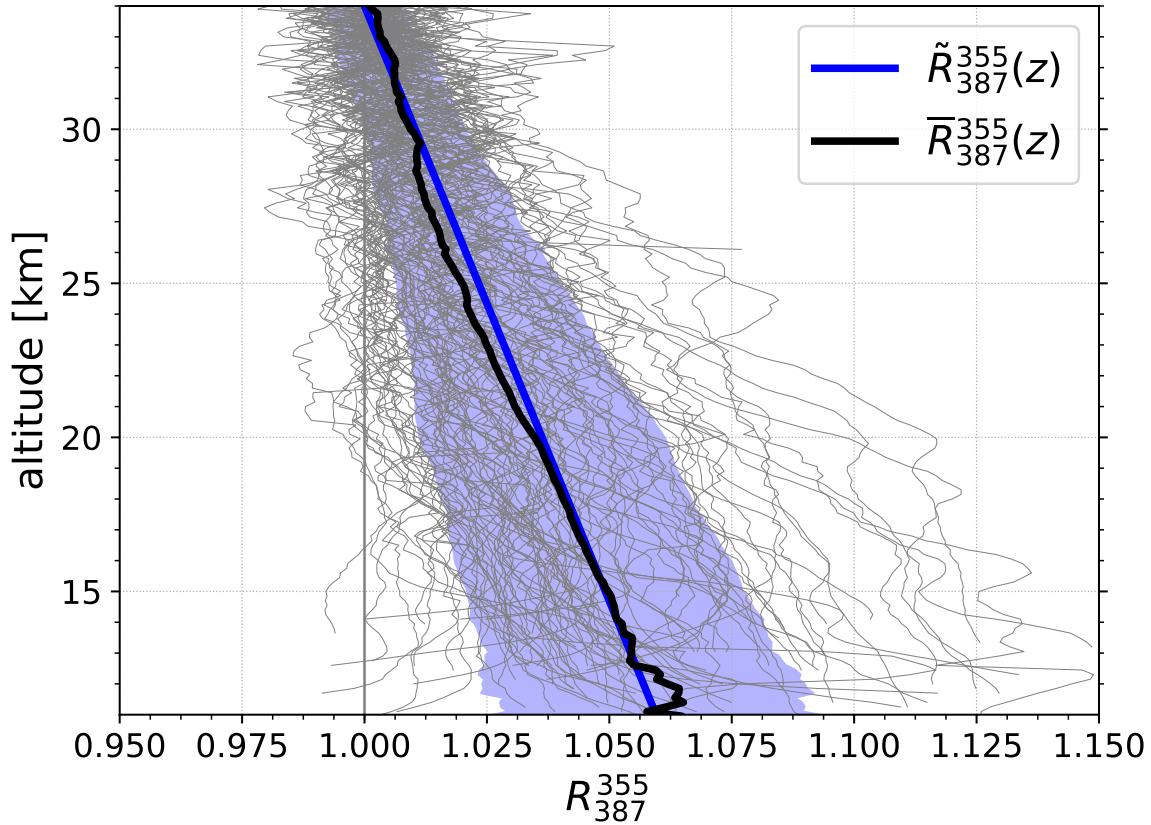


Abbildung 5.2.2: Zur Korrektur geeignete R_{387}^{355} Profile von 2000 bis 2018. Jede graue Linie stellt das Mittel einer Einzelmessung dar. $\bar{R}_{387}^{355}(z)$ ist das Mittel aller Einzelmessungen und $\tilde{R}_{387}^{355}(z)$ der lineare Fit zu $\bar{R}_{387}^{355}(z)$. Der blau schattierte Bereich stellt die Standardabweichung der Einzelmessungen dar.

Abhängig von der Höhe hat diese Korrektur einen Effekt von etwa fünf Prozent bei 15 km bis Null bei 34 km. Die zur Korrektur verwendeten R_{387}^{355} Profile stellen Nachtmessungen dar und decken damit nicht die Sommermonate ab, werden jedoch hauptsächlich genutzt, um Messungen im Sommer zu korrigieren. Daher stellt sich die Frage, ob ein möglicher Jahresgang die R_{387}^{355} -Daten beeinflusst und damit eine Ungenauigkeit bei der Korrektur entsteht. Dazu wurden die ausgesuchten R_{387}^{355} Profile monatlich sortiert und dem gefitteten Profil $\tilde{R}_{387}^{355}(z)$ gegenüber gestellt. Das Ergebnis ist im Anhang in Abbildung A.2.1 zu sehen. Der Großteil der Profile wurde in den Monaten September, sowie Januar bis März gewonnen. Es ist für keinen Monat, außer dem Dezember eine signifikante Abweichung der Monatsprofile vom Jahresmittel gefunden worden. Im Dezember liegen die Werte etwas niedriger als im Jahresdurchschnitt, allerdings im Bereich der Unsicherheit der Korrektur. Die Korrektur kann also für Messungen im Sommer genutzt werden.

In Abbildung 5.2.3 ist zusätzlich zu den Profilen von Abbildung 5.2.1 nun das angenäherte Rückstreuprofil R_{355}^{1064} in lila eingezeichnet. Dieses stimmt sehr gut mit dem Rückstreuverhältnis R_{387}^{1064} überein. Die Abweichung zwischen beiden Profilen beträgt weniger als ein Prozent und liegt deutlich unterhalb der Messunsicherheit. Die Unsicherheit des angenäherten Rückstreuverhältnisses wird von der Unsicherheit des linearen Fits $\tilde{R}_{387}^{355}(z)$ dominiert. Diese wurde berechnet, indem für jede Messung, bei der R_{387}^{1064} verfügbar war, das dazugehörige R_{355}^{1064} -Profil berechnet wurde. Anschließend wurde in jeder Höhe die Differenz der

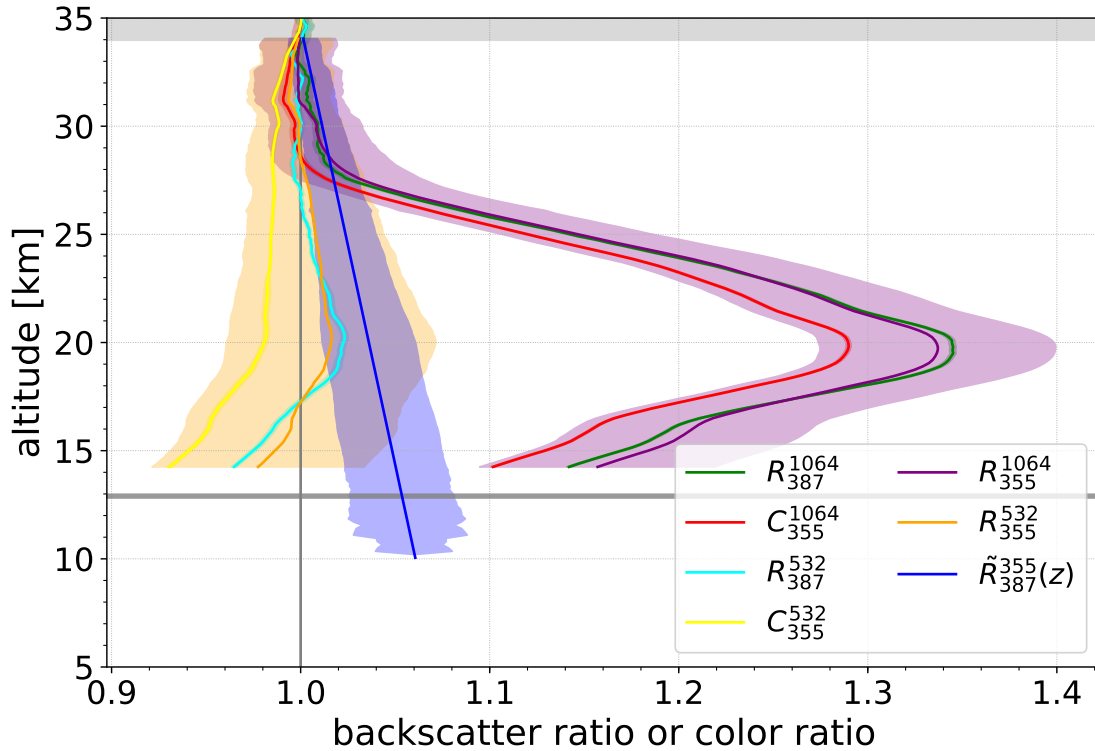


Abbildung 5.2.3: Zeitlich gemittelte Profile von Rückstreuverhältnissen, angenäherten Rückstreuverhältnissen und Farbverhältnissen einer 96-stündigen Messung vom 6. Oktober 2017 bis 10. Oktober 2017. Der graue Bereich am oberen Rand zeigt einen Teil der Normierungshöhe. Die graue Linie bei 13 km stellt die Tropopause dar.

beiden Profile bestimmt. Das Resultat ist in Abbildung 5.2.4 für Messungen zwischen 2000 und 2018 zu sehen.

Die Standardabweichung der Profile der Differenz zwischen R_{387}^{1064} und R_{355}^{1064} werden als Fehler des angenäherten Rückstreuverhältnisses einer Einzelmessung angenommen. Sie verhält sich symmetrisch über den gesamten betrachteten Höhenbereich und nimmt mit der Höhe ab. Bei 15 km beträgt die Unsicherheit etwa 0.035 während sie bei 34 km nur noch 0.005 beträgt. Dieses Verhalten entspricht den Erwartungen, da der Effekt der Korrektur gegen Null bei 34 km geht und die R_{387}^{355} Profile gegen $R = 1$ an dieser Höhe tendieren.

Auf die gleiche Weise kann ein angenähertes Rückstreuverhältnis R_{355}^{532} berechnet werden. Dazu wird das Farbverhältnis C_{355}^{532} und der lineare Fit $\tilde{R}_{387}^{355}(z)$ verwendet:

$$R_{355}^{532} = C_{355}^{532} \cdot \tilde{R}_{387}^{355}(z) \quad (5.7)$$

In Abbildung 5.2.1 ist C_{355}^{532} in gelb und R_{387}^{532} in cyan eingezeichnet. Während R_{387}^{1064} und C_{355}^{1064} nicht von Ozon-Extinktion betroffen sind, wird R_{387}^{532} von dieser beeinflusst. Es ist zu sehen, dass das Rückstreuverhältnis R_{387}^{532} oberhalb der Tropopause, zwischen 15 bis 17 km, kleiner als eins ist. Das deutet darauf hin, dass die Korrektur der O_3 -Extinktion das reale Ozon-Mischungsverhältnis überschätzt hat. In Abbildung 5.2.3 ist die Qualität des angenäherten Rückstreuverhältnisses R_{355}^{532} zu sehen. Es stimmt sehr gut mit R_{387}^{532} überein und ist im Gegensatz zu C_{355}^{532} in den allermeisten Höhen größer als eins.

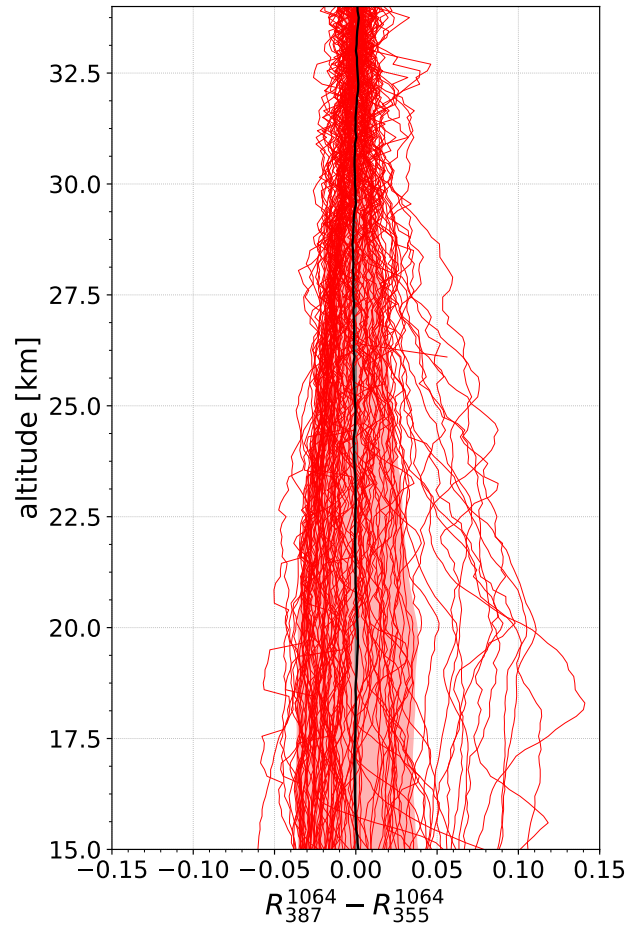


Abbildung 5.2.4: Differenz zwischen Rückstreuverhältnis R_{387}^{1064} und angenähertem Rückstreuverhältnis R_{355}^{1064} für Messungen zwischen 2000 und 2018. Der rot schattierte Bereich zeigt die Standardabweichung der Differenz. Die schwarze Linie stellt die mittlere Differenz dar.

Betont werden muss, dass das angenäherte Rückstreuverhältnis das wahre Rückstreuverhältnis in Fällen einer großen Aerosolbelastung unterschätzt, während es das wahre Rückstreuverhältnis in Fällen einer geringen Aerosolbelastung überschätzt, da die Korrekturfunktion $\tilde{R}_{387}^{355}(z)$ aus Messungen mit einer normalen Aerosolbelastung abgeleitet wurde.

Obwohl die angenäherten Rückstreuverhältnisse nur gering von der Form der Korrekturfunktion $\tilde{R}_{387}^{355}(z)$ abhängen, soll hier kurz auf deren lineare Abnahme eingegangen werden. Es konnte kein instrumentelles Problem identifiziert werden, dass zu einer linearen Abnahme von R_{387}^{355} mit der Höhe führen würde. Dies hätten beispielsweise Probleme bei Detektoren oder bei der Überlappfunktion sein können. Ein solches würde beide Signale S^{355} und S^{387} gleichermaßen beeinflussen und hätte daher keinen Effekt auf R_{387}^{355} . Weiterhin kann auch Ozon-Extinktion als mögliche Fehlerquelle ausgeschlossen werden, da diese keinen Effekt auf beide Wellenlängen hat.

Mit der hier vorgestellten Methodik wird ein neuer Datensatz generiert: R^{1064} . Dieser beinhaltet für jede reine Nachtmessung und jede Messung mit Nachtanteilen die errechneten Daten von R_{387}^{1064} . Für reine Messungen mit Tageslichtbedingungen, also besonders in den Sommermonaten, werden die Daten des

angenäherten Rückstreuverhältnisses in den neuen Datensatz eingefügt. Das Ergebnis ist ein kompletter, ganzjähriger Datensatz von stratosphärischen Aerosolrückstreuverhältnisprofilen.

6 Der ALOMAR Datensatz für stratosphärisches Aerosol

6.1 Mess- und Datenstatistik von 2000 bis 2018

Die vom Lidar gewonnenen Daten seit dem Jahr 2000 lassen sich zur Bestimmung der stratosphärischen Aerosolschicht effizient nutzen. Während im Jahr 2000 293 Stunden lang Messungen durchgeführt wurden, stieg dieser Wert kontinuierlich an und erreichte im Jahr 2018 mit insgesamt 945 Stunden seinen Höchststand. Die gesamte Messzeit über den Zeitraum 2000 bis 2018 ist pro Jahr in Abbildung 6.1.1 dargestellt.

Es wurden seit 2000 jährlich zwischen 205 und 691 Stunden Messungen bei Tageslicht durchgeführt. Dieser Anteil ist relativ konstant und übertrifft den Anteil der Nachtmessungen in jedem einzelnen Jahr. Dies hängt mit der ganzjährigen Besetzung des Observatoriums während der Tageszeit und der durchgängigen Besetzung während der Sommermonate zusammen, in denen zu jeder Tageszeit in der Tageslichtkonfiguration gemessen wird. Seit 2013 wird auch von Januar bis März eine 24-stündige Besetzung des Observatoriums durch Mitarbeiter des IAP gewährleistet. Seit dem hat sich die Anzahl der Nachtmessungen auf ungefähr 300 Stunden jährlich stabilisiert. Zwischen 2000 und 2018 wurden insgesamt 12530 Stunden Messungen durchgeführt, 8772 Stunden davon bei Tag und 3758 Stunden bei Nacht, was einem Anteil von etwa 30 Prozent entspricht.

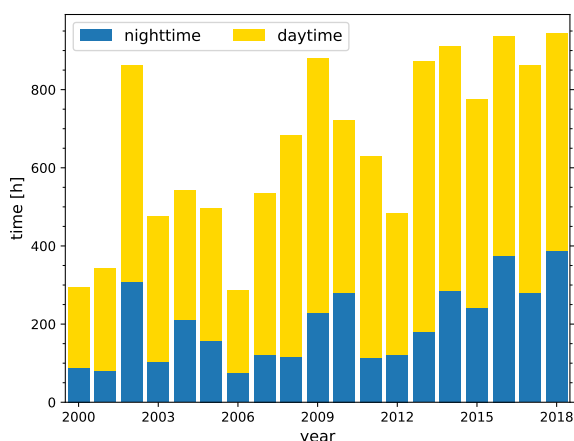


Abbildung 6.1.1: Jährliche Messzeit des ALOMAR RMR Lidars von 2000 bis 2018 unterteilt in Nachtmessungen und Tagmessungen.

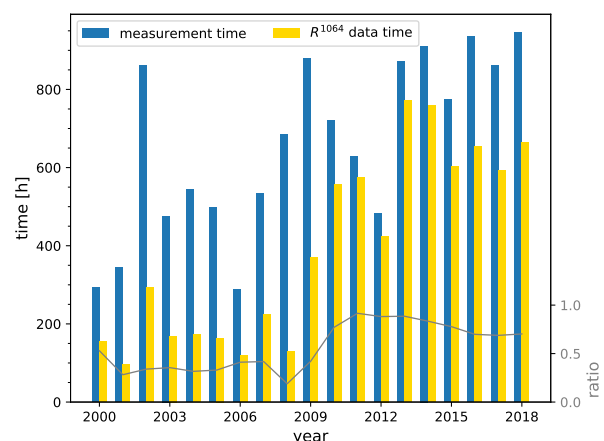


Abbildung 6.1.2: Jährliche Messzeit und Datenzeit R^{1064} des ALOMAR RMR Lidars von 2000 bis 2018. Zusätzlich eingetragen ist die jährliche Quote der Datenzeit aus der verfügbaren Messzeit in grau.

Nicht jede einzelne Stunde Messzeit kann auch zur Analyse der stratosphärischen Aerosole verwendet werden. Gründe dafür sind eine nicht ausreichende Datenqualität, zu geringe Signalstärke einzelner Kanäle oder eine zu kurze Messzeit einzelner Kanäle und sehr großer daraus resultierender relativer Fehler. Messläufe, die kürzer als eine volle Stunde dauerten, werden demnach nicht betrachtet. Ein weiteres wichtiges Ausschlusskriterium sind polare Stratosphärenwolken (siehe Kapitel 2.5). Da die Rückstreuverhältnisse von PSC um bis zu zwei Größenordnungen größer als die der stratosphärischen Aerosolschicht sein können und die in den gleichen Höhen auftreten, wird die Aerosolschicht verschleiert. PSC werden aus dem Datensatz aussortiert, indem die Messungen in den Monaten Dezember, Januar und Februar kontrolliert werden. Dabei wird das Profil von R^{1064} jeder einzelnen Messstunde auf Werte größer als zwei zwischen 14 und 28 km untersucht. Werden mehr als 10 solcher Werte gefunden, wird eine PSC detektiert und die Messstunde wird aus dem R^{1064} Datensatz entfernt und in einen separaten Datensatz für polare Stratosphärenwolken verschoben (R_{PSC}^{1064}). Die Anzahl der jährlichen verfügbaren Datenzeit von R^{1064} ist in Abbildung 6.1.2 dargestellt. In blau sind die Jährliche Messzeit als Summe der Messzeiten bei Tag und Nacht gezeigt, in gelb die Datenzeit von R^{1064} pro Jahr.

Von 2000 bis 2008 ist die verfügbare Zeit an Daten deutlich geringer als in den Folgejahren. Sie beträgt in diesem Zeitraum im Durchschnitt 190 Stunden pro Jahr, was auf eine niedrigere Datenqualität durch geringere Signalstärke zurück zu führen ist. Von 2009 bis 2018 sind durchschnittlich 597 Stunden an R^{1064} Daten pro Jahr verfügbar. Dies entspricht einer Verdreifachung der Abdeckung im Vergleich zum früherem Zeitraum. In Abbildungen 6.1.2 ist zusätzlich der zeitliche Verlauf des Verhältnisses aus Messzeit und R^{1064} Datenzeit eingetragen. Während sich dieses von 2000 bis 2008 unterhalb von 50 Prozent bewegt, ist ab 2009 ein drastischer Anstieg zu erkennen. Dieser erreicht 2011 seinen Höhepunkt. Hier konnten aus einer Messzeit von 628 Stunden ganze 575 Stunden R^{1064} Daten gewonnen werden, was einer Quote von 92 Prozent entspricht. Dieses Niveau kann ab 2015 nicht mehr gehalten werden. Dies hängt mit der besseren Messabdeckung von Januar bis März in diesen Jahren zusammen. Durch das häufige Auftreten von PSC in diesen Monaten führt die Vergrößerung der absoluten Messzeit nicht zwangsläufig zu einer Erhöhung der Anzahl an R^{1064} Daten. Die hier beschriebene jährliche Messstatistik ist in Tabelle 6.1 zusammengefasst.

6.2 Jährliche und tägliche Mess- und Datenstatistik

Abbildung 6.2.1 zeigt die summierten Messstunden von 2000 bis 2018 pro Monat. Die Monate mit den meisten Messstunden sind Januar, Februar sowie vor allem die Sommermonate Juni, Juli und August mit 1200 bis zu über 2000 Stunden. Dies liegt, wie bereits erwähnt, daran, dass in diesen Monaten das Observatorium auch während der Nacht besetzt ist. Die Monate September bis Dezember weisen die geringste Zahl an Messstunden auf. In dieser Jahreszeit sind die Witterungsbedingungen für den Messbetrieb im Allgemeinen schlechter als im Jahresdurchschnitt. Außerdem wird der Herbst regelmäßig für Umbauten am Lidar genutzt, was den Messbetrieb ebenfalls einschränkt. Deutlich zu erkennen ist in Abbildung 6.2.1 das Fehlen von Nachtmessungen in den Monaten Mai, Juni und Juli. Dieser Umstand bestätigt die Notwendigkeit der Berechnung der Rückstreuverhältnisses unter reinen Tageslichtbedingungen, wie es in Kapitel 5.2 beschrieben wird.

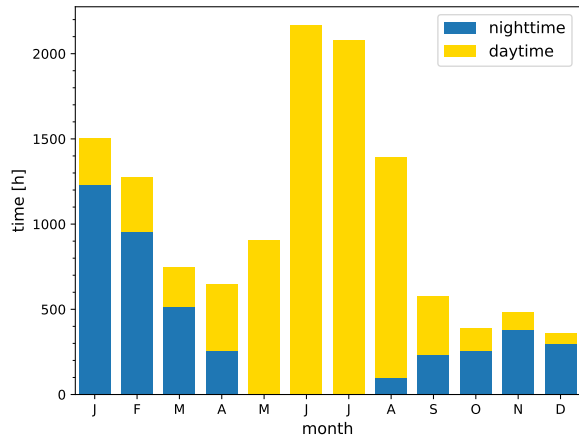


Abbildung 6.2.1: Monatliche Messzeit des ALOMAR RMR Lidars von 2000 bis 2018 unterteilt in Nachtmessungen und Tagmessungen.

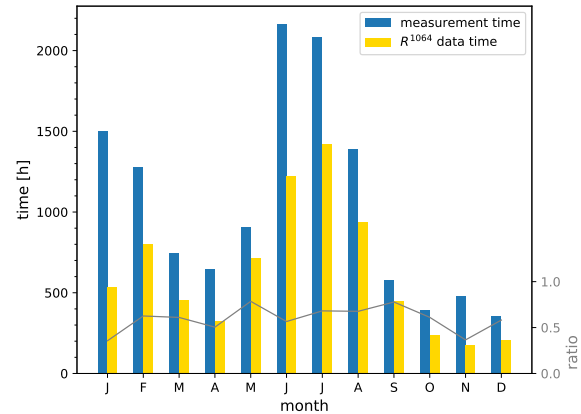


Abbildung 6.2.2: Monatliche Messzeit und Datenzeit R^{1064} des ALOMAR RMR Lidars von 2000 bis 2018. Zusätzlich eingetragen ist die monatliche Quote der Datenzeit aus der verfügbaren Messzeit in grau.

Abbildung 6.2.2 zeigt zusätzlich die pro Monat verfügbare R^{1064} Datenzeit, ebenfalls summiert über die Jahre 2000 bis 2018. Diese erreicht im Sommer die höchsten Werte. Im Juni und im Juli sind deutlich über 1000 Stunden Daten pro Monat verfügbar. Im Gegensatz dazu liegen die Werte für die Herbstmonate Oktober, November und Dezember unter 300 Stunden. Für den Januar ist die Diskrepanz zwischen Messzeit und R^{1064} Datenzeit mit ungefähr 1000 Stunden besonders hoch. Auch dieser Umstand ist auf das häufige Auftreten von PSC im Januar zurück zu führen. Allgemein ist die Quote der Datenzeit pro Messstunde zwischen Mai und September etwas höher als im Rest des Jahres. Insgesamt besteht der R^{1064} Datensatz aus 7490 Stunden Daten.

Die Messstatistik bezüglich der Tageszeit ist in Abbildung 6.2.3 dargestellt. Es ist ein deutlicher Tagesgang zu erkennen. Während die Messzeit zwischen 00 und 06 UTC zwischen 350 und 400 Stunden beträgt, steigt dieser Wert im Tagesverlauf bis 18 UTC kontinuierlich auf über 650 Stunden an. In den Abendstunden bis 23 UTC sinkt die stündliche Messdauer wieder auf 400 Stunden ab. Diese Abhängigkeit von der Tageszeit ist durch die Besetzung des Observatoriums zu erklären. ALOMAR ist an Werktagen ständig von 08 bis 20 UTC besetzt, außerhalb dieser Tageszeiten nur im Sommer und Winter. Eingetragen in Abbildung 6.2.3 ist auch die verfügbare Datenzeit R^{1064} über den Tagesverlauf sowie das Verhältnis aus Messzeit und Datenzeit. Dieses liegt über den gesamten Tag um 60 Prozent. Es liegt somit keine Abhängigkeit der verfügbaren Daten von der Tageszeit vor.

Der primäre Zweck des ALOMAR RMR Lidars ist die Erforschung der mittleren Atmosphäre. Es ist optimiert, um Winde und Temperaturen sowie leuchtende Nachtwolken in der Mesosphäre zu untersuchen. Dies wird ersichtlich, betrachtet man die Unterkanten der Signale verschiedener Wellenlängen, wie in Abbildung 6.2.4. Dort ist für jede verfügbare Messung die jeweils unterste Höhe eingetragen, ab der das Signal gemessen wurde. Für S^{1064} ist eine kontinuierliche Absenkung der Signalunterkante von ungefähr 20 km an im Jahr 2000 zu erkennen. Teilweise wird das Signal in den früheren Jahren erst ab 25 km detektiert. Gleiches gilt für S^{532} und S^{355} . Dies schränkt die Untersuchung der stratosphärischen Aerosolschicht in den Jahren

2000 bis 2008 ein, da die UTLS-Region oberhalb der Tropopause nicht abgedeckt wird. Von 2008 bis 2015 befinden sich die Signalunterkanten für alle Wellenlängen um 10 km. Da diese Höhe in den meisten Fällen unterhalb der Tropopause liegt, sind in diesem Zeitraum nur geringe Einschränkungen vorhanden. Mit dem Ziel die Aerosolschicht in der Stratosphäre zu untersuchen wurden 2014 die Signalunterkanten auf ungefähr zwei Kilometer herab gesetzt. Damit ist die Stratosphäre zu 100 Prozent abgedeckt, was die Berechnung von Aerosolrückstreuverhältnisprofilen ohne Einschränkungen in der Höhe ermöglicht.

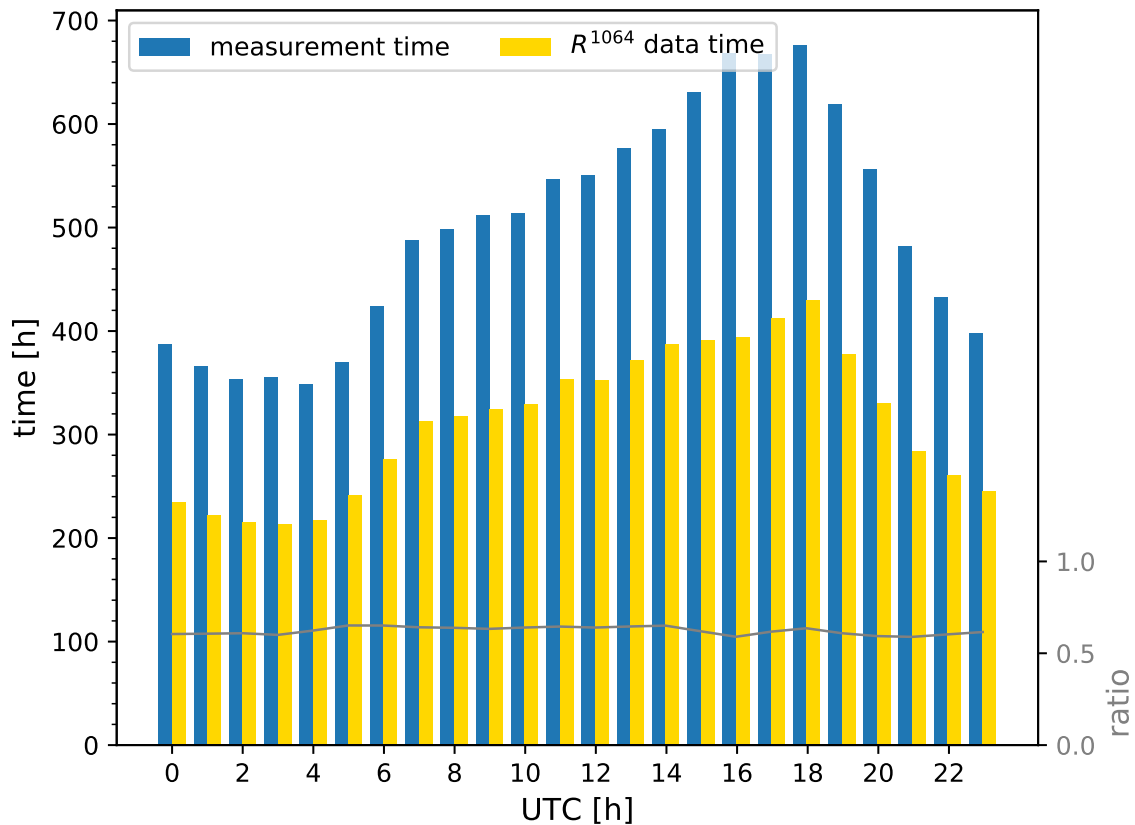


Abbildung 6.2.3: Messzeit und Datenzeit R^{1064} des ALOMAR RMR Lidars von 2000 bis 2018 in Abhängigkeit der Tageszeit. Zusätzlich eingetragen ist die monatliche Quote der Datenzeit aus der verfügbaren Messzeit in grau.

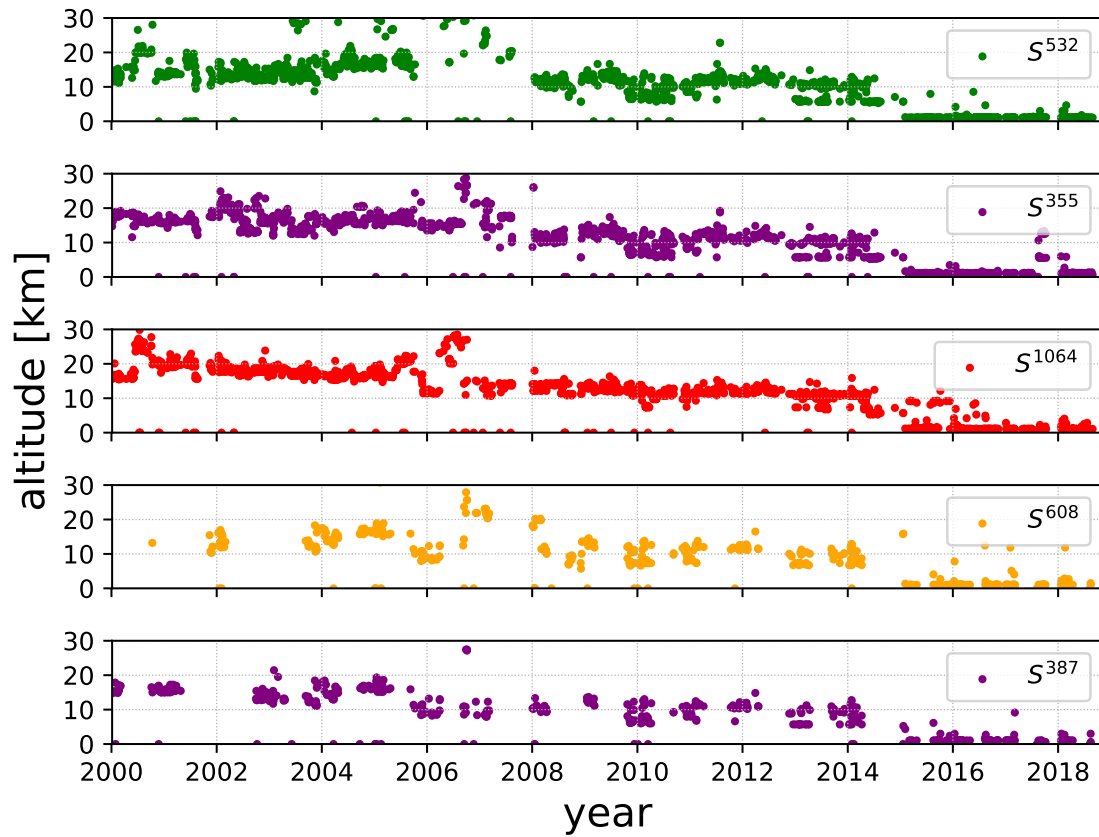


Abbildung 6.2.4: Zeitlicher Verlauf der Signalunterkanten rückgestreuter Signale verschiedener Wellenlängen.

Jahr	Messzeit Tag in h	Messzeit Nacht in h	Summe Messzeit in h	Datenzeit R^{1064} in h
2000	205	88	293	155
2001	263	81	344	97
2002	553	309	862	293
2003	372	104	476	169
2004	331	212	543	172
2005	338	159	497	164
2006	211	76	287	118
2007	413	121	534	223
2008	568	116	684	129
2009	651	229	880	370
2010	442	279	721	556
2011	515	113	628	575
2012	361	121	482	425
2013	691	181	872	772
2014	626	285	911	760
2015	533	241	774	602
2016	561	374	935	653
2017	581	281	862	593
2018	557	388	945	664
Gesamt	8772	3758	12530	7490

Tabelle 6.1: Messzeitstatistik des ALOMAR RMR Lidars.

7 Beobachtungen der Aerosolschicht über ALOMAR von 2000 bis 2018

In Kapitel 3 wurde erklärt, wie mit Hilfe eines Lidars Daten zur Untersuchung der stratosphärischen Aerosolschicht gewonnen werden können. Kapitel 4 beschäftigte sich mit der anschließenden Prozessierung der Daten und der Validierung der Methodik. Die neu entwickelte Methode zur Berechnung der Rückstreuverhältnisse auch bei Tageslicht wurde in Kapitel 5 beschrieben. Diese unterschiedlichen Methoden und theoretischen Grundlagen wurden auf den in Kapitel 6 vorgestellten Datensatz angewendet. In diesem Kapitel werden die daraus gewonnenen Ergebnisse präsentiert. Dabei wird die langfristige Variabilität der Aerosolschicht genauso untersucht, wie die charakteristischen Verläufe der Schicht während eines Jahres oder Tages. Es wird ein besonderer Zustand der Aerosolschicht vorgestellt, der bisher nicht in der Literatur beschrieben ist. Auch für polare Stratosphärenwolken wird eine Auswertung vorgenommen. In den folgenden Abschnitten wird, sofern nicht anders angegeben, der Datensatz R^{1064} ausgewertet. Die Basis für langfristige Berechnungen stellen jeweils Daten dar, die über den Zeitraum von einer Stunde gemittelt wurden.

7.1 Langzeitvariabilität

Von großer Bedeutung ist die langfristige Entwicklung der globalen Aerosolschicht. Diese ist in Abbildung 7.1.1 gezeigt. Dargestellt sind die mittleren monatlichen Profile von R^{1064} zwischen 2000 und 2018. Auffällig ist zunächst die Messlücke in der unteren Stratosphäre von 2008. Diese ist auf die in Kapitel 6 beschriebenen höheren Signalunterkanten zurück zu führen, genauer siehe Abbildung 6.2.4. Weitere Messlücken ergeben sich aus Monaten ohne die Durchführung von Messungen, wie beispielsweise von September bis Dezember 2007 wegen umfangreicher Umbauarbeiten oder im Herbst 2014 wegen schlechter Wetterbedingungen. Die in Abbildung 7.1.1 gezeigten Profile stellen jeweils das mittlere Rückstreuverhältnis aus allen in diesem Monat verfügbaren Daten dar. Zwei Beobachtungen sind hier augenscheinlich: Erstens erkennt man eine saisonale Variation der Aerosolschicht oberhalb von 25 km und zweitens kommen sporadisch Phasen mit hoher Aerosolbelastung unterhalb von 20 km vor. Beide Effekte sind noch deutlicher in Abbildung 7.1.2 zu erkennen. Darin ist die langfristige Variabilität des Aerosolrückstreuoeffizienten für verschiedene Höhenbereiche von 2000 bis 2018 gezeigt. Der Rückstreuoeffizient wurde mittels Formel 3.54 bestimmt.

Zuerst soll auf die saisonale Variabilität eingegangen werden. Diese ist am stärksten im obersten Bereich der Aerosolschicht zwischen 26 und 30 km (blau in Abbildung 7.1.2). Innerhalb eines Jahres variiert β mit einer Amplitude von einer Größenordnung mit den höchsten Werten in den Sommermonaten um $2 \cdot 10^{-10} \text{ 1/m sr}$ und einem Winterminimum um $1 \cdot 10^{-11} \text{ 1/m sr}$, wie beispielsweise im Jahr 2011. Die saisonale Variabilität in diesem Höhenabschnitt ist erst ab dem Jahr 2008 kontinuierlich zu erkennen. In den früheren Jahren sind nicht ausreichend Daten verfügbar, um diesen Effekt zu erkennen. Im darunterliegenden Abschnitt zwischen 22 und 26 km (grün in Abbildung 7.1.2) ist die Amplitude der saisonalen Variabilität geringer aber

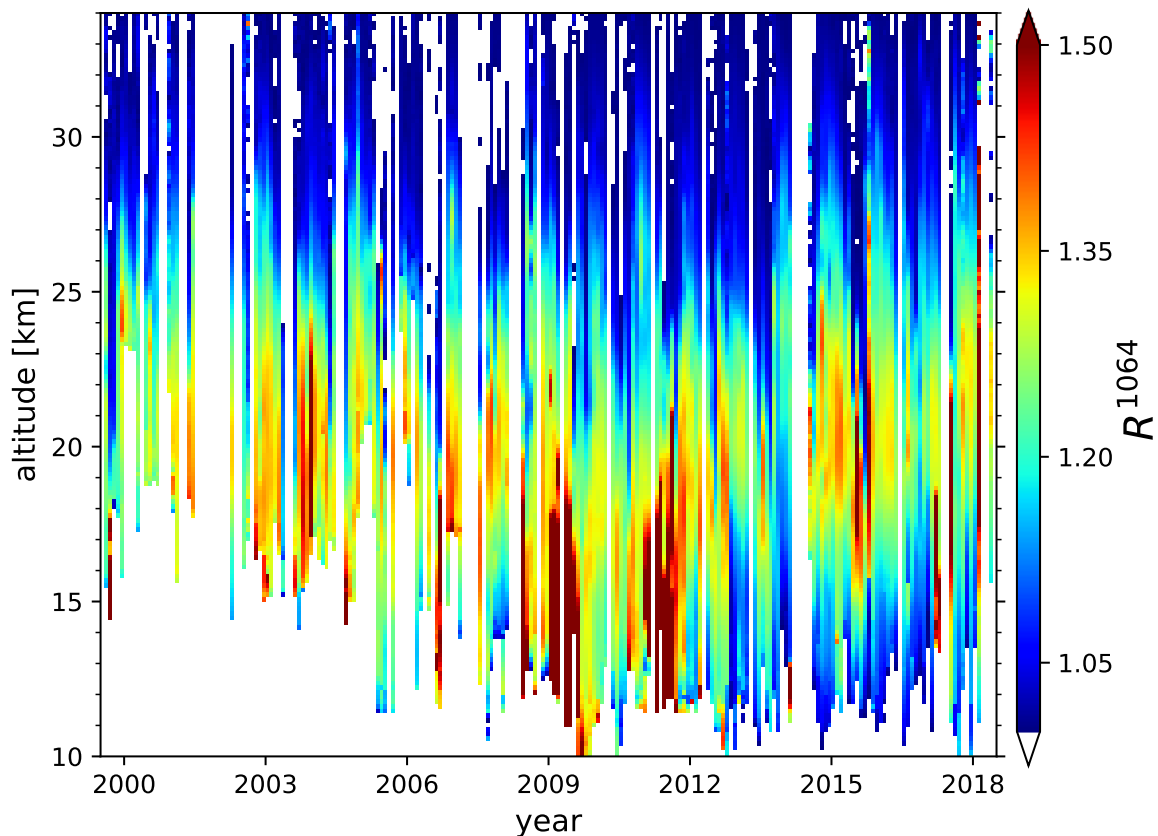


Abbildung 7.1.1: Mittlere Monatsprofile R^{1064} von 2000 bis 2018.

deutlich ab dem Jahr 2003 zu erkennen. Die Werte schwanken zwischen $2 \cdot 10^{-10} \text{ 1/m sr}$ und $9 \cdot 10^{-10} \text{ 1/m sr}$ innerhalb eines Jahres. Auf die Ursache für die saisonale Variabilität wird bei der Betrachtung eines typischen Jahresganges in Abschnitt 7.2 eingegangen. Auffällig ist in Abbildung 7.1.2, dass zwischen 18 und 30 km in den verschiedenen Schichten kein langfristiger Trend im Rückstreuungskoeffizienten der stratosphärischen Aerosolschicht zu erkennen ist. Die Werte variieren außerhalb der innerjährlichen Schwankungen über den gesamten Betrachtungszeitraum nicht. Es kann in diesem Höhenbereich keine offensichtliche Veränderung der Aerosolschicht über ALOMAR festgestellt werden.

Im Vergleich der Rückstreuungskoeffizienten im Höhenbereich zwischen 14 und 18 km (rot in Abbildung 7.1.2, ab 2008) und dem Höhenbereich zwischen 18 und 22 km (gelb in Abbildung 7.1.2) müssen zwei Zeiträume getrennt betrachtet werden. Von 2008 bis 2012 ist die Rückstreuung in der unteren der beiden Schichten erhöht. Der Unterschied beträgt bis zu einer Größenordnung. Von 2013 bis 2018 hingegen ist der Rückstreuungskoeffizient in beiden Schichten auf dem selben Niveau, die Rückstreuung ist hier demnach zwischen 14 und 22 km nahezu konstant. Das Rückstreuverhältnis nimmt in diesem Höhenbereich zwar zu (siehe Abbildung 7.1.1), die Luftdichte jedoch, welche in die Berechnung des Rückstreuungskoeffizienten eingeht, nimmt exponentiell mit der Höhe ab. Ein relativ konstanter Rückstreuungskoeffizient in diesem Höhenbereich entspricht demnach den Erwartungen. In Zeitraum 2008 bis 2012 weicht die Ausprägung der Aerosolschicht zwischen 14 und 18 km demnach vom Normalzustand ab und ist erhöht. Die Ursache für diese Abweichung sind drei Vulkanausbrüche zwischen August 2008 und Juni 2011 mit einem VEI von 4. Einige Informationen zu diesen Vulkanausbrüchen sind bereits in Tabelle 7.1 zusammengefasst. Da in vulkanisch gestörten Perioden die

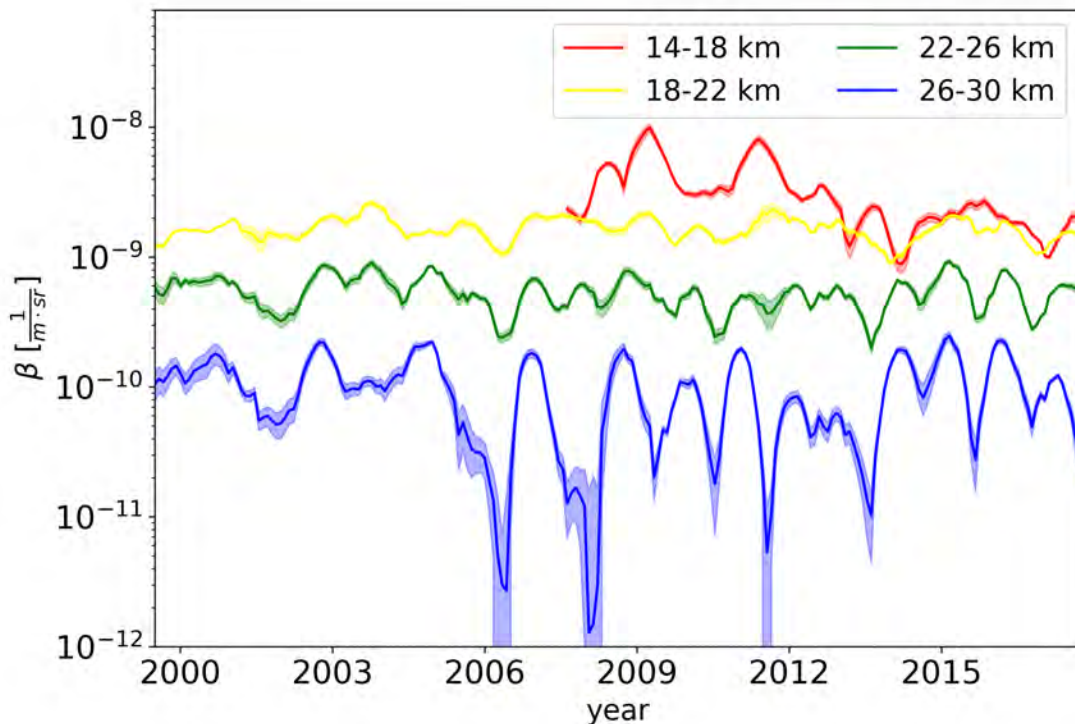


Abbildung 7.1.2: Aerosolrückstreuungskoeffizient für verschiedene Höhenbereiche 2000 bis 2018. Die Daten wurde mit einem gleitenden Mittel über sechs Monate geglättet. Der Fehler des Mittelwertes stellt die Unsicherheit dar.

Hintergrundaerosolschicht durch die große Menge an ausgestoßenem Schwefel überlagert wird, muss bei der Betrachtung der stratosphärischen Aerosolschicht eine Trennung in Zeiträume mit vulkanischem Einfluss und Zeiträume ohne Auswirkungen durch Vulkanausbrüche vorgenommen werden.

7.1.1 Vulkanisch gestörte Perioden

Um vulkanisch gestörte Perioden zwischen 2000 und 2018 zu erkennen, wurde der Datensatz genau auf Messprofile mit Werten von $R^{1064} > 1.5$ untersucht. Es zeigt sich, dass es ausgeprägte Zeiträume gibt, in denen dieser Schwellenwerte in Höhen von bis zu 21 km überschritten wird. In Abbildung 7.1.3 sind die mittleren Monatsprofile R^{1064} für die Jahre 2008 bis 2012 sowie 2017 dargestellt in denen sämtliche dieser Zeiträume zu finden sind. Ergänzend sind in Abbildung 7.1.4 für die Monate Januar, Februar sowie Juli bis Dezember mittlere R^{1064} Monatsprofile zwischen 10 und 22 km gezeigt. Dabei ist das langjährige Mittel für vulkanisch nicht gestörte Jahre zwischen 2000 und 2018 für den jeweiligen Monat in schwarz eingetragen. Die Monatsprofile aus Jahren mit vulkanischer Störung sind farblich hervor gehoben. Es konnten vier Zeiträume identifiziert werden auf die im Folgenden näher eingegangen wird.

▪ Kasatochi - Dezember 2008 bis Januar 2009

Im August 2008 ereignete sich der Ausbruch des Kasatochi auf der Inselgruppe der Aleuten im Nordpazifik. Insgesamt wurden dabei zwischen 1.2 und 2.2 Tg Schwefel ausgestoßen und in eine Höhe

bis zu 20 km emittiert. Die zeitlich an nächsten zum Ausbruch gewonnenen Messdaten stammen vom Dezember 2008. Es lässt sich daher nicht feststellen wann genau die Ausbruchswolke die Stratosphäre über ALOMAR erreicht hat. Im Dezember liegt das Rückstreuverhältnis zwischen 12 und 18 km bei 1.5 bis 1.9 und ist damit deutlich zum langjährigen Mittel erhöht. Im darauf folgenden Monat Januar 2009 ist ein Absinken dieser stark erhöhten Schicht zu beobachten. Ein Abweichen vom langjährigen Mittel kommt nur noch unterhalb von 16 km vor. Im Februar 2009 ist kein Einfluss des Kasatochi-Ausbruchs mehr in den Werten zu erkennen.

▪ **Sarychev Peak - Juli 2009 bis Februar 2010**

Der Vulkan Sarychev Peak brach im Juni 2009 aus und emittierte dabei 1.0 bis 1.5 Tg in eine Höhe von bis zu 15 km. Er ist Teil der Inselgruppe der Kurilen, die sich zwischen Kamtschatka und Hokkaido befindet. Die durch den Ausbruch verstärkte Aerosolschicht wurde am 19. Juli 2009 zum ersten Mal mit dem RMR-Lidar festgestellt. An diesem Tag wurden zwei Schichten mit hoher Rückstreuung bis zu $R^{1064} = 4$ zwischen 23 und 15 km gefunden. Diese Schichten sinken über die nachfolgenden Monate langsam ab. Die erhöhte Rückstreuung ist durchgängig bis zum 4. Februar 2010 zu sehen, wo sie sich in einer Höhe von 11 bis 17 km befindet.

▪ **Nabro - Juli 2011 bis Februar 2012**

Der Vulkan Nabro befindet sich in Eritrea und brach im Juni 2011 aus. Während einer Lidarmessung am 11. Juli wurden in einer Höhe um 15 km erhöhte Aerosolwerte mit $R^{1064} = 2.2$ festgestellt. Die durch den Ausbruch verursachte Verstärkung der Aerosolschicht hielt bis zum Februar 2012 an und befindet sich in diesem Zeitraum zwischen 12 und 21 km. Dabei kann kein kontinuierliches Absinken der verstärkten Schicht beobachtet werden. Das Aerosolprofil vom Februar 2012 weicht auch in einer Höhe von 22 km noch deutlich vom langjährigen Mittel ab.

▪ **Waldbrände Kanada - September 2017 bis Oktober 2017**

Im Herbst 2017 findet sich ein weiterer Zeitraum mit verstärkter Aerosolschicht. Dieser konnte mit keinem Vulkanausbruch in Verbindung gebracht werden. Ursache hierfür sind starke Waldbrände in Westkanada im September 2017. Der entstandene Rauch erreichte Europa 10 Tage nachdem er in die Stratosphäre gelang war und ist in den Lidardaten zuerst am 4. September in einer Höhe von 13 km zu sehen und steigt über die nächsten Wochen bis in 19 km an, wobei maximale Werte von $R^{1064} = 4.1$ erreicht werden. Da die letzte Messung im Jahr 2017 bereits am 9. Oktober stattfand, konnte die Rauchwolke darüber hinaus nicht mit dem Lidar beobachtet werden. Das Waldbrandereignis ist ausführlich in Ansmann et al. (2018) beschrieben.

In Tabelle 7.1 sind Informationen zu den Vulkanausbrüchen, deren Einfluss auf die stratosphärische Aerosolschicht über ALOMAR festgestellt werden konnte, zusammen gestellt. Diese hatten einen geringen, aber messbaren Einfluss auf die stratosphärische Aerosolschicht und einen negativen Beitrag zur Strahlungsbilanz an der Oberfläche von ungefähr -0.1 Watt pro Quadratmeter (Carboni et al., 2016, Solomon et al., 2011). Im Vergleich dazu wurde beim letzten großen Vulkanausbruch, dem des Pinatubo im Juni 1991, eine Änderung

von bis zu -7 Watt pro Quadratmeter festgestellt (Yang u. Schlesinger, 2002). Im Zeitraum von 2000 bis 2018 fanden noch weitere Vulkanausbrüche mit einem VEI von 4 statt, deren Eruptionswolke aber nicht dem ALOMAR RMR Lidar registriert wurde. All diesen Ausbrüchen ist gemein, dass die Menge an ausgestoßenem Schwefeldioxid deutlich geringer ist, als bei den Ausbrüchen, die über ALOMAR registriert werden konnten. Die in dieser Hinsicht stärkste sonstige Eruption, die des Manam im Januar 2005, emittierte maximal 0.6 Tg SO₂ und damit nur gut ein Drittel der Mengen von Nabro und Sarychev Peak (McCormick et al., 2012). Weitere Ursachen dafür, dass vulkanisch induzierter Schwefel in der Stratosphäre Nordnorwegen nicht erreicht, sind die geografische Position des Vulkans sowie die Höhe, in die seine Eruptionswolke gelangt.

Vulkan	geogr. Position	Datum	VEI	Höhe in km	SO ₂ in Tg	Referenz
Kasatochi	52°N, 175°W	August 2008	4	6 - 20	1.2 - 2.2	Prata et al. (2010) Kristiansen et al. (2010) Krotkov et al. (2010)
Sarychev Peak	48°N, 153°O	Juni 2009	4	10 - 15	1.0 - 1.5	Haywood et al. (2010) Carn u. Lopez (2011)
Nabro	13°N, 41°O	Juni 2011	4	15 - 20	1.0 - 1.5	Clarisse et al. (2014) Carboni et al. (2016)

Tabelle 7.1: Übersicht über Vulkanausbrüche von 2000 bis 2018 mit atmosphärischen SO₂ Emissionen von mindestens 1 Tg.

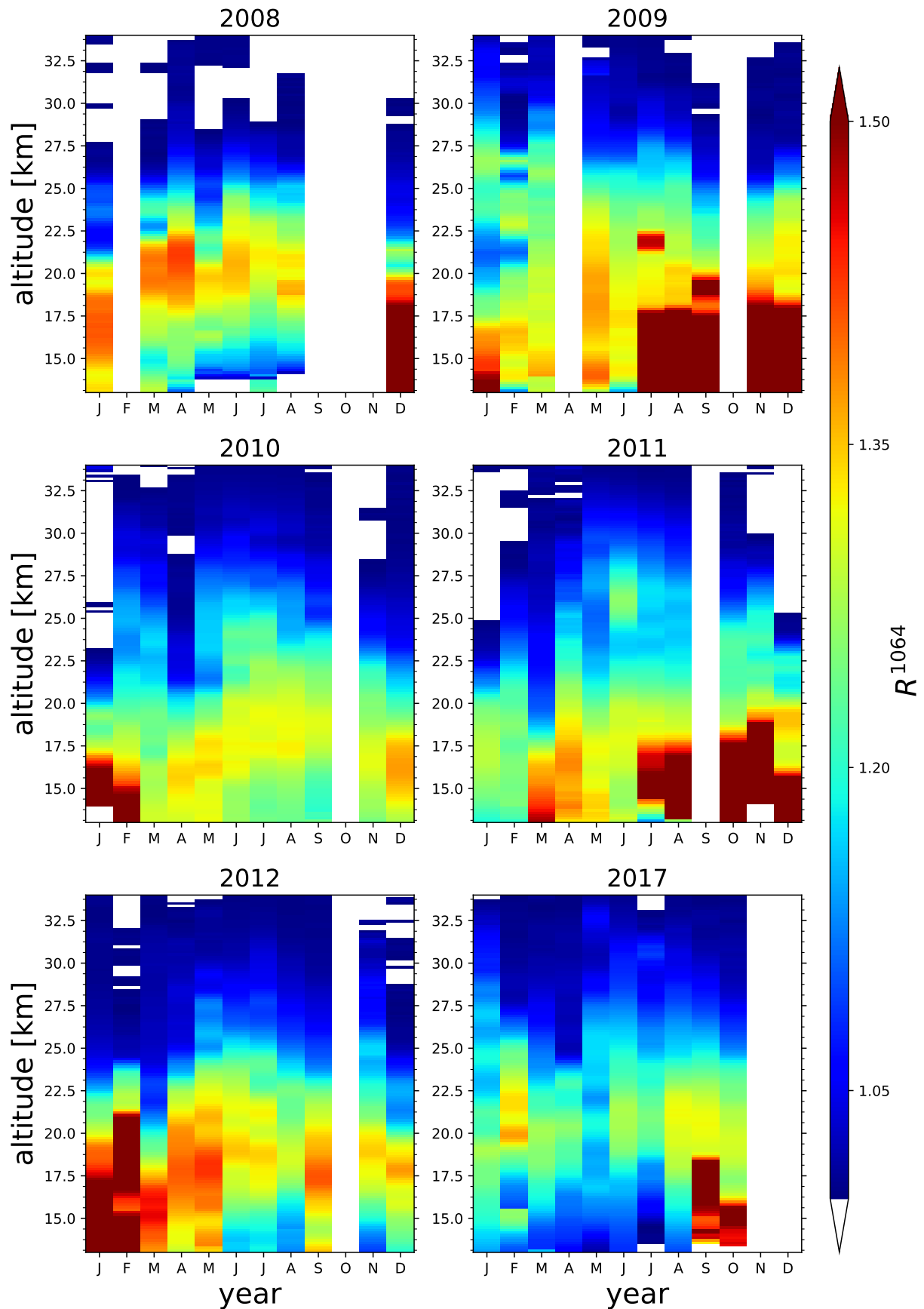


Abbildung 7.1.3: Mittlere Monatsprofile R^{1064} für Jahre mit vulkanischem Einfluss. Die über ALOMAR registrierten Ausbrüche fanden im August 2008 (Kasatochi), im Juni 2009 (Sarychev Peak) und im Juni 2011 (Nabro) statt.

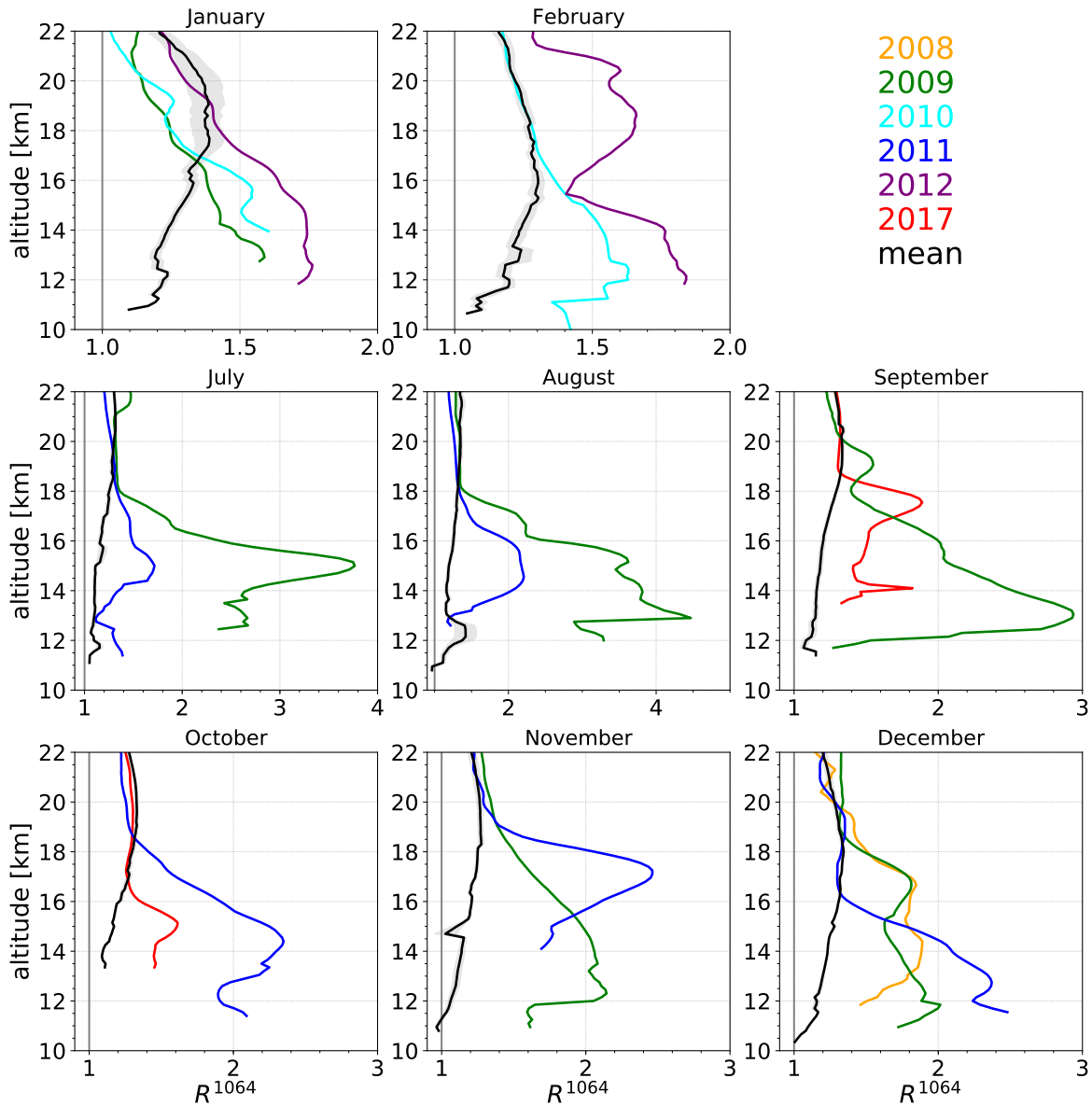


Abbildung 7.1.4: Mittlere Monatsprofile R^{1064} für die Monate Januar, Februar, sowie Juli bis Dezember. Dargestellt sind alle verfügbaren Profile von R^{1064} von 2000 bis 2018. Vulkanisch gestörte Profile sind farblich hervorgehoben, wobei die jeweilige Farbe das Jahr des Profils anzeigt: orange (2008), grün (2009), cyan (2010), blau (2011), lila (2012), rot (2017).

7.1.2 Vergleich mit dem RMR-Lidar in Kühlungsborn

Auch am Standort des IAP in Kühlungsborn wird ein RMR-Lidar betrieben, mit dem die stratosphärische Aerosolschicht untersucht werden kann. Dazu wird Licht mit einer Wellenlänge von 532 nm emittiert und wie das inelastisch rückgestreute Signal mit einer Wellenlänge von 608 nm wieder empfangenen. Aus diesen beiden Signalen wird das Rückstreuverhältnis R_{Kborn} berechnet. Dieser Datensatz umfasst 699 Nachtmittelprofile zwischen 2004 und 2013. Es wurde eine Rayleigh-Korrektur mittels Rayleigh-Streuquerschnitten aus Thome et al. (1999) und monatlich und zonal gemittelten Dichteprofilen aus CIRA (COSPAR¹ International Reference Atmosphere) vorgenommen (Fleming et al., 1990). Außerdem wurde eine Ozon-Korrektur mit Hilfe des „Berliner Ozon-Modells“ durchgeführt (Fortuin u. Langematz, 1995). Die Normierungshöhe für R_{Kborn} beträgt 34 km. Abbildung 7.1.5 zeigt sämtliche dieser gewonnenen Rückstreupprofile über Kühlungsborn.

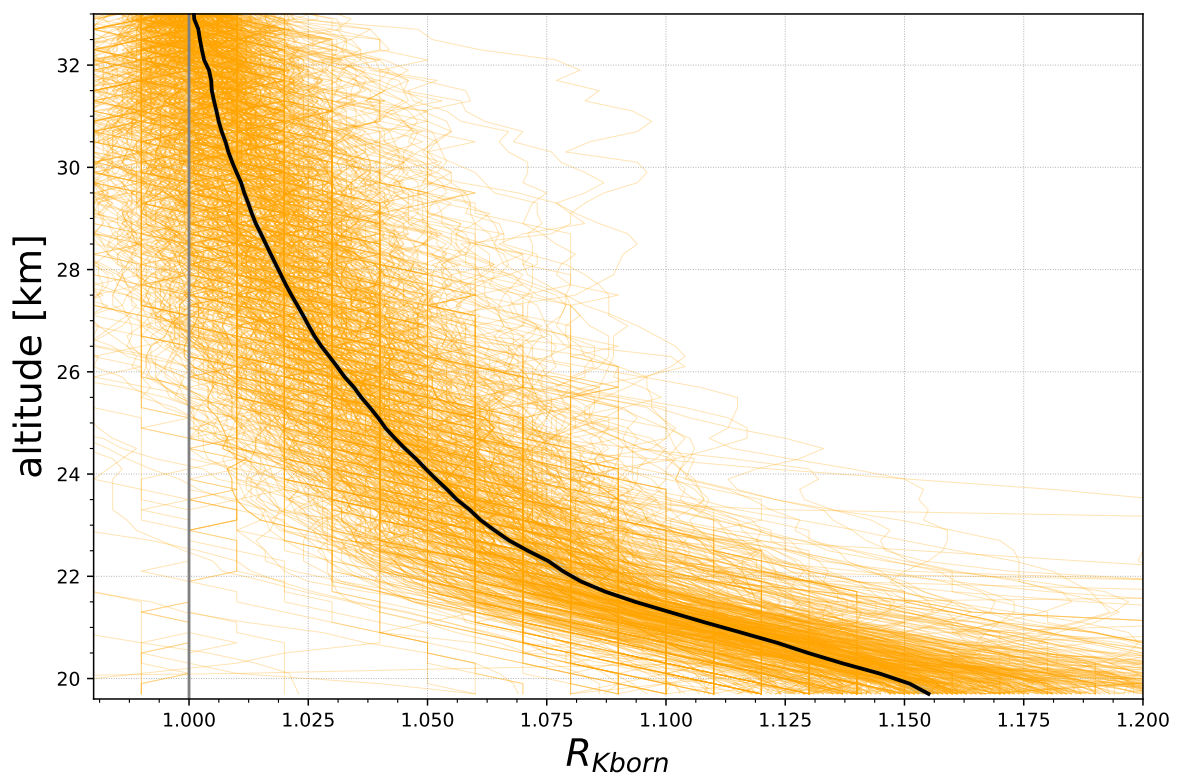


Abbildung 7.1.5: Rückstreuprofile R_{Kborn} des RMR-Lidars Kühlungsborn. In orange sind die mittleren Profile einzelner Messnächte eingezeichnet, in schwarz das langfristige Mittel dieser Einzelmessungen.

Da die Daten nur einen Höhenbereich von 19.7 bis 33 km abdecken, ist lediglich der Teil der Aerosolschicht von ihrer maximalen Ausprägung bis zur Oberkante zu erkennen. Das mittlere Profil weist bei 20 km eine Rückstreuung von 1.15 auf und fällt innerhalb der folgenden zwei Kilometer bereits auf die Hälfte ab. Der Fehler ΔR des mittleren Rückstreuprofiles ist ebenfalls in Abbildung 7.1.5 eingezeichnet. Dieser ist berechnet als Fehler des Mittelwertes nach:

$$\Delta R = \frac{\sigma}{\sqrt{n}} \quad (7.1)$$

¹Committee of Space Research

mit σ der Standardabweichung und n der Anzahl an Messprofilen. Durch die große Menge an Daten für jeden Höhengradschritt wird ΔR jedoch sehr klein, so dass er nicht zu erkennen ist. Die Standardabweichung des mittleren Aerosolprofils über Kühlungsborn beträgt 0.05 bei 20 km und 0.01 bei 32 km. Zu bemerken ist die Anwesenheit von Aerosol oberhalb von 30 km. Hier beträgt die Aerosolbeladung im Mittel 1.0099 ± 0.0007 bei einer Standardabweichung von 0.02. Mögliche Auswirkungen von Aerosol oberhalb von 30 km werden in Abschnitt 7.2 beschrieben.

Abbildung 7.1.6 zeigt eine Gegenüberstellung von Aerosoldaten aus Kühlungsborn und von ALOMAR. Dazu wurde der Mittelwert der jeweiligen Profile zwischen 19.7 und 33 km gebildet und aus diesen Werten ein monatliches Mittel gebildet. Da aufgrund des benötigten inelastischen Rückstreuesignals bei 608 nm nur Nachtmessungen in die Analyse eingehen können, entstehen im ALOMAR Datensatz größere Lücken über die Sommermonate, während in Kühlungsborn das ganze Jahr über Nachtmessungen durchgeführt werden können. In den ALOMAR-Daten ist eine größere Streuung zu erkennen, die Standardabweichung beträgt 0.03, während sie beim Kühlungsborn-Datensatz nur 0.01 beträgt. Hierfür sind PSC verantwortlich, die in R_{608}^{532} enthalten sind und in den Wintermonaten zu erhöhter Rückstreuung führen. Über Kühlungsborn liegt die monatlich gemittelte Rückstreuung größtenteils zwischen 1.02 und 1.04. Es ist keine langfristige Entwicklung in den Daten zu erkennen. Auch eine Verstärkung durch vulkanische Aktivität in den Jahren 2008 bis 2012 ist nicht festzustellen. Dies ist auch für ALOMAR der Fall, da hier nur Höhen oberhalb von 20 km betrachtet werden, in die vulkanische Emissionen im Untersuchungszeitraum nicht vorgestoßen sind. Die Aerosolwerte für ALOMAR sind etwas geringer als in Kühlungsborn. Eine mögliche Erklärung ist, dass ein Großteil der Daten aus ALOMAR im Winter gewonnen wurde (siehe Nachtmesszeiten in Abbildung 6.2.1), währenddessen die Aerosolschicht in etwas niedrigerer Höhe anzutreffen ist und somit die Rückstreuung oberhalb von 20 km geringer ausfällt. Andererseits treten zu dieser Zeit über ALOMAR PSC auf, die wiederum zu großen Rückstreuverhältnissen führen. Die Stratosphäre ist über beiden Orten sehr unterschiedlich ausgeprägt. Kühlungsborn wird den gemäßigten Breiten zugeordnet, ALOMAR liegt in polaren Breiten und ist daher anderen Einflüssen und Phänomenen, wie zum Beispiel der Bildung und dem Zusammenbrechen des Polarwirbels, unterworfen. Insgesamt trennen beide Stationen etwa 1700 km.

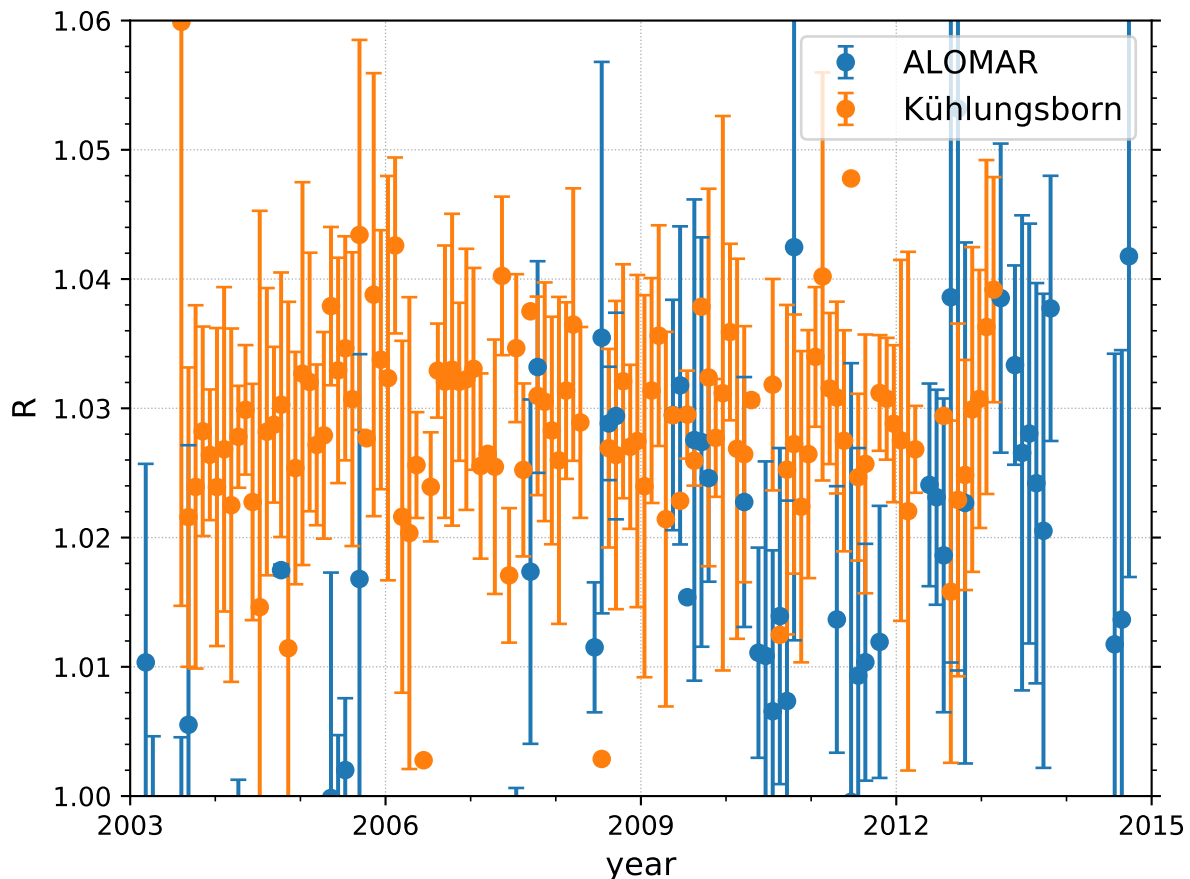


Abbildung 7.1.6: Vergleich der monatlich gemittelten R_{608}^{532} -Profile von ALOMAR und R_{Kborn} aus Kühlungsborn von 2003 bis 2015. Die Daten sind jeweils für den Höhenbereich 19.7 bis 33 km gemittelt. Die Fehlerbalken geben die Standardabweichung wieder.

7.2 Mittlerer Jahresgang

Die saisonale Variabilität der stratosphärischen Aerosolschicht über ALOMAR ist bestimmt durch die Dynamik der Stratosphäre. Diese wiederum ist in den Wintermonaten von der Bildung des Polarwirbels beeinflusst. Dieser Wirbel bildet sich aufgrund der negativen Strahlungsbilanz über dem Winterpol aus und ist verbunden mit einem Absinken von Luftmassen in der Stratosphäre (siehe Kapitel 2.2). In Abbildung 7.2.1 ist der langjährige mittlere Jahresgang von R^{1064} aus den Jahren 2000 bis 2018 gezeigt. Für diese Abbildung wurden die Daten nach dem Tag innerhalb des Jahres, indem sie aufgenommen wurden, sortiert und anschließend daraus ein mittleres Tagesprofil berechnet. Zusätzlich ist in Abbildung A.3.1 der gleiche Zusammenhang für monatlich gemittelte Daten gezeigt.

Innerhalb der ersten 40 Tage des Jahres kommen vereinzelt Tage mit hoher Aerosolbeladung unterhalb von 21 km vor. Diese Erhöhung ist auf die in Abschnitt 7.1.1 beschriebenen Vulkanausbrüche, deren Schwefelemissionen ALOMAR im Januar und Februar der Jahre 2009, 2010 und 2012 erreichten. In den darauf folgenden Monaten bis zur Jahresmitte steigt die Höhe der maximalen Rückstreuung kontinuierlich an und erreicht über die Sommermonate ein Maximum bei ungefähr 20 km. Zwischen Tag 200 und 230 sind ebenfalls regelmäßig verstärkte Bereiche unterhalb von 18 km zu sehen. Auch hier sind besagte

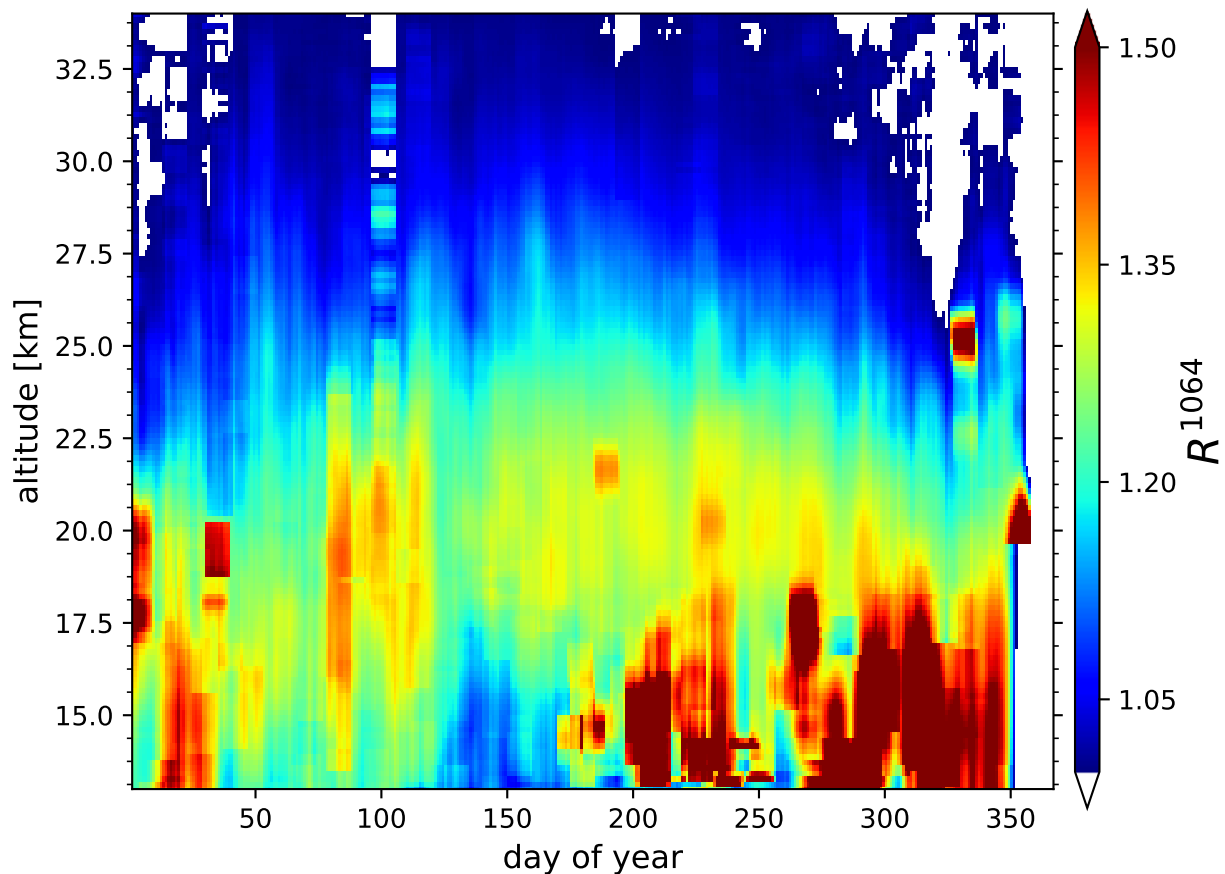


Abbildung 7.2.1: Mittlerer Jahresgang R^{1064} von 2000 bis 2018. Die Daten wurden mit einem gleitenden Mittel über 10 Tage geglättet.

Vulkanausbrüche sowie die Waldbrände in Kanada im Jahr 2018 ursächlich. Zum Ende des Jahres sinkt die Höhe der maximalen Rückstreuung wieder ab bis auf etwa 17 km. Dieses Absinken wird durch das Absinken der Luft innerhalb des Polarwirbels verursacht. Da sich die Position von ALOMAR allerdings am Rand dieses Wirbels befindet, wird manchmal Luft innerhalb des Wirbels und manchmal Luft außerhalb des Wirbels beobachtet. Das führt zu einer Variation der Höhe der Aerosolschicht in den Wintermonaten. In Abbildung 7.2.1 ist der jährliche Zyklus der Höhenabhängigkeit der stratosphärischen Aerosolschicht besser zu erkennen. Während sich im Januar ein Wert von $R^{1064} = 1.2$ durchschnittlich auf einer Höhe von 22 km befindet, steigt diese Höhe auf bis zu 26 km im Juni an, um anschließend auf 21 km im Dezember abzusinken.

Im Folgenden werden diejenigen Daten aus dem Datensatz ausgeschlossen, welche in Zeiten mit vulkanischer Aktivität bzw Waldbränden liegen, um einen bereinigten Datensatz der stratosphärischen Aerosolschicht über ALOMAR zu gewinnen, der ausschließlich vulkanisch ruhige Perioden beinhaltet. Lässt man diese Daten aus ergibt sich Abbildung 7.2.2. Diese zeigt ebenfalls monatlich gemittelte Aerosolwerte von 2000 bis 2018. Durch den Ausschluss der vulkanisch gestörten Zeiträume ergibt sich ein deutlich ruhigerer Jahresgang. Die Regionen deutlich erhöhter Rückstreuung im Winter und Herbst sind verschwunden. Der Anstieg der Aerosolschicht bis zum Sommer und das darauf folgende Absinken sind gut zu erkennen. Die größten Werte werden im Januar zwischen 16 und 21 km beobachtet. Die Rückstreuung erreicht hier Werte um $R^{1064} = 1.35$. Diese Erhöhung ist einerseits durch die geringere vertikale Ausdehnung der Aerosolschicht im

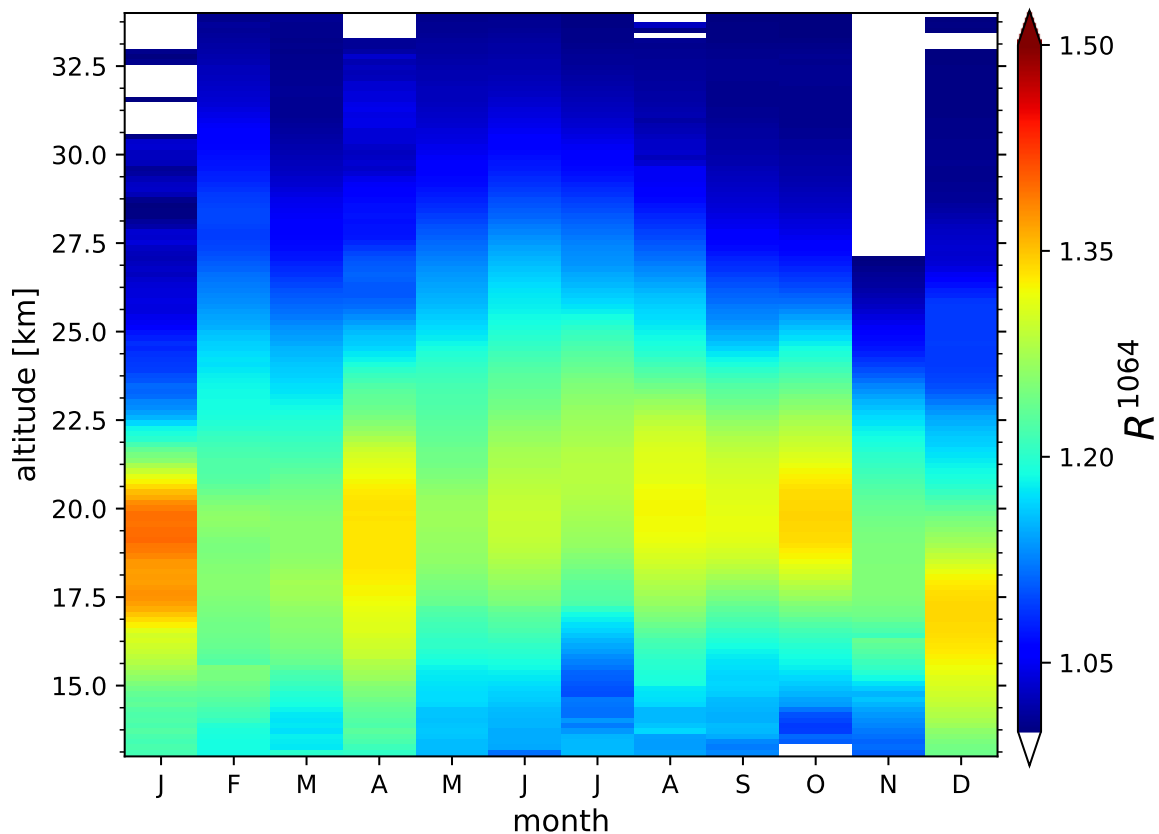


Abbildung 7.2.2: Mittlerer vulkanisch bereinigter monatlicher Jahresgang R^{1064} von 2000 bis 2018.

winterlichen Polarwirbel zu erklären, da die Aerosolpartikel dann in einem geringerem Volumen konzentriert werden. Andererseits kann nicht gänzlich ausgeschlossen werden, dass noch vereinzelte schwache PSC im Datensatz vorkommen, welche die Erhöhung ebenfalls erklären würden.

Eine wichtiger Befund aus Abbildung 7.2.2 ist, dass stratosphärisches Aerosol mit Ausnahme des Novembers im gesamten restlichen Jahr auch oberhalb von 30 km befindet. Im Sommer ist das typische Rückstreuverhältnis bei 30 km $R^{1064} = 1.05 \pm 0.02$, was einen klaren Beweis für Aerosol in dieser Höhe darstellt. Dieser Befund steht in Kontrast zu früheren Studien in denen der Beginn des aerosolfreien Höhenbereichs mit 30 km angegeben wurde (Barnes u. Hofmann, 1997, Khaykin et al., 2017, McCormick et al., 1984, Zuev et al., 2017). Allerdings wurden sämtliche dieser Studien in mittleren und niederen Breiten durchgeführt. Die Anwesenheit von Aerosol in der Normierungshöhe würde zu einem Unterschätzen der darunterliegenden Aerosolschicht führen.

Die zu den hier dargestellten Daten gehörige Standardabweichung befindet sich in Abbildung A.3.2. Mit Ausnahme des Monats April sind die Werte unterhalb von 32 km kleiner als 0.01 und der relative Fehler von R^{1064} liegt bei weniger als einem Prozent. Auf den April wird genauer im Anhang in Abschnitt A.3.1 eingegangen.

7.3 Mittlerer Tagesgang

Die Abhängigkeit der stratosphärischen Aerosolschicht von der Tageszeit ist in der Literatur bisher nicht beschrieben. Der umfangreiche ALOMAR-Datensatz soll an dieser Stelle erstmals dahingehend untersucht werden. Dazu werden die stündlich gemittelten R^{1064} -Daten nach der Tageszeit sortiert, um anschließend ein mittleres Profil für jede Stunde des Tages zu berechnen. Es werden hierbei lediglich die Daten der Monate März, April, September und Oktober verwendet, da nur zu diesen Zeiten ein ausgeprägter Wechsel von Tag und Nacht über ALOMAR existiert. Insgesamt stehen in diesen Monaten 2380 Stunden an Daten aus den Jahren 2000 bis 2018 zur Verfügung. Das Resultat ist in Abbildung 7.3.1 dargestellt.

Man erkennt einen relativ konstanten Verlauf der Höhe der Aerosolschicht über den Tag. Allerdings tritt zwischen etwa 15 und 22 km ein Bereich mit leichter Erhöhung der Aerosolbelastung am Vormittag auf. Diese Verstärkung soll nun mit Hilfe von Abbildung 7.3.2 genauer untersucht werden. Darin ist der Tagesgang der Aerosolschicht für verschiedene Höhenbereiche dargestellt. Die Unsicherheit ist jeweils durch die Standardabweichung über den Höhenbereich gegeben.

Die größte tägliche Variation findet sich demnach im Höhenbereich von 14 bis 18 km. Der Unterschied zwischen dem täglichen Minimum um 0 UTC und dem Maximum um 5 UTC beträgt 5.7 Prozent.

Dieser Anstieg findet nahezu ausschließ-

lich zwischen 3 und 5 UTC statt. Dieses höhere Aerosolniveau bleibt bis 8 UTC bestehen und fällt dann bis 14 UTC wieder auf den Ausgangswert des Tagesbeginns zurück und bleibt durch die Nacht hinweg konstant. Ein äquivalenter Verlauf lässt sich auch für die darüber liegenden Höhenbereiche beobachten. Die Größe der Schwankungen nimmt allerdings mit der Höhe ab. Um das Maximum der Aerosolschicht herum, bei 18 bis 22 km, beträgt die tägliche Schwankung noch 3.4 Prozent. In den beiden höheren Schichten bei 22 bis 26 km und 26 bis 30 km liegt diese bei 2.5 bzw. 1.5 Prozent und damit innerhalb der Unsicherheiten. Ein Beispiel einer längeren Messung aus dem Oktober 2015 ist bereits in Abbildung 5.1.2 gezeigt. Auch hier sind unterhalb der maximalen Ausprägung der Aerosolschicht Verstärkungen in den frühen Morgenstunden über drei Tage zu erkennen.

Die genaue Ursache dieses Tagesgangs in der unteren Aerosolschicht ist nicht bekannt. Es sollen hier allerdings einige Möglichkeiten diskutiert werden. Zunächst können instrumentelle Effekte ausgeschlossen werden. In Abbildung 7.3.2 ist zusätzlich der mittlere Verlauf des Sonnenstandes in den Monaten März, April, September und Oktober über den Tag in grau eingetragen, als Ungenauigkeit dient die Standardabweichung über die betrachteten Monate. Der Sonnenstand ist der Elevationswinkel der Sonne über dem sichtbaren

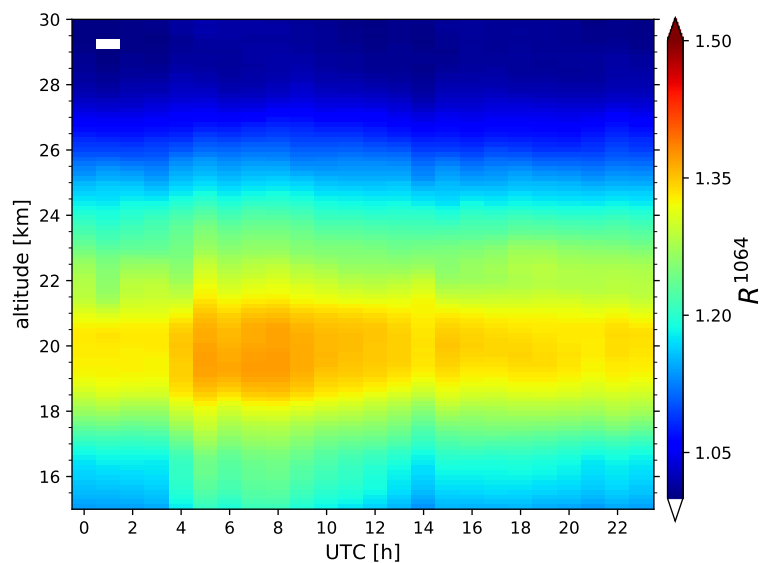


Abbildung 7.3.1: Mittlerer Tagesgang R^{1064} von 2000 bis 2018 der Monate März, April, September und Oktober. Für die Lokalzeit LT gilt: $LT = UTC + 1.06$ h

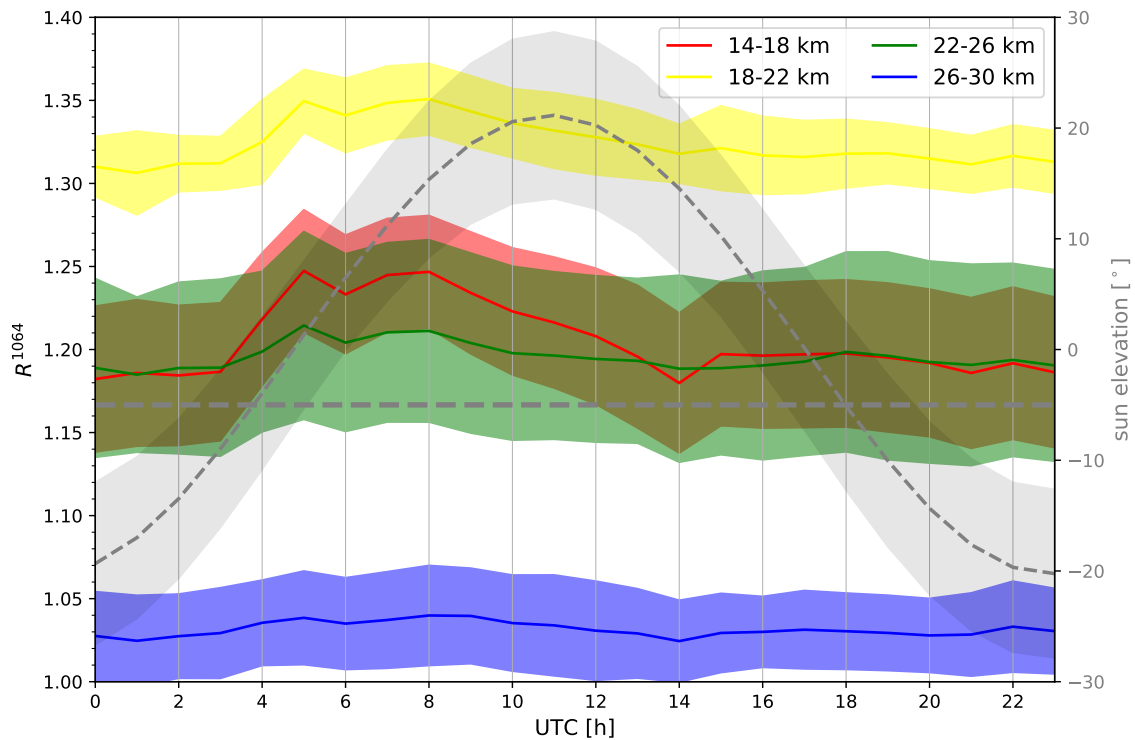


Abbildung 7.3.2: Mittlerer Tagesgang R^{1064} von 2000 bis 2018 der Monate März, April, September und Oktober für verschiedene Höhenbereiche. Außerdem ist der mittlere Verlauf des Sonnenstandes in diesen Monaten über ALOMAR in einer Höhe von 20 km in grau eingezeichnet. Grau hervorgehoben ist die -5° -Schwelle des Sonnenstandes, bei der das Lidar die Tag/Nachtmesskonfiguration ändert.

Horizont. Er wurde für verschiedene Höhen vom Erdboden bis in 28 km berechnet, Differenzen treten jedoch aufgrund der großen Entfernung zur Sonne erst in der fünften Nachkommastelle auf. Der Anstieg der Aerosolbeladung fällt dabei mit einem Anstieg des Sonnenstandes von etwa -10° bis auf 0° zusammen. Während die Sonne danach jedoch weiter ansteigt, bleibt das Aerosolniveau gleich, es fällt bereits vor Erreichen des maximalen Sonnenstandes um 11 UTC wieder ab. Als grau gestrichelte horizontale Linie ist in Abbildung 7.3.2 ein Sonnenstand von -5° hervorgehoben. Erreicht der Sonnenstand diesen Wert, wechselt das Lidar aus der Nachtkonfiguration in die Tagkonfiguration, hier kurz vor 4 UTC, bzw. anders herum, hier um 18 UTC. Dieser Wechsel wurde bis 2015 manuell vom Operator des Lidars vorgenommen, wodurch der Sonnenstand zum Zeitpunkt der Umstellung nicht immer genau -5° betrug. Diese Fehlerquelle ist durch die relativ große Unsicherheit im Tagesgang des Sonnenstandes abgedeckt, welche durchschnittlich über 7° beträgt. Während sich der Wechsel von Nacht zu Tag mit der Erhöhung der unteren Aerosolschicht zeitlich überschneidet, ist beim Wechsel von Tag auf Nacht keine Veränderung zu erkennen. Ob diese Wechsel der Messkonfiguration einen Einfluss auf die Messergebnisse haben, wurde für die 96-stündige Messung aus dem Oktober 2015 untersucht. Dazu wurde zunächst das mittlere Signal S^{1064} im Normierungsbereich berechnet. Das Ergebnis ist in Abbildung A.3.6 zu sehen. Würde ein Problem bei der Normierung vorliegen, müsste dieses Signal an den Übergängen von Tag- zu Nachtkonfiguration Sprünge oder Abweichungen zeigen. Dies ist nicht der Fall. In Abbildung 6.2.3 wurde die Anzahl der verfügbaren Daten pro Stunde des Tages vorgestellt. Diese Anzahl ist über den Zeitraum des Anstieges der Aerosolbeladung in der unteren

Stratosphäre nahezu konstant zwischen 220 und 240 Stunden. Eine Beeinflussung durch ungleichmäßige Gewichtung der Daten sowie die zuvor genannten instrumentellen Effekte kann also ausgeschlossen werden. Eine mögliche Störung durch Vulkanausbrüche oder Waldbrände kann ebenfalls ausgeschlossen werden, da diese Einflüsse nicht auf den Vormittag beschränkt sind, sondern längerfristig bestehen. Betrachtet man die tageszeitlichen Verläufe atmosphärischer Parameter wie Wind, Temperatur, Ozon- und Wasserdampfmischungsverhältnis für die gleichen Zeiträume wie das Rückstreuverhältnis, welche in Abbildung 7.3.3 gezeigt sind, kann ebenfalls kein direkter Zusammenhang hergestellt werden. Kein Parameter zeigt besondere Abweichungen oder Verläufe während der frühen Morgenstunden zwischen 14 und 22 km. Die Untersuchungen zeigen, dass die beobachtete Erhöhung nicht dynamisch begründet ist, sondern mikrophysikalische Ursachen haben könnte. Eine mögliche ursächliche photochemische Reaktion würde allerdings auch eine Veränderung der Aerosolschicht bei Sonnenuntergang bedeuten, was jedoch nicht der Fall ist.

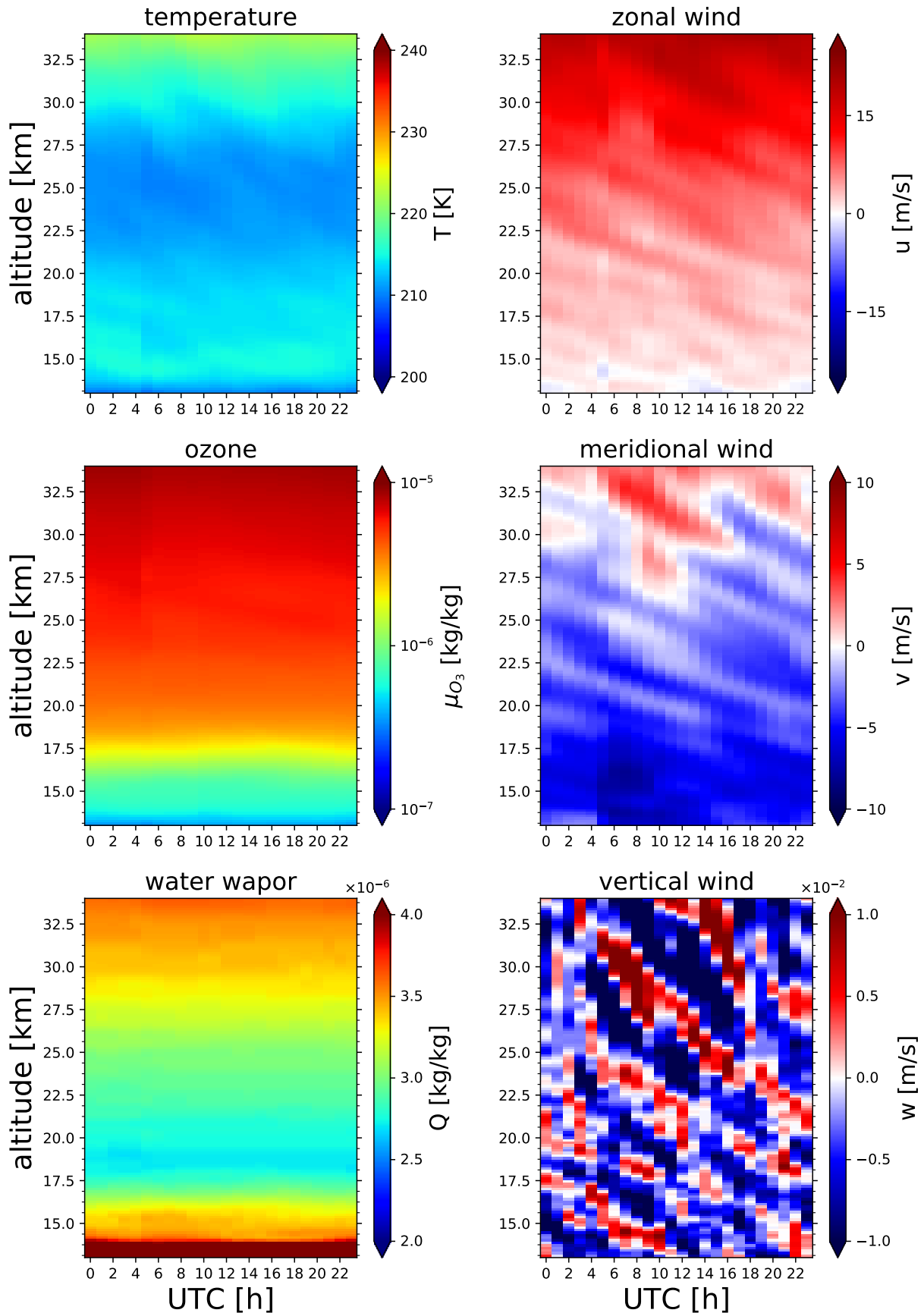


Abbildung 7.3.3: Mittlerer Tagesgang atmosphärischer Parameter aus ECMWF Modelldaten der Monate März, April, September und Oktober. Die gemittelten Profile für Temperatur, Ozon-Mischungsverhältnis, Wasserdampfmischungsverhältnis, Zonalwind, Meridionalwind und Vertikalwind sind ab 2012 aus stundengenauen ECMWF-Daten errechnet worden, davor mit einer zeitlichen Auflösung von sechs Stunden. Sie decken die gleichen Zeiträume wie die Messdaten ab.

7.4 Polare Stratosphärenwolken

In Kapitel 6 wurde erklärt, wie polare Stratosphärenwolken im Datensatz detektiert werden und in einen separaten Datensatz R_{PSC}^{1064} überführt werden. Dieser PSC-Datensatz wird in diesem Kapitel genauer untersucht. Zunächst soll jedoch eine einzelne PSC vorgestellt werden. In Abbildung 7.4.1 ist das zeitlich und räumlich aufgelöste Rückstreuverhältnis R_{PSC}^{1064} einer Messung gezeigt, die am 9. Januar 2016 begann und 64 Stunden andauerte. Hervorzuheben ist die, im Gegensatz zu vorherigen Darstellungen in dieser Arbeit veränderte, Farbskala. Diese weist hier einen maximalen Werte von $R_{PSC}^{1064} = 10$ auf. Durch diese Anpassung werden Strukturen innerhalb der PSC sichtbar. Außerdem wird dadurch deutlich, wie die Rückstreuung der PSC die Hintergrundaerosolschicht überlagert. Diese ist mit Werten von $R^{1064} < 2$ farblich nicht mehr zu erkennen. Dadurch muss eine Trennung des Datensatzes in Messdaten mit PSC und für Hintergrundaerosol erfolgen.

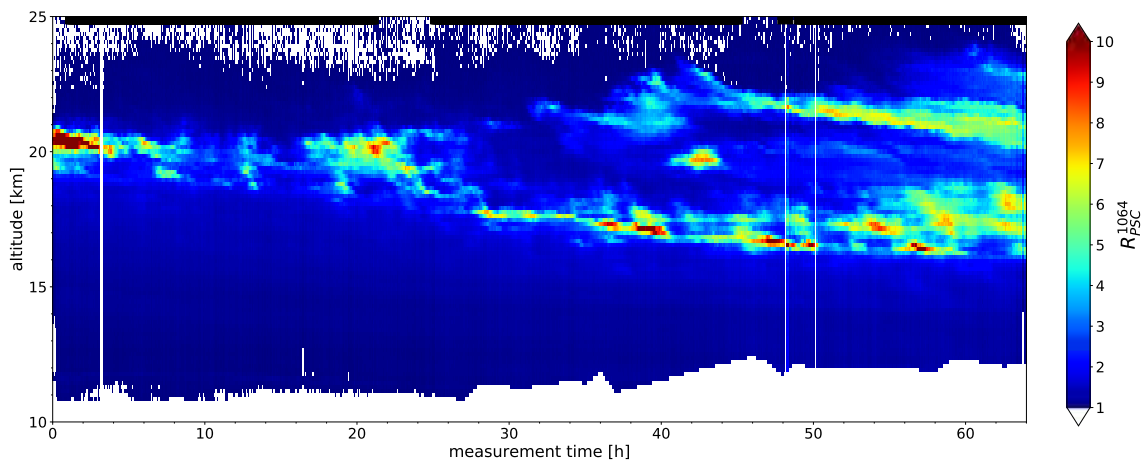


Abbildung 7.4.1: Zeitlich und räumlich aufgelöstes Rückstreuverhältnis R_{PSC}^{1064} einer 64-stündigen Messung vom 9. Januar bis 12. Januar 2016. Die Zeitauflösung beträgt fünf Minuten und die Höhenauflösung 150 m. Am unteren Rand zwischen 11 und 12 km befindet sich die Tropopause, die Daten sind daher dort maskiert. Schwarze Kästchen am oberen Rand kennzeichnen eine Nachtmessung an diesem Zeitschritt. Zu beachten ist die veränderte Farbskala in dieser Abbildung. Werte von $R^{1064} > 2$ weisen auf eine polare Stratosphärenwolke hin.

In Abbildung 7.4.1 ist die zeitliche Entwicklung der PSC-Struktur gut zu erkennen. Zu Beginn der Messung wurde eine PSC zwischen 19 und 21 km detektiert. In diesem Bereich treten die höchsten R_{PSC}^{1064} -Werte der gesamten Messung auf mit 14.4 ± 0.2 . In den folgenden 14 Stunden schwächt sich die Wolke ab und sinkt dabei um wenige hundert Meter ab, bevor sich ein stärkerer Bereich in der gleichen Höhenschicht bildet, der etwa 8 Stunden besteht. In den letzten rund 30 Stunden der Messung bilden sich schmalere Streifen von PSC in verschiedenen Höhen. Einer zwischen 16 und 18 km, mit teils sehr großer Rückstreuung und einer zwischen 20 und 23 km. Beide dehnen sich mit der Zeit aus, so dass am Ende der Messung PSC auf einer Höhe von 15 bis 24 km auftreten.

7.4.1 Langfristiges Auftreten von PSC über ALOMAR

Da polare Stratosphärenwolken nur im Winter über ALOMAR vorkommen, werden hier die Monate Dezember, Januar und Februar untersucht. Zunächst interessant ist das saisonale Vorkommen der PSC innerhalb dieses Zeitraumes. In Abbildung 7.4.2 sind in gelb die summierten Messstunden an detektierten PSC zwischen 2000 und 2018 für jeden Tag der Wintermonate dargestellt. Zusätzlich ist für die einzelnen Tage zwischen 1. Dezember und 29. Februar die jeweilige verbliebene R^{1064} Datenzeit in blau dargestellt, nachdem die Messstunden mit detektierten PSC aussortiert worden sind.

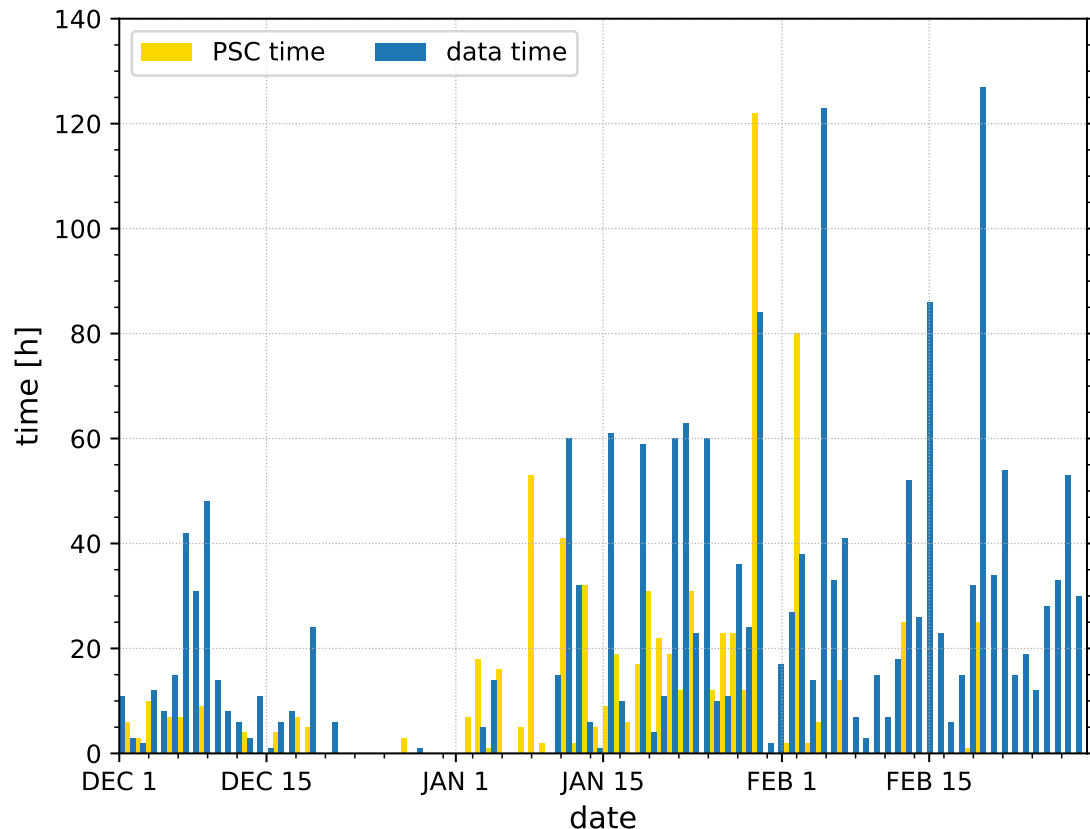


Abbildung 7.4.2: Saisonales Vorkommen von polaren Stratosphärenwolken und täglich verfügbare Datenzeit R^{1064} für Dezember, Januar und Februar.

Insgesamt wurden im Beobachtungszeitraum 752 Stunden PSC detektiert. Bei einer gesamten Messzeit in den Wintermonaten von 2279 Stunden entspricht das einer Auftrittswahrscheinlichkeit von 33 Prozent von polaren Stratosphärenwolken über ALOMAR. Der allergrößte Anteil der PSC tritt allerdings am Jahresanfang auf. Zwischen 1. Januar und 2. Februar wurden 542 Stunden PSC gemessen, was 72 Prozent aller registrierten Wolken entspricht. Dieses Ergebnis deckt sich mit den Untersuchungen von PSC in der Nordhemisphäre in Pawson et al. (1995). Im Januar kommen vereinzelt Tage vor, in denen in sämtlichen Messstunden PSC detektiert wurden. Das wird daran ersichtlich, dass in Abbildung 7.4.2 für diese Tage zwar ein gelber Balken eingezeichnet ist, der blaue aber fehlt. Es konnten für diesen Tag demnach keine R^{1064} -Daten gewonnen werden. Obwohl die Messabdeckung im Februar gut ist, treten nur noch sehr vereinzelt PSC auf. Im Dezember hingegen, wo die Messabdeckung deutlich lückenhafter ist, konnten an elf von 20 Tagen PSC gemessen werden. Im Februar konnten an acht Tagen PSC detektiert werden, allerdings innerhalb

von insgesamt 29 möglichen Messtagen. Offensichtlich werden die zur Bildung der PSC nötigen, sehr niedrigen, Temperaturen im Februar nur noch sehr sporadisch erreicht, während im Januar die Bedingungen zur PSC-Bildung in der Stratosphäre in den allermeisten Fällen erfüllt sind. Dieser Eindruck wird durch ECMWF-Modelldaten bestätigt, die in Abbildung A.3.4 dargestellt sind. Im langjährigen Mittel zeigen diese Daten im Januar Temperaturen unterhalb von 200 K zwischen 18 und 25 km, während diese Schwelle im Februar nicht mehr unterschritten wird.

Die langfristige Entwicklung der polaren Stratosphärenwolken über ALOMAR ist in Abbildung 7.4.3 dargestellt. Die Darstellung zeigt für jeden Winter zwischen 2000 und 2018 die verfügbare Messzeit in blau sowie in gelb die Anzahl an Messstunden in denen PSC detektiert werden konnten. Diese beiden Größen stehen natürlich in einem direkten Zusammenhang, da mit längerer verfügbarer Messzeit auch mehr PSC gefunden werden. Daher ist das Verhältnis aus beiden Werten jeweils mit in Abbildung 7.4.3 eingetragen.

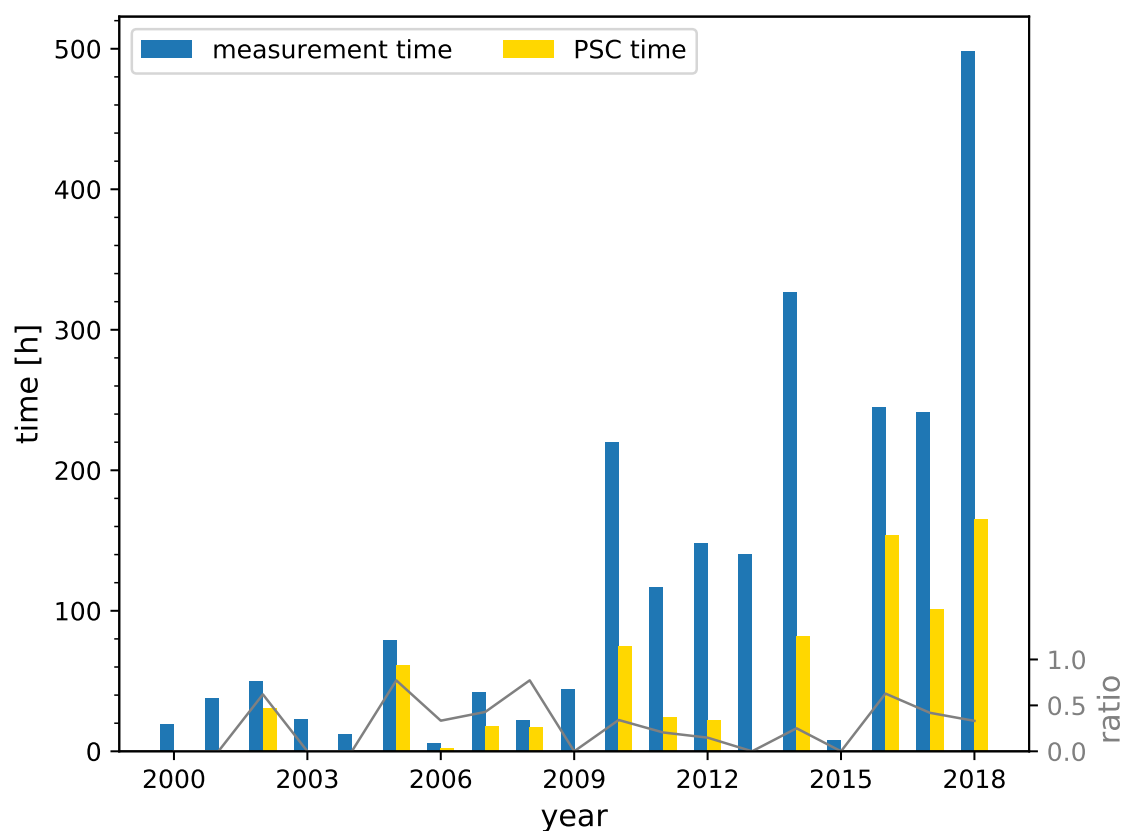


Abbildung 7.4.3: Summierte Messzeit der Monate Januar, Februar und Dezember eines Kalenderjahres in blau sowie jährliche gemessene Zeit des Auftretens von polaren Stratosphärenwolken in gelb und das jeweilige Verhältnis beider Werte zwischen 2000 und 2018.

Die erste PSC wurde im Jahr 2002 detektiert, trotz insgesamt 57 Stunden Messzeit in den Jahren davor. Der Grund könnte in der schlechteren Abdeckung der unteren Stratosphäre in diesen Jahren liegen, was die Wahrscheinlichkeit, eine PSC zu beobachten, verringert. Ab 2010 steigt die Messdauer im Winter an, mit Ausnahme des Jahres 2015 auf jeweils über 100 Stunden pro Winter. Das damit einhergehende PSC-Auftreten erhöht sich nicht zwangsläufig, sondern schwankt relativ stark von Jahr zu Jahr. Während

2016 bei 63 Prozent der Messungen PSC auftraten, konnten 2013 in 140 Stunden keine einzige PSC entdeckt werden. Diese jährlichen Unterschiede sind mit der wechselhaften Dynamik über ALOMAR zu erklären. Das Observatorium befindet sich am Rand des Polarwirbels und beobachtet daher in einigen Jahren Luft innerhalb des Wirbels und in anderen Jahren verstärkt Luft außerhalb des Wirbels. Da die zur PSC-Bildung nötigen Temperaturen nur innerhalb der polaren Wirbels vorherrschen können, sind jährliche Schwankungen in der PSC-Auftrittswahrscheinlichkeit zu erwarten.

Im Folgenden wird die Phänomenologie der polaren Stratosphärenwolken direkt untersucht. Dazu werden die Ober- und Unterkanten der Wolken ermittelt, indem zu jedem Zeitschritt von R_{PSC}^{1064} das Rückstreuprofil nach dem untersten Wert größer als zwei abgesucht wird. Für die Oberkante der Wolke wird das Profil äquivalent von oben abgesucht. Die gefundenen Werte werden in Bins mit einem Kilometer Breite sortiert. Das Resultat ist in Abbildung 7.4.4 zu sehen. Für die Unterkanten ergibt sich eine Verteilung um 17 km herum, wobei bei 16 und 18 km die meisten Wolken ihre untere Grenze aufweisen. Oberhalb von 21 km und unterhalb von 10 km findet man keine Wolkenunterkanten mehr. Die oberen Kanten der Wolken befinden sich vereinzelt schon bei 15 km. Es handelt sich hierbei möglicherweise um kleinere Strukturen in der untersten Stratosphäre. Alle sonstigen Oberkanten der PSC befinden sich zwischen 18 und 26 km und einem einzelnen Ereignis bei 31 km. Das Maximum der Verteilung liegt bei 22 km.

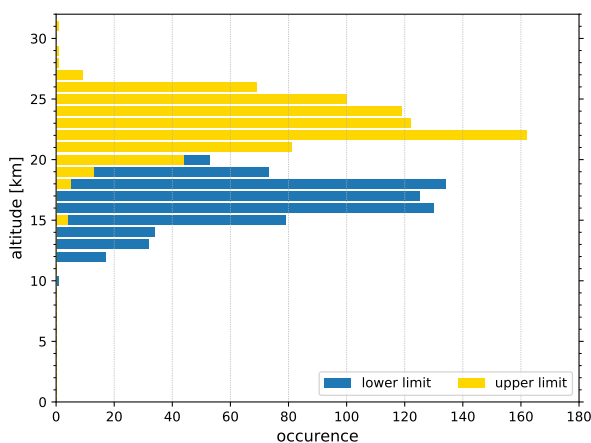


Abbildung 7.4.4: Höhenverteilung der oberen und unteren Kanten von polaren Stratosphärenwolken zwischen 2000 und 2018.

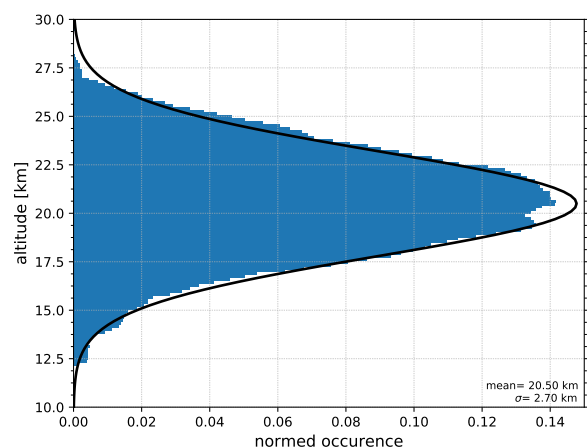


Abbildung 7.4.5: Höhenverteilung der polaren Stratosphärenwolken zwischen 2000 und 2018.

Abbildung 7.4.5 zeigt abschließend die Höhenverteilung der polaren Stratosphärenwolken. Hierzu wurden die PSC-Ereignisse in jedem einzelnen Höhenschritt zwischen 2000 und 2018 gezählt. Es ergibt sich eine relativ schmale Verteilung mit einer Standardabweichung von 2.7 km um das Maximum der Verteilung, welches bei 20.5 km liegt. Dieser Bereich deckt sich mit dem der kältesten langjährigen Temperatur im Winter in der Stratosphäre über ALOMAR (siehe Abbildung A.3.4), in dem die zur PSC-Bildung benötigten Temperaturen unterschritten werden. Damit tritt der Großteil der polaren Stratosphärenwolken im gleichen Höhenbereich auf wie die maximale Ausprägung der stratosphärischen Aerosolschicht. Allerdings stehen die Bildungsprozesse von PSC und Hintergrundaerosol in keinem Zusammenhang. Während die Bildung von

polaren Stratosphärenwolken maßgeblich von der Temperatur bestimmt wird, spielen für die Beschaffenheit der Aerosolschicht eine Reihe von Prozessen eine Rolle, die Bildung, Transport, Wachstum und Abbau der Aerosole bestimmen. Diese Prozesse sind detailliert in Kapitel 2 beschrieben.

7.4.2 Beobachtung von PSC Typ II im Januar/Februar 2018

PSC vom Typ II bestehen aus Wassereisteilchen und benötigen zur Bildung Temperaturen unterhalb von 186.7 K in 22 km Höhe (Drdla u. Turco, 1991). Dieser Wert wird in der arktischen Stratosphäre über ALOMAR nur sehr selten unterschritten, da der Polarwirbel im Vergleich zur südlichen Hemisphäre weniger stabil ist und sich ALOMAR an der Grenze des Wirbels befindet. Im R_{PSC}^{1064} -Datensatz konnte lediglich ein Fall gefunden werden, bei dem sicher PSC vom Typ II aufgetreten sind. Die dazugehörige Messung fand vom 30. Januar 2018 um 17 UTC bis zum 4. Februar 2018 um 6 UTC statt und ist in Abbildung 7.4.6 dargestellt. Neben dem Rückstreuverhältnis R_{PSC}^{1064} ist auch die Hintergrundtemperatur als farbige Kontur hinterlegt. Dabei stellt die orange Linie die Bildungstemperatur für PSC Typ I bei 22 km dar und die rote Linie die Bildungstemperatur für PSC Typ II bei 22 km. Diese Temperaturen sind leicht höhenabhängig und reichen von 194 K bei 14 km bis 183 K bei 26 km (Maturilli et al., 2005).

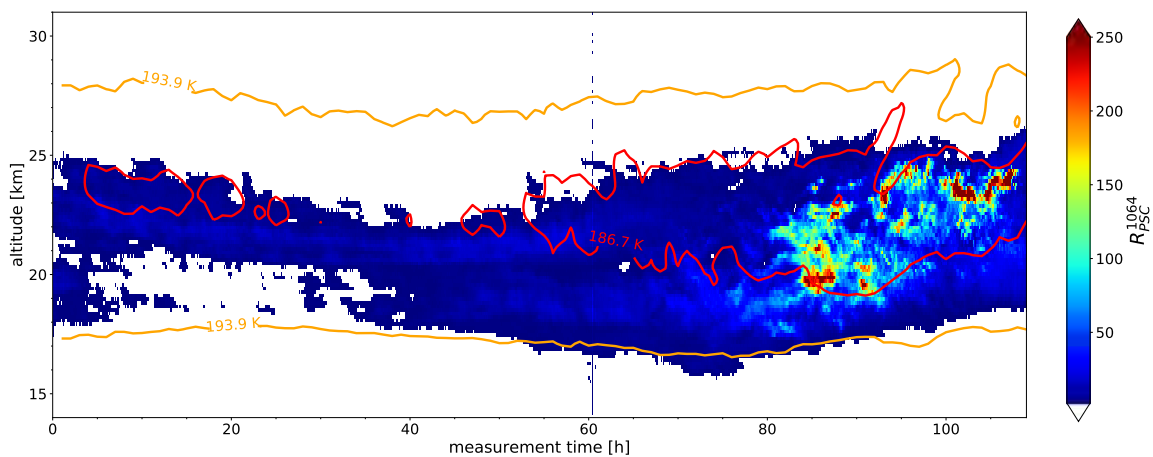


Abbildung 7.4.6: Zeitlich und räumlich aufgelöstes Rückstreuverhältnis R_{PSC}^{1064} einer 109-stündigen Messung die am 30. Januar 2018 um 17 Uhr begann. Die Zeitauflösung beträgt fünf Minuten und die Höhenauflösung 150 m. Zu beachten ist die veränderte Farbskala in dieser Abbildung, die Werte zwischen zwei und 250 zeigt. Zusätzlich sind als farbliche Kontur die Hintergrundtemperatur aus ECMWF-Modelldaten eingezeichnet. Die beiden gezeigten Werte sind die Bildungstemperaturen von PSC Typ I (193.9 K) und Typ II (186.7 K) bei 22 km nach Drdla u. Turco (1991).

Da die Skala in Abbildung 7.4.6 nur Werte größer als zwei farblich anzeigt, ist die Hintergrundaerosolschicht ausgeblendet und nur die PSC zu sehen. Diese zieht sich durch die gesamte Messung und erreicht ab Messstunde 75 regelmäßig Werte von $R_{PSC}^{1064} > 50$ zwischen 18 und 24 km. Maximal treten dabei Rückstreuverhältnisse von über 500 auf. Der Bereich dieser hohen Werte befindet sich dabei innerhalb des Bereiches in dem die nötige Bildungstemperatur für PSC vom Typ II unterschritten wird. PSC lassen sich anhand ihres Rückstreuverhältnisses klassifizieren. Während Typ I-PSC im Allgemeinen Werte zwischen zwei und zehn ergeben, werden für Typ II-PSC verschiedene Schwellenwerte benutzt. Kent et al. (1990) ordnet Werte größer 40 dem Typ II zu. In Maturilli et al. (2005) werden Rückstreuverhältnisse größer zehn bei 532 nm als Typ II

klassifiziert², während in Palm et al. (2005) dafür Werte zwischen 20 und 100 verwendet werden. Die bei der Messung Anfang Februar 2018 gemessenen Rückstreuverhältnisse überschreiten alle diese Schwellenwerte. Ein weiterer Hinweis auf PSC vom Typ II zeigt sich beim Betrachten des Wasserdampfmischungsverhältnisses während der Messung (siehe Abbildung A.3.8). Hier ist ein stark ausgeprägtes Minimum zwischen Stunde 80 und 100 der Messung in 18 bis 23 km Höhe zu sehen, dass sich zeitlich und räumlich mit den größten PSC-Rückstreuverhältnissen deckt. Durch die Bindung des Wasserdampfes bei der Nukleation der Eisteilchen wird dieser aus der Atmosphäre gefroren und diese effektiv dehydriert. Durch diesen Effekt, kann sicher davon ausgegangen werden, dass PSC vom Typ II für etwa 30 Stunden über ALOMAR aufgetreten sind. Eine weitere Möglichkeit verschiedene PSC-Typen zu unterscheiden, sind Messungen der Depolarisation des rückgestreuten Laserlichts. Während flüssige, kugelförmige Wolkentröpfchen eine niedrige Depolarisation zur Folge haben, führen feste, aspherische Teilchen zu großen Werten (Maturilli et al., 2005). Da das ALOMAR RMR Lidar diese Technik jedoch nicht nutzt, kann hier keine diesbezügliche Auswertung erfolgen.

7.5 Aerosol in größeren Höhen

In Gerding et al. (2003) wurde eine über vier verschiedenen arktischen Lidarstationen beobachtete Aerosolschicht beschrieben. Die Schicht befand sich in außergewöhnlich großer Höhe. Am 24. November 2000 konnte die Schicht auch in 35 bis 40 km Höhe über ALOMAR mit dem RMR-Lidar beobachtet werden. Das maximale Rückstreuverhältnis betrug demnach 1.3 in einer Höhe von 38 km. Die Schicht sank über den Winter auf eine Höhe von 26 km ab. Als Ursache können polare Stratosphärenwolken aufgrund der zu großen Umgebungstemperaturen ausgeschlossen werden. Da vor der Beobachtung kein größerer Vulkanausbruch geschah, konnte die ebenfalls ausgeschlossen werden. Als wahrscheinlichste Ursachen geben die Autoren Überreste eines größeren Meteors sowie Treibstoffrückstände eines Raketenstarts an. Die Schicht wurde nur im Winter 2000/2001 beobachtet, die Lidardaten wurden für andere Winter noch nicht untersucht. In Gerding et al. (2003) wird ausgeführt, dass die Schicht möglicherweise in Verbindung mit dem Abwärtstransport von meteorischem Staub innerhalb des polaren Wirbels steht und somit potentiell signifikanten Einfluss auf die stratosphärische Aerosolschicht in hohen Breiten im späten Winter und Frühling haben könnte.

Der R^{1064} -Datensatz wurde dementsprechend auf Aerosol in großen Höhen oberhalb von 38 km untersucht. Dazu wurde das mittlere Profile jeder Einzelmessung auf Werte größer als 1.1 im Höhenbereich von 38.2 bis 47.1 km geprüft. Werden mehr als 20 solcher Werte gefunden, wurde die Messung für einen händischen Augentest markiert. Die kritische Anzahl von 20 Werten ist relativ hoch gewählt, da in einzelnen Höhen Werte von $R^{1064} > 1.1$ regelmäßig auftreten. Dies ist, vor allem bei kürzeren Messungen, durch niedrigere Signallevel und damit höherem SNR oberhalb von 38 km zu erklären. Insgesamt wurden 29 Messungen gefunden, bei denen die genannten Bedingungen erfüllt sind. Diese wurden genauer untersucht. Es wurden jeweils die zeitliche Entwicklung von R^{1064} , der allgemeine Ablauf der Messung, Wetterbedingungen, der Verlauf des R^{1064} -Profils unterhalb der Normierungshöhe sowie die Signalverläufe bei 1064 und 387 nm betrachtet. Besonders interessant sind dabei ausgeprägte Bereiche mit Werten kleiner als eins unterhalb von 34 km, welche auf eine Anwesenheit von Aerosol innerhalb der Normierungshöhe hindeutet, wodurch Aerosol unterhalb unterschätzt werden würde. Von den 29 markierten Messungen waren die allermeisten kürzer als drei Stunden. Hier zeigen sich jeweils sehr starke Schwankungen oberhalb von 40 km, jedoch keine Hinweise

²entspricht einem Schwellenwert von 95.1 bei 1064 nm, Umrechnung siehe A.3.7

auf eine Aerosolschicht in diesen Höhen. In anderen Fällen beeinflusste das Auftreten von troposphärischen Wolken das Signalniveau, was ebenfalls zu einem geringen SNR führte. Letztendlich kann die Anwesenheit einer hohen Aerosolschicht nur für die Messung am 12. Dezember 2000 nicht ausgeschlossen werden. Bei dieser Messung zwischen 21:15 UTC und 00:45 UTC des Folgetages beträgt $R^{1064} = 1.27 \pm 0.03$. Zwischen 28 und 34 km ist $R^{1064} < 1$, was ebenfalls auf hohes Aerosol hinweist. Zudem passt der Zeitraum zu den Beobachtungen in Gerding et al. (2003). Gegen eine hohe Aerosolschicht spricht die relative Kürze der Messung, was zu großem Rauschen oberhalb der Normierungshöhe führt, sowie die mögliche Anwesenheit von Aerosol in der Normierungshöhe, was die Normierung möglicherweise in diesem Einzelfall verfälscht. Außerdem ist auffällig, dass sowohl bei einer Messung am Vortag des 12. Dezember 2000 als auch am Tag danach keine Hinweise auf Aerosol in großen Höhen gefunden wurden.

Es konnten im R^{1064} -Datensatz keine sicheren Fälle einer außergewöhnlich hohen Aerosolschicht gefunden werden. Das beobachtete Ereignis im Winter 2000/2001, welches in Gerding et al. (2003) beschrieben worden ist, scheint sporadisch aufzutreten und konnte nicht zweifelsfrei mit der für diese Arbeit verwendeten Methodik bestätigt werden. Die Methodik ist jedoch nicht optimiert für die Analyse von Aerosol oberhalb von 34 km. Hier herrschen großen Unsicherheiten durch ein geringes SNR sowie die Normierung des Aerosolprofils.

7.6 Die stratosphärische Aerosolschicht im Februar 2018

Abschnitt 4.3 zeigte den typischen Zustand der stratosphärischen Aerosolschicht. Man findet meist eine zeitlich relativ konstante Schicht mit einer maximalen Rückstreuung bei etwa 20 km. Die Ergebnisse Mitte Februar 2018 haben allerdings eine deutlich andere Form. Abbildung 7.6.1 zeigt das Rückstreuverhältnis R_{387}^{1064} für 90 Stunden einer Messung, die am 18. Februar 2018 um 15:30 UTC begann. Man erkennt eine hochdynamische Aerosolschicht, die wiederum aus mehreren dünnen Schichten besteht. Diese Schichten sind teilweise dünner als ein Kilometer, bleiben aber über mehrere Tage separiert. Sie bewegen sich teilweise über mehrere Tage parallel zueinander. Die Schichten treten in einem Höhenbereich von 20 bis 31 km auf. Die Rückstreuung bei 30 km beträgt bis zu 1.20 ± 0.07 . Es existiert während der gesamten Messung eine etwa drei Kilometer breite Schicht um 24 km Höhe in der überhaupt kein Aerosol anwesend ist.

Die in Abbildung 7.6.1 gezeigte Messung steht im Zentrum einer Phase mit sehr guter Messabdeckung vom 10. Februar bis zum 27. Februar 2018. In dieser Phase konnten neun Messungen mit insgesamt 309 Stunden Messdauer durchgeführt werden. Sämtliche Messungen in diesem Zeitraum zeigen Abweichungen vom Normalzustand der Aerosolschicht. Es finden sich ähnliche Strukturen mit sehr dünnen Schichten wie in Abbildung 7.6.1. Weiterhin wird die spezielle Dynamik im Beobachtungszeitraum deutlich. Die gesamten Ergebnisse finden sich in Abbildung 7.6.2.

In den Tagen vor dem Beobachtungszeitraum im Februar fand eine 109-stündige Messung statt, bei der über den gesamten Zeitraum sehr starke PSC detektiert wurden. Diese Messung ist ausführlich in Abschnitt 7.4.2 diskutiert. Zu Beginn des Messzeitraums am 10. Februar befindet sich die stratosphärische Aerosolschicht im typischen Normalzustand. Es befinden sich jedoch darüber Regionen mit hoher Aerosolbeladung bis in eine Höhe von 32.5 km, die scheinbar während der ersten fünf Tage des Beobachtungszeitraums um etwa 10 km absinken, auf eine Höhe von 15 bis 20 km. Zwischen Messstunde 125 und Messstunde 175 ist die Aerosolbeladung gering. Auffällig ist hier, dass sich kaum noch Aerosol oberhalb von 23 km befindet. In den darauf folgenden Tagen sind wieder größere Mengen Aerosol in eine Höhe von bis zu 32 km vorhanden.

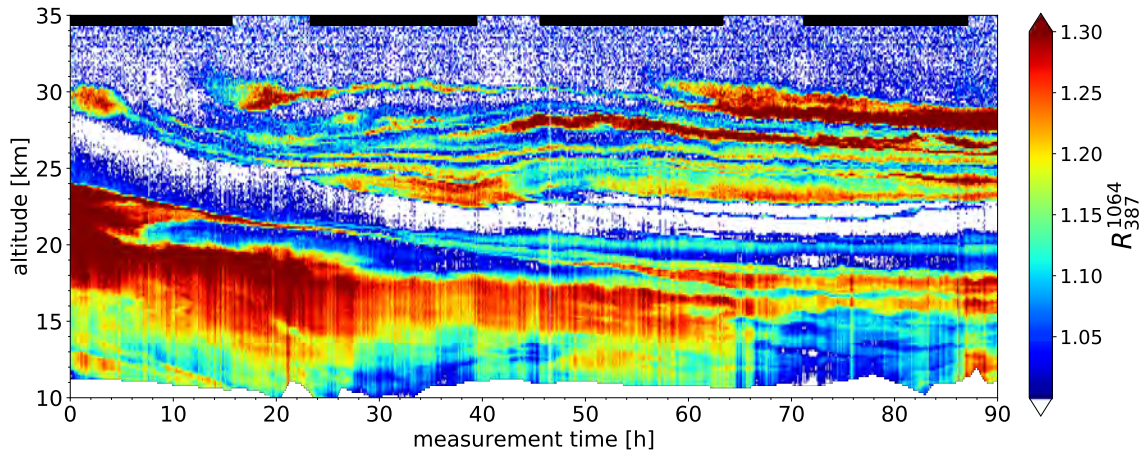


Abbildung 7.6.1: Rückstreuverhältnis R_{387}^{1064} über ALOMAR vom 18. Februar 2018 um 15:30 UTC bis 22. Februar 09:30 UTC. Die Zeitauflösung beträgt 5 Minuten und die Höhenauflösung 150 m. Schwarze Kästchen am oberen Rand zeigen Nachtmessungen an diesem Zeitschritt.

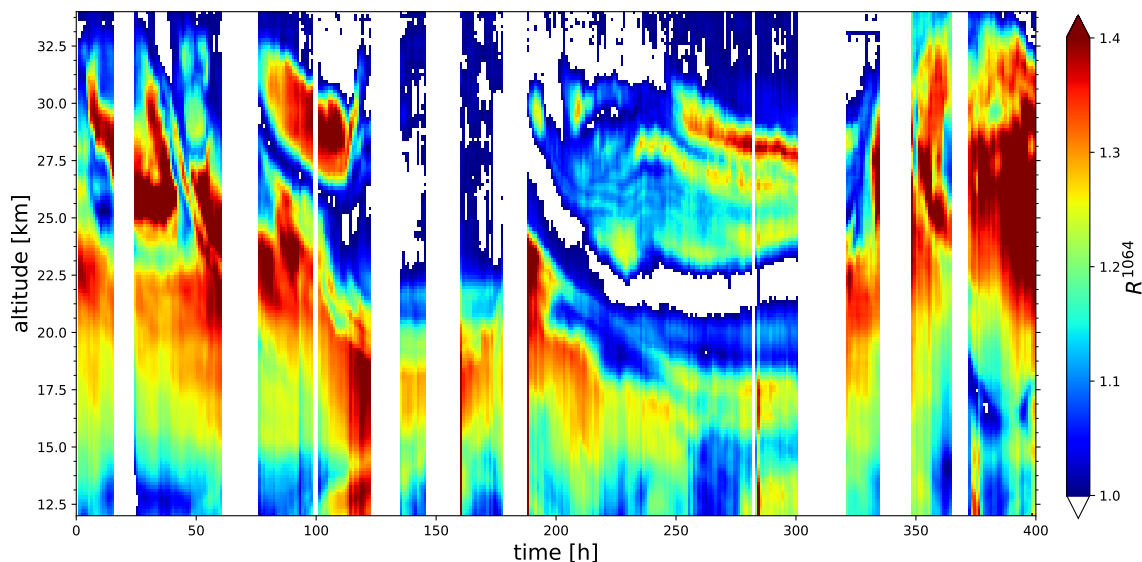


Abbildung 7.6.2: Rückstreuverhältnis R^{1064} für den Zeitraum vom 10. Februar 2018 um 18 UTC bis 27. Februar 2018 um 10 UTC. In dieser Zeit wurden neun Messungen mit insgesamt 309 Stunden Messzeit durchgeführt. Die Zeitauflösung beträgt eine Stunde und die Höhenauflösung 150 m.

Es existiert gleichzeitig ein komplett aerosolfreier Bereich. Diese Abschnitt des Beobachtungszeitraums ist genauer in Abbildung 7.6.1 dargestellt. In den letzten Tagen der Messungen zeigt sich noch einmal die große Dynamik im Februar 2018. Es ist ein enormer Aufstieg der Aerosolbeladung festzustellen, auf bis zu 34 km Höhe innerhalb von 80 Stunden. Das Maximum der Aerosolschicht befindet sich am 27. Februar bei 25 km. Die zeitlich nächste Messung wurde am 3. März 2018 durchgeführt und zeigt wieder den normalen Zustand der stratosphärischen Aerosolschicht.

Der besondere Zustand der Aerosolschicht im Februar 2018 ist mit dem Zusammenbrechen des Polarwirbels und einer plötzlichen stratosphärischen Erwärmung (SSW³) zu erklären, die globale Änderungen der Zirkulation in der Troposphäre und der Stratosphäre zur Folge hatte. SSW sind gekennzeichnet durch einen plötzlichen Temperaturanstieg und einer gleichzeitigen Umkehr des Zonalwindes in der Stratosphäre (Quiroz et al., 1975). Ein solches Ereignis führte am 11. Februar zur Teilung des polaren Wirbels, welcher in der Folge nur noch über Nordamerika und Zentralasien bestand. Hervorgerufen wurde diese Teilung durch einen starken troposphärischen Sturm im Nordatlantik, der sich unterhalb der Polarwirbels befand und die Winde der unteren Stratosphäre durch hohe vertikale Penetration störte (Pawson et al., 2019). Die plötzliche Windumkehr und die Erhöhung der Temperatur in der Stratosphäre sind auch in den ECMWF-Modelldaten für den Zeitraum 10. Februar bis 27. Februar zu sehen, welche in Abbildung 7.6.3 dargestellt sind. Während unter dem Einfluss des Polarwirbels eine stark ausgeprägte Westwärtsströmung in der extrem kalten Stratosphäre vorherrschte (siehe Abschnitt 7.4.2), kehrt sich diese abrupt in eine ostwärts gerichtete Strömung um. Dies geschieht innerhalb eines Tages im gesamten Höhenbereich der stratosphärischen Aerosolschicht. Im gleichen Zeitraum ändert sich auch der Meridionalwind hin zu einer südlichen Strömung oberhalb von 25 km. Die Folge dieser Entwicklungen ist eine Erwärmung von Teilen der Stratosphäre oberhalb von 25 km auf über 240 K. Die Bereiche solch hoher Temperatur decken sich mit den Bereichen sehr geringer Aerosolbeladung zwischen Messstunde 100 und 250 in Abbildung 7.6.2. Durch den Anstieg der Temperatur verdampfen die Aerosolpartikel. Auch die Darstellungen für das Ozon- und das Wasserdampfmischungsverhältnis in Abbildung 7.6.3 zeigen eine hochdynamische Stratosphäre die für den besonderen Zustand der Aerosolschicht verantwortlich ist. Die feinen, kleinskaligen Strukturen, wie sie die Aerosolschicht in Abbildung 7.6.1 aufweist, sind durch die beschriebenen, großräumigen Veränderungen der Dynamik allerdings nicht direkt erklärbar. Modellrechnungen, die es ermöglichen solche Schichten zu simulieren, hätten einen großen Wert für das Verständnis der Stratosphäre und der Aerosolschicht.

³engl: „sudden stratospheric warming“

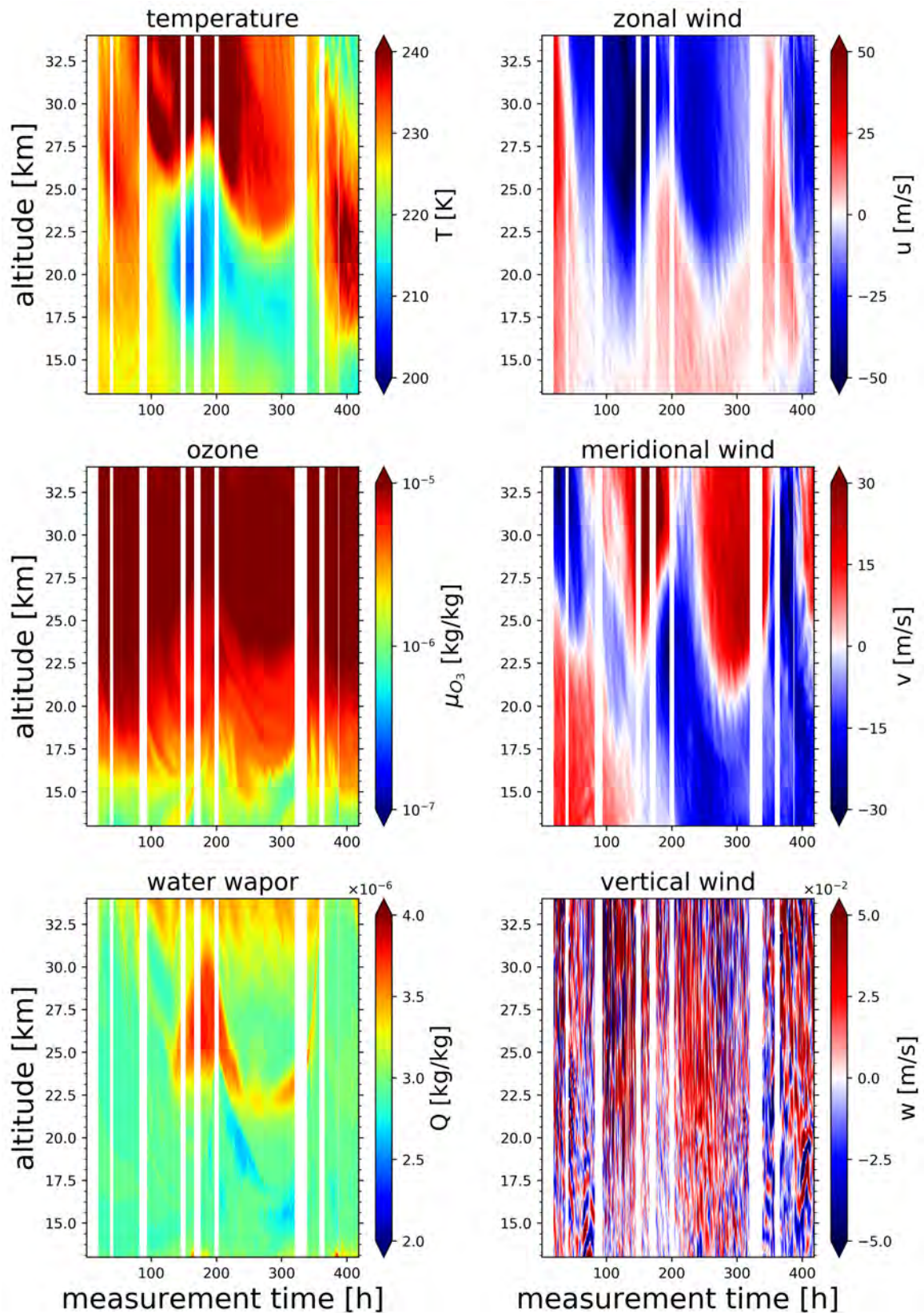


Abbildung 7.6.3: Verschiedene atmosphärische Parameter für den Zeitraum vom 10. Februar 2018 um 18 UTC bis 27. Februar 2018 um 10 UTC. Die Zeitauflösung beträgt eine Stunde und die Höhenauflösung 150 m. Gezeigt sind Temperatur, Ozon-Mischungsverhältnis, Wasserdampfmischungsverhältnis, Zonalwind, Meridionalwind und Vertikalwind.

8 Zusammenfassung und Ausblick

Das Ziel dieser Arbeit war die Untersuchung der stratosphärischen Aerosolschicht mit dem ALOMAR RMR Lidar. Dazu wurde eine Methodik entwickelt, um Kenngrößen der Aerosolschicht aus Lidardaten zu berechnen. Validiert werden konnte die Auswertemethodik durch eine Modellsimulation, in der einzelne Einflussfaktoren untersucht wurden. Durch die Entwicklung und Anwendung einer Korrekturformel wurde es möglich, einen ganzjährigen Datensatz zur stratosphärischen Aerosolschicht über ALOMAR zu gewinnen. Dieser erlaubt die Untersuchung der Aerosolschicht sowohl für sehr kurze Zeiträume von wenigen Stunden bis hin zu Jahrzehnten. Es wurden einige geophysikalische Ergebnisse, die aus diesem Datensatz gewonnen wurden, präsentiert. Dazu zählt die langfristige Entwicklung der Aerosolschicht und der mittlere Verlauf innerhalb eines Jahres sowie eines Tages. Außerdem wurden Untersuchungen hinsichtlich polarer Stratosphärenwolken vorgenommen und der außergewöhnliche Zustand der Aerosolschicht im Februar 2018 vorgestellt. In diesem Kapitel werden die durchgeführten Arbeiten noch einmal kurz zusammengefasst und die wichtigsten Ergebnisse heraus gestellt. Abschließend wird ein Ausblick auf mögliche weitere Schritte gegeben.

Zusammenfassung

Auswertemethodik

Aus den bei verschiedenen Wellenlängen und durch unterschiedliche Streuprozesse rückgestreuten Signalen des RMR Lidars werden verschiedene Rückstreuverhältnisse berechnet. Die Summe der Rückstreuung von Aerosolen und Molekülen ist proportional zu einem elastisch rückgestreuten Lidarsignal. Die Rückstreuung von Molekülen hingegen ist proportional zu einem inelastisch rückgestreuten Lidarsignal. Daher kann das Rückstreuverhältnis als Verhältnis eines elastisch gestreuten Signals zu einem inelastisch gestreuten Signal berechnet werden. Dieses Verhältnis wird in einem aerosolfreien Höhenbereich von 34 bis 38 km normiert. Hier beruhen beide Signale nur auf Molekülstreuung. Die Normierung ist notwendig, da das inelastisch rückgestreute Signal um mehrere Größenordnungen kleiner ist als das Signal aus elastischer Rückstreuung. Durchgeführt wird die Normierung im Anschluss an eine umfangreiche Datenprozessierung, die sowohl instrumentelle als auch atmosphärische Effekte korrigiert. Zur Erstellung eines durchgängigen Höhenprofils werden die Messkanäle gleicher Wellenlänge, die unterschiedliche Höhenbereiche abdecken, miteinander kombiniert. Die Methodik wird mit Hilfe einer Referenzatmosphäre und simulierten Daten validiert. In dieser Simulation konnten die Korrekturen für die Rayleigh-Extinktion und die Ozon-Extinktion überprüft werden. Inelastisch gestreute Signale stehen bei Messungen unter Tageslichtbedingungen nicht zur Verfügung. Diese werden jedoch zur Durchführung der Auswertemethodik benötigt. Im Zeitraum von Anfang Mai bis Mitte

August arbeitet das ALOMAR RMR Lidar zu jeder Tageszeit unter Tageslichtbedingungen. Um diese zeitliche Lücke zu schließen und auch im Sommer zuverlässige Informationen über die Aerosolschicht zu gewinnen, wurde eine Korrekturformel für das ganzjährig verfügbare Farbverhältnis entwickelt. Dieses Farbverhältnis wird aus zwei elastisch rückgestreuten Signalen berechnet und äquivalent zum Rückstreuverhältnis normiert. Für die Korrektur wurde ein langjähriges mittleres Profil des Rückstreuverhältnisses aus den Signalen bei 355 und 387 nm gefittet. Das Korrekturprofil wird mit dem Farbverhältnisprofil multipliziert und ergibt eine sehr gute Näherung des Rückstreuverhältnisses. Die Unsicherheit der Korrektur nimmt mit der Höhe ab. Sie beträgt drei Prozent bei 15 km und 0.7 Prozent bei 34 km. Somit wurde es zum ersten Mal möglich, einen ganzjährigen Datensatz für stratosphärisches Aerosol in polaren Breiten zu gewinnen.

Datensatz

Der gewonnene Datensatz umfasst die Jahre 2000 bis 2018. In diesem Zeitraum wurden 12530 Stunden an Messungen durchgeführt. Davon entfallen 8772 Stunden auf Messungen bei Tag und 3758 Stunden auf Messungen bei Nacht. Für die Analyse der stratosphärischen Aerosolschicht eignen sich nicht sämtliche Daten. Nach dem Aussortieren von Messstunden mit zu geringer Datenqualität und mit polaren Stratosphärenwolken verbleiben 7490 Stunden für den Datensatz R^{1064} , der ausschließlich Daten zu stratosphärischem Hintergrundaerosol beinhaltet. Die Anzahl der jährlich verfügbaren Daten stieg über den Beobachtungszeitraum von durchschnittlich 190 Stunden bis 2008 auf 597 Stunden seitdem an. Betrachtet man die jährliche Variation der verfügbaren Daten, ergibt sich ein Maximum im Juni und Juli. Hier sind über 1000 Stunden Daten pro Monat verfügbar. Von Oktober bis Dezember bleibt dieser Wert unter 300 Stunden monatlich.

Langzeitvariabilität

Bei der Untersuchung der langfristigen Entwicklung der Aerosolschicht über ALOMAR muss zwischen Zeiträumen mit vulkanischem Einfluss und ohne unterschieden werden. Es konnte in den Daten eine Erhöhung der Aerosolbeladung nach den Ausbrüchen der Vulkane Kasatochi (August 2008), Sarychev Peak (Juni 2009) und Nabro (Juni 2011) festgestellt werden. Außerdem war die Aerosolschicht nach starken Waldbränden in Kanada im Herbst 2017 unterhalb von 19 km verstärkt. In vulkanisch ruhigen Perioden ist keine langfristige Veränderung der Aerosolschicht festzustellen.

Jahresgang

Werden vulkanisch gestörte Zeiträume ausgeschlossen, ergibt sich ein Jahresgang der stratosphärischen Aerosolschicht, der durch die Dynamik der Stratosphäre geprägt ist. Es findet sich ein Anstieg der mittleren Höhe der Aerosolschicht bis zum Sommer und darauf folgend ein Absinken der Luftmassen innerhalb des polaren Wirbels. Die Amplitude dieses jährlichen Prozesses beträgt ungefähr vier Kilometer. Ein wichtiger Befund der Untersuchungen ist, dass stratosphärisches Aerosol mit Ausnahme des Monats November im gesamten restlichen Jahr auch oberhalb von 30 km nachgewiesen werden konnte.

Tagesgang

Erstmals wurde die stratosphärische Aerosolschicht hinsichtlich ihrer täglichen Variabilität untersucht. Dazu wurden die Daten der Monate März, April, September und Oktober genutzt. Die Ergebnisse zeigen eine leichte Erhöhung der Aerosolbeladung zwischen 3 und 12 UTC unterhalb von 22 km. Der Grund für diese Erhöhung ist möglicherweise mikrophysikalischer Natur und konnte nicht eindeutig geklärt werden. Mögliche Einflussfaktoren wie Sonnenstand, meteorologische Parameter oder instrumentelle Effekte konnten als Ursache ausgeschlossen werden.

Polare Stratosphärenwolken

Polare Stratosphärenwolken treten hauptsächlich im Januar über ALOMAR auf. Nur vereinzelt wurden PSC im Dezember oder Februar festgestellt. Sie bilden sich bei Temperaturen unterhalb von 194 K und die Werte ihrer Rückstreuverhältnisse sind um bis zu zwei Größenordnungen im Vergleich zum Hintergrundaerosol erhöht. Neben Schwefelsäure und Wasser, kommt in PSC-Teilchen auch maßgeblich Salpetersäure vor, die sich nicht in stratosphärischem Hintergrundaerosol finden lässt. Die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten einer PSC von Anfang Dezember bis Ende Februar liegt durchschnittlich bei 44 Prozent. Insgesamt wurden 665 Stunden PSC zwischen 2000 und 2018 beobachtet. PSC treten im Allgemeinen zwischen 11 und 26 km auf. Das Maximum der Höhenverteilung liegt bei 20.5 km. Diese Höhe entspricht dem durchschnittlichen Maximum der stratosphärischen Aerosolschicht, welche im Winter regelmäßig durch PSC überlagert wird. Zwischen dem 30. Januar und 3. Februar 2018 konnten für mindestens 30 Stunden PSC vom Typ II nachgewiesen werden. Es herrschten Temperaturen kleiner als 185 K und die Auswertung ergab Rückstreuverhältnisse größer als 500. Außerdem konnte zum Zeitpunkt des PSC-Auftretens eine starke Dehydrierung der Stratosphäre beobachtet werden.

Studie der Aerosolschicht im Februar 2018

Zwischen dem 10. und 27. Februar 2018 konnte erstmals in über 300 Stunden Messungen ein hochdynamischer Zustand der stratosphärischen Aerosolschicht beobachtet werden. Es traten über mehrere Tage vereinzelte, dünne Schichten auf, es wurden große Mengen Aerosol in bis zu 34 km Höhe festgestellt, die innerhalb von Tagen auf eine Höhe von 20 km absanken. Zu anderen Messzeiten kam oberhalb von 23 km fast gar kein Aerosol vor. Es traten komplett aerosolfreie Bereiche zwischen Schichten verstärkter Aerosolbeladung auf. Dieser außergewöhnliche Zustand der Aerosolschicht steht in Verbindung mit einer plötzlichen Erwärmung der Stratosphäre und dem Zusammenbrechen des Polarwirbels. Durch die abrupte Änderung der Zirkulation in der Stratosphäre und einen plötzlichen Temperaturanstieg war die Aerosolschicht einer enormen Dynamik unterworfen, die durch sehr gute Messabdeckung in diesem Zeitraum erstmals beobachtet werden konnte.

Ausblick

Diese Arbeit demonstriert die allgemeine Fähigkeit des ALOMAR RMR Lidars zur Untersuchung der stratosphärischen Aerosolschicht. Mit Hilfe einer neuen Auswertemethodik konnten aus einem umfangreichen Datensatz weitreichende geophysikalische Erkenntnisse gewonnen werden. Die Ergebnisse dieser Arbeit können die Basis für weitere Analysen bilden. Durch eine Ausweitung der Auswertemethodik auf alle verfügbaren Wellenlängen wird es möglich, Partikelgrößenverteilungen zu bestimmen und daraus das Lidarverhältnis direkt auszurechnen. Die daraus berechnete Aerosolextinktion kann dann mit den Ergebnissen, die mit Hilfe des angenommenen Lidarverhältnisses bestimmt wurden, verglichen werden. Das Potenzial des Datensatzes hinsichtlich der Auswertung der berechneten Rückstreuoeffizienten und Extinktionskoeffizienten ist ebenfalls noch nicht ausgeschöpft. Aus diesen Größen lässt sich in Zukunft auch der Einfluss der Aerosolpartikel auf den Strahlungshaushalt der Atmosphäre berechnen.

Eine weitere Möglichkeit der Nutzung des erstellten Aerosoldatensatzes wird in der Arbeit von Zalach et al. (2019) beschrieben, die in enger Zusammenarbeit mit dieser Arbeit entstanden ist. Darin werden auf Grundlage der bestimmtem Rückstreuverhältnisse Partikelgrößen und Extinktionskoeffizienten bestimmt. Durch eine Verhältnisbildung von zwei Rückstreuverhältnissen mit verschiedenen Wellenlängenkombinationen sowie die Annahme eines Brechungsindex der Partikel und einer festen Verteilungsbreite kann ein mittlerer Radius der Aerosolpartikelverteilung berechnet werden. Mit Hilfe dieser Information kann jedem Rückstreuverhältnis ein Radius zugeordnet werden, der wiederum genutzt wird, um unter Hinzuziehung von Temperatur- und Dichteprofilen Extinktionskoeffizienten zu bestimmen. Daraus lassen sich auch Aerosoldichten berechnen. Die Ergebnisse zeigen eine hohe Übereinstimmung mit Satellitendaten.

A Anhang

A.1 Einfluss des Ozon-Mischungsverhältnisses auf das Rückstreuverhältnis

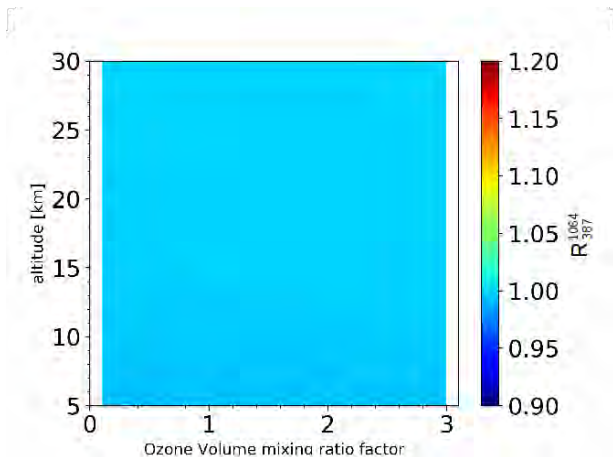


Abbildung A.1.1: R_{387}^{1064} in Abhängigkeit von Höhe und Ozon-Mischungsverhältnis.

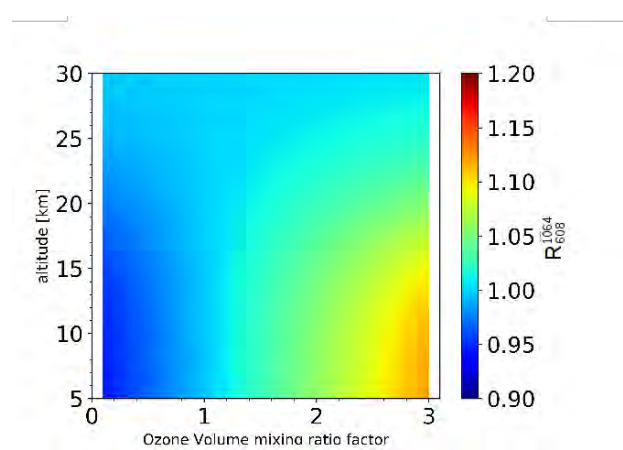


Abbildung A.1.2: R_{608}^{1064} in Abhängigkeit von Höhe und Ozon-Mischungsverhältnis.

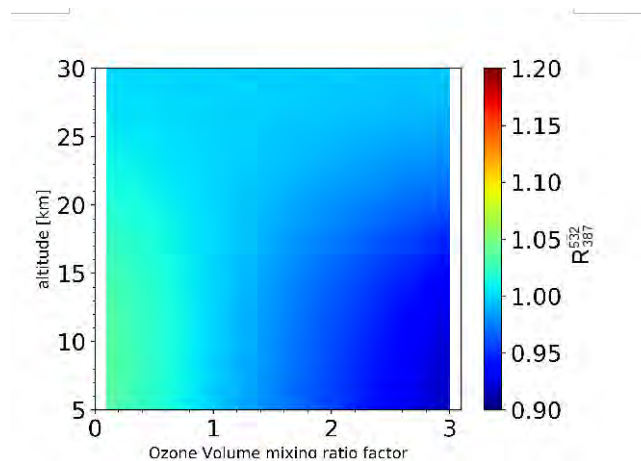


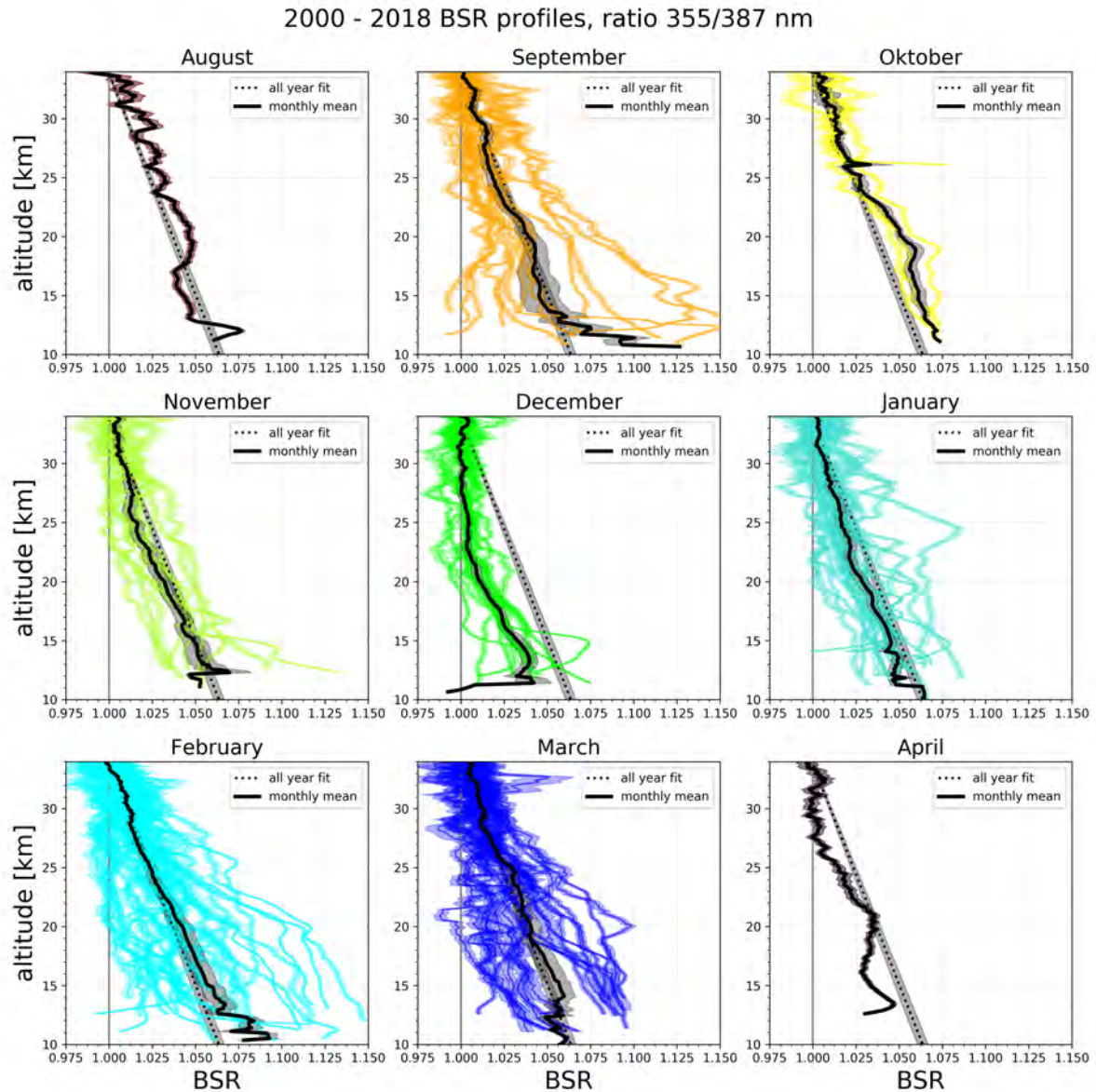
Abbildung A.1.3: R_{387}^{532} in Abhängigkeit von Höhe und Ozon-Mischungsverhältnis.

Um die Abhängigkeit verschiedener Rückstreuverhältnisse vom Ozon-Mischungsverhältnis zu quantifizieren, wurden Simulationen mit einem variablen Ozonprofil durchgeführt. Das Vorgehen ist in Kapitel 4.2.2 genauer beschrieben. Berechnet wird das Rückstreuverhältnis jeweils für die Abwesenheit von Aerosol. In Abbildung A.1.1 ist das Ergebnis der Simulation für das Rückstreuverhältnis R_{387}^{1064} gezeigt, in Abbildung A.1.2 für R_{608}^{1064} und in Abbildung A.1.3 für R_{387}^{532} . Die gleichen Berechnungen wurden auch für sämtliche andere Wellenlängenkombinationen durchgeführt. Diese Ergebnisse sich hier nicht dargestellt, da sie keine weiteren

Erkenntnisse liefern. Bei R_{387}^{1064} ist keine Abhängigkeit von Ozon zu erkennen. Da beide Wellenlängen nicht von Ozon-Extinktion beeinflusst sind, ergibt sich in sämtlichen Höhen ein Wert von eins. R_{608}^{1064} steigt mit erhöhtem Ozon-Mischungsverhältnis an und umgekehrt. Der Effekt ist größer, je geringer die Höhe ist. Ein gegensätzliches Verhalten ist bei R_{387}^{532} zu sehen. Diese Ergebnisse decken sich mit dem erwarteten Verhalten und den Erkenntnissen aus Kapitel 4.2.2.

A.2 Untersuchung zum Jahresgang beim Rückstreuverhältnis R_{387}^{355}

Die Korrektur der Rückstreuprofile R_{387}^{1064} zu angenäherten Rückstreuprofilen R_{355}^{1064} erfordert die Nutzung eines langjährigen mittleren Profils des Rückstreuverhältnisses $\tilde{R}_{387}^{355}(z)$. Da R_{387}^{355} in den Sommermonaten nicht berechnet werden kann, wird $\tilde{R}_{387}^{355}(z)$ nur mit Daten der übrigen Monate bestimmt. Ein ausgeprägter Jahresgang könnte zu einer fehlerhaften Einschätzung der Aerosolbeladung im Sommer führen, wenn diese von der Beladung im restlichen Jahr abweicht. Daher wurden die zur Bestimmung von $\tilde{R}_{387}^{355}(z)$ genutzten Profile monatlich sortiert und dem Jahresmittel gegenüber gestellt. Das Ergebnis ist in Abbildung A.2.1 zu sehen und wird in Kapitel 5.2 diskutiert. Es zeigt sich kein systematischer Jahresgang und es ist festzustellen, dass die Korrektur in dieser Form anwendbar ist.



2018-06-29_11:27:28

Abbildung A.2.1: Monatlich sortierte R_{387}^{355} Profile. BSR ist hier die Abkürzung für „backscatter ratio“ (Rückstreuverhältnis) und stellt das Rückstreuverhältnis dar. Eingezeichnet sind neben den farblich dargestellten Einzelmessungen das monatliche Mittel in schwarz sowie das gefittete Profil, das zur Korrektur verwendet wird in schwarz gestrichelt.

A.3 Beobachtung der Aerosolschicht über ALOMAR - Ergänzungen

A.3.1 Mittlerer Jahresgang

Äquivalent zu Abbildung 7.2.2 ist in Abbildung A.3.1 der mittlere monatliche Jahresgang R^{1064} von 2000 bis 2018 abgebildet. Bei dieser Abbildung wurden jedoch die vulkanisch beeinflussten Perioden nicht ausgeschlossen. Dadurch sind Bereiche verstärkter Aerosolbeladung von Juli bis Januar unterhalb von 20 km zu sehen.

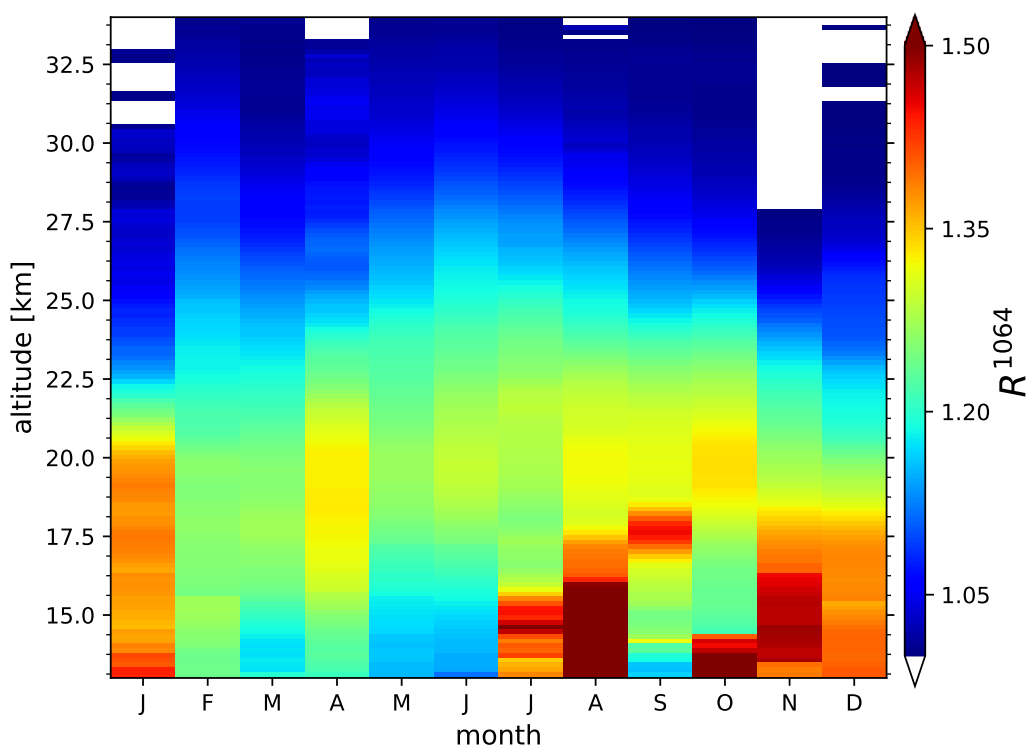


Abbildung A.3.1: Mittlerer monatlicher Jahresgang R^{1064} von 2000 bis 2018.

Abbildung A.3.2 zeigt die Standardabweichung des mittleren monatlicher Jahresgang R^{1064} von 2000 bis 2018. Diese liegt in sämtliche Monaten unterhalb von 32 km unterhalb von 0.01. Der Monat April soll hier genauer untersucht werden. Dazu sind in Abbildung A.3.3 sämtliche Monatsmittel des Monats April der Jahre 2000 bis 2018 in grau eingetragen. Das langjährige mittlere Monatsprofil ist zusätzlich in lila gezeigt. Die Ungenauigkeit der Profile ist jeweils als Fehler des Mittelwertes berechnet. Man erkennt eine große Variabilität zwischen den einzelnen Jahren. Die Werte reichen unterhalb von 30 km über einen Wertebereich von mindestens 0.3, was die hohen Werte der Standardabweichung erklärt. Dieses Verhalten konnte nur für den April festgestellt werden, im restlichen Jahr ist die Variabilität ungefähr eine Größenordnung geringer.

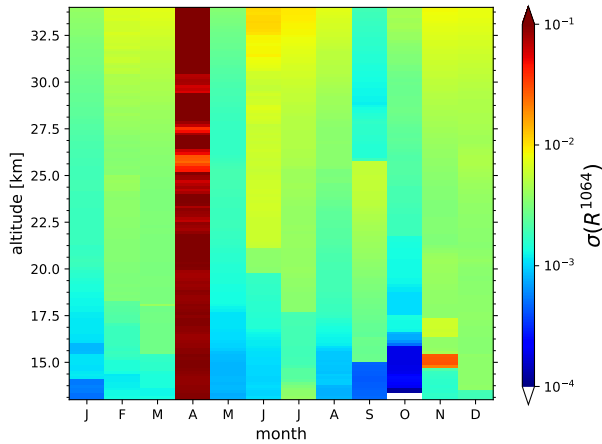


Abbildung A.3.2: Standardabweichung des mittleren monatlicher Jahresgang R^{1064} von 2000 bis 2018.

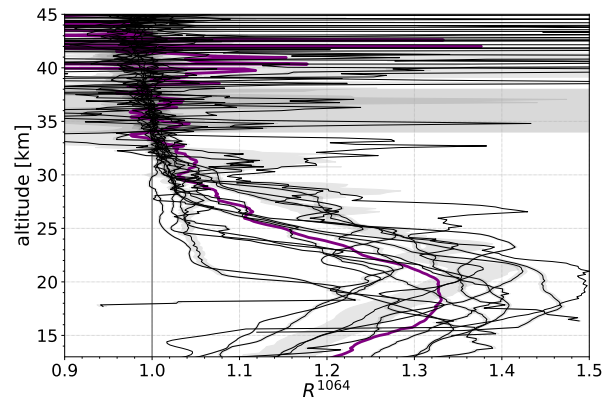


Abbildung A.3.3: Monatsprofile R^{1064} für den Monat April 2000 bis 2018 in grau. Das langjährige Mittel ist in lila eingetragen. Die Unsicherheiten sind jeweils durch die Standardabweichung gegeben.

Im Folgenden soll der Blick auf den Zustand der Stratosphäre während der Lidarmessungen durch Modelldaten von ECMWF ergänzt werden. Hierzu dient Abbildung A.3.4. Diese zeigt die monatlichen Mittelwerte für verschiedene atmosphärische Parameter zwischen 2000 und 2018. Dargestellt sind Temperatur T in K, Ozon-Mischungsverhältnis μ_{O_3} in kg/kg, Wasserdampf-Mischungsverhältnis Q in kg/kg sowie Zonalwind u , Meridionalwind v und Vertikalwind w jeweils in m/s. Sämtliche Daten beruhen auf den gleichen Zeiträume, wie die Lidarmessungen. Die Temperatur zeigt einen jährlichen Verlauf entsprechend der solaren Einstrahlung mit einem Maximum im Sommer. Auch ist die Zunahme mit der Höhe zu erkennen. Diese liegt in der Absorption solarer Strahlung durch Ozon-Moleküle begründet, deren Mischungsverhältnis im dargestellten Höhenbereich mit der Höhe exponentiell ansteigt. Ähnlich wie die stratosphärische Aerosolschicht steigt auch die Ozonschicht über die Sommermonate um wenige Kilometer an. Beispielsweise liegt die Höhe der $5 \cdot 10^{-6}$ kg/kg-Isolinie im Januar bei 19.65 km und im Juli bei 23.1 km. Diese Höhenzunahme ist auch bei Wasserdampf zu beobachten. Der sehr trockene Bereich ($Q < 2.7$ kg/kg) oberhalb der Tropopause liegt im Sommer etwa drei Kilometer höher als im Winter. Beide Effekte sind mit der Erwärmung der Troposphäre im Sommer und ihrer damit einhergehenden Ausdehnung zu begründen. Die Tropopause befindet sich in einer größeren Höhe und drückt damit die untere Stratosphäre nach oben. Die mittlere Höhe der Tropopause pro Monat in in Abbildung A.3.5 dargestellt. Auch die Tropopause liegt im Juli etwa 1.5 km höher als im März. Auf der rechten Seite von Abbildung A.3.4 ist die Dynamik über ALOMAR gezeigt. Der Zonalwind ist unterhalb von 20 km ganzjährig ostwärts gerichtet und im Winter, während der Ausprägung des Polarwirbels, am stärksten. Oberhalb von 20 km herrschen im Sommer westwärts gerichtet Winde vor. Der Meridionalwind zeigt zu Beginn und am Ende des Jahres eine starke südlich gerichtete Strömung. Im Sommer strömt nordwärts gerichtete Luft nach ALOMAR. Das Absinken der Luft innerhalb des Polarwirbels ist in den Daten für den Vertikalwind zu erkennen. Hier ist eine durchschnittliche Abwärtsbewegung, vor allem oberhalb vom 25 km, zwischen September und Januar festzustellen.

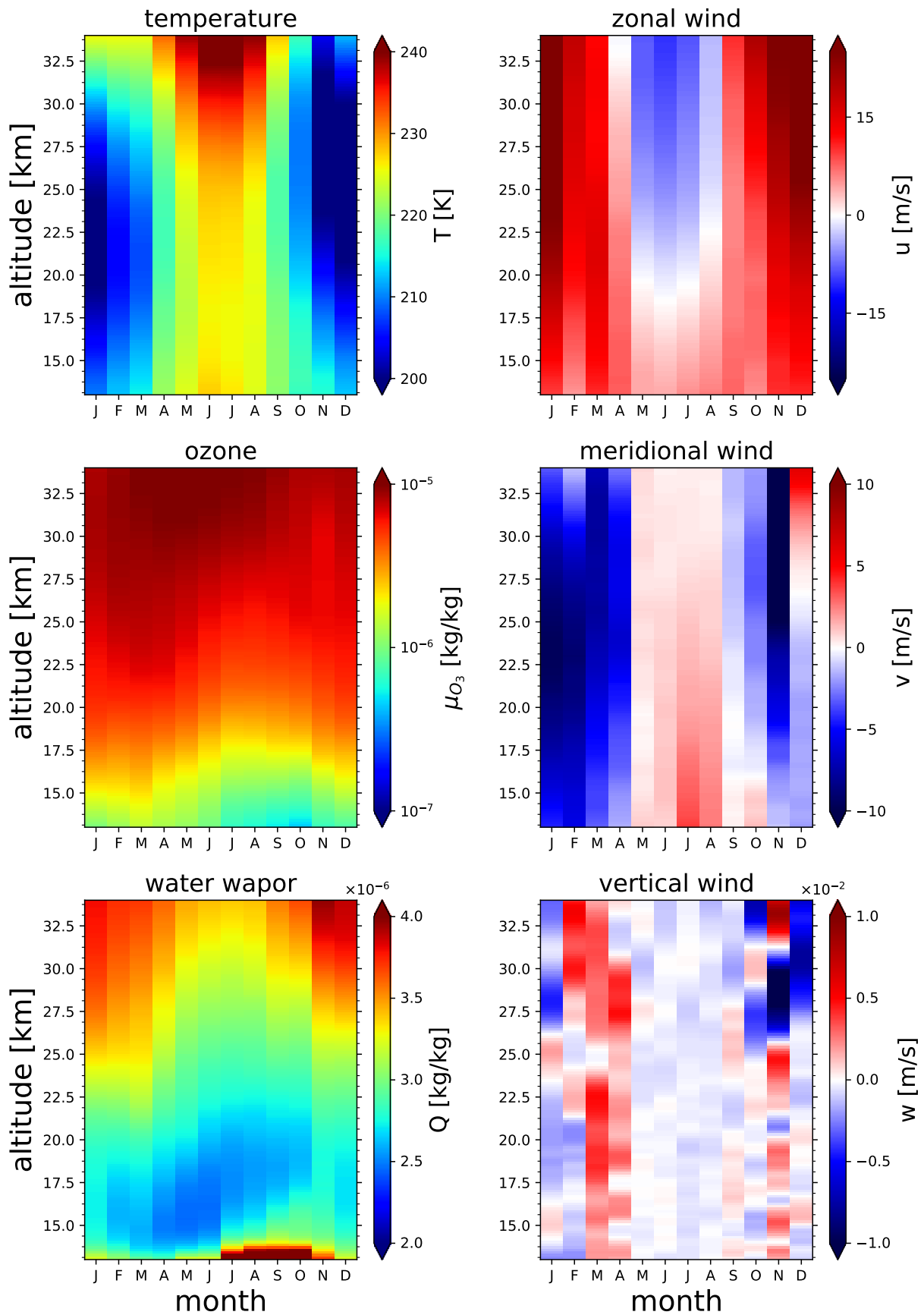


Abbildung A.3.4: Mittlerer Jahresgang atmosphärischer Parameter aus ECMWF Modell-daten. Die gemittelten Profile für Temperatur, Ozon-Mischungsverhältnis, Wasserdampf-Mischungsverhältnis, Zonalwind, Meridionalwind und Vertikalwind sind ab 2012 aus stundengenauen ECMWF-Daten errechnet worden, davor mit einer zeitlichen Auflösung von sechs Stunden. Sie decken die gleichen Zeiträume wie die Messdaten ab.

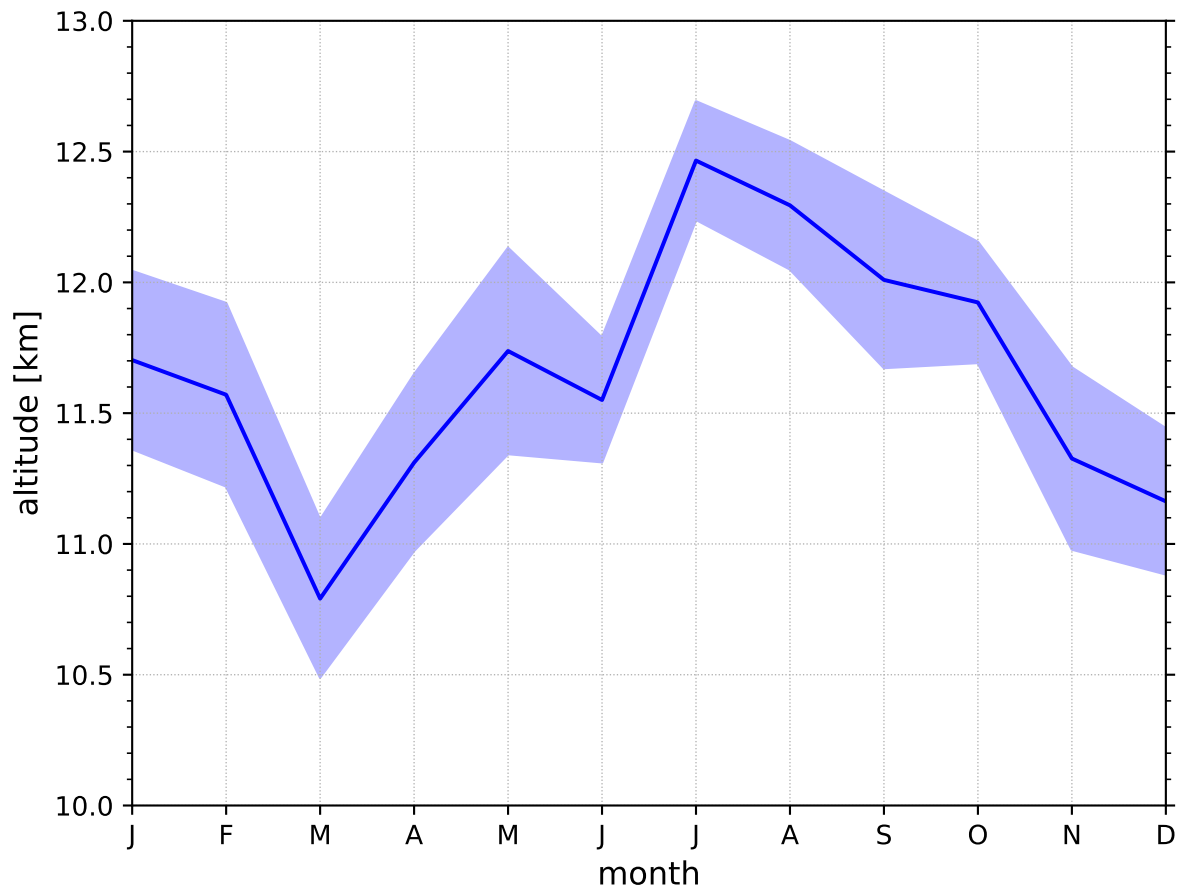


Abbildung A.3.5: Mittlere Höhe der Tropopause pro Monat von 2000 bis 2018. Der Fehler des Mittelwertes stellt die Unsicherheit dar. Es wurde äquivalent zum Rückstreuverhältnis der jeweils höhere Wert aus dynamischer und thermischer Tropopausenhöhe für jeden Messzeitpunkt ausgewählt. Diese wurden dann monatlich gemittelt.

A.3.2 Mittlerer Tagesgang

In Kapitel 7.3 wurde der mittlere langjährige Tagesgang der Aerosolschicht diskutiert. Dabei wurden auch instrumentelle Effekte besprochen, die die festgestellte Erhöhung des Rückstreuverhältnisses in der unteren Stratosphäre verursachen könnten. Eine mögliche Unsicherheit liegt in der Normierung der Daten bei der Berechnung des Rückstreuprofils zwischen 34 und 38 km, da sich die Signalniveaus beim Wechsel von Tag- zu Nachtkonfiguration deutlich verändern. Um mögliche Abweichungen oder Sprünge beim Wechsel zu erkennen, dient Abbildung A.3.6. Dafür wurden die Signale S^{1064} und S^{387} einer 96 stündigen Messung vom 6. Oktober 2015 bis 10. Oktober 2015 über den Höhenbereich der Normierung gemittelt und zeitlich dargestellt. Zusätzlich eingetragen sind Zeitpunkte mit erhöhter Aerosolbeladung in der unteren Stratosphäre als graue vertikale Linien. Man erkennt die Wechsel in der Messkonfiguration an der Anwesenheit von S^{387} . Ist das Signal vorhanden, arbeitet das Lidar in Nachtkonfiguration. Es sind keine Abweichungen oder Sprünge bei S^{1064} an den Zeitpunkten der Wechsel der Messkonfiguration festzustellen. Es treten Schwankungen im Signal S^{1064} um die Messstunden 22 und 65 herum auf. Im ersten Fall fällt dies mit einem Zeitpunkte mit erhöhtem Rückstreuverhältnis in der unteren Stratosphäre zusammen. Grund hierfür sind jedoch troposphärische Wolken, die das Lidarsignal abschwächen.

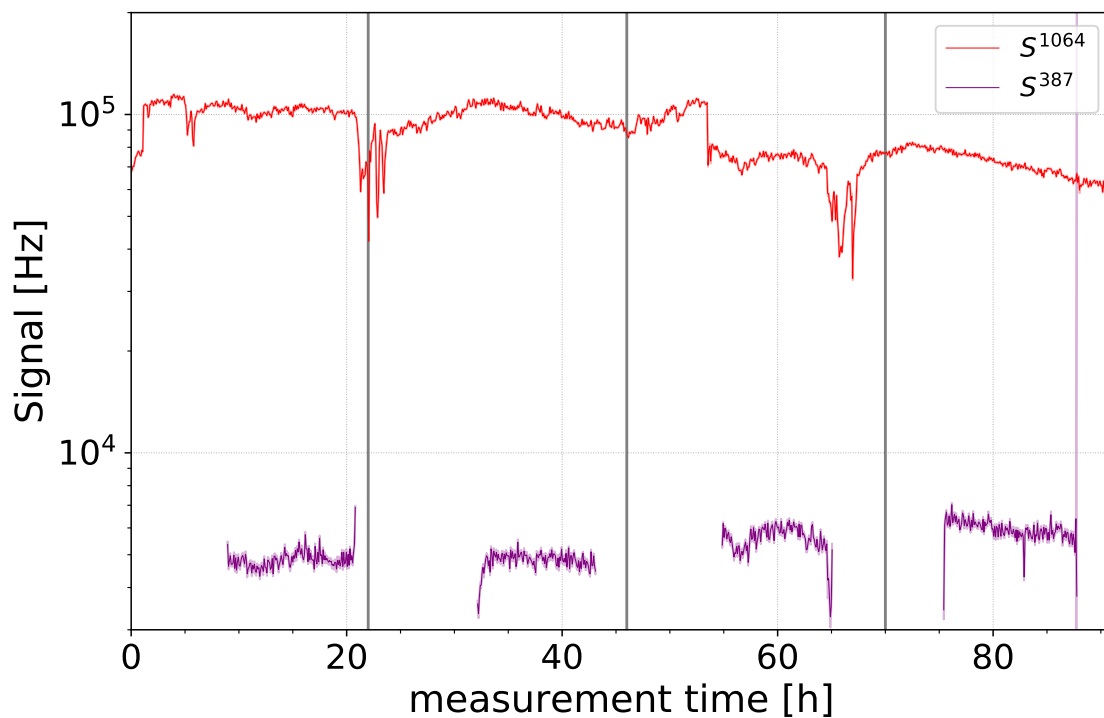


Abbildung A.3.6: Gemittelte Rückstreusignale in der Normierungshöhe S^{1064} und S^{387} einer 96 stündigen Messung vom 6. Oktober 2015 bis 10. Oktober 2015. Vertikale graue Linien deuten Zeitpunkte mit erhöhter Aerosolbeladung in der unteren Stratosphäre an.

A.3.3 Polare Stratosphärenwolken

Zur Klassifizierung von polaren Stratosphärenwolken existieren in der Literatur unterschiedliche Schwellenwerte für das Rückstreuverhältnis. Da diese zum Teil für eine Rückstreuung bei 532 nm bestimmt wurden, müssen die Werte für das, in dieser Arbeit ausgewertete, Rückstreuverhältnis R_{387}^{1064} umgerechnet werden. Die Umrechnung wird beispielhaft anhand einer 109-stündigen Messung, die am 30. Januar 2018 um 17 UTC begann, vorgenommen. Diese Messung deckt einen großen Wertebereich an R_{387}^{1064} -Daten ab, da sowohl Hintergrundaerosol, PSC Typ I und PSC Typ II aufgetreten sind (siehe Kapitel 7.4.2). Für Abbildung A.3.7 wurden die Daten dieser Messung zwischen 18.5 und 21.5 km zu jedem Zeitschritt gegeneinander aufgetragen. Es handelt sich insgesamt um 26160 Datenpunkte. Die sich daraus ergebene Fitgerade wurde zur Umrechnung der Daten verwendet. Die Geradengleichung lautet:

$$R_{387}^{1064} = (R_{387}^{532} - 1.44) \cdot 11.11 \quad (\text{A.1})$$

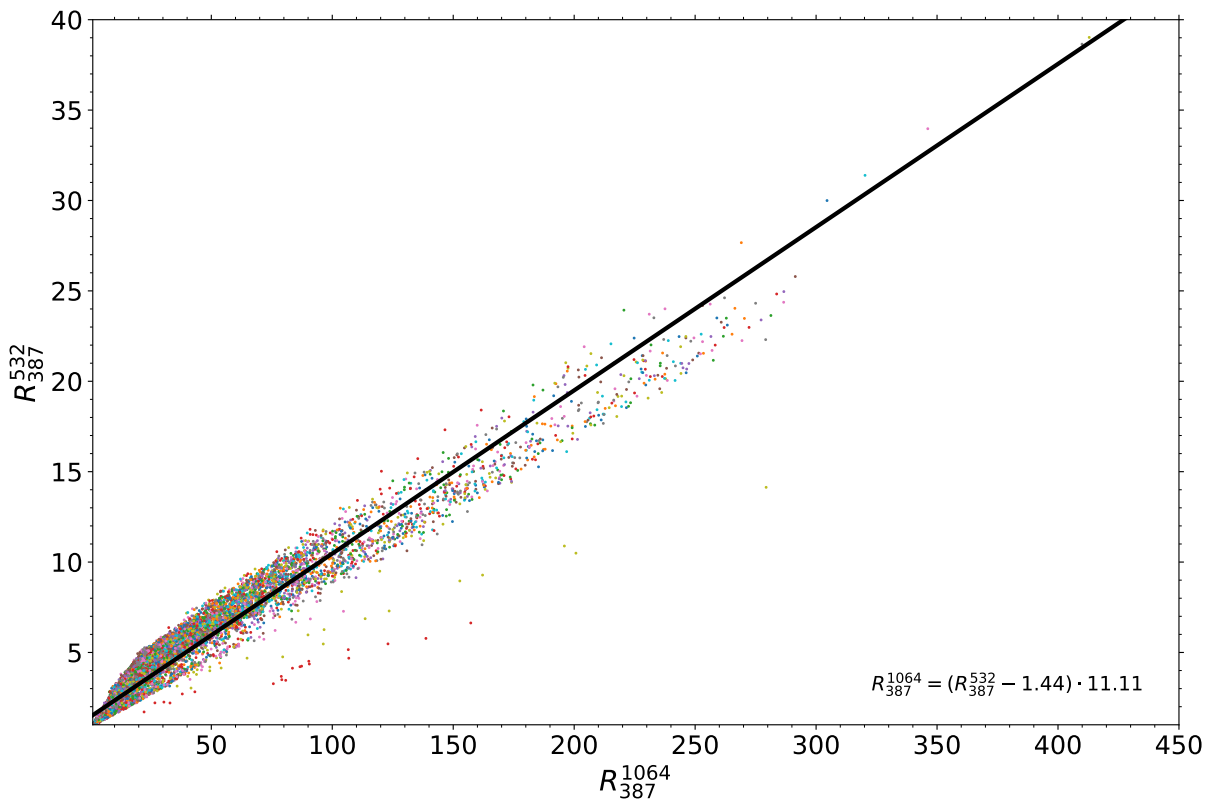


Abbildung A.3.7: R_{387}^{532} gegenüber R_{387}^{1064} für Werte zwischen 18.5 bis 21.5 km bei einer PSC-Messung vom Januar 2018. In schwarz ist ein linearer Fit der Daten eingetragen. Die Formel für diese Gerade steht unten rechts.

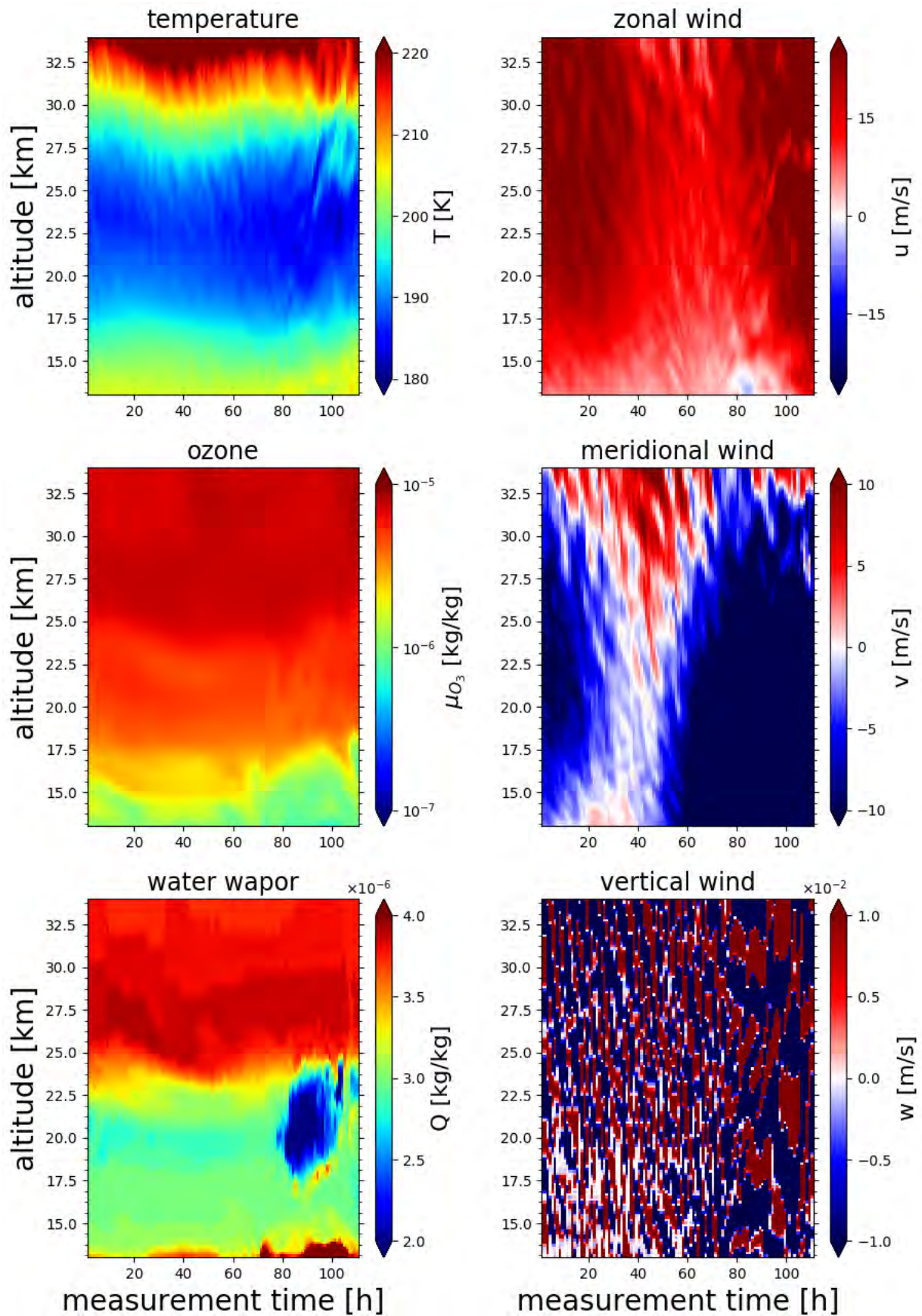


Abbildung A.3.8: Atmosphärische Parameter aus ECMWF Modelldaten während einer 109-stündigen Messung beginnend am 30. Januar 2018. Die Zeitauflösung beträgt eine Stunde und die Höhenauflösung 150 Meter. Gezeigt sind Temperatur, Ozon-Mischungsverhältnis, Wasserdampfmischungsverhältnis, Zonalwind, Meridionalwind und Vertikalwind.

Abkürzungsverzeichnis

ALOMAR	Arctic Lidar Observatory for Middle Atmosphere Research
APD	avalanche photodiodes
ATAL	Asian Tropopause Aerosol Layer
AWT	Aufweitungsteleskop
BDC	Brewer-Dobson Circulation
BGM	beam guiding mirror
BSR	backscatter ratio
CCD	charged coupled device
CIRA	COSPAR International Reference Atmosphere
COSPAR	Committee of Space Research
ECMWF	European Centre for Medium-Range Weather Forecasts
FCKW	Fluorchlorkohlenwasserstoff
IAP	Institut für Atmosphärenphysik
IFS	Integrated Forecasting System
Lidar	light detection and ranging
MSISE	mass spectrometer and incoherent scatter radar
NAD	nitric acid dihydrate
NAT	nitric acid trihydrate
NOAA	National oceanic and atmospheric administration
NWT	North-West-Telescope
PMT	photomultiplier tube
ppt	parts per trillion
PSC	polar stratospheric cloud

QBO	quasi-biennial oscillation
RFS	rotary fiber selector
RMR	Rayleigh Mie Raman
SAT	sulfuric acid trihydrate
SET	South-East-Telescope
SNR	signal to noise ratio
SOCOL-AER	coupled aerosol Solar Climate Ozone Links chemistry-climate model
SSW	sudden stratospheric warming
STS	supercooled ternary solution
TTL	Tropical Transition Layer
UTC	Temps universel coordonné
UTLS	upper troposphere lower stratosphere
VEI	Volcanic Explosivity Index
WACCM	Whole Atmosphere Community Climate Model

Abbildungsverzeichnis

1.0.1	Foto ALOMAR Observatorium	2
1.0.2	Position ALOMAR Observatorium	2
2.0.1	Schema der für den Lebenszyklus und die Verteilung stratosphärischer Aerosole relevanter Prozesse	6
2.3.1	Schema der Schwefelchemie in der Atmosphäre	11
3.0.1	Schema des Funktionsprinzips eines Lidars	17
3.1.1	Quantenmechanische Übersicht der Streuprozesse	19
3.1.2	Schematische Darstellung des Streuquerschnitts in Abhängigkeit der Teilchengrößenparameters	21
3.3.1	Schema zur Berechnung des Rückstreuverhältnisses R	31
3.4.1	Übersicht des ALOMAR RMR Lidar Aufbaus	34
3.4.2	Schematischer Aufbau der optischen Bank des ALOMAR-RMR Lidars.	35
4.1.1	Vereinfachter schematischer Aufbau der optischen Bank des ALOMAR-RMR Lidars	41
4.1.2	Gemittelte Höhenprofile des Rückstreusignals für verschiedene Kanäle des RMR Lidars	42
4.2.1	Simulierte Rückstreupprofile verschiedener Signalkombinationen	44
4.2.2	Simulierte Rückstreupprofile verschiedener Signalkombinationen	45
4.2.3	Simulierte Rückstreupprofile verschiedener Signalkombinationen	46
4.2.4	Simulierte Rückstreupprofile verschiedener Signalkombinationen	47
4.2.5	Simulierte Rückstreupprofile verschiedener Signalkombinationen	48
4.2.6	Simulierte Rückstreupprofile verschiedener Signalkombinationen	48
4.3.1	Zeitlich gemittelte Profile verschiedener Rückstreuverhältnisse einer siebenstündigen Messung vom 15. Januar 2017.	49
4.3.2	Zeitlich und räumlich aufgelöstes Rückstreuverhältnis R_{387}^{1064} einer siebenstündigen Messung vom 15. Januar 2017	51
4.3.3	Zeitlich und räumlich aufgelöstes Rückstreuverhältnis R_{387}^{1064} einer siebenstündigen Messung vom 15. Januar 2017	52
5.1.1	Zeitlich und räumlich aufgelöstes Rückstreusignal S^{387} einer 187-stündigen Messung vom 3. Februar 2017 bis 11. Februar 2017	54
5.1.2	Zeitlich und räumlich aufgelöstes Rückstreuverhältnis R_{387}^{1064} einer 96-stündigen Messung vom 6. Oktober 2015 bis 10. Oktober 2015	54
5.2.1	Zeitlich gemittelte Profile von Rückstreu- und Farbverhältnissen einer 96-stündigen Messung vom 6. Oktober 2015 bis 10. Oktober 2015	55

5.2.2	Zur Korrektur geeignete R_{387}^{355} Profile von 2000 bis 2018	57
5.2.3	Zeitlich gemittelte Profile von Rückstreuverhältnissen , angenäherten Rückstreuverhältnissen und Farbverhältnissen einer 96-stündigen Messung vom 6. Oktober 2017 bis 10. Oktober 2017	58
5.2.4	Differenz zwischen R_{387}^{1064} und R_{355}^{1064} für Messungen zwischen 2000 und 2018	59
6.1.1	Jährliche Messzeit des ALOMAR RMR Lidars von 2000 bis 2018	61
6.1.2	Jährliche Messzeit und Datenzeit R^{1064} des ALOMAR RMR Lidars von 2000 bis 2018	61
6.2.1	Monatliche Messzeit des ALOMAR RMR Lidars von 2000 bis 2018	63
6.2.2	Monatliche Messzeit und Datenzeit R^{1064} des ALOMAR RMR Lidars von 2000 bis 2018	63
6.2.3	Messzeit und Datenzeit R^{1064} des ALOMAR RMR Lidars von 2000 bis 2018 in Abhängigkeit der Tageszeit	64
6.2.4	Zeitlicher Verlauf der Signalunterkanten rückgestreuter Signale verschiedener Wellenlängen	65
7.1.1	Mittlere Monatsprofile R^{1064} von 2000 bis 2018	68
7.1.2	Aerosolrückstreuoeffizient für verschiedene Höhenbereiche 2000 bis 2018	69
7.1.3	Mittlere Monatsprofile R^{1064} für Jahre mit vulkanischem Einfluss	72
7.1.4	Mittlere Monatsprofile R^{1064} für ausgewählte Monate	73
7.1.5	Rückstreupprofile R_{Kborn} des RMR-Lidars Kühlungsborn	74
7.1.6	Vergleich der monatlich gemittelten R_{608}^{532} -Daten von ALOMAR und R_{Kborn} aus Kühlungsborn	76
7.2.1	Mittlerer Jahresgang R^{1064} von 2000 bis 2018	77
7.2.2	Mittlerer vulkanisch bereinigter monatlicher Jahresgang R^{1064} von 2000 bis 2018	78
7.3.1	Mittlerer Tagesgang R^{1064} von 2000 bis 2018	79
7.3.2	Mittlerer Tagesgang R^{1064} von 2000 bis 2018 in Abhängigkeit der Höhe	80
7.3.3	Mittlerer Tagesgang atmosphärischer Parameter aus ECMWF Modelldaten	82
7.4.1	Zeitlich und räumlich aufgelöstes Rückstreuverhältnis R_{PSC}^{1064} einer 64-stündigen Messung vom 9. Januar 2016	83
7.4.2	Saisonales Vorkommen von PSC und Datenzeit R^{1064}	84
7.4.3	Jährliche Messzeit im Januar, Februar und Dezember sowie PSC Auftreten	85
7.4.4	Höhenverteilung der oberen und unteren Kanten von polaren Stratosphärenwolken	86
7.4.5	Höhenverteilung der polaren Stratosphärenwolken	86
7.4.6	Zeitlich und räumlich aufgelöstes Rückstreuverhältnis R_{PSC}^{1064} einer 109-stündigen Messung vom 30. Januar 2018	87
7.6.1	Rückstreuverhältnis R_{387}^{1064} einer Messung vom 18. Februar 2018	90
7.6.2	R^{1064} für den Zeitraum vom 10. bis 27. Februar 2018	90
7.6.3	Modelldaten für den Zeitraum vom 10. bis 27. Februar 2018	92
A.1.1	R_{387}^{1064} in Abhängigkeit von Höhe und Ozon-Mischungsverhältnis	97
A.1.2	R_{608}^{1064} in Abhängigkeit von Höhe und Ozon-Mischungsverhältnis	97
A.1.3	R_{387}^{532} in Abhängigkeit von Höhe und Ozon-Mischungsverhältnis	97
A.2.1	Monatlich sortierte R_{387}^{355} Profile	99
A.3.1	Mittlerer monatlicher Jahresgang R^{1064} von 2000 bis 2018	100
A.3.2	Standardabweichung des mittleren monatlicher Jahresgang R^{1064} von 2000 bis 2018	101

A.3.3 Monatsprofile R^{1064} für den Monat April 2000 bis 2018	101
A.3.4 Mittlerer Jahresgang atmosphärischer Parameter aus ECMWF Modelldaten	102
A.3.5 Mittlere Höhe der Tropopause pro Monat von 2000 bis 2018	103
A.3.6 Gemittelte Rückstreuersignale in der Normierungshöhe S^{1064} und S^{387} einer 96 stündigen Messung vom 6. Oktober 2015 bis 10. Oktober 2015	104
A.3.7 R_{387}^{532} gegenüber R_{387}^{1064} für Werte zwischen 18.5 bis 21.5 km bei einer PSC-Messung vom Januar 2018	105
A.3.8 Atmosphärische Parameter aus ECMWF Modelldaten während einer 109-stündigen Messung beginnend am 30. Januar 2018	106

Tabellenverzeichnis

3.1 Übersicht über atmosphärische Streuprozesse	22
3.2 Übersicht über Messtechniken zur stratosphärischen Aerosolmessung	37
4.1 Überblick über die Messkanäle des ALOMAR RMR Lidars	43
6.1 Messzeitstatistik des ALOMAR RMR Lidars	65
7.1 Übersicht Vulkanausbrüche seit 2000	71

Literaturverzeichnis

- [Andersson et al. 2015] ANDERSSON, Sandra M. ; MARTINSSON, Bengt G. ; VERNIER, Jean-Paul ; FRIBERG, Johan ; BRENNINKMEIJER, Carl A. ; HERMANN, Markus ; VAN VELTHOVEN, Peter F. ; ZAHN, Andreas: Significant radiative impact of volcanic aerosol in the lowermost stratosphere. In: *Nature communications* 6 (2015), S. 7692
- [Ansmann 1999] ANSMANN, Albert: Aerosol-Raman-Lidar. In: *Habilitationsschrift, Universität Leipzig* (1999)
- [Ansmann et al. 2018] ANSMANN, Albert ; BAARS, Holger ; CHUDNOVSKY, Alexandra ; MATTIS, Ina ; VESELOVSKII, Igor ; HAARIG, Moritz ; SEIFERT, Patric ; ENGELMANN, Ronny ; WANDINGER, Ulla: Extreme levels of Canadian wildfire smoke in the stratosphere over central Europe on 21–22 August 2017. In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 18 (2018), Nr. 16, S. 11831–11845
- [Ansmann et al. 1990] ANSMANN, Albert ; RIEBESELL, Maren ; WEITKAMP, Claus: Measurement of atmospheric aerosol extinction profiles with a Raman lidar. In: *Optics letters* 15 (1990), Nr. 13, S. 746–748
- [Ansmann et al. 1992] ANSMANN, Albert ; WANDINGER, Ulla ; RIEBESELL, Maren ; WEITKAMP, Claus ; MICHAELIS, Walfried: Independent measurement of extinction and backscatter profiles in cirrus clouds by using a combined Raman elastic-backscatter lidar. In: *Applied optics* 31 (1992), Nr. 33, S. 7113–7131
- [Aschmann et al. 2011] ASCHMANN, J ; SINNHUBER, B-M ; CHIPPERFIELD, MP ; HOSSAINI, R: Impact of deep convection and dehydration on bromine loading in the upper troposphere and lower stratosphere. In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 11 (2011), Nr. 6, S. 2671–2687
- [Aydin et al. 2014] AYDIN, M ; FUDGE, TJ ; VERHULST, KR ; NICEWONGER, MR ; WADDINGTON, ED ; SALTZMAN, ES: Carbonyl sulfide hydrolysis in Antarctic ice cores and an atmospheric history for the last 8000 years. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 119 (2014), Nr. 13, S. 8500–8514
- [Baldwin et al. 2001] BALDWIN, MP ; GRAY, LJ ; DUNKERTON, TJ ; HAMILTON, K ; HAYNES, PH ; RANDEL, WJ ; HOLTON, JR ; ALEXANDER, MJ ; HIROTA, I ; HORINOUCI, T et al.: The quasi-biennial oscillation. In: *Reviews of Geophysics* 39 (2001), Nr. 2, S. 179–229
- [Baran u. Foot 1994] BARAN, AJ ; FOOT, JS: New application of the operational sounder HIRS in determining a climatology of sulphuric acid aerosol from the Pinatubo eruption. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 99 (1994), Nr. D12, S. 25673–25679
- [Barkley et al. 2008] BARKLEY, Michael P. ; PALMER, Paul I. ; BOONE, Chris D. ; BERNATH, Peter F. ; SUNTHARALINGAM, Parvatha: Global distributions of carbonyl sulfide in the upper troposphere and stratosphere. In: *Geophysical Research Letters* 35 (2008), Nr. 14

- [Barnes u. Hofmann 1997] BARNES, John E. ; HOFMANN, David J.: Lidar measurements of stratospheric aerosol over Mauna Loa Observatory. In: *Geophysical Research Letters* 24 (1997), Nr. 15, S. 1923–1926
- [Bartusek u. Gambling 1971] BARTUSEK, K. ; GAMBLING, D.J.: Simultaneous measurements of stratospheric aerosols using lidar and the twilight technique. In: *Journal of Atmospheric and Terrestrial Physics* 33 (1971), Nr. 9, 1415–1430. [http://dx.doi.org/10.1016/0021-9169\(71\)90013-4](http://dx.doi.org/10.1016/0021-9169(71)90013-4). – DOI 10.1016/0021-9169(71)90013-4. – ISSN 0021-9169
- [Bates 1984] BATES, DR: Rayleigh scattering by air. In: *Planetary and Space Science* 32 (1984), Nr. 6, S. 785–790
- [Baumgarten 2001] BAUMGARTEN, G.: *Leuchtende Nachtwolken an der polaren Sommermesopause: Untersuchungen mit dem ALOMAR Rayleigh/Mie/Raman Lidar*, Bonn University, Bonn, Germany, Diss., 2001. – BONN-IR-2001-10, ISSN-0172-8741
- [Baumgarten 2010] BAUMGARTEN, G.: Doppler Rayleigh/Mie/Raman lidar for wind and temperature measurements in the middle atmosphere up to 80 km. In: *Atmospheric Measurement Techniques* 3 (2010), Nr. 6, S. 1509–1518
- [Baumgarten et al. 2002] BAUMGARTEN, G. ; LÜBKEN, F.-J. ; FRICKE, K.H.: First observation of one noctilucent cloud by a twin lidar in two different directions. 20 (2002), S. 1863–1868
- [Bertrand et al. 2003] BERTRAND, C ; CLERBAUX, N ; IPE, A ; GONZALEZ, L: Estimation of the 2002 Mount Etna eruption cloud radiative forcing from Meteosat-7 data. In: *Remote Sensing of Environment* 87 (2003), Nr. 2-3, S. 257–272
- [Bingen et al. 2017] BINGEN, Christine ; ROBERT, Charles E. ; STEBEL, Kerstin ; BRÜHL, Christoph ; SCHALLOCK, Jennifer ; VANHELLEMONT, Filip ; MATESHVILI, Nina ; HÖPFNER, Michael ; TRICKL, Thomas ; BARNES, John E. ; JUMELET, Julien ; VERNIER, Jean-Paul ; POPP, Thomas ; LEEUW, Gerrit de ; PINNOCK, Simon: Stratospheric aerosol data records for the climate change initiative: Development, validation and application to chemistry-climate modelling. In: *Remote Sensing of Environment* 203 (2017), 296–321. <http://dx.doi.org/10.1016/j.rse.2017.06.002>. – DOI 10.1016/j.rse.2017.06.002. – ISSN 0034-4257. – Earth Observation of Essential Climate Variables
- [Bourassa et al. 2007] BOURASSA, AE ; DEGENSTEIN, DA ; GATTINGER, RL ; LLEWELLYN, EJ: Stratospheric aerosol retrieval with optical spectrograph and infrared imaging system limb scatter measurements. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 112 (2007), Nr. D10
- [Brion et al. 1998] BRION, J ; CHAKIR, A ; CHARBONNIER, J ; DAUMONT, D ; PARISSE, C ; MALICET, J: Absorption spectra measurements for the ozone molecule in the 350–830 nm region. In: *Journal of atmospheric chemistry* 30 (1998), Nr. 2, S. 291–299
- [Brock et al. 1995] BROCK, CA ; HAMILL, P ; WILSON, JC ; JONSSON, HH ; CHAN, KR: Particle formation in the upper tropical troposphere: A source of nuclei for the stratospheric aerosol. In: *Science* 270 (1995), Nr. 5242, S. 1650–1653

- [Brühl et al. 2012] BRÜHL, C ; LELIEVELD, J ; CRUTZEN, PJ ; TOST, H: The role of carbonyl sulphide as a source of stratospheric sulphate aerosol and its impact on climate. In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 12 (2012), Nr. 3, S. 1239–1253
- [Butchart 2014] BUTCHART, Neal: The Brewer-Dobson circulation. In: *Reviews of geophysics* 52 (2014), Nr. 2, S. 157–184
- [Campbell et al. 2014] CAMPBELL, Patrick ; MILLS, Michael ; DESHLER, Terry: The global extent of the mid stratospheric CN layer: A three-dimensional modeling study. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 119 (2014), Nr. 2, S. 1015–1030
- [Carboni et al. 2016] CARBONI, Elisa ; GRAINGER, Roy ; MATHER, Tamsin A. ; PYLE, David M. ; DUDHIA, A ; THOMAS, G ; SIDDANS, R ; SMITH, A ; KOUKOULI, M ; BALIS, Dimitrios: The vertical distribution of volcanic SO₂ plumes measured by IASI. In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 16 (2016)
- [Carn u. Lopez 2011] CARN, SA ; LOPEZ, TM: Opportunistic validation of sulfur dioxide in the Sarychev Peak volcanic eruption cloud. In: *Atmospheric Measurement Techniques* 4 (2011), Nr. 9, S. 1705–1712
- [Chauhan et al. 2009] CHAUHAN, Swarup ; HÖPFNER, M ; STILLER, GP ; CLARMANN, T von ; FUNKE, B ; GLATTHOR, N ; GRABOWSKI, U ; LINDEN, A ; KELLMANN, S ; MILZ, Mathias et al.: MIPAS reduced spectral resolution UTLS-1 mode measurements of temperature, O₃, HNO₃, N₂O, H₂O and relative humidity over ice: retrievals and comparison to MLS, Atmos. In: *Meas. Tech* 2 (2009), S. 337–353
- [Chazette et al. 1995] CHAZETTE, P ; DAVID, C ; LEFRERE, J ; GODIN, S ; PELON, J ; MÉGIE, G: Comparative lidar study of the optical, geometrical, and dynamical properties of stratospheric post-volcanic aerosols, following the eruptions of El Chichon and Mount Pinatubo. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 100 (1995), Nr. D11, S. 23195–23207
- [Chin u. Davis 1995] CHIN, Mian ; DAVIS, DD: A reanalysis of carbonyl sulfide as a source of stratospheric background sulfur aerosol. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 100 (1995), Nr. D5, S. 8993–9005
- [Clarisse et al. 2014] CLARISSE, Lieven ; COHEUR, P-F ; THEYS, N ; HURTMANS, D ; CLERBAUX, Cathy: The 2011 Nabro eruption, a SO₂ plume height analysis using IASI measurements. In: *Atmospheric chemistry and physics* 14 (2014), Nr. 6, S. 3095–3111
- [Crutzen 1976] CRUTZEN, Paul J.: The possible importance of CSO for the sulfate layer of the stratosphere. In: *Geophysical research letters* 3 (1976), Nr. 2, S. 73–76
- [Crutzen u. Arnold 1986] CRUTZEN, Paul J. ; ARNOLD, Frank: Nitric acid cloud formation in the cold Antarctic stratosphere: a major cause for the springtime ‘ozone hole’. In: *Nature* 324 (1986), Nr. 6098, S. 651
- [Curtius et al. 2005] CURTIUS, Joachim ; WEIGEL, R ; VÖSSING, H-J ; WERNLI, H ; WERNER, A ; VOLK, C-M ; KONOPKA, P ; KREBSBACH, M ; SCHILLER, C ; ROIGER, A et al.: Observations of meteoric material and implications for aerosol nucleation in the winter Arctic lower stratosphere derived from in situ particle measurements. In: *Atmospheric chemistry and physics* 5 (2005), Nr. 11, S. 3053–3069

- [Deshler et al. 2003] DESHLER, T ; HERVIG, ME ; HOFMANN, DJ ; ROSEN, JM ; LILEY, JB: Thirty years of in situ stratospheric aerosol size distribution measurements from Laramie, Wyoming (41 N), using balloon-borne instruments. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 108 (2003), Nr. D5
- [Deshler 2008] DESHLER, Terry: A review of global stratospheric aerosol: Measurements, importance, life cycle, and local stratospheric aerosol. In: *Atmospheric Research* 90 (2008), Nr. 2-4, S. 223–232
- [Deshler et al. 2006] DESHLER, Terry ; ANDERSON-SPRECHER, Richard ; JÄGER, Horst ; BARNES, John ; HOFMANN, David J. ; CLEMESHA, Barclay ; SIMONICH, Dale ; OSBORN, M ; GRAINGER, RG ; GODIN-BEEKMANN, Sophie: Trends in the nonvolcanic component of stratospheric aerosol over the period 1971–2004. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 111 (2006), Nr. D1
- [Dhomse et al. 2014] DHOMSE, SS ; EMMERSON, KM ; MANN, GW ; BELLOUIN, N ; CARSLAW, KS ; CHIPPERFIELD, MP ; HOMMEL, R ; ABRAHAM, NL ; TELFORD, P ; BRAESICKE, P et al.: Aerosol microphysics simulations of the Mt.~ Pinatubo eruption with the UM-UKCA composition-climate model. In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (2014), Nr. 20, S. 11221–11246
- [Dinh u. Fueglistaler 2014] DINH, Tra ; FUEGLISTALER, Stephan: Microphysical, radiative, and dynamical impacts of thin cirrus clouds on humidity in the tropical tropopause layer and lower stratosphere. In: *Geophysical Research Letters* 41 (2014), Nr. 19, S. 6949–6955
- [Drdla u. Turco 1991] DRDLA, K ; TURCO, RP: Denitrification through PSC formation: A 1-D model incorporating temperature oscillations. In: *Journal of atmospheric chemistry* 12 (1991), Nr. 4, S. 319–366
- [Dye et al. 1992] DYE, James E. ; BAUMGARDNER, D ; GANDRUD, BW ; KAWA, SR ; KELLY, KK ; LOEWENSTEIN, M ; FERRY, GV ; CHAN, KR ; GARY, BL: Particle size distributions in Arctic polar stratospheric clouds, growth and freezing of sulfuric acid droplets, and implications for cloud formation. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 97 (1992), Nr. D8, S. 8015–8034
- [Elterman 1968] ELTERMAN, Louis: UV, visible, and IR attenuation for altitudes to 50 km, 1968 / AIR FORCE CAMBRIDGE RESEARCH LABS HANSCOM AFB MA. 1968. – Forschungsbericht
- [English et al. 2011] ENGLISH, JM ; TOON, OB ; MILLS, MJ ; YU, F: Microphysical simulations of new particle formation in the upper troposphere and lower stratosphere. In: *Atmos. Chem. Phys* 11 (2011), Nr. 17, S. 9303–9322
- [Fernald 1984] FERNALD, Frederick G.: Analysis of atmospheric lidar observations: some comments. In: *Appl. Opt.* 23 (1984), Nr. 5, S. 652–653
- [Fiedler et al. 2008] FIEDLER, J ; BAUMGARTEN, G ; COSSART, G von: A middle atmosphere lidar for multi-parameter measurements at a remote site. In: *24th ILRC* (2008), S. 824–827
- [Fiedler u. von Cossart 1999] FIEDLER, Jens ; COSSART, Goetz von: Automated lidar transmitter for multiparameter investigations within the Arctic atmosphere. In: *IEEE transactions on geoscience and remote sensing* 37 (1999), Nr. 2, S. 748–755

- [Fleming et al. 1990] FLEMING, Eric L. ; CHANDRA, Sushil ; BARNETT, JJ ; CORNEY, M: Zonal mean temperature, pressure, zonal wind and geopotential height as functions of latitude. In: *Advances in Space Research* 10 (1990), Nr. 12, S. 11–59
- [Fortuin u. Langematz 1995] FORTUIN, Jan P. ; LANGEMATZ, Ulrike: Update on the global ozone climatology and on concurrent ozone and temperature trends. In: *Atmospheric Sensing and Modelling* Bd. 2311 International Society for Optics and Photonics, 1995, S. 207–216
- [Fueglistaler et al. 2009] FUEGLISTALER, S ; DESSLER, AE ; DUNKERTON, TJ ; FOLKINS, I ; FU, Q ; MOTE, Philip W.: Tropical tropopause layer. In: *Reviews of Geophysics* 47 (2009), Nr. 1
- [Fyfe et al. 2013] FYFE, JC ; SALZEN, K v. ; COLE, JNS ; GILLETT, NP ; VERNIER, J-P: Surface response to stratospheric aerosol changes in a coupled atmosphere–ocean model. In: *Geophysical Research Letters* 40 (2013), Nr. 3, S. 584–588
- [Gerding et al. 2003] GERDING, M ; BAUMGARTEN, G ; BLUM, U ; THAYER, JP ; FRICKE, K-H ; NEUBER, Roland ; FIEDLER, J: Observation of an unusual mid-stratospheric aerosol layer in the Arctic: possible sources and implications for polar vortex dynamics. In: *Annales Geophysicae* Bd. 21, 2003, S. 1057–1069
- [Gorshchev et al. 2014] GORSHELEV, Victor ; SERDYUCHENKO, Anna ; WEBER, Mark ; CHEHADE, W ; BURROWS, JP: High spectral resolution ozone absorption cross-sections–Part 1: Measurements, data analysis and comparison with previous measurements around 293 K. In: *Atmospheric Measurement Techniques* 7 (2014), Nr. 2, S. 609–624
- [Guo et al. 2004] GUO, Song ; BLUTH, Gregg J. ; ROSE, William I. ; WATSON, I M. ; PRATA, AJ: Re-evaluation of SO₂ release of the 15 June 1991 Pinatubo eruption using ultraviolet and infrared satellite sensors. In: *Geochemistry, Geophysics, Geosystems* 5 (2004), Nr. 4
- [Hauchecorne u. Chanin 1980] HAUCHECORNE, Alain ; CHANIN, Marie-Lise: Density and temperature profiles obtained by lidar between 35 and 70 km. In: *Geophysical Research Letters* 7 (1980), Nr. 8, S. 565–568
- [Haywood et al. 2010] HAYWOOD, James M. ; JONES, Andy ; CLARISSE, Lieven ; BOURASSA, Adam ; BARNES, John ; TELFORD, Paul ; BELLOUIN, Nicolas ; BOUCHER, Olivier ; AGNEW, Paul ; CLERBAUX, Cathy et al.: Observations of the eruption of the Sarychev volcano and simulations using the HadGEM2 climate model. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 115 (2010), Nr. D21
- [Hermann u. Wiedensohler 2001] HERMANN, M ; WIEDENSOHLER, A: Counting efficiency of condensation particle counters at low-pressures with illustrative data from the upper troposphere. In: *Journal of Aerosol Science* 32 (2001), Nr. 8, S. 975–991
- [Hildebrand 2014] HILDEBRAND, J.: *Wind and temperature measurements by Doppler Lidar in the Arctic middle atmosphere*, Universität Rostock, Diss., 2014
- [Hoffmann et al. 2010] HOFFMANN, Anja ; RITTER, Christoph ; STOCK, Maria ; MATURILLI, Marion ; ECKHARDT, S ; HERBER, Andreas ; NEUBER, Roland: Lidar measurements of the Kasatochi aerosol

- plume in August and September 2008 in Ny-Ålesund, Spitsbergen. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 115 (2010), Nr. D2
- [Holton et al. 1995] HOLTON, James R. ; HAYNES, Peter H. ; MCINTYRE, Michael E. ; DOUGLASS, Anne R. ; ROOD, Richard B. ; PFISTER, Leonhard: Stratosphere-troposphere exchange. In: *Reviews of geophysics* 33 (1995), Nr. 4, S. 403–439
- [Holton 2004] HOLTON, JR: An Introduction to Dynamic Meteorology, Int. In: *Geophys. Ser* 88 (2004), S. 313–369
- [Höpfner et al. 2015] HÖPFNER, M ; BOONE, CD ; FUNKE, Bernd ; GLATTHOR, N ; GRABOWSKI, U ; GÜNTHER, A ; KELLMANN, S ; KIEFER, M ; LINDEN, A ; LOSSOW, S et al.: Sulfur dioxide (SO₂) from MIPAS in the upper troposphere and lower stratosphere 2002–2012. In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 15 (2015), Nr. 12, S. 7017–7037
- [Höpfner et al. 2013] HÖPFNER, M ; GLATTHOR, N ; GRABOWSKI, U ; KELLMANN, S ; KIEFER, M ; LINDEN, A ; ORPHAL, J ; STILLER, G ; VON CLARMANN, T ; FUNKE, Bernd et al.: Sulfur dioxide (SO₂) as observed by MIPAS/Envisat: temporal development and spatial distribution at 15–45 km altitude. In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 13 (2013), Nr. 20, S. 10405–10423
- [Hyatt et al. 1973] HYATT, HA ; CHERLOW, JM ; FENNER, WR ; PORTO, SPS: Cross section for the Raman effect in molecular nitrogen gas. In: *JOSA* 63 (1973), Nr. 12, S. 1604–1606
- [Inaba 1976] INABA, H: Detection of atoms and molecules by Raman scattering and resonance fluorescence. In: *Laser Monitoring of the Atmosphere*. Springer, 1976, S. 153–236
- [Jacob 1999] JACOB, Daniel: *Introduction to atmospheric chemistry*. Princeton University Press, 1999
- [Jäger 2005] JÄGER, Horst: Long-term record of lidar observations of the stratospheric aerosol layer at Garmisch-Partenkirchen. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 110 (2005), Nr. D8
- [Jäger u. Deshler 2002] JÄGER, Horst ; DESHLER, Terry: Lidar backscatter to extinction, mass and area conversions for stratospheric aerosols based on midlatitude balloonborne size distribution measurements. In: *Geophysical Research Letters* 29 (2002), Nr. 19, S. 35–1
- [Jäger et al. 1995] JÄGER, Horst ; DESHLER, Terry ; HOFMANN, David J.: Midlatitude lidar backscatter conversions based on balloonborne aerosol measurements. In: *Geophysical research letters* 22 (1995), Nr. 13, S. 1729–1732
- [Jakubke et al. 2001] JAKUBKE, Hans-Dieter ; BARTELS, Sabine ; ACKER, Andrea: *Lexikon der Chemie: in drei Bänden. A bis Gese*. Bd. 1. Spektrum, Akad. Verl., 2001
- [Junge et al. 1961a] JUNGE, Christian E. ; CHAGNON, Charles W. ; MANSON, James E.: A World-wide Stratospheric Aerosol Layer. In: *Science* 133 (1961), Nr. 3463, 1478–1479. <http://dx.doi.org/10.1126/science.133.3463.1478-a>. – DOI 10.1126/science.133.3463.1478-a. – ISSN 0036–8075
- [Junge et al. 1961b] JUNGE, Christian E. ; CHAGNON, Charles W. ; MANSON, James E.: Stratospheric aerosols. In: *Journal of Meteorology* 18 (1961), Nr. 1, S. 81–108

- [Junge u. Manson 1961] JUNGE, Christian E. ; MANSON, James E.: Stratospheric aerosol studies. In: *Journal of Geophysical Research* 66 (1961), Nr. 7, S. 2163–2182
- [Kent u. Wright 1970] KENT, Ge S. ; WRIGHT, R We H.: A review of laser radar measurements of atmospheric properties. In: *Journal of Atmospheric and Terrestrial Physics* 32 (1970), Nr. 5, S. 917–943
- [Kent et al. 1990] KENT, GS ; POOLE, LR ; MCCORMICK, MP ; SCHAFFNER, SK ; HUNT, WH ; OSBORN, MT: Optical backscatter characteristics of Arctic polar stratospheric clouds. In: *Geophysical Research Letters* 17 (1990), Nr. 4, S. 377–380
- [Kettle et al. 2002] KETTLE, AJ ; KUHN, U ; VON HOBE, M ; KESSELMEIER, J ; ANDREAE, MO: Global budget of atmospheric carbonyl sulfide: Temporal and spatial variations of the dominant sources and sinks. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 107 (2002), Nr. D22
- [Khaykin et al. 2017] KHAYKIN, Sergey M. ; GODIN-BEEKMANN, Sophie ; KECKHUT, Philippe ; HAUCHE-CORNE, Alain ; JUMELET, Julien ; VERNIER, Jean-Paul ; BOURASSA, Adam ; DEGENSTEIN, Doug A. ; RIEGER, Landon A. ; BINGEN, Christine et al.: Variability and evolution of the midlatitude stratospheric aerosol budget from 22 years of ground-based lidar and satellite observations. In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 17 (2017), Nr. 3, S. 1829–1845
- [Klett 1981] KLETT, James D.: Stable analytical inversion solution for processing lidar returns. In: *Applied optics* 20 (1981), Nr. 2, S. 211–220
- [Klett 1985] KLETT, James D.: Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratios. In: *Appl. Opt.* 24 (1985), Jun, Nr. 11, 1638–1643. <http://dx.doi.org/10.1364/AO.24.001638>. – DOI 10.1364/AO.24.001638
- [Koop et al. 1997] KOOP, Thomas ; CARSLAW, Kenneth S. ; PETER, Thomas: Thermodynamic stability and phase transitions of PSC particles. In: *Geophysical research letters* 24 (1997), Nr. 17, S. 2199–2202
- [Kovalev u. Eichinger 2004] KOVALEV, Vladimir A. ; EICHINGER, William E.: *Elastic lidar: theory, practice, and analysis methods*. John Wiley & Sons, 2004
- [Kremser et al. 2016] KREMSE, Stefanie ; THOMASON, Larry W. ; HOBE, Marc ; HERMANN, Markus ; DESHLER, Terry ; TIMMRECK, Claudia ; TOOHEY, Matthew ; STENKE, Andrea ; SCHWARZ, Joshua P. ; WEIGEL, Ralf ; FUEGLISTALER, Stephan ; PRATA, Fred J. ; VERNIER, Jean P. ; SCHLAGER, Hans ; BARNES, John E. ; FAIRLIE, Duncan ; PALM, Mathias ; MAHIEU, Emmanuel ; NOTHOLT, Justus ; REX, Markus ; BINGEN, Christine ; VANHELLEMONT, Filip ; BOURASSA, Adam ; PLANE, John M. C. ; KLOCKE, Daniel ; CARN, Simon A. ; CLARISSE, Lieven ; TRICKL, Thomas ; NEELY, Ryan ; JAMES, Alexander D. ; RIEGER, Landon ; WILSON, James C. ; MELAND, Brian ; ANTUNA-MARRERO, Juan-Carlos: Stratospheric aerosol—Observations, processes, and impact on climate. In: *Reviews of Geophysics* 54 (2016), Nr. 2, 278–335. <http://dx.doi.org/10.1002/2015RG000511>. – DOI 10.1002/2015RG000511
- [Kristiansen et al. 2010] KRISTIANSEN, NI ; STOHL, A ; PRATA, AJ ; RICHTER, A ; ECKHARDT, S ; SEIBERT, P ; HOFFMANN, Anja ; RITTER, Christoph ; BITAR, L ; DUCK, TJ et al.: Remote sensing

- and inverse transport modeling of the Kasatochi eruption sulfur dioxide cloud. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 115 (2010), Nr. D2
- [Krotkov et al. 2010] KROTKOV, Nickolay A. ; SCHOEBERL, Mark R ; MORRIS, Gareth A ; CARN, S ; YANG, Kai: Dispersion and lifetime of the SO₂ cloud from the August 2008 Kasatochi eruption. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 115 (2010), Nr. D2
- [Kyrölä et al. 2004] KYRÖLÄ, Erkki ; TAMMINEN, J ; LEPPELMEIER, GW ; SOFIEVA, V ; HASSINEN, S ; BERTAUX, JL ; HAUCHECORNE, A ; DALAUDIER, F ; COT, C ; KORABLEV, O et al.: GOMOS on Envisat: An overview. In: *Advances in Space Research* 33 (2004), Nr. 7, S. 1020–1028
- [Lambert et al. 1993] LAMBERT, ALYN ; GRAINGER, RG ; REMEDIOS, JJ ; RODGERS, CD ; CORNEY, MARIE ; TAYLOR, FW: Measurements of the evolution of the Mt. Pinatubo aerosol cloud by ISAMS. In: *Geophysical research letters* 20 (1993), Nr. 12, S. 1287–1290
- [Lane u. Kjaergaard 2008] LANE, Joseph R. ; KJAERGAARD, Henrik G.: Calculated electronic transitions in sulfuric acid and implications for its photodissociation in the atmosphere. In: *The Journal of Physical Chemistry A* 112 (2008), Nr. 22, S. 4958–4964
- [Langenbach et al. 2019] LANGENBACH, A. ; BAUMGARTEN, G. ; FIEDLER, J. ; LÜBKEN, F.-J. ; SAVIGNY, C. von ; ZALACH, J.: Year-round stratospheric aerosol backscatter ratios calculated from lidar measurements above Northern Norway. In: *Atmospheric Measurement Techniques Discussions* 2019 (2019), 1–22. <http://dx.doi.org/10.5194/amt-2019-57>. – DOI 10.5194/amt-2019-57
- [Lee et al. 2011] LEE, Chulkyu ; MARTIN, Randall V. ; DONKELAAR, Aaron van ; LEE, Hanlim ; DICKERSON, Russell R. ; HAINS, Jennifer C. ; KROTKOV, Nickolay ; RICHTER, Andreas ; VINNIKOV, Konstantine ; SCHWAB, James J.: SO₂ emissions and lifetimes: Estimates from inverse modeling using in situ and global, space-based (SCIAMACHY and OMI) observations. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 116 (2011), Nr. D6
- [Lelieveld 1993] LELIEVELD, Jos: Multi-phase processes in the atmospheric sulfur cycle. In: *Interactions of C, N, P and S biogeochemical cycles and global change*. Springer, 1993, S. 305–331
- [Maturilli et al. 2005] MATURILLI, Marion ; NEUBER, Roland ; MASSOLI, P ; CAIRO, F ; ADRIANI, A ; MORICONI, ML ; DONFRANCESCO, G D.: Differences in Arctic and Antarctic PSC occurrence as observed by lidar in Ny-Ålesund (79 N, 12 E) and McMurdo (78 S, 167 E). In: *Atmospheric chemistry and physics* 5 (2005), Nr. 8, S. 2081–2090
- [McCormick et al. 2012] MCCORMICK, Brendan T. ; EDMONDS, Marie ; MATHER, Tamsin A. ; CARN, Simon A.: First synoptic analysis of volcanic degassing in Papua New Guinea. In: *Geochemistry, Geophysics, Geosystems* 13 (2012), Nr. 3
- [McCormick et al. 1984] MCCORMICK, MP ; SWISSLER, TJ ; FULLER, WH ; HUNT, WH ; OSBORN, MT: Airborne and ground-based lidar measurements of the El Chichon stratospheric aerosol from 90 N to 56 S. In: *Geofisica Internacional* 23 (1984), Nr. 2

- [McCormick u. Veiga 1992] MCCORMICK, MPs ; VEIGA, RE: SAGE II measurements of early Pinatubo aerosols. In: *Geophysical Research Letters* 19 (1992), Nr. 2, S. 155–158
- [McIntyre u. Palmer 1983] MCINTYRE, Michael E. ; PALMER, TN: Breaking planetary waves in the stratosphere. In: *Nature* 305 (1983), Nr. 5935, S. 593
- [Merikanto et al. 2007] MERIKANTO, J ; NAPARI, I ; VEHKAMÄKI, H ; ANTTILA, T ; KULMALA, M: New parameterization of sulfuric acid-ammonia-water ternary nucleation rates at tropospheric conditions. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 112 (2007), Nr. D15
- [Mie 1908] MIE, Gustav: Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen. In: *Annalen der physik* 330 (1908), Nr. 3, S. 377–445
- [Molina et al. 1993] MOLINA, MJ ; ZHANG, R ; WOOLDRIDGE, PJ ; MCMAHON, JR ; KIM, JE ; CHANG, HY ; BEYER, KD: Physical chemistry of the H₂SO₄/HNO₃/H₂O system: Implications for polar stratospheric clouds. In: *Science* 261 (1993), Nr. 5127, S. 1418–1423
- [Newhall u. Self 1982] NEWHALL, Christopher G. ; SELF, Stephen: The volcanic explosivity index (VEI) an estimate of explosive magnitude for historical volcanism. In: *Journal of Geophysical Research: Oceans* 87 (1982), Nr. C2, S. 1231–1238
- [Palm et al. 2005] PALM, Stephen P. ; FROMM, Michael ; SPINHIRNE, James: Observations of antarctic polar stratospheric clouds by the Geoscience Laser Altimeter System (GLAS). In: *Geophysical research letters* 32 (2005), Nr. 22
- [Pawson et al. 2019] PAWSON, S ; COY, L ; WARGAN, K: Connections Between the Stratosphere and Surface Weather Associated with the Stratospheric Sudden Warming in Early 2018. (2019)
- [Pawson et al. 1995] PAWSON, Steven ; NAUJOKAT, Barbara ; LABITZKE, Karin: On the polar stratospheric cloud formation potential of the northern stratosphere. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 100 (1995), Nr. D11, S. 23215–23225
- [Penndorf 1957] PENNDORF, Rudolf: Tables of the refractive index for standard air and the Rayleigh scattering coefficient for the spectral region between 0.2 and 20.0 μ and their application to atmospheric optics. In: *Josa* 47 (1957), Nr. 2, S. 176–182
- [Picone et al. 2002] PICONE, J. M. ; HEDIN, A. E. ; DROB, D. P. ; AIKIN, A. C.: NRLMSISE-00 empirical model of the atmosphere: Statistical comparisons and scientific issues. In: *Journal of Geophysical Research: Space Physics* 107 (2002), dec, Nr. A12, S. SIA 15–1–SIA 15–16. <http://dx.doi.org/10.1029/2002ja009430>. – DOI 10.1029/2002ja009430
- [Prata et al. 2010] PRATA, Alfred J. ; GANGALE, G ; CLARISSE, Lieven ; KARAGULIAN, Federico: Ash and sulfur dioxide in the 2008 eruptions of Okmok and Kasatochi: Insights from high spectral resolution satellite measurements. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 115 (2010), Nr. D2
- [Quiroz et al. 1975] QUIROZ, RS ; MILLER, AJ ; NAGATANI, RM: A comparison of observed and simulated properties of sudden stratospheric warmings. In: *Journal of the Atmospheric Sciences* 32 (1975), Nr. 9, S. 1723–1736

- [Raman 1928] RAMAN, Chandrasekhara V.: A new radiation. (1928)
- [Randel et al. 2010] RANDEL, William J. ; PARK, Mijeong ; EMMONS, Louisa ; KINNISON, Doug ; BERNATH, Peter ; WALKER, Kaley A. ; BOONE, Chris ; PUMPHREY, Hugh: Asian monsoon transport of pollution to the stratosphere. In: *Science* 328 (2010), Nr. 5978, S. 611–613
- [Rasetti 1929] RASETTI, Franco: Incoherent scattered radiation in diatomic molecules. In: *Physical Review* 34 (1929), Nr. 2, S. 367
- [Rayleigh 1871] RAYLEIGH, Lord: On the scattering of light by small particles. In: *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* 41 (1871), Nr. 275, S. 447–454
- [Rayleigh 1899] RAYLEIGH, Lord: XXXIV. On the transmission of light through an atmosphere containing small particles in suspension, and on the origin of the blue of the sky. In: *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* 47 (1899), Nr. 287, S. 375–384
- [Reichardt et al. 2004] REICHARDT, J ; DÖRNBRACK, A ; REICHARDT, S ; YANG, P ; MCGEE, TJ: Mountain wave PSC dynamics and microphysics from ground-based lidar measurements and meteorological modeling. In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 4 (2004), Nr. 4, S. 1149–1165
- [Rex et al. 2014] REX, Markus ; WOHLTMANN, Ingo ; RIDDER, Theo ; LEHMANN, Ralph ; ROSENLOF, K ; WENNBERG, P ; WEISENSTEIN, D ; NOTHOLT, Justus ; KRÜGER, Kirstin ; MOHR, Viktoria et al.: A tropical West Pacific OH minimum and implications for stratospheric composition. In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (2014), Nr. 9, S. 4827–4841
- [Ridley et al. 2014] RIDLEY, DA ; SOLOMON, Susan ; BARNES, JE ; BURLAKOV, VD ; DESHLER, T ; DOLGII, SI ; HERBER, Andreas B. ; NAGAI, T ; NEELY III, RR ; NEVZOROV, AV et al.: Total volcanic stratospheric aerosol optical depths and implications for global climate change. In: *Geophysical Research Letters* 41 (2014), Nr. 22, S. 7763–7769
- [Robock 2000] ROBOCK, Alan: Volcanic eruptions and climate. In: *Reviews of geophysics* 38 (2000), Nr. 2, S. 191–219
- [Rose u. Durant 2009] ROSE, William I. ; DURANT, Adam J.: Fine ash content of explosive eruptions. In: *Journal of Volcanology and Geothermal Research* 186 (2009), Nr. 1-2, S. 32–39
- [Rosenlof et al. 2015] ROSENLOF, Karen ; HASSLER, Birgit ; BODEKER, Greg ; NOAA CDR PROGRAM: *NOAA Climate Data Record (CDR) of Zonal Mean Ozone Binary Database of Profiles (BDBP), version 1.0*
- [Sakai et al. 2016] SAKAI, T ; UCHINO, O ; NAGAI, T ; LILEY, B ; MORINO, I ; FUJIMOTO, T: Long-term variation of stratospheric aerosols observed with lidars over Tsukuba, Japan, from 1982 and Lauder, New Zealand, from 1992 to 2015. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 121 (2016), Nr. 17, S. 10–283
- [Sander et al. 2011] SANDER, SP ; FRIEDL, RR ; ABBATT, JPD ; BARKER, JR ; BURKHOLDER, JB ; GOLDEN, DM ; KOLB, CE ; KURYLO, MJ ; MOORTGAT, GK ; WINE, PH et al.: Chemical kinetics and photochemical data for use in atmospheric studies, JPL Publication 10-6. In: *Evaluation* (2011), Nr. 17

- [Santer et al. 2014] SANTER, Benjamin D. ; BONFILS, Céline ; PAINTER, Jeffrey F. ; ZELINKA, Mark D. ; MEARS, Carl ; SOLOMON, Susan ; SCHMIDT, Gavin A. ; FYFE, John C. ; COLE, Jason N. ; NAZARENKO, Larissa et al.: Volcanic contribution to decadal changes in tropospheric temperature. In: *Nature Geoscience* 7 (2014), Nr. 3, S. 185
- [Santer et al. 2015] SANTER, Benjamin D. ; SOLOMON, Susan ; BONFILS, Celine ; ZELINKA, Mark D. ; PAINTER, Jeffrey F. ; BELTRAN, Francisco ; FYFE, John C. ; JOHANNESSON, Gardar ; MEARS, Carl ; RIDLEY, David A. et al.: Observed multivariable signals of late 20th and early 21st century volcanic activity. In: *Geophysical Research Letters* 42 (2015), Nr. 2, S. 500–509
- [Schöch 2001] SCHÖCH, A.: *Untersuchung der Schwerewellen-Aktivität in der polaren Atmosphäre mit einem Rayleigh-Lidar auf Andoya in Nordnorwegen*, Universität Rostock, Diplomarbeit, 2001
- [Schöch 2007] SCHÖCH, A.: *Thermal structure and gravity waves in the Arctic middle atmosphere above ALOMAR (69.3°N, 16.0°E)*, Rostock University, Diss., 2007
- [Seinfeld u. Pandis 2006] SEINFELD, JH ; PANDIS, SN: *Atmospheric chemistry and physics*. Hoboken. 2006
- [Sheng et al. 2015] SHENG, Jian-Xiong ; WEISENSTEIN, Debra K. ; LUO, Bei-Ping ; ROZANOV, Eugene ; STENKE, Andrea ; ANET, Julien ; BINGEMER, Heinz ; PETER, Thomas: Global atmospheric sulfur budget under volcanically quiescent conditions: Aerosol-chemistry-climate model predictions and validation. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 120 (2015), Nr. 1, S. 256–276
- [Sinnhuber u. Folkins 2006] SINNHUBER, B-M ; FOLKINS, I: Estimating the contribution of bromoform to stratospheric bromine and its relation to dehydration in the tropical tropopause layer. In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 6 (2006), Nr. 12, S. 4755–4761
- [Skolnik 1980] SKOLNIK, Merrill I.: Introduction to radar systems. In: *New York, McGraw Hill Book Co., 1980. 590 p.* (1980)
- [Solomon et al. 2011] SOLOMON, S. ; DANIEL, J. S. ; NEELY, R. R. ; VERNIER, J.-P. ; DUTTON, E. G. ; THOMASON, L. W.: The Persistently Variable “Background” Stratospheric Aerosol Layer and Global Climate Change. In: *Science* 333 (2011), Nr. 6044, 866–870. <http://dx.doi.org/10.1126/science.1206027>. – DOI 10.1126/science.1206027. – ISSN 0036–8075
- [Solomon 1999] SOLOMON, Susan: Stratospheric ozone depletion: A review of concepts and history. In: *Reviews of Geophysics* 37 (1999), Nr. 3, S. 275–316
- [Solomon et al. 1986] SOLOMON, Susan ; GARCIA, Rolando R. ; ROWLAND, F S. ; WUEBBLES, Donald J.: On the depletion of Antarctic ozone. In: *Nature* 321 (1986), Nr. 6072, S. 755
- [SPARC 2006] SPARC, S: *Assessment of stratospheric aerosol properties (ASAP)*. 2006
- [Tabazadeh et al. 1994] TABAZADEH, A ; TURCO, RP ; DRDLA, K ; JACOBSON, MZ ; TOON, OB: A study of type I polar stratospheric cloud formation. In: *Geophysical Research Letters* 21 (1994), Nr. 15, S. 1619–1622

- [Thomason u. Peter 2006] THOMASON, L ; PETER, Thomas: Assessment of stratospheric aerosol properties (ASAP). In: *Available online: www. sparc-climate. org/publications/sparc-reports/(accessed on 1 December 2015)* (2006)
- [Thomason et al. 2008] THOMASON, Larry W. ; BURTON, Sharon P. ; LUO, B-P ; PETER, Thomas: SAGE II measurements of stratospheric aerosol properties at non-volcanic levels. In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 8 (2008), Nr. 4, S. 983–995
- [Thomason u. Poole 1993] THOMASON, Larry W. ; POOLE, Lamont R.: Use of stratospheric aerosol properties as diagnostics of Antarctic vortex processes. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 98 (1993), Nr. D12, S. 23003–23012
- [Thome et al. 1999] THOME, Kurt ; BIGGAR, S ; TAKASHIMA, T: Algorithm theoretical basis document for ASTER Level 2B1–surface radiance and ASTER Level 2B5–surface reflectance. In: *Remote Sensing Group of the Optical Sciences Center, University of Arizona, ATBD-AST-04* 45 (1999)
- [Tie et al. 1996] TIE, Xuexi ; BRASSUER, Guy P. ; GRANIER, Claire ; DE RUDDER, Anne ; LARSEN, Niels: Model study of polar stratospheric clouds and their effect on stratospheric ozone: 2. Model results. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 101 (1996), Nr. D7, S. 12575–12584
- [Tolbert 1994] TOLBERT, Margaret A.: Sulfate aerosols and polar stratospheric cloud formation. In: *Science* 264 (1994), Nr. 5158, S. 527–529
- [Trickl et al. 2013] TRICKL, T ; GIEHL, H ; JÄGER, H ; VOGELMANN, H: 35 yr of stratospheric aerosol measurements at Garmisch-Partenkirchen: from Fuego to Eyjafjallajökull, and beyond. In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 13 (2013), Nr. 10, S. 5205–5225
- [Vehkamäki et al. 2002] VEHKAMÄKI, Hanna ; KULMALA, Markku ; NAPARI, Ismo ; LEHTINEN, Kari E. ; TIMMRECK, Claudia ; NOPPEL, Madis ; LAAKSONEN, Ari: An improved parameterization for sulfuric acid–water nucleation rates for tropospheric and stratospheric conditions. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 107 (2002), Nr. D22, S. AAC–3
- [Vernier et al. 2011a] VERNIER, J-P ; THOMASON, Larry W. ; POMMEREAU, J-P ; BOURASSA, Adam ; PELON, Jacques ; GARNIER, Anne ; HAUCHECORNE, Alain ; BLANOT, Laurent ; TREPTE, C ; DEGENSTEIN, Doug et al.: Major influence of tropical volcanic eruptions on the stratospheric aerosol layer during the last decade. In: *Geophysical Research Letters* 38 (2011), Nr. 12
- [Vernier et al. 2011b] VERNIER, J-P ; THOMASON, LW ; KAR, J: CALIPSO detection of an Asian tropopause aerosol layer. In: *Geophysical Research Letters* 38 (2011), Nr. 7
- [Vogel et al. 2015] VOGEL, Bärbel ; GÜNTHER, G ; MÜLLER, Rolf ; GROOSS, J-U ; RIESE, M: Impact of different Asian source regions on the composition of the Asian monsoon anticyclone and of the extratropical lowermost stratosphere. In: *Atmospheric chemistry and physics* 15 (2015), Nr. 23, S. 13699–13716
- [Wandinger 2005] WANDINGER, Ulla: Introduction to lidar. In: *Lidar*. Springer, 2005, S. 1–18

- [Weigel et al. 2011] WEIGEL, R ; BORRMANN, S ; KAZIL, J ; MINIKIN, A ; STOHL, A ; WILSON, JC ; REEVES, JM ; KUNKEL, D ; DE REUS, M ; FREY, W et al.: In situ observations of new particle formation in the tropical upper troposphere: the role of clouds and the nucleation mechanism. In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 11 (2011), Nr. 18, S. 9983–10010
- [Worsnop et al. 1993] WORSNOP, Douglas R. ; ZAHNISER, Mark S. ; FOX, Lewis E. ; WOFSY, Steven C.: Vapor pressures of solid hydrates of nitric acid: Implications for polar stratospheric clouds. In: *Science* 259 (1993), Nr. 5091, S. 71–74
- [Yang u. Schlesinger 2002] YANG, Fanglin ; SCHLESINGER, Michael E.: On the surface and atmospheric temperature changes following the 1991 Pinatubo volcanic eruption: A GCM study. In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 107 (2002), Nr. D8, S. ACL–8
- [Young 1981] YOUNG, Andrew T.: Rayleigh scattering. In: *Applied optics* 20 (1981), Nr. 4, S. 533–535
- [Yu et al. 2015] YU, Pengfei ; TOON, Owen B. ; NEELY, Ryan R. ; MARTINSSON, Bengt G. ; BRENNINK-MEIJER, Carl A.: Composition and physical properties of the Asian tropopause aerosol layer and the North American tropospheric aerosol layer. In: *Geophysical research letters* 42 (2015), Nr. 7, S. 2540–2546
- [von Zahn et al. 2000] ZAHN, U. von ; COSSART, G. von ; FIEDLER, J. ; FRICKE, K. H. ; NELKE, G. ; BAUMGARTEN, G. ; REES, D. ; HAUCHECORNE, A. ; ADOLFSEN, K.: The ALOMAR Rayleigh/Mie/Raman lidar: objectives, configuration, and performance. In: *Annales Geophysicae* 18 (2000), Jul, Nr. 7, 815–833. <http://dx.doi.org/10.1007/s00585-000-0815-2>. – DOI 10.1007/s00585-000-0815-2. – ISSN 1432-0576
- [Zalach et al. 2019] ZALACH, J. ; SAVIGNY, C. von ; LANGENBACH, A. ; BAUMGARTEN, G. ; LÜBKEN, F.-J. ; BOURASSA, A.: Challenges in retrieving stratospheric aerosol extinction and particle size from ground-based RMR-LIDAR observations. In: *Atmospheric Measurement Techniques Discussions* 2019 (2019), 1–21. <http://dx.doi.org/10.5194/amt-2019-267>. – DOI 10.5194/amt-2019-267
- [Zuev et al. 2017] ZUEV, Vladimir V. ; BURLAKOV, Vladimir D. ; NEVZOROV, Aleksei V. ; PRAVDIN, Vladimir L. ; SAVELIEVA, Ekaterina S. ; GERASIMOV, Vladislav V.: 30-year lidar observations of the stratospheric aerosol layer state over Tomsk (Western Siberia, Russia). In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 17 (2017), feb, Nr. 4, S. 3067–3081. <http://dx.doi.org/10.5194/acp-17-3067-2017>. – DOI 10.5194/acp-17-3067-2017

Danksagung

Großer Dank geht an Franz-Josef Lübken, Gerd Baumgarten, Christian von Savigny, Jacob Zalach, Jens Fiedler, Thorsten Köpnick, Michael Gerding, Martin Riese, Jens Krause, Johannes Adam, Francie Schmidt, Sven Wilhelm, Jens Hildebrand, Silvia Brand, Dietmar Brand, Jens Söder, Carsten Schult, Lena Schoon, Tristan Staszak, Christine Ridder, Michael Priester, Wencke Baseda-Erdmann, Kathrin Baumgarten, Thomas Linow, Peter Schubert, Tobias Zinau, Gunter Stober, Angelika Kurreck, Monika Rosenthal, Vivien Matthias, Heiner Asmus, Svenja Sommer, Thomas Barth, Felix, Anton, Emil, Michel und Anne!

Selbstständigkeitserklärung

Hiermit versichere ich, die vorliegende Dissertation ohne Hilfe Dritter nur mit den angegebenen Quellen und Hilfsmitteln angefertigt zu haben. Alle Stellen, die aus den Quellen entnommen wurden, sind als solche kenntlich gemacht worden. Diese Arbeit hat in gleicher Form noch keiner Prüfungsbehörde vorgelegen.

Kühlungsborn, 21. Januar 2020

Arvid Langenbach