Flugzeuggestützte Messungen des atmosphärischen Aerosols: Saharastaub, stratosphärisches Hintergrundaerosol und nichtsichtbare Wolken in den Tropen

> Dissertation zur Erlangung des Grades "Doktor der Naturwissenschaften" am Fachbereich Physik der Johannes Gutenberg-Universität in Mainz

> > Andreas Thomas geboren in Frankfurt am Main

Mainz, den 26. März 2003

Tag der mündlichen Prüfung: 9. Juli 2003

Inhaltsverzeichnis

Einleitung – Aerosolmessungen in der Atmosphäre 5							
T	Me	thoalk	9				
1	Gru	ndlagen der Meßtechnik	11				
	1.1	Allgemeine Streulichttheorie	11				
	1.2	Interpretation der Meßdaten des FSSP-300	15				
	1.3	Darstellung, abgeleitete Größen, Definitionen	21				
	1.4	Messung asphärischer Partikel: die T-Matrix-Methode $\ .$	24				
2	Beschreibung des Meßinstrumentes						
	2.1	Konstruktion und Funktion	29				
	2.2	Kalibrierung	32				
	2.3	Methoden der Auswertung, Programme	36				
	2.4	Fehlerbetrachtung	39				
	2.5	Diskussion und Ausblick	43				
3	\mathbf{Exp}	erimenteller Aufbau auf den Flugzeugen	45				
	3.1	Montage und Datenerfassung	45				
	3.2	Das Höhenforschungsflugzeug Geophysika	49				
	3.3	Die anderen Forschungsflugzeuge	54				
Π	II Ergebnisse 59						
4	Saharastaub über dem Atlantik						
	4.1	Zielsetzung	61				
	4.2	$Meteorologische \ Rahmenbedingungen: \ allgemeine \ Windsysteme$	62				
	4.3	Beobachtungen bei ACE-2	65				
	4.4	Meteorologische Analyse	69				
	4.5 Allgemeine mikrophysikalische Eigenschaften des Saharastaubes 7						
	4.6	Bei ACE-2 gemessene Größenverteilungen des Saharastaubes	7 9				
	4.7	Résumé	84				
	4.8	Ausblick	85				

5	Das	Hintergrundaerosol in der Stratosphäre	87
	5.1	Zielsetzung	87
	5.2	Einführung	87
	5.3	Datenbasis und Datenverarbeitung	91
	5.4	Langzeitbeobachtungen der Junge-Schicht	93
	5.5	Flugzeuggestützte in-situ-Messungen	100
	5.6	Zeitreihen der in-situ-Messungen	102
	5.7	Größenverteilung des stratosphärischen Aerosols	107
	5.8	Résumé	111
	5.9	Ausblick	112
6	Sub	visual clouds – nichtsichtbare Wolken	115
	6.1	Zielsetzung	115
	6.2	Bisherige Kenntnisse	116
	6.3	Die APE-THESEO-Meßkampagne in den Tropen	123
	6.4	In-situ-Messungen des Aerosols	126
	6.5	Lidar-Messungen am 24. Februar 1999	130
	6.6	In-situ- und Lidar-Beobachtungen am 27. Februar 1999	137
	6.7	Meteorologische Analyse: Thermodynamische Diagramme	140
	6.8	Meteorologische Analyse: Windregime der Cirrenschichten	145
	6.9	Größenverteilungen von Cirren und Hintergrundaerosol	150
	6.10	Optische Dicke der Wolken	159
	6.11	Hypothesen zu den Mechanismen der Tropopausenwolken	163
	6.12	Résumé	166
	6.13	Ausblick	168
Zι	ısam	menfassung	171
A	nhan	g	177
\mathbf{A}	Tab	ellen	177
	A.1	Liste der Akronyme	177
	A.2	Liste der Variablen	179
	A.3	Tabellen für Größenverteilungen	180
В	The	rmodynamische Diagramme	191
\mathbf{C}	Bibl	iographie, Datenquellen	197
	C.1	Zeitschriften und Monographien	197
	C.2	Internet	210
	C.3	Quellen der verwendeten Daten, Programme	212
D	Vora	ab veröffentlichte Ergebnisse dieser Arbeit	215

Einleitung – Aerosolmessungen in der Atmosphäre

Die Luft der Atmosphäre ist ein Aerosol, und die Aerosolpartikel spielen in den verschiedensten Bereichen der Atmosphärenphysik, -chemie und Meteorologie eine Rolle. Aerosolpartikel dienen als Kondensationskerne und sind damit ein grundlegender Faktor bei der Wolkenbildung. Das Aerosol hat einen direkten und über die Wolkenbildung auch indirekten Einfluß auf den Strahlungshaushalt der Erde. Auf der Oberfläche der Partikel und auch in den Partikeln können chemische Reaktionen ablaufen, und so besteht auch Einfluß auf die Luftchemie.

Zur Charakterisierung der Mikrophysik des Aerosols dienen verschiedene Parameter. Basisparameter sind die Größe – also der Durchmesser der Einzelpartikel – und die Partikelanzahlkonzentration bzw. das Mischungsverhältnis – also die Partikelanzahl pro Luftvolumen bzw. pro Luftmasse. Davon abgeleitete Parameter sind die Partikeloberfläche und das Partikelvolumen – ebenfalls als Konzentration oder Mischungsverhältnis angegeben – und schließlich die Größenverteilung, bei der die Konzentration pro Partikelgrößenintervall angegeben wird. Die Ableitung dieser Aerosolparameter wird im Kapitel 1 beschrieben.

Zur Messung der Aerosolparameter haben sich verschiedene Meßmethoden etabliert, die sich in verschiedene Grundtypen einteilen lassen. Zum einen die Fernerkundungsmethoden wie Lidar oder *limb sounding* (Randpeilung, in diesem Falle der Rand der Erdkugel), zum anderen die in-situ-Messungen, bei denen das Aerosol direkt am Ort des Meßinstrumentes untersucht wird. Bei diesen wiederum gibt es die Möglichkeit der Messungen am Boden, die zwar ortsgebunden sind, aber den Vorteil haben, bei der Wahl von Meßzeit und vor allem Meßdauer flexibel zu sein. Auf der anderen Seite gibt es die mobilen Messungen auf Ballonen oder Flugzeugen, die es erlauben, auch die höheren Schichten der Atmosphäre aufzusuchen und gezielt in einem bestimmten, interessierenden Gebiet – z. B. einer Wolke – zu messen. In der vorliegenden Arbeit werden die Ergebnisse von in-situ-Messungen vorgestellt, die bei verschiedenen Meßkampagnen mit Flugzeugen gewonnen wurden. Der im Rahmen der vorliegenden Arbeit geleistete Beitrag bestand in Messungen mit einem Streulichtmeßgerät des Typs FSSP-300, welches auf verschiedenen Flugzeugen zum Einsatz kam, und mit dem einzelne Teilchen im Größenbereich von etwa 0,4 μ m bis 20 μ m Partikeldurchmesser detektiert werden können. Die Ergebnisse von anderen Arbeitsgruppen und anderen Meßinstrumenten wurden in die Auswertungen mit einbezogen; dies sind vor allem die Temperaturmessungen, aber z. B. auch Ozon, Wassergehalt oder auch Partikelmessungen in anderen Größenbereichen. Die Meß- und Auswertungsmethodik des FSSP-300 wird im Kapitel 1 ausführlich dargestellt, das Meßgerät selbst in Kapitel 2. Die eher technischen und flugsicherheitsrelevanten Aspekte der Flugzeugintegration des Instruments werden in Kapitel 3 besprochen.

Die oben eingeführten Aerosolparameter beschreiben das atmosphärische Aerosol noch nicht vollständig, denn verschiedene Aerosoltypen unterscheiden sich weiterhin in der chemischen Zusammensetzung und der physikalischen Beschaffenheit der Partikel zum Teil grundlegend. Drei solchermaßen unterschiedliche Aerosole werden in der vorliegenden Arbeit in jeweils einem Kapitel des Ergebnisteils betrachtet. Hierbei werden auch sehr verschiedene Höhenbereiche der Atmosphäre berührt:

Die untere und mittlere Troposphäre. Im 4. Kapitel zur Messung von Saharastaub über dem Atlantik werden Ergebnisse von Meßflügen ausgewertet, die von Teneriffa aus durchgeführt wurden. Hierbei wurde Staub in zwei grundsätzlich verschiedenen Luftmassen – aus der Sahara und mit Passatwinden herangeführte Luft aus Marokko bzw. Europa – beobachtet.

Das Wissen um die Aerosolparameter ist nicht nur in den Quell- und Zielgebieten – die bis in die Karibik reichen –, sondern auch während des Transportes über diese lange Strecke von Interesse. In der Meteorologie betrifft dies die Modellierung der Strahlungseigenschaften der Staubschichten, welche oft große Gebiete überdecken. Für die Luftchemie sind die Staubpartikel in Hinblick auf heterogene chemische Reaktionen relevant. Weiterhin haben Beobachtungen des Staubtransports Bedeutung im Bereich der Geologie – z. B. in Bezug auf Sedimentbildung – und in der Biologie, da der Staub die Ökosysteme beeinflußt und auch Mikroorganismen zusammen mit dem Staub tranportiert werden [KARBERG, 2002].

Die untere Stratosphäre. Im 5. Kapitel wird die langjährige zeitliche Entwicklung der Aerosolkonzentration in einem wesentlich höheren Bereich der Atmosphäre untersucht: die als Junge-Schicht bezeichnete Aerosolschicht in der Stratosphäre. Die Junge-Schicht ist ein permanentes und globales Phänomen, sie befindet sich in über 10 km Höhe in den polaren und in über 20 km in den tropischen Regionen. Es gibt verschiedene Theorien, welches die Quellen für die Junge-Schicht sind. Die Kenntnis sowohl der Entwicklung des ungestörten und des durch Vulkanausbrüche gestörten Aerosols als auch der absoluten Aerosolparameter ist von Bedeutung, um die Gewichtung der einzelnen Thesen im Gesamtzusammenhang beurteilen zu können.

Frühere Messungen mit einem Meßgerät desselben Typs aus den Jahren 1989 bis 1993 wurden durch die eigenen Messungen aus den Jahren 1996 bis 1998 fortgeführt. Von besonderem Interesse sind in diesem Zusammenhang die Auswirkungen, die der Ausbruch des Vulkans Pinatubo im Juni 1991 – während der ersten Meßperiode – hatte. Nach dem Pinatubo-Ausbruch bildete sich eine große Menge Aerosol in der Junge-Schicht, so daß die Aerosolkonzentration um eine Größenordnung anstieg. Der Einfluß dieses Pinatubo-Aerosols ist mittlerweile wieder verebbt. Seit 1995, also auch schon im Zeitraum der zweiten Meßperiode, ist die Aerosolkonzentration sogar niedriger, als vor dem Vulkanausbruch.

Die tropische Tropopausenregion. Dies ist ein Bereich von gegenwärtig besonderem Interesse. Wegen der hohen Lage der tropischen Tropopause gibt es nicht viele in-situ-Messungen aus dieser Region, weil es weltweit nur drei Flugzeuge gibt, die in dieser Höhe fliegen können. Mit dem russischen Höhenforschungsflugzeug Geophysika konnten interessante Beobachtung von extrem dünnen Wolkenschichten gemacht werden, die optisch so dünn sind, daß sie ohne Instrumente "nichtsichtbar" sind.

Aufgrund ihrer Lage direkt unterhalb der Tropopause, der großen Ausdehnung und ihrer Persistenz spielen diese Wolken möglicherweise eine Rolle bei der Dehydrierung, könnten also eine Erklärung sein für die Trockenheit in der Stratosphäre. Des weiteren können die Wolkenteilchen durch heterogene Reaktionen Einfluß auf die Gasphasenchemie haben, und es könnte auch Auswirkungen der Wolken auf den Strahlungshaushalt geben. Wegen der Bedeutung dieser Themen – Gegenstand aktueller Forschungsaktivitäten – sind die im 6. Kapitel vorgestellten Ergebnisse eine wichtige Ergänzung und Erweiterung der wenigen bislang veröffentlichten in-situ-Messungen zu diesen Wolken, da die Kenntnis der Mikrophysik der Wolkenteilchen von großer Relevanz ist.

Die Messungen für diese Arbeit wurden bei mehreren Meßkampagnen in den Jahren 1996 bis 1999 durchgeführt. Als Meßträger kamen umgebaute Passagierflugzeuge zum Einsatz – Falcon, Cessna Citation und Learjet – und das bereits erwähnte russische Höhenforschungsflugzeug Geophysika. Dies ist neben den amerikanischen ER-2 und WB-57 der einzige Flugzeugtyp, der bis zu einer Höhe von 21 Kilometern aufsteigen kann. Die Flugzeuge werden im 3. Kapitel vorgestellt.

Die Orte der Meßkampagnen umfaßten alle Klimazonen: im Bereich des nördlichen Polarkreises im Winter sowohl in Rovaniemi (Finnland) bei APE I als auch in Kiruna (Schweden) bei zwei POLSTAR-Meßkampagnen. In den mittleren Breiten wurde in Italien bei zwei Vorkampagnen im Rahmen der APE-Projekte gemessen. Auf Teneriffa und damit in der Region um den nördlichen Wendekreis fand die Meßkampagne ACE-2 statt, und schließlich wurden bei APE-THESEO auf Mahé (Seychellen) im Bereich der Innertropischen Konvergenzzone (ITCZ) Messungen durchgeführt. Die Meßkampagnen werden jeweils in den Kapiteln des Ergebnisteils vorgestellt. Eine Zusammenstellung der bei den Messungen gewonnen Erkenntnisse befindet sich in der Zusammenfassung am Ende des Ergebnisteils.

Teil I Methodik

Kapitel 1

Grundlagen der Meßtechnik

In diesem Kapitel werden die allgemeinen Grundbegriffe der Lichtstreuung an Partikeln erläutert (siehe z. B. VAN DE HULST [1957]). Speziell in Hinblick auf das verwendete Meßgerät vom Typ FSSP-300 wird die Interpretation der Meßdaten beschrieben.

1.1 Allgemeine Streulichttheorie

Die erste allgemeine Beschreibung der Lichtstreuung durch homogene, sphärische Partikel wurde von MIE [1908] vorgelegt. MIE [1908] ging bei seinen Berechnungen von einer monochromatischen, ebenen Lichtwelle aus und behandelte die Lichtstreuung als ein Randwertproblem der Elektrodynamik, das mit Hilfe der Maxwellgleichungen gelöst wird. Diese Theorie ist seitdem allgemein anerkannte Grundlage bei der Interpretation von natürlichen Phänomenen der Lichtstreuung – z. B. den optischen Eigenschaften von Dunst und Staub in der Atmosphäre oder der Sichtbarkeit von Objekten in großer Entfernung –, sie wird aber auch angewendet bei der Interpretation von Messungen mit Geräten, die die Intensität des von Partikeln gestreuten Lichtes erfassen. Mit sinnvollen Ergebnissen wird diese Praxis auch in Fällen gerechtfertigt, wo man nicht a priori von homogenen, sphärischen Partikeln ausgehen kann. Es muß allerdings immer bedacht werden, daß dieser Vorgehensweise Grenzen gesetzt sind, insbesondere bei der Analyse von Cirren – also Eiswolken – in denen die Partikel mit zunehmender Größe auch asphärischer werden [Ström et al., 1997]. Ein vergleichsweise neues mathematisches Werkzeug liefert die Berechnung der Streuquerschnitte nach der T-Matrix-Methode, mit der auch die Streuquerschnitte asphärischer, rotationsellipsoider Partikel berechnet werden können [BORRMANN et al., 2000a; MISHCHENKO, 1991][MISHCHENKO et al., 2000, S. 147-172].

Um einem verbreiteten Mißverständnis vorzubeugen, sei bereits an dieser Stelle darauf hingewiesen, daß optische Partikelmeßgeräte nicht die geometrische Größe der Teilchen messen, sondern deren Streuquerschnitt C_{str} im

Licht der Strahlung, der sie exponiert werden. Die Intensität des vom Partikel gestreuten Lichtes I_{str} ist

$$I_{str} = \frac{I_0 \ F(\vartheta, \varphi, \alpha, m)}{k^2 r^2} , \qquad (1.1)$$

wenn I_0 die Intensität des einfallenden Lichtes ist. Weiterhin sind:

- *F* dimensionslose Streufunktion
- ϑ Zenitwinkel
- φ Azimutwinkel
- $\alpha \qquad \text{dimensionsloser Mie-Größenparameter } \alpha = \pi \cdot d_P / \lambda = d_P \cdot k / 2$ (Verhältnis vom Partikeldurchmesser zur Lichtwellenlänge)
- m komplexer Brechungsindex
- r die als groß angenommene Entfernung vom Streuzentrum
- $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ die Wellenzahl [m⁻¹]

Der Winkel des einfallenden Lichtes wird, da in der Meßanordnung nicht variabel, als 0° festgelegt, und die Streuwinkel werden relativ zu dieser Richtung des einfallenden Lichtstrahls gemessen. Die Streufunktion F beschreibt den relativen Energiefluß pro Raumwinkeleinheit in Abhängigkeit von den Streuwinkeln – unabhängig von r – und kann für kugelförmige Partikel aus der Mie-Theorie berechnet werden. Für sphärische Partikel und unpolarisiertes Licht entfällt die Abhängigkeit von φ . Außerdem ist F noch von der Größe der Partikel d_P und der Wellenlänge des Lichtes abhängig, die in dem dimensionslosen Mie-Größenparameter α zusammengefaßt werden. Zusätzlich wird die Streufunktion noch von den optischen Konstanten des Partikelmaterials sowie von Form und Struktur der Partikel beeinflußt. Bei unregelmäßig geformten und inhomogenen Teilchen ist auch die Orientierung zum einfallenden Strahl von Bedeutung, was für den Fall homogener, rotationsellipsoider Teilchen bei der T-Matrix-Methode berücksichtigt wird.

Man denke sich nun eine Fläche, die so groß ist, daß die Energie des Lichtes, das senkrecht, mit der Intensität I_0 auf sie einfällt, gleich ist der Gesamtenergie des Lichtes, das von einem bestimmten Teilchen in alle Richtungen gestreut wird, wenn dieses Teilchen mit derselben Intensität I_0 bestrahlt wird. Diese gedachte Fläche ist der Streuquerschnitt C_{str} des betreffenden Teilchens. Ausgehend von dieser Definition und mit Gleichung 1.1 erhält man

$$C_{str} = \frac{1}{k^2} \int_{4\pi} F(\vartheta, \varphi, \alpha, m) \, d\omega.$$
 (1.2)

 $d\omega = \sin \vartheta \, d\vartheta \, d\varphi$ ist der differentielle Raumwinkel. Wie *F* ist auch C_{str} nicht von *r* abhängig, beide beschreiben lediglich die Streueigenschaften der Partikel. Bei einer realen Messung wird nicht über den gesamten Raumwinkelbereich integriert, sondern nur über den begrenzten Meßbereich – die

Empfängerapertur – eines Meßgerätes, und man erhält den partiellen Streuquerschnitt C_p . Das FSSP-300 mißt das Licht, welches von einem einzelnen Partikel in einen Winkelbereich von 3° bis 15° konzentrisch um die Vorwärtsrichtung gestreut wird:

$$C_p = \frac{1}{k^2} \int_{0^{\circ}}^{360^{\circ}} \int_{3^{\circ}}^{15^{\circ}} F(\vartheta, \varphi, \alpha, m) \sin \vartheta \, d\vartheta \, d\varphi.$$
(1.3)

Integriert man Gleichung 1.1 über die Empfängerapertur des Meßgerätes, so erhält man die mit diesem Instrument gemessene Streulichtintensität I_p :

$$I_p = I_0 \int_{0^{\circ}}^{360^{\circ}} \int_{3^{\circ}}^{15^{\circ}} \frac{F(\vartheta, \varphi, \alpha, m)}{k^2 r^2} \sin \vartheta \, d\vartheta \, d\varphi \,. \tag{1.4}$$

Mit dieser Gleichung und Gleichung 1.3 erhält man schließlich

$$\frac{I_p}{I_0} = \frac{C_p}{r^2}.\tag{1.5}$$

 I_p und I_0 sind die Größen, die mit dem FSSP-300 gemessen werden. Da *r* in dem Meßgerät konstant ist, ist das Verhältnis der beiden Meßgrößen ein Maß für den Streuquerschnitt und dieser kann nach einer Kalibrierung direkt bestimmt werden.

Sei des weiteren G der geometrische Querschnitt des streuenden Teilchens – im Falle einer Kugel also πr^2 – dann ist der Quotient aus Streuquerschnitt und geometrischem Querschnitt die Streueffizienz oder der Streueffizienzfaktor (*scattering efficiency factor*):

$$Q_{str} = \frac{C_{str}}{G}.$$
 (1.6)

Diese Größe gibt an, mit welcher Effizienz ein Teilchen das einfallende Licht streut oder anders interpretiert, welcher Anteil der Fläche G eines Teilchen das Licht mit einer Effizienz von 1 streut. Die Tatsache, daß in C_{str} bzw. Q_{str} die Streufunktion F eingeht, diese Größen also abhängig sind von m und vom Mie-Größenparameter α , ist der Grund, warum man mit Streulichtgeräten nicht direkt den Durchmesser der Teilchen bestimmen kann.

Im Folgenden ist auch mit dem Begriff "Streuquerschnitt" der partielle Streuquerschnitt des FSSP-300 gemeint. Als "Streufunktion" oder "Mie-Streufunktion" wird weiterhin ausschließlich die Darstellung des (partiellen) Streuquerschnittes als Funktion des Partikeldurchmessers bezeichnet. Eine Verwechslung mit der ebenfalls als Streufunktion bezeichneten Funktion F (Gleichung 1.1) ist ausgeschlossen, da diese nur hier in der Einführung benötigt wird.

Praktische Anwendung

Wenn also mit dem Meßgerät der Streuquerschnitt bestimmt wurde, kann erst in einem weiteren Schritt die Umrechnung in die Teilchengröße erfolgen, wobei in der Regel der Radius oder Durchmesser der als sphärisch angenommen Teilchen angegeben wird oder der volumenäquivalente Durchmesser bei asphärischen Teilchen. Diese Umrechnung erfolgt nicht direkt während, sondern erst nach der Messung, da gegebenenfalls noch Meßergebnisse anderer Instrumente hinzugezogen werden müssen. Dies betrifft z. B. Informationen bezüglich des Aggregatzustandes, des Brechungsindex oder der chemischen Zusammensetzung der Aerosolpartikel.

Die Intensität des von einem Partikel gestreuten Lichts hängt von der Größe, der Form und dem Brechungsindex des Partikels ab. Schließlich ist auch noch die Orientierung der Teilchen zum einfallenden Lichtstrahl von Bedeutung. Da dieses Problem nicht allgemein lösbar ist, ist man gezwungen, einige grundlegende Vereinfachungen anzunehmen:

- In erster N\u00e4herung wird angenommen, da\u00db die Partikel sph\u00e4risch sind. Der Einflu\u00fb von Form und Orientierung verschwindet damit, und die Mie-Theorie liefert eine allgemeine L\u00f5sung. Dies ist die – aus pragmatischen Gr\u00fcnden – allgemein akzeptierte Ausgangsbasis f\u00fcr die Arbeit mit allen Streulichtger\u00e4ten. Man mu\u00fb sich allerdings im klaren sein, da\u00db diesem Pragmatismus in praxi durchaus Grenzen gesetzt sind [GAYET et al., 1996].
- In Meßanordnungen wie der des FSSP-300 d. h. es wird nur das Streulicht in *einem* Raumwinkel konzentrisch um den Primärstrahl gemessen – können von dem Meßergebnis keinerlei Aussagen über den Brechungsindex oder die Form der Partikel abgeleitet werden. Es ist also nötig zu wissen, welcher Art die Teilchen waren, die gemessen wurden, wobei hier eine Klassifizierung des Aerosols ausreicht, zumal eine Klassifizierung jedes einzelnen gemessenen Partikels auch nicht möglich ist. Bestimmte Gruppen von Aerosolen in diesem Sinne sind zum Beispiel Wasserwolken, Eiswolken, polare Stratosphärenwolken, troposphärisches und stratosphärisches Hintergrundaerosol, Wüstenstaub usw. Im allgemeinen bedeutet diese Vorgehensweise, Angaben zum Brechungsindex aus der Literatur zu beziehen, da die Messungen solcher Parameter recht aufwendig sind.

Jedes Teilchen wird bei der Messung mit dem FSSP-300 zunächst auf Grund der Intensität des von ihm gestreuten Lichts einem von 31 Kanälen zugeordnet. Die praktische Vorgehensweise, um die Meßergebnisse des FSSP-300 in Teilchengrößen umzurechnen, bedeutet kurz gesagt, einer Tabelle zu entnehmen, welchen Teilchengrößenbereich die einzelnen Kanäle repräsentieren, welche Kanäle aufgrund der Mehrdeutigkeiten der Mie-Streufunktion zusammenzufassen sind und dementsprechend zunächst eine Anzahlgrößenverteilung zu berechnen.

1.2 Interpretation der Meßdaten des FSSP-300

Für jeden Aerosoltyp muß eine Größenzuordnungstabelle für das FSSP-300 erstellt werden. Aerosoltypen, die im Rahmen dieser Arbeit untersucht wurden, waren Saharastaub, stratosphärisches Hintergrundaerosol, Cirren und zur Kalibrierung des Meßgerätes Latex-Aerosol. Latex-Aerosol ist ein Kalibrierstandard, und die angegebenen Meßbereiche von Streulichtinstrumenten – wie das FSSP-300 – werden zunächst auf diesen Standard bezogen.

Um die Vorgehensweise zu veranschaulichen, wird im Folgenden die Auswertung von Daten, die bei der ACE-2-Meßkampagne (Aerosol Characterization Experiment, 1997) in Teneriffa gewonnen wurden, schrittweise dargestellt. Für die Analyse dieser Daten mußte eine Größenzuordnungstabelle für das FSSP-300 neu aufgestellt werden. Die Darstellung und Analyse der Meßergebnisse erfolgt im 4. Kapitel.



Abbildung 1.1: Streuquerschnitt als Funktion des Partikeldurchmessers für Saharastaub, berechnet für die Streugeometrie des FSSP-300 und mit unterschiedlichem Imaginärteil des Brechungsindex, d. h. unterschiedlicher Absorption [CARLSON und BENJAMIN, 1980]. [Berechnungen nach Mie Theorie zur Auswertung der Meßdaten von ACE-2, siehe Kapitel 4.]

Aufgrund der meteorologischen Gegebenheiten am Meßtage war davon auszugehen, daß Saharastaub gemessen wurde. In der Literatur sind verschiedene Angaben zum Brechungsindex von Saharastaub zu finden, die sich vor allem im Imaginärteil – also der Absorption – unterscheiden [CARL-SON und BENJAMIN, 1980]. Zur Auswahl des Brechungsindex siehe in Abschnitt 4.5 ab Seite 76. Für die Auswertung wurden die Streufunktionen für den Streuwinkelbereich des FSSP-300 von 3° bis 15° nach Mie-Theorie berechnet (Abbildung 1.1). Es sind drei Streufunktionen mit verschieden starker Absorption dargestellt. Um den Einfluß der Absorption auf die Mie-Streufunktion zu veranschaulichen, ist auch noch die Streufunktion für den Fall ohne Absorption (d. h. für m = 1,55 - 0i) mit dargestellt. Der Einfluß der Absorption ist bei den größeren Teilchen deutlich zu erkennen. Erst ein Imaginärteil des Brechungsindex kleiner als 10^{-5} kann bei mineralischen Stäuben vernachlässigt werden [SOKOLIK und TOON, 1999]. Die Absorption hat zur Folge, daß bei gleichem Durchmesser der Streuquerschnitt kleiner ist bzw. bei gleichem Streuquerschnitt das Teilchen mit Absorption einen größeren Durchmesser hat. Daher sind mit den größeren Kanälen des FSSP-300 wesentlich größere Teilchendurchmesser zu assoziieren.

In der Abbildung 1.2 ist die Vorgehensweise von den primären Meßdaten des FSSP-300 bis zur Größenverteilung veranschaulicht. Zur Beschreibung und Ableitung der einzelnen Größen siehe den folgenden Abschnitt ab Seite 21. Die Meßergebnisse sind links oben in Abbildung 1.2 dargestellt (Teilbild A): die Kanalverteilung des FSSP-300, d. h. die Partikelanzahlkonzentration N (Gleichung 1.9) eines Kanals als Funktion des Streuquerschnittes, der hier auf der Ordinate aufgetragen ist. Bei den Kanälen, die zu einem Größenbereich der Größenverteilung zusammengefaßt werden müssen, ist bereits die Gesamtkonzentration aufgetragen; bei der ursprünglichen Messung ist die Konzentration in jedem Kanal des FSSP-300 verschieden. Die Mie-Streufunktion, die für die Auswertung verwendet wird, ist rechts oben zu sehen (Teilbild B): der Streuquerschnitt als Funktion des Partikeldurchmessers. In Teilbild C ist die resultierende Größenverteilung eingetragen, also der Wert $dN/d \log d_P$ als Funktion des Partikeldurchmessers.

Das FSSP-300 mißt die Intensität des von einem Teilchen gestreuten Lichts als Spannungssignal eines Detektors. Auch die Intensität des als Lichtquelle dienenden Helium-Neon-Lasers wird gemessen, das entsprechende Spannungssignal ist die "Laserreferenzspannung". Das Verhältnis dieser beiden Spannungssignale ist äquivalent zu dem Verhältnis der Lichtintensitäten und somit gemäß Gleichung 1.5 ein Maß für den Streuquerschnitt des Teilchens. Entsprechend diesem so bestimmten Streuquerschnitt wird das Teilchen vom Meßgerät einem der 31 Kanäle zugeordnet, deren Grenzen fest vorgegeben sind. Die Werte dieser Kanalgrenzen sind in Abbildung 1.2 in den Teilbildern A und B als waagrechte Linien gleichen Streuquerschnittes eingetragen.



Abbildung 1.2: Vorgehensweise zur Umrechnung der primären FSSP-300-Meßdaten in eine $dN/d\log d_P$ Größenverteilung am Beispiel der Messungen von Saharastaub während der ACE-2-Meßkampagne auf Teneriffa; Meßflug vom 8. Juli 1997. Die Linien gleichen Streuquerschnittes entsprechen den Kanalgrenzen des FSSP-300.

Der Streufunktion in Teilbild B kann entnommen werden, welchen Durchmesserbereich ein Meßkanal repräsentiert. Bei kleinen Durchmessern – für die auch die Theorie der Rayleigh-Streuung gilt – ist eine eindeutige Zuordnung möglich, und man kann direkt angeben, zu welchem Größenbereich ein gemessenes Teilchen gehört. Es ist aber auch zu erkennen, daß einige der Kanalgrenzen die Streufunktion in Teilbild B in mehreren Punkten schneiden, eine eindeutige Zuordnung zu einem Teilchendurchmesser also nicht möglich ist. Entsprechend sind einigen Kanälen mehrere Größenbereiche zuzuordnen. Bei Kanal 16 sind dies zum Beispiel drei getrennte Bereiche zwischen etwa $1,5 \ \mu m$ und $2,5 \ \mu m$, und es ist unmöglich zu beurteilen, in welchen dieser drei Bereiche ein gemessenes Teilchen eingeordnet werden muß. Da man keine Zusatzinformation zu den Messungen hat, müssen alle Kanäle, die in einem Mehrdeutigkeitsbereich liegen – in dem Beispiel sind dies die Kanäle 15 bis 17 – zusammengefaßt werden, da man nicht sagen kann, ob ein in Kanal 15 gemessenes Teilchen größer oder kleiner ist als ein in Kanal 17 gemessenes. Warum auch noch Kanal 14 dazuzunehmen ist, wird weiter unter erklärt.

Nur bei der Auswertung der Messung von monodispersen Aerosolen zur Kalibrierung, bei denen der Durchmesser der Partikel bekannt ist, braucht diese Zusammenfassung nicht vorgenommen zu werden. Bei der Kalibrierung geht es nur darum festzustellen, ob eine Teilchengröße richtig erkannt wird, d. h. im richtigen Kanal detektiert wird.

Bei der Zusammenfassung von Kanälen kommt es darauf an, daß die Grenze zum jeweils nächsten Kanal nicht nur bezüglich der Streuquerschnitte, sondern auch bezüglich der Partikeldurchmesser eindeutig ist. Das heißt, man muß eindeutig sagen können, ob ein Teilchen mit größerem Streuquerschnitt auch einen größeren Durchmesser hat. Bei der Grenze der Kanäle 17 und 18 – die obere Grenze des farbig markierten Bereichs in Abbildung 1.2 – ist dies möglich, daher kann diese Kanalgrenze auch die Grenze eines Kanals oder Bereichs der Größenverteilung (Teilbild C) sein. Bei der Grenze von Kanal 16 und 17 ist diese eindeutige Trennung nicht möglich.

Wenn auf diese Weise Grenzen für Kanalbereiche festgelegt sind, kann direkt der jeweils zugehörige Durchmesser abgelesen werden. Damit ist dann auch ein Kanal der Größenverteilung bestimmt, und die Kanalbreite kann auch als Durchmesserintervall angegeben werden. Damit wiederum ist auch der Wert von $d \log d_P$ festgelegt, und es kann die Größenverteilung wie in Teilbild C berechnet werden. Für die automatische Auswertung auf einem Rechner wird eine Tabelle erstellt, aus der die Kanalzusammenfassungen zu entnehmen sind, sowie die Kanalgrenzen, bezogen auf den Partikeldurchmesser. Tabelle 1.1 enthält die Daten der hier besprochenen Auswertung. Alle Tabellen, die für die verschiedenen Auswertungen dieser Arbeit benötigt wurden, sind im Anhang A.3 aufgelistet.

Da die Grenzen der einzelnen Kanäle vom angenommenen Brechungsindex abhängen, gilt dies folglich auch für die Grenzen des Meßbereichs des

	Partikeldurchmesser $[\mu m]$					
FSSP-300	untere	obere	Kanal der Größen-			
Kanäle	Grenze	Grenze	verteilung			
1	0,310	0,360	1			
2	0,360	0,410	2			
3	0,410	0,460	3			
4	0,460	0,500	4			
5	0,500	0,540	5			
6	0,540	0,600	6			
7	0,600	0,648	7			
8	0,648	0,684	8			
9,10,11,12,13	0,684	1,58	9			
14,15,16,17	1,58	2,83	10			
18,19,20,21	2,83	5,23	11			
22,23,24	5,23	11,47	12			
25,26,27	11,47	14,86	13			
28,29	14,86	23,92	14			
30,31	23,92	31,00	15			

Tabelle 1.1: Größenzuordnungstabelle des FSSP-300 für Saharastaub, komplexer Brechungsindex m = 1,55 - 0,004i

ganzen Gerätes. Der Ausschnitt, den das FSSP-300 aus der gesamten, alle Teilchen eines Aerosols umfassenden Größenverteilung mißt, ist abhängig vom Brechungsindex und somit von Aerosoltyp zu Aerosoltyp etwas verschieden. Die in der Literatur meist angegebenen Grenzen von 0,4 μ m bis 20 μ m beziehen sich auf Latex-Aerosol mit einem Brechungsindex von 1,58.

Besondere Aspekte

Bei den großen Durchmessern des FSSP-300-Meßbereichs – etwa größer als 10 μ m – muß man gelegentlich eine Grenze für Kanäle der Größenverteilung ziehen, obwohl benachbarte Kanäle bezüglich der Durchmesser nicht eindeutig getrennt werden können, da andernfalls alle Kanäle des FSSP-300 in diesem Bereich zusammengefaßt werden müßten. Der Fehler bleibt aber gering, da diese Mehrdeutigkeit immer nur zwischen direkt benachbarten Kanälen besteht und die Bereiche, die dann gegebenenfalls falsch zugeordnet werden, in den betreffenden Fällen vergleichsweise klein sind, weshalb die Wahrscheinlichkeit für eine Fehlinterpretation nur gering ist. Vor allem aber ist dies im Endergebnis genauer, als wenn sehr viele Kanäle des FSSP-300 zu einem sehr großen Durchmesserbereich zusammengefaßt würden, denn dies bedeutete einen entsprechend größeren Fehler bei der Durchmesserbestimmung. Man nimmt mit anderen Worten einen nur wenig erhöhten statistischen Fehler in Kauf für einen geringeren systematischen Fehler. Ein Beispiel ist die Grenze der Kanäle 24 und 25, die in Abbildung 1.2 zusätzlich mit einer gestrichelten Linie markiert ist.

Ein weiterer Aspekt ist die Tatsache, daß Teilchen eines Durchmessers tatsächlich nie exakt ein und denselben Streuquerschnitt haben, was an Abweichungen vom mittleren Brechungsindex liegt und auch daran, daß die Partikel nicht exakt sphärisch sind. Dadurch verbreitert sich die Kurve für die Streufunktion, und einem bestimmten Teilchendurchmesser kann nicht mehr ein exakter Wert für den Streuquerschnitt zugeordnet werden, sondern nur ein Bereich möglicher Werte. Umgekehrt wird einem Streuquerschnitt auch im eindeutigen Bereich der Streufunktion nicht ein exakter Durchmesser, sondern ein Durchmesserbereich zugeordnet. Es ist also ein gewisser Fehler bei den Kanalgrenzen zu berücksichtigen. Dies wirkt sich vor allem dahingehend aus, daß Meßkanäle des FSSP-300, die theoretisch einzeln betrachtet werden könnten, weil es bei der Streufunktion keine Mehrdeutigkeiten gibt, in praxi mit anderen Kanälen zusammengefaßt werden müssen. Dies ist immer dann der Fall, wenn die auf den Durchmesser bezogene Kanalbreite klein ist gegen den oben beschriebenen Fehler, d. h. wenn der Fehler in der Größenordnung der Kanalbreite liegt. Ein Beispiel sind die Kanäle 13 und 14, die aufgrund der an dieser Stelle sehr steilen Streufunktion eigentlich eindeutig definiert sind. Bei der zu verwendenden Kanalbreite $(d \log d_P)$ würden diese Kanäle aber deutlich überbewertet, d. h. bedingt durch den kleinen Wert von $d \log d_P$ würde eine zu hohe Konzentration in diesem Größenbereich vorgetäuscht. Diese Kanäle sind somit dem benachbarten kleineren oder größeren Durchmesserbereich zuzuordnen. In dem Beispiel wird der Kanal 13 mit den darunter- und Kanal 14 mit den darüberliegenden Kanälen zusammengefaßt.

Die unteren Kanäle des FSSP-300, im Beispiel bis Kanal 8, sind – bezogen auf den Durchmesser – ausreichend breit und können oft auch einzeln betrachtet werden. Die Streufunktion ist in diesem Bereich im Mittel nicht so steil, wie im Bereich der Kanäle 13 und 14 und folglich der Wert von $d \log d_P$ größer. Dennoch ist es unter Umständen nötig, auch in diesem Bereich Kanäle zusammenzulegen, wenn ein Kanal des FSSP-300 bezüglich der Mie-Streufunktion in einem ungünstigen, d. h. zu steilen Bereich liegt.

Im Falle des Saharastaubs fällt die Kanalgrenze des größten Kanals auf einen Sattelpunkt der Streufunktion. Angesichts der niedrigen Teilchenkonzentration in diesem Kanal – nur wenige Teilchen während eines ganzen Fluges – wurde für die Auswertung der niedrigere Wert gewählt, um diesen Kanal nicht falsch zu bewerten und vor allem nicht einem unrealistisch großen Durchmesser zuzuordnen.

1.3 Darstellung, abgeleitete Größen, Definitionen

Die primäre Meßgröße ist die Anzahl der Partikel pro Kanal des FSSP-300. Daraus läßt sich mit dem Luftvolumen direkt die Konzentration pro Kanal und Gesamtkonzentration berechnen. Zur Berechnung dieses Luftvolumens ist die Querschnittsfläche A_{FSSP} des Meßvolumens des FSSP-300 entscheidend, da sie gleichzeitig die Querschnittsfläche des während eines Fluges untersuchten Luftvolumens ist, welches schließlich mit der Länge des Flugweges bestimmt ist. Das gemessene Luft- bzw. Aerosolvolumen V ist letztendlich ein sehr langer Schlauch mit einem sehr kleinen Querschnitt A_{FSSP} . Die Länge dieses Schlauches kann einfach aus der Geschwindigkeit des Flugzeuges v_{TAS} (wahre Eigengeschwindigkeit gegenüber der Luft – true air speed) und der Flugzeit – von t_S bis t_E – ermittelt werden. Das durchmessene Luftvolumen ist dann (in der praktischen Anwendung als Summe)

$$V = A_{FSSP} \sum_{t_S}^{t_E} v_{TAS}(t) \cdot \Delta t .$$
(1.7)

 Δt ist in der Regel eine Sekunde, d. h. die Daten für die Fluggeschwindigkeit werden mit einer Auflösung von einer Sekunde zur Verfügung gestellt. Aus der Anzahl der gemessenen Partikel N_P erhält man dann die Aerosolkonzentration N:

$$N = N_P / V \,. \tag{1.8}$$

Die Daten des FSSP-300 wurden während eines Fluges in der Regel in 5-Sekunden Datensätzen abgespeichert, um möglichst flexibel bei der Auswahl der Zeitintervalle (t_S bis t_E) zu sein. Fünf Sekunden sind jedoch für die Auswertung zu kurz, da in dieser Zeit zu wenige Partikel gesammelt werden, um zu zählstatistisch signifikanten Aussagen zu kommen. Es ist daher über eine bestimmte Anzahl an Datensätzen zu mitteln, bei Hintergrundaerosol können Mittelungsintervalle von zwei Minuten nötig sein. Die Aerosolkonzentration ist dann

$$N = \frac{1}{n} \sum_{j=1}^{n} N_{P,j} / V_j , \qquad (1.9)$$

wenn über n Datensätze mit FSSP-300-Daten gemittelt wird. Das gemessene Aerosolvolumen wird für jeden Datensatz j einzeln berechnet. N_P kann alle Kanäle des FSSP-300 umfassen oder nur einen Teil, je nach wissenschaftlicher Fragestellung. Bei der Berechnung der Größenverteilung werden je Kanal der Größenverteilung alle Kanäle des FSSP-300 gemäß der Größenzuordnungstabelle (z. B. Tabelle 1.1) berücksichtigt.

Bei dem von der Mainzer Arbeitsgruppe verwendeten FSSP-300 ist die Querschnittsfläche des Meßvolumens $A_{FSSP} = 0,00063 \text{ cm}^2$. Bei einer Flug-

geschwindigkeit von $v_{TAS} = 200 \text{ ms}^{-1}$ und einer für die Messung von Hintergrundaerosol typischen Mittelungszeit von zwei Minuten beträgt das gemessene Aerosolvolumen etwa 1,5 Liter. Da in dieser Zeit 24 km zurückgelegt werden, ist immer zu berücksichtigen, daß es sich nicht nur um eine zeitliche, sondern auch um eine räumliche Mittelung handelt.

Für die Berechnungen weiterer Aerosolparameter sind dann Annahmen zur mikrophysikalischen Natur der Teilchen zu treffen. Zunächst bedeutet dies, den Brechungsindex der Teilchen festzulegen und damit die Anzahlgrößenverteilung – wie im vorigen Abschnitt beschrieben – zu berechnen. Die Größenverteilung, die man damit erhält, ist eine Stufenfunktion, wie in Abbildung 1.2 und auch in Abbildung 1.3 nochmals dargestellt. Anschaulicher ist es jedoch, den Wert eines Partikelgrößenbereiches nur einem repräsentativen Durchmesser zuzuordnen und die Punkte dann zu verbinden, wie in Abbildung 1.3 (dicke Linie). In dieser Graphik ist dieselbe Größenverteilung auf beiden Arten dargestellt. In den folgenden Kapiteln wird immer letztere Darstellungsmethode verwendet, da sie für den Vergleich mehrerer Größenverteilungen besser geeignet ist.



Abbildung 1.3: Verschiedene Darstellungsmöglichkeiten einer Größenverteilung.

Ausgehend von der Größenverteilung können nun weitere Parameter des Aerosols berechnet werden: die gesamte Partikeloberfläche und das gesamte Partikelvolumen. Zunächst wird für den mittleren Durchmesser eines Kanals der Größenverteilung die Oberfläche bzw. das Volumen der Partikel berechnet. Auch hier geht eine Annahme zur Mikrophysik der Teilchen ein: in der Regel wird angenommen, daß die Teilchen sphärisch sind. Wenn man von asphärischen Teilchen ausgehen muß, wird meist der volumenäquivalente Durchmesser angegeben, d. h. der Durchmesser einer Kugel mit gleichem Volumen wie das asphärische Teilchen. Mit den Partikeloberflächen bzw. -volumina wird dann die (Partikel-) Oberflächen- bzw. (Partikel-) Volumenkonzentration berechnet. Wie bei der Anzahlkonzentration kann dann die entsprechende Größenverteilung berechnet werden oder aber die Gesamtpartikeloberflächen- bzw. -volumenkonzentration.

Die Größenverteilung wird in dieser Arbeit immer als $dN/d \log d_P$ -Verteilung dargestellt. Eine andere Möglichkeit ist die Darstellung als $dN/d d_P$ -Größenverteilung. Der Unterschied liegt in der unterschiedlichen Betonung verschiedener Durchmesserbereiche: Bei gleicher Anzahlkonzentration des Aerosols in verschiedenen Größenbereichen – z. B. von 0,1 μ m bis 1 μ m und von 1 μ m bis 10 μ m – ist der Wert der Größenverteilung bei einer $dN/d \log d_P$ -Verteilung gleich, während bei der $dN/d d_P$ -Verteilung der Wert des zweiten Größenbereiches eine Größenordnung niedriger ist, da die Differenz der Durchmesser eine Größenordnung höher ist; die Differenz der Logarithmen ist hingegen gleich. Die Verwendung der $dN/d \log d_P$ Verteilungen ist zudem immer bei einer Beschreibung oder Modellierung mit Lognormalverteilungen nötig.

Die Gesamtpartikeloberfläche und das -volumen des hier beispielhaft betrachteten Saharastaubereignisses sind in dem Vertikalprofil in Abbildung 4.4 auf Seite 66 zu sehen. Die Größen- und Volumenverteilung ist in der Graphik 4.9 auf Seite 79 dargestellt.

Begriffsdefinitionen

Bei der Beschreibung der Meßergebnisse im Text und in den Graphiken in den nächsten Kapiteln werden zur Benennung der Aerosolparameter, der Höhe und der Zeit folgende Begriffe im angegebenen Sinne verwendet:

- Gesamtkonzentration, -oberfläche und -volumen bezieht sich jeweils auf die Messungen mit dem FSSP-300, also nur den Größenbereich von ca. 0,4 μ m bis ca. 20 μ m (diese Grenzen sind wie beschrieben vom angenommenen Brechungsindex abhängig). Es werden immer die in-situ-Konzentrationen – d. h. die Konzentrationen bei Umgebungsdruck und -temperatur – angegeben, es erfolgt keine Umrechnung auf Standard-Druck und -Temperatur.
- **Größenverteilung und Volumen(größen)verteilung** werden synonym für die etwas umständlichen Begriffe Partikelanzahlgrößenverteilung und Partikelvolumengrößenverteilung verwendet. Die Größenverteilungen sind eigentlich Dichtefunktionen im Sinne der Statistik.
- **Die Höhe** ist, soweit nicht anders angegeben, die Druckhöhe und nicht die geometrische Höhe. Die Druckhöhe bezogen auf den Standardwert

 $1013,15~{\rm hPa}$ – ist der in der Luftfahrt übliche Wert und auch aus meteorologischer Sicht sinnvoller als die geometrische Höhe.

Die Zeit ist in der Regel die koordinierte Weltzeit (UTC, *Coordinated Universal Time*), unabhängig von der Zeitzone, in der die Messungen stattfanden. Auch dies ist im Luftfahrtbereich üblich, weil es bei Flügen über mehrere Zeitzonen das sinnvollste allgemeine Referenzmaß ist.

1.4 Messung asphärischer Partikel: die T-Matrix-Methode

Die Streulichttheorie nach Mie kann nur angewandt werden, wenn die Teilchen sphärisch sind. In der Natur kommen jedoch auch asphärische Teilchen vor, z. B. in Cirren. Eine Methode, die Streuung an asphärischen Teilchen zu beschreiben, ist die T-Matrix-Methode, mit der die Lichtstreuung von oblaten oder prolaten Rotationsellipsoiden beschrieben werden kann. Im Bereich der Atmosphärenpyhsik wurde diese Methode zuerst für die Berechnung von Rückstreuung und Extinktion bei der Interpretation von Lidar- und Satellitenmessungen angewandt. Die Methode kann aber auch für die Berechnung der Streueigenschaften einzelner Teilchen verwendet werden [BORRMANN et al., 2000a] (siehe zu dieser Thematik auch MISHCHENKO et al. [2000]). Wegen des großen Rechneraufwandes (lange Computerrechenzeiten) ist dies bislang nur bis zu einem Aspektverhältnis von 0.5 (prolat) und auch nur bis zu einem Durchmesser von 10 μ m bis 15 μ m möglich. Die in dieser Arbeit verwendeten Streufunktionen wurden von Luo [persönliche Mitteilung] berechnet und damit im Rahmen der vorliegenden Arbeit die Größenzuordnungstabellen für das FSSP-300 erstellt.

In Abbildung 1.4 ist der Streuquerschnitt für mehrere Partikeldurchmesser als Funktion der Orientierung des Teilchens zum einfallenden Lichtstrahl zu sehen. Zunächst fällt auf, daß das Verhältnis von Minimum zu Maximum bei den einzelnen Partikeldurchmessern recht groß ist: ein Faktor drei bis fünf bei den gewählten Beispielen. Trägt man den mittleren Streuquerschnitt als Funktion des Partikeldurchmessers auf und zusätzlich die Minima und Maxima einzelner Partikeldurchmesser, wie in Abbildung 1.5, so fallen die großen Überschneidungsbereiche auf, die eine Abtrennung einzelner Kanäle voneinander fast unmöglich zu machen scheinen. Aus Abbildung 1.4 ist aber auch zu ersehen, daß nicht alle Streuquerschnitte eines Teilchens mit gleicher Wahrscheinlichkeit auftreten, wenn alle Teilchenorientierungen gleich wahrscheinlich sind. So wird z. B. ein 5- μ m-Partikel mit nur geringer Wahrscheinlichkeit bei einem Streuquerschnitt von 20 μ m² gemessen werden, sondern in fast 94% aller Fälle wird der Streuquerschnitt zwischen 5 μ m und 11 μ m² liegen. In Abbildung 1.5 ist daher zusätzlich die Standardabweichung des



Abbildung 1.4: Streuquerschnitt als Funktion der Orientierung des streuenden Teilchens (Winkel der Längsachse der prolaten Teilchen zur Richtung des einfallenden Lichtstrahls). Brechungsindex m = 1, 48, Aspektverhältnis 0,5.

Mittelwerts angegeben, und es ist zu erkennen, daß die Überschneidungen deutlich geringer sind.

Die in dieser Abbildung dargestellte T-Matrix-Streufunktion ist der wahrscheinlichste Streuquerschnitt für ein Teilchen der betreffenden Größe. Diese Einbeziehung der Wahrscheinlichkeit eines Streuquerschnittes in die Interpretation der Meßergebnisse von Streulichtgeräten ermöglicht es, diese auch bei der Beobachtung asphärischer Teilchen zu verwenden. Voraussetzung für die Anwendung der T-Matrix-Methode ist, daß die Partikel bezüglich ihrer Orientierung tatsächlich gleichverteilt sind. Eine weitere Voraussetzung ist, daß die Partikel keine hochkomplexen Kristallgebilde sind. Bei Eispartikeln, deren Größe im Meßbereich des FSSP-300 liegt, kann dies in der Regel angenommen werden (siehe z. B. STRÖM et al. [1997]). Das weitere Verfahren zur Berechnung der Größenverteilung ist dann das gleiche wie für die Mie-Theorie.



Abbildung 1.5: Mittlerer Streuquerschnitt von asphärischen (prolaten) Teilchen mit einem Aspektverhältnis von 0,5 und einem Brechungsindex von 1,48. Minimaler und maximaler Streuquerschnitt bezüglich der Orientierung der Teilchen sind als Fehlerbalken für einige Partikelgrößen eingetragen, die zusätzlichen Markierungen geben die Standardabweichung vom Mittelwert an. Farben der Fehlerbalken verweisen auf die entsprechenden Funktionen in Abbildung 1.4.

In Abbildung 1.6 kann man die Auswirkungen der T-Matrix-Methode im Vergleich zur Berechnung nach der Mie-Theorie (gleichbedeutend mit einem Aspektverhältnis von eins bei der T-Matrix-Methode) erkennen. Der Bereich der Mehrdeutigkeiten verschiebt sich geringfügig zu größeren Streuquerschnitten. Die Funktion wird im Bereich größerer Durchmesser mit zunehmender Asphärizität stärker geglättet. Für die Kanäle, die im mittleren Größenbereich liegen, und die scheinbar einzeln betrachtet werden könnten, gilt das gleiche, was schon im Zusammenhang mit der Mie-Theorie erläutert wurde, d. h. diese Kanäle können nicht einzeln betrachtet werden, sondern müssen mit benachbarten zusammengelegt werden. Die T-Matrix-Methode bedeutet im einzelnen:



Abbildung 1.6: Mit T-Matrix-Methode berechnete Streufunktionen für den mittleren Streuquerschnitt prolater Teilchen mit verschiedenen Aspektverhältnissen, Brechungsindex 1,31.

- Auch wenn man nicht davon ausgehen kann, daß die gemessenen Teilchen sphärisch sind, können die Meßergebnisse des FSSP-300 noch sinnvoll interpretiert werden. Extrem unregelmäßig geformte Kristalle, bei denen auch die T-Matrix-Methode versagen würde, sind vor allem bei Teilchengrößen zu beobachten, die zu groß sind, als daß sie von dem FSSP-300 detektiert würden. (Das prinzipiell gleich aufgebaute FSSP-100 kann jedoch auch wesentlich größere Teilchen messen.)
- Die Gruppierung der FSSP-Kanäle zu Kanälen der berechneten Größenverteilung ändert sich im Vergleich zur Mie-Theorie.
- Die Kanalgrenzen, also die Teilchendurchmesser, die einer Kanalgrenze zugeordnet werden, verschieben sich, und zwar im Bereich mittlerer Durchmesser zu größeren Durchmessern und im Bereich der größeren Kanäle hin zu kleineren Durchmessern. Daraus folgt, daß die mittleren Kanäle in einer Größenverteilung bei Verwendung der T-Matrix-Methode stärker gewichtet werden.

Es treten also vor allem Verschiebungen bei der Interpretation der Meßergebnisse auf, die in der Auswirkung vergleichbar sind mit denen, die ein anderer Brechungsindex zur Folge hätte.

Als wesentliches Fazit der T-Matrix-Methode bei Messungen mit dem FSSP-300 kann insgesamt festgestellt werden, daß das Instrument auch in Wolken von asphärischen Partikeln unter den beschriebenen Einschränkungen eingesetzt werden kann [BORRMANN et al., 2000a]. Darüber bestand vorher in der Literatur Uneinigkeit, und Messungen des FSSP-300 waren angezweifelt worden.

Auswertungen auf Basis der T-Matrix-Methode wurden im Zusammenhang mit den nichtsichtbaren Wolken (Kapitel 6) durchgeführt. Alle verwendeten Größenzuordnungstabellen für das FSSP-300 sind im Anhang A.3 abgedruckt.

Kapitel 2

Beschreibung des Meßinstrumentes

2.1 Konstruktion und Funktion

Das FSSP-300, welches zur Messung des Aerosols bei den verschiedenen Meßkampagnen zum Einsatz kam, wurde für Flugzeugmessungen entwickelt. Es wird außen am Flugzeug montiert. Die Integration auf den verschiedenen Flugzeugen wird im folgenden Kapitel beschrieben. Das FSSP-300 – Forward Scattering Spectrometer Probe – ist ein kommerzielles Gerät, das von der US-amerikanischen Firma Particle Measurement Systems (PMS) vertrieben wird und weltweit vielfach im Einsatz ist. Diese weite Verbreitung macht es (wie auch in dieser Arbeit) möglich, die Meßergebnisse von verschiedenen Arbeitsgruppen bzw. Meßkampagnen direkt zu vergleichen, ohne unterschiedliche Sammeleigenschaften verschiedener Geräte berücksichtigen zu müssen.

In der Abbildung 2.1 ist der Aufbau des FSSP-300 schematisch dargestellt, ein Bild des an der Geophysika flugfertig montierten Meßgerätes ist in Abbildung 2.2 zu sehen. Netzteil, Elektronik, Laser und die Detektoren für die Streulichtmessung befinden sich in einem zylindrischen Container, aus dem nach vorne (d. h. parallel zur Längsachse des Zylinders in Flugrichtung) zwei kleinere Rohre ("Hörner") herausragen. Diese beiden Hörner halten ein kurzes offenes Rohrstück, durch das die Luft nahezu ungestört strömen kann. Aufgrund dieser Anordnung kann das Aerosol im unbeeinflußten Zustand beobachtet werden. Dies ist notwendig bei der Messung flüchtiger Aerosolpartikel (z. B. polare Stratosphärenwolken), die in anderen Meßanordnungen mit Ansaugung des Aerosols unter Umständen verdampfen würden.

Die folgende Beschreibung des FSSP-300 folgt dem Weg des Laser-Lichts und bezieht sich auf Abbildung 2.1 und die dortigen Bezeichnungen.



Abbildung 2.1: Funktionszeichnung des FSSP-300 (aus BAUM-GARDNER und SKINNER [1989])

Lichtquelle ist ein Helium-Neon-Laser, der bei einer Wellenlänge von 632,8 nm im TEM₀₀-Mode betrieben wird. Die Intensität des Laser-Lichts wird permanent von der *Reference Photodiode* gemessen. Dieses Referenzsignal – die Laserreferenzspannung – dient als Wert für I_0 (siehe Gleichung 1.5 und Erläuterungen auf Seite 16). In dem einen Horn wird das Licht nach vorne geleitet und im Bereich des offenen Rohrstückes von einem Spiegel quer zur Längsachse des FSSP-300 – d. h. quer zur Flugrichtung und der Luftströmung – zum anderen Horn hin abgelenkt. In dem von dem offenen Rohrstück vor Sonnen- und Streulicht geschützten Bereich befindet sich das Meßvolumen, im Fluge also in der freien Luftströmung.

Der primäre Lichtstrahl fällt in dem anderen Horn auf eine Lichtfalle, einem schwarzen, runden Kunststoffplättchen (*Dump Spot* in Abbildung 2.1). Die Lichtfalle ist auf das Prisma aufgeklebt, mit dem auch das Streulicht gesammelt und zu der Detektoreinheit umgelenkt wird. Damit dient die Lichtfalle auch gleichzeitig dazu, den Streuwinkelbereich auf 3° zur Vorwärtsrichtung zu begrenzen. Befindet sich in dem Lichtstrahl ein Partikel, so wird das Licht von diesem gestreut. Das Licht, welches in einem Winkel von 3° bis 15° zur Vorwärtsrichtung abgelenkt wird, gelangt durch die Sammeloptik zur Detektoreinheit. Die Sammeloptik besteht aus einem Prisma, von dem das Licht wieder in die Längsachse des Gerätes abgelenkt wird, einem Linsensystem und einem optischen Filter.

Durch einen Strahlteiler gelangt das von einem Partikel gestreute Licht schließlich auf zwei Detektoren, von denen der eine maskiert, d. h. mit einer Schlitzblende abgedeckt ist (*Masked Aperture Photodiode*). Mit Hilfe dieser Maskierung wird ein kleines effektives Meßvolumen folgendermaßen



Abbildung 2.2: Das flugfertig montierte FSSP-300 an der Fläche der Geophysika.

definiert: Wenn ein Teilchen außerhalb des Meßvolumens den Lichtstrahl durchquert – also zu nah an dem Prisma oder zu weit weg, oder aber zu weit oberhalb oder unterhalb der optischen Achse – so wird das Teilchen entweder unscharf abgebildet oder aber ober- bzw. unterhalb der Schlitzblende. Dies bedeutet wiederum, daß von dem maskierten Detektor nur ein Teil des Streulichts detektiert wird, weil der andere Teil abgeblendet wird. Ein Partikel wird schließlich von der Elektronik nur als gültiges "Meßereignis" akzeptiert, wenn das entsprechend verstärkte Signal des maskierten Detektors mehr als doppelt so groß ist wie das verstärkte Signal des unmaskierten Detektors. Nur in diesem Falle wird das lichtstreuende Teilchen korrekt auf den Detektor abgebildet. Es ist damit gewährleistet, daß immer ein bestimmter Streuwinkelbereich eingehalten wird und auch keine Teilchen detektiert werden, die den Lichtstrahl nur seitlich schneiden. Vor allem aber ist ein Meßvolumen bekannter Größe definiert, was zur Konzentrationsbestimmung nötig ist, und das Meßvolumen ist so klein, daß Koinzidenzfehler minimiert werden. Zur Auswertung, also zur Bestimmung des Streuquerschnittes der Aerosolpartikel, wird nur das Signal des unmaskierten Detektors verwendet.

Die Intensität des gemessenen Signals wird mit einer Analogelektronik ausgewertet. Im wesentlichen wird die Signalspannung mit einer Reihe fest voreingestellter Spannungen verglichen und auf diese Weise einem von 31 Kanälen zugeordnet. Da die Streulichtintensität von der Intensität des eingestrahlten Lichts abhängig ist, sind die Vergleichsspannungen von der Laserreferenzspannung, die als ein Maß für die Beleuchtungsintensität dient, abhängig; somit werden Partikel mit gleich großem Streuquerschnitt immer in die gleichen Kanäle einsortiert.

2.2 Kalibrierung

Die Funktion des FSSP-300, d. h. die richtige Zuordnung von Teilchen mit bestimmtem Streuquerschnitt zu bestimmten Meßkanälen, wurde vor und nach jedem Flug überprüft. Hierzu wurden Aerosole mit Partikeln definierter Größe verwendet. Aufgrund der einfachen Handhabung – vor allem in Hinblick auf den Betrieb unter den Bedingungen einer Meßkampagne – hat



Abbildung 2.3: Testaufbau zur Kalibrierung des FSSP-300 während einer Meßkampagne in Pratica di Mare (Italien). Das FSSP-300 ist an der Geophysika montiert. Siehe auch Schemazeichnung in Abbildung 2.4.



Abbildung 2.4: Schematische Skizze des in Abbildung 2.3 gezeigten Laboraufbaus.

sich die Verwendung von Latex-Aerosol als günstig erwiesen. Dies ist auch allgemeiner Standard (siehe – auch für das Folgende – HINDS [1999], S. 434 ff). Kleinste Partikel aus Latex können mit geringen Abweichungen in Größe und Form hergestellt werden und sind in vielen Größen erhältlich. Die Teilchen werden meist als wässrige Suspension verkauft. Diese Suspension wird mit destilliertem Wasser verdünnt und versprüht. Hierzu wurden Zerstäuber aus dem medizinischen Bereich verwendet, die Bauform ist aber von untergeordneter Bedeutung. Es sollten lediglich zu große Tröpfchen, die unter Umständen mehr als ein Latexteilchen enthalten, wieder an der Gefäßwand abgeschieden werden. Um solche Tröpfchen zu vermeiden, ist es notwendig, die Suspension ausreichend zu verdünnen.

In Abbildung 2.3 ist der Laboraufbau zur Kalibrierung im Flugzeughangar zu sehen, die Schemaskizze in Abbildung 2.4. Der aus dem Zerstäuber kommende Nebel wird durch eine Trocknungsstrecke geleitet. Diese besteht je nach Bauart aus ein oder zwei Behältern mit Silikagel. Darin trocknen die Tropfen ab, und von Tröpfchen, die ein Latex-Partikel enthalten, bleibt nur ebendies übrig. Die abgetrockneten Partikel werden dann für die Kalibrierung zum Meßgerät weitergeleitet. Von Tröpfchen, die kein Partikel enthalten, bleiben nach dem Abtrocknen nur Restkerne übrig, die deutlich kleiner sind. Die größten dieser Restkerne werden von dem FSSP-300 aber noch erfaßt. Ursache dieser Restkerne ist die Tatsache, daß die Suspensionsflüssigkeit kein reines destilliertes Wasser ist, sondern noch Stabilisatoren enthält, die ein Verklumpen der in Lösung befindlichen Latexkügelchen verhindern.

Auswertung der Kalibrierung

Wenn man mit solch einem quasi monodispersen Aerosol mit bekanntem Durchmesser arbeitet, so kann man die Mehrdeutigkeiten, die sich aus der Mie-Theorie ergeben, umgehen und auch Kanäle des Meßgerätes kalibrieren, die in mehrdeutigen Bereichen der Streufunktion liegen, denn aufgrund der Kenntnis der Teilchengröße hat man eine zusätzliche Information zur Interpretation der Meßergebnisse. Ausgangsposition ist eine bekannte Größenverteilung – das monodisperse Latex-Aerosol – und dann wird der Kanal des Meßgerätes ermittelt, in dem die Partikel gezählt werden. Diese Zuordnung ist eindeutig, da jeder Teilchengröße genau ein Streuquerschnitt zugeordnet ist. Bei der Kalibrierung ist die Vorgehensweise also gerade umgekehrt wie bei einer Messung unbekannten Aerosols, die in Abbildung 1.2 im vorigen Kapitel dargestellt ist: Ausgangspunkt ist bei einer gewöhnlichen Messung Teilbild A, und man gelangt über die Streufunktion (Teilbild B)



Abbildung 2.5: FSSP-300-Kanalverteilung von Latex-Aerosolen zur Kalibrierung. Siehe auch Streufunktion in Abbildung 2.6.

zur Größenverteilung in Teilbild C. Bei der Kalibrierung startet man mit einer bekannten monodispersen Größenverteilung in Teilbild C und gelangt über die Streufunktion zu einer Kanalverteilung in Teilbild A.

In der Abbildung 2.5 sind Beispiele von FSSP-300-Kanalverteilungen zu sehen, also die primären Meßergebnisse, die mit Latex-Testaerosol gemessenen wurden. Die relativ hohen Zählraten in den kleineren Kanälen – d. h. von Partikeln, die kleiner sind, als die Latex-Partikel – werden durch die Restkerne ("Residualaerosol") verursacht. Die Anzahlkonzentration der Latex-Partikel wird bei der verwendeten Aerosolgenerator-Bauweise mit zunehmender Latex-Partikelgröße geringer, so daß die entsprechenden Konzentrationen nur noch gering über der Konzentration des Residualaerosols liegen. Die Latex-Partikel sind dann nur noch als Flanke der Kanalverteilung zu identifizieren (z. B. die 2,0- oder 2,503-µm-Partikel, Abbildung 2.5).

Die Mie-Streufunktion von Latex-Partikeln (Brechungsindex m=1,58) wurde für diese Auswertung nach der Mie-Theorie berechnet und ist in Abbildung 2.6 dargestellt. Dort sind die Streuquerschnitte der verwendeten



Abbildung 2.6: Streufunktion von Latex (m = 1, 58) und die nach der Mie-Theorie berechneten Streuquerschnitte der Testaerosole. Die waagrechten Linien sind die Kanalgrenzen des FSSP-300. Siehe auch Abbildung 2.5.

Latex-Partikel durch Kreuze markiert und die entsprechenden Kanalgrenzen des FSSP-300 eingetragen. Die Messungen stimmen gut mit der Mie-Theorie überein:

- Partikel mit 0,993 μ m und 1,41 μ m Durchmesser haben trotz des deutlichen Größenunterschiedes fast den gleichen Streuquerschnitt nach der Mie-Theorie. Sie werden auch in denselben Größenkanal (Kanal 12) des Meßgerätes gezählt. Die hohen Werte in Kanal 9 bei dem 1,41- μ m-Testaerosol können mit Abweichungen bei der Partikelgröße erklärt werden. Die Latex-Partikel werden nach Herstellerangaben mit einer Genauigkeit von ein bis zwei Prozent hergestellt. Eine Abweichung dieser Größenordnung reicht, um in der Streufunktion (Abbildung 2.6) auf das platteauartige Minimum der Streufunktion von etwa 0,4 μ m² zu gelangen. Dieser Wert liegt schon im Bereich des Kanal 9.
- Partikel mit 2,0 μm Durchmesser haben nach der Mie-Theorie einen größeren Streuquerschnitt als die mit 2,503 μm geometrisch deutlich größeren Teilchen. Folglich müssen die 2,0 μm Teilchen in einem größeren Kanal des FSSP-300 gemessen werden als die 2,503 μm Teilchen. Dies wird auch gemessen: Das Maximum der gemessenen Kanalverteilung liegt bei dem 2,0-μm-Testaerosol in Kanal 17, bei dem 2,503-μm-Aerosol in Kanal 16.

Bei den Meßkampagnen wurde in der Regel vor und nach jedem Flug eine Kalibrierung mit vier verschiedenen Latex-Testaerosolen durchgeführt, um etwaige Änderungen der optischen bzw. elektronischen Geräteeinstellungen, die während des Fluges auftreten könnten, zu identifizieren.

2.3 Methoden der Auswertung, Programme

Die zur Auswertung der Daten benötigten Programme wurden im Rahmen dieser Arbeit konzipiert, codiert und ausführlich getestet. Die Umsetzung erfolgte in Object-Pascal bzw. IDL. Im Folgenden werden die Vorgehensweise und die Aufgaben der einzelnen Programme beschrieben.

Fehleranalyse

Die Rohdaten – also Partikelanzahl pro FSSP-300-Kanal pro Zeiteinheit – wurden zunächst nach eventuell fehlerhaften Datensätzen durchsucht. Solche traten auf, wenn bei der Übertragung einzelne bits des *high-byte* fälschlich gesetzt waren, was an dem Offset vom Vielfachen von 256 leicht zu erkennen war. Zu Fehlern kam es auch, wenn der Detektor trotz zusätzlicher Heizung aufgrund extrem niedriger Umgebungstemperaturen während des Fluges zu kalt wurde. Gelegentlich wurden dann "alternierende Größenverteilungen" detektiert in dem Sinne, daß die mittleren Kanäle des FSSP-300
abwechselnd viele und keine (oder so gut wie keine) Partikel enthielten. Dies ist eindeutig ein Instrumentenfehler, da solch eine Messung weder mit Laboraerosol noch mit natürlichem Aerosol erklärt werden kann. Auch dieser Fehler ist leicht zu erkennen, und es wurden auch noch Zeiten vor und nach solchen Fehlmessungen, die immer einen größeren Zeitraum umfaßten, nicht für die Auswertung berücksichtigt. Für beide Fehler wurde ein Algorithmus entwickelt und im Programm implementiert, der die entsprechenden Datensätze markierte. Diese automatische Fehlerkennung wurde durch eine manuelle Auswertung der Rohdaten überprüft.

Ergebnisanalyse

Folgende Aufgaben waren von den Programmen zu erfüllen:

- 1. Berechnung aller Aerosolparameter,
- 2. Einbindung weiterer Daten von anderen an Bord des Flugzeugs befindlichen Meßinstrumenten,
- 3. Mittelwertbildung.

Um eine Synchronisierung der verschiedenen Datensätze zu ermöglichen, wurden alle Daten mit der koordinierten Weltzeit (UTC) als Zeitmaß aufgezeichnet. Die weiterhin eingebundenen Daten waren:

- Die zur Berechnung der Aerosolkonzentration notwendige wahre Eigengeschwindigkeit (TAS) des Flugzeugs.
- Druck und Temperatur. Damit wurde immer auch noch die potentielle Temperatur berechnet. Weiter wurden diese Werte auch zur Berechnung des Aerosol-Mischungsverhältnisses (Partikelanzahl pro Gramm Luft) benötigt.
- Weitere Flugdaten: Druckhöhe, geometrische Höhe (GPS), geographische Position (GPS).
- Ozon, das als Spurenstoff (*"tracer"*) und wegen der Bedeutung der Ozonchemie auf allen Flugzeugen gemessen wurden.
- Je nach Instrumentierung des Flugzeugs die Daten weiterer Meßinstrumente, z. B. Gesamtwassergehalt, N₂O, weitere Partikeldaten (Kondensationskernzähler) und weitere Spurengase; siehe auch die Angaben in den einzelnen Kapiteln des Ergebnisteils.

Die Einbindung der weiteren Daten erfolgte auf Basis der üblichen Dateiformate, zur Dateiformatspezifikation zum Datenaustausch siehe GAINES und HIPSKIND [1992]. Das Programm berechnete zunächst für einzelne Datensätze des FSSP-300 die Partikelanzahlkonzentrationen, dann die Größenverteilung, die Oberflächenverteilung und die Volumenverteilung. Mit diesen wurden dann die Gesamtpartikeloberfläche und das Gesamtpartikelvolumen berechnet. Die theoretischen Grundlagen sind im 1. Kapitel erläutert. Bei entsprechender Fragestellung konnten mit dem Programm die Aerosoldaten nicht nur auf Basis der Partikelkonzentration sondern auch auf Basis der Mischungsverhältnisse berechnet werden. Die Größenzuordnungstabellen wurden neu erstellt oder – für die Auswertung des stratosphärischen Hintergrundaerosols im 5. Kapitel – von früheren Auswertungen übernommen [BORRMANN, persönliche Mitteilung].

Für die Berechnung der Mittelwerte aller implementierten Daten konnten beliebige Zeitintervalle vorgegeben werden. Zunächst wurden Zeitreihen mit konstanten, zusammenhängenden Zeitintervallen erstellt. Für genauere Analysen konnten aber auch beliebige, unterschiedlich lange und gegebenenfalls diskontinuierliche Zeitabschnitte angegeben werden. Dadurch war eine Synchronisierung der Zeitreihen mit anderen, diskontinuierlich messenden Instrumenten möglich oder mit bestimmten meteorologischen Phänomenen wie zum Beispiel dem Einflug in Wolken. Schließlich konnten somit die Bereiche für die Berechnung der Größenverteilungen vorgegeben werden.

Die Ergebnisdateien enthielten somit folgende Daten als Mittelwerte der vorgegebenen Zeitintervalle:

- Aerosoldaten als Konzentration oder Mischungsverhältnis:
 - Gesamtpartikelanzahl, -oberfläche und -volumen,
 - Größen- oder Oberflächen- oder Volumenverteilung,
- Flugdaten wie oben angeführt,
- Daten der anderen Instrumente.

Für die Auswertung des stratosphärischen Hintergrundaerosols im 5. Kapitel mußte auch noch eine Filterung der Daten vorgenommen werden, wozu spezielle Filterungsprogramme geschrieben wurden. Die Vorgehensweise wird in Abschnitt 5.3 genauer erläutert.

Die Ausgabe der Daten erfolgte in standardisierten Dateiformaten, d. h. NASA-Datenbankformat oder äquivalente Formate [GAINES und HIPSKIND, 1992]. Diese Dateien konnten dann zur Darstellung von Zeitreihen, Profilen, Größenverteilungen oder Korrelationsdiagrammen von üblichen Graphik-Programmpaketen eingelesen werden. Weitere spezielle Berechnungen und Analysen wurden mit Tabellenkalkulationsprogrammen durchgeführt.

2.4 Fehlerbetrachtung

Es gibt mehrere voneinander unabhängige Fehlerquellen, die sich auch an verschiedenen Stellen der Ergebnisse bemerkbar machen.

Fehler bei der Bestimmung der Teilchengröße:

Diese Fehlerquellen haben keinen direkten Einfluß auf die Genauigkeit der Bestimmung der Partikelanzahlkonzentration.

- Mehrdeutigkeiten der Streuquerschnitte: Der Durchmesser kann nur – wie beschrieben – als Durchmesserbereich angegeben werden. Der daraus resultierende Fehler ist bei jedem Kanal der Größenverteilung und auch für jeden angenommenen Brechungsindex verschieden. Dieser systematische Fehler kann zu einer Unsicherheit von mehr als 50% führen. Dies ist jedoch ein Extremwert, der in der Regel – wenn überhaupt – nur bei einem Kanal der Größenverteilung im Bereich des ersten Maximums und Minimums der Mie-Streufunktion auftritt (siehe Abbildung 1.2). Für die kleinsten Kanäle, bei denen nicht mehrere zusammengelegt werden müssen, kann die Teilchengröße auf bis zu 0,05 μ m genau bestimmt werden, was einem Fehler von ca. $\pm 5\%$ um den mittleren Durchmesser entspricht.
- Brechungsindex: Da natürliches Aerosol nicht vollkommen homogen ist, kann es zu kleineren Abweichungen des Brechungsindex kommen. Die Abweichungen von einem mittleren Brechungsindex sind innerhalb eines Aerosoltyps – z. B. Saharastaub – aber gering, verglichen mit Abweichungen des Brechungsindex verschiedener Aerosoltypen – z. B. Saharastaub zu Eiswolken. Der Fehler ist auch gering, verglichen mit den anderen Fehlern. Wenn, wie auch in dieser Arbeit, nur jeweils einheitliche Aerosoltypen untersucht werden, kann der Fehler vernachlässigt werden.
- Form der Teilchen: Dieser Fehler tritt bei der Messung von festen Aerosolpartikeln auf. In der Atmosphäre sind dies Eiswolken, einige Typen von polaren Stratosphärenwolken sowie mineralisches Aerosol, Ruß u. a. In der Literatur ist wegen der Anwendung der Mie-Theorie die Verwendung von FSSP-300-Meßsonden zur Messung von Eiswolken mit sehr großen Teilchen nicht unumstritten, und man darf dieses Problem auch nicht vernachlässigen [GAYET et al., 1996].

Die Tatsache, daß der Streuquerschnitt von extrem asphärischen Partikeln stark von der Orientierung der Teilchen zur optischen Achse der Meßapparatur abhängt, wird oft als Argument gegen die Verwendung von FSSP-300-Messungen in Cirren angeführt. Die Unterschiede betragen manchmal nur wenige, in Extremfällen aber auch über hundert Prozent. Es kann also sein, daß ein großes Teilchen von einem "falsch" orientierten kleinen Teilchen vorgetäuscht wird und umgekehrt.

In Hinblick auf die Messungen für das 6. Kapitel kann dieser Einwand durch folgende Gegenargumente entkräftet werden: Eine extreme Abweichung von der Kugelform tritt bei den Teilchen in dem Größenbereich, der mit dem für diese Arbeit verwendeten FSSP-300 erfaßt wird, noch nicht auf. Es betrifft vor allem wesentlich größere Teilchen, die zum Teil noch von Geräten des Typs FSSP-100 erfaßt werden (siehe im Zusammenhang mit Cirren z. B. STRÖM et al. [1997]; MCFAR-QUHAR und HEYMSFIELD [1996]; HEYMSFIELD [1986]). Bei nur geringer Asphärizität sind die Unterschiede nicht ganz so gravierend, wenn auch immer noch deutlich, und es kann insbesondere die T-Matrix-Methode verwendet werden. Des weiteren sind die stärksten Abweichungen von den Streueigenschaften einer Kugel bei größeren Streuwinkeln zu beobachten, und nicht so sehr im Bereich der kleiner Streuwinkel in Vorwärtsrichtung, der beim FSSP-300 verwendet wird. Schließlich ist zu bedenken, daß – selbst wenn keine Aussage über die Größe der Teilchen getroffen werden könnte – die Kanalzuteilung bezüglich der Streuquerschnitte auf jeden Fall richtig ist. Signifikante Änderungen hier bedeuten auch eine signifikante Änderung von Größe oder Form oder Brechungsindex der Aerosolpartikel. Das FSSP-300 kann zwischen diesen Möglichkeiten nicht unterscheiden. Es ist aber möglich, die Messungen anderer Geräte heranzuziehen und so Aussagen über die Form der Teilchen zu bekommen. Dies wurde bei den Auswertungen im 6. Kapitel gemacht (siehe Erläuterungen dort, Abschnitt 6.9).

Fehler bei der Bestimmung der Partikelanzahlkonzentration:

Diese Fehlerquellen haben keinen direkten Einfluß auf die Genauigkeit der Teilchengrößenbestimmung.

- Fluggeschwindigkeit: Die wahre Eigengeschwindigkeit (true air speed, TAS) – benötigt zur Berechnung des Luftvolumens – wird aus der angezeigten Fluggeschwindigkeit (indicated air speed, IAS), und diese wiederum aus der Differenz von Staudruck und statischem Druck abgeleitet. Bei jedem Schritt gibt es die Möglichkeit systematischer Fehler, der Gesamtfehler ist jedoch nur gering und liegt unter 1%, bei einigen Flugdatensystemen sogar unter 0,5%.
- Meßvolumen: Die Größe des Meßvolumens geht direkt in die Konzentrationsberechnung ein. Da das Meßvolumen das Produkt aus der in der Meßzeit durchflogenen Strecke und der Querschnittsfläche des sensitiven Volumens des Meßgerätes ist (Gleichung 1.7, S. 21), gibt es

entsprechend auch zwei Fehlerquellen. Der systematische Fehler bei der Bestimmung der Querschnittsfläche ist bei allen Messungen gleich und hat damit keinen Einfluß auf Vergleiche von z. B. verschiedenen Größenverteilungen oder auf die Betrachtung von Zeitreihen, Höhenprofilen oder ähnlichem. Bei der Geschwindigkeitsmessung ist der Fehler, wie oben gesagt, kleiner als ein Prozent.

Um bei längeren Mittelungszeiten einen Fehler durch eventuell unterschiedliche Geschwindigkeiten und damit unterschiedliche Volumina zu vermeiden, wurden erst die Konzentrationen für die einzelnen FSSP-300-Datensätze – die ein bis fünf Sekunden umfassen – auf Basis der individuellen Meßvolumina berechnet und dann die Mittelwerte auf Basis dieser Konzentrationswerte.

Zählstatistik: Der zählstatistische Fehler ist umgekehrt proportional zur Wurzel der Teilchenanzahl. Dies hat zur Folge, daß die Mittelungsintervalle so zu wählen sind, daß ausreichend große Zählraten zustandekommen. Während z. B. in konvektiven Wolken eine Sammelzeit von wenigen Sekunden ausreichend ist, um in allen Kanälen einen zählstatistischen Fehler von unter 10% zu haben, muß in Bereichen mit reinem Hintergrundaerosol über Zeitintervalle von ein bis zwei Minuten gemittelt werden, selten länger.

Folgende spezielle Punkte sind im Zusammenhang mit der Zählstatistik weiterhin zu berücksichtigen:

- Bei der Berechnung von Größenverteilungen gilt das Gesagte für jeden einzelnen Kanal der Größenverteilung. Bei den größeren Partikeldurchmessern können selbst bei Sammelzeiten von mehreren Minuten mitunter nur einzelne Partikel gemessen werden. Gegebenenfalls kann auch die Größenauflösung noch weiter vergröbert, d. h. es können noch mehr Kanäle des FSSP-300 zusammengefaßt werden, was aber wiederum den Fehler bei der Durchmesserbestimmung erhöht. Auch hier ist abzuwägen zwischen dem zählstatistischen Fehler einerseits und dem Fehler der Partikelgrößenbestimmung andererseits. Je nach Fragestellung kann eine gröbere Größenauflösung bei kleinerem zählstatistischem Fehler sinnvoller sein, oder umgekehrt eine genauere Größenauflösung bei größerem zählstatistischem Fehler.
- Da ein Flugzeug bei einer Geschwindigkeit von z. B. 200 m s⁻¹ in zwei Minuten bereits 24 km zurücklegt, muß hierbei auch noch darauf geachtet werden, ob immer in der gleichen Luftmasse gemessen wird, was z. B. im Bereich des polaren Vortex von Bedeutung ist (siehe hierzu die Erläuterungen auf Seite 93). Zu berücksichtigen ist dieser Effekt auch bei Vertikalprofilen, wo man oft einen größeren zählstatistischen Fehler in Kauf nimmt, um zu

einer ausreichenden Höhenauflösung zu kommen. Es ist also abzuwägen zwischen der Genauigkeit der Ortsauflösung und dem zählstatistischen Fehler.

• Ein besonderer Effekt entsteht, wenn einzelne Partikel in einem Kanal nur lokal auftreten, aber über größere bzw. längere Bereiche gemittelt wird; mit anderen Worten, wenn ein Bereich mit Partikeln und ein Bereich ohne Partikel gemittelt werden. Dies läßt sich in Bezug auf einzelne Meßkanäle des FSSP-300 nicht immer vermeiden, wenn andere Vorgaben bei der Auswahl des Meßintervalls wichtiger sind. In diesem Fall würde die Konzentration abhängig von der Auswahl des Meßintervalls. Je höher der Anteil des Bereiches ohne Partikel am Gesamtmeßintervall wäre, desto niedriger würde die berechnete Konzentration. Es ist aber auch nicht immer sinnvoll, diese wenigen Teilchen eines Kanals einfach zum benachbarten Kanal zuzuaddieren, da hiermit die Kanalbreite unnötig vergrößert würde und das Problem ohnehin meist in dem Bereich der Größenverteilung auftritt, in dem die Kanäle der Größenverteilung wegen der Mehrdeutigkeiten der Streufunktion recht breit sind. Die Vorgehensweise muß im Einzelfall entschieden werden.

Bei den in Kapitel 4 und 6 besprochenen Größenverteilungen trat dieses Problem nicht auf, da die Bereiche, über die zu mitteln waren, klar definiert waren oder keine lokale Häufung einzelner Partikel in einem Kanal auftrat. Nur bei den Messungen von Hintergrundaerosol im 5. Kapitel wiesen einzelne Größenverteilungen Merkmale auf, die auch mit diesem Effekt erklärt werden könnten. Die betreffenden Bereiche der Größenverteilung waren in diesen Fällen aber ohne weiteres Interesse, und der Fehler konnte vernachlässigt werden.

Der Fehler bei der Durchmesserbestimmung potenziert sich bei der Berechnung der Partikeloberfläche und des Partikelvolumens. Da gerade die großen Teilchen mit großem Anteil an Gesamtpartikeloberfläche bzw. -volumen oft nur in geringer Konzentration, also mit großem zählstatistischem Fehler auftreten, kommt diesem Fehler hier zusätzliche Bedeutung zu. Da die Fehler von Durchmesser und Konzentration in einzelnen Kanälen der Größenverteilung hoch sind, kann bei der Berechnung des Fehlers von Oberfläche und Volumen nicht mehr mit der klassischen Fehlerfortpflanzung gerechnet werden, weil diese voraussetzt, daß die Fehler klein sind.

Die Angaben zum Partikelvolumen dürfen daher nur als Orientierungspunkt gedeutet werden. Es wäre aber auch falsch, solche Berechnungen als wertlos zu betrachten, denn das Partikelvolumen von Wolkenteilchen ist eindeutig und signifikant von Partikelvolumina des Hintergrundaerosols zu unterscheiden und verschieden, selbst wenn sich ein theoretischer Fehler von über 100% berechnen ließe.

Dieser Fehler hat für die vorliegende Arbeit keine praktische Bedeutung. Die Volumendaten und Volumengrößenverteilungen werden nur zu einer qualitativen Analyse herangezogen. Bei der Berechnung von heterogenen Chemieraten ist dies aber wichtig und muß gegebenenfalls analysiert werden [FAHEY et al., 1993].

Bei der Analyse der Größenverteilungen ist der einzige ins Gewicht fallende statistische Fehler der zählstatistische Fehler, der einfach zu bestimmen ist. Der Fehler, der durch Abweichungen vom angenommenen Brechungsindex entsteht, kann nur pauschal abgeschätzt und für spezielle Messungen prinzipiell nicht abgeleitet werden. Der statistische Fehler bei der Bestimmung der Fluggeschwindigkeit kann als gering angenommen werden, insbesondere im Vergleich mit den übrigen Fehlern. Die anderen Fehler sind systematisch, d. h. bei jeder Messung für einen angenommenen Brechungsindex gleich. Bei den in den folgenden Kapiteln dargestellten Größenverteilungen sind daher nur die zählstatistischen Fehler angegeben.

2.5 Diskussion und Ausblick

Das kleine Meßvolumen des FSSP-300 ist notwendig, um sicherzustellen, daß unter normalen Bedingungen nicht zwei Partikel gleichzeitig im Meßvolumen sind und gemessen werden, wodurch ein größeres Teilchen vorgetäuscht würde. Bei den im 6. Kapitel vorgestellten Messungen nichtsichtbarer Wolken, die eine sehr niedrige Partikelkonzentration aufweisen, hat dies zu sehr niedrigen Zählraten geführt mit der Folge hoher zählstatistischer Fehler. Bei solch speziellen Fragestellungen wäre es sinnvoll, mit größeren Meßvolumina zu arbeiten, auch wenn dadurch Messungen in dichten Wolken nicht mehr möglich wären.

Die Tatsache, daß das FSSP-300 nur 31 Kanäle hat, schränkt die Genauigkeit der Größenbestimmung ein, wie in diesem und dem vorausgehenden Kapitel dargestellt. Würden hier mehr Kanäle zur Verfügung stehen, könnte die Genauigkeit zumindest in einigen Größenbereichen erhöht werden. An den prinzipiellen Problemen der Mehrdeutigkeit der Streufunktion änderte dies nichts, aber auch dieser Bereich könnte enger gefaßt werden. Das FSSP-300 wurde auch mittlerweile so modifiziert, daß der Meßbereich in 40 Kanäle aufgeteilt wird, deren Grenzen zudem per Software beliebig modifiziert werden können. Damit konnten auch schon erste Flugzeugmessungen durchgeführt werden [VÖSSING, persönliche Mitteilung, 2002].

Wesentlich mehr Möglichkeiten böten Geräte, die nicht nur einen Winkelbereich des gestreuten Lichtes detektieren, sondern mehrere Winkelbereiche getrennt messen. Mit der dadurch gewonnenen zusätzlichen Information könnten weitere Aussagen über optische Eigenschaften der Partikel gewonnen werden. Durch Vergleich der Streuintensität mehrerer Winkelbereiche könnten zum Beispiel Aussagen zum Brechungsindex der Partikel abgeleitet werden. Geräte dieser Art wurden und werden auch bereits entwickelt und als Prototypen eingesetzt. Eine weitere Möglichkeit könnte in der Verwendung mehrerer diskreter Wellenlängen liegen. Wenn diese so gewählt werden, daß die Minima der Streufunktion der einen Wellenlänge im Bereich der Streufunktions-Maxima der anderen Wellenlänge liegen, könnte die Genauigkeit der Durchmesserbestimmung erhöht werden.

Bei einer Einzelpartikelanalyse – wie beim FSSP-300 – muß jedoch immer sichergestellt sein, daß in verschiedenen Winkelbereichen das Streulicht ein und desselben Partikels erfaßt wird. Auch wenn dies im Labor möglich ist, besteht für Feldmessungen ein Problem darin, die Geräte so zu konstruieren, daß sie auch auf Flugzeugen eingesetzt werden können. So muß z. B. die optische Justage unempfindlich gegen Vibrationen und Erschütterungen sein, die auf einem Flugzeug unvermeidlich sind.

Schließlich muß auf Flugzeugen mehr oder weniger im freien Luftstrom gemessen werden. Eine Probenahme, bei der das Aerosol angesaugt und über Leitungen ins Flugzeuginnere geleitet wird, scheidet aus, da dies immer auch mit einem Abbremsen, Verdichten und damit einhergehender Erwärmung der Luft verbunden ist. Diese Erwärmung kann aber eine Phasenänderung oder ein Abdampfen der Partikel verursachen und somit zu signifikanten Änderungen des Aerosols führen, was die Messungen schwer interpretierbar machen würde.

Kapitel 3

Experimenteller Aufbau auf den Flugzeugen

3.1 Montage und Datenerfassung

Bei den Meßkampagnen kam das FSSP-300 auf verschiedenen Flugzeugen zum Einsatz, wobei das gesamte Meßsystem immer den unterschiedlichen Bedingungen angepaßt werden mußte. Die eingesetzten Flugzeuge waren neben dem russischen Höhenforschungsflugzeug M-55 Geophysika kleinere umgebaute Verkehrsflugzeuge vom Typ Learjet, Cessna Citation und Falcon. Das ganze Meßsystem umfaßte das eigentliche Meßgerät – das FSSP-300 –, das außen am Flugzeug angebracht war, ein Datenerfassungssystem im Inneren des Flugzeuges und schließlich das Kabel für Datenübertragung und Stromversorgung, das aufwendig zu verlegen war.

Die Montage des FSSP-300 erfolgte bei jedem Flugzeug auf etwas unterschiedliche Weise. Eine Position unterhalb der Tragfläche, in möglichst großem Abstand von Rumpf und Fläche, ist zu bevorzugen, aber andere Positionen sind auch möglich. Die Hörner des FSSP-300 sollten so weit wie technisch möglich nach vorne über die Nase des Flügelprofils hinausragen, damit sich das Meßvolumen, soweit möglich, in ungestörter Luftströmung befindet. Auf der Geophysika, der Falkon und dem Learjet war das FSSP-300 in entsprechender Weise montiert, nur bei der Cessna Citation wurde das Meßgerät auf einer Halterung am Rumpf des Flugzeugs befestigt.

Der Computer zur Datenerfassung wurde in einem am Institut gebauten Metallcontainer installiert, der im folgenden kurz DAS-Box genannt wird (für *Data Acquisition System*). Die DAS-Box wurde vor allem für den Einsatz auf der Geophysika konzipiert, konnte aber auch in anderen Flugzeugen verwendet werden. Auf der Geophysika war die DAS-Box hinter dem Fahrwerk im linken Leitwerksträger angebracht, wie in Abbildung 3.1 zu sehen. Bei anderen Flugzeugen – in denen wissenschaftliches Personal mitfliegen konnte – wurde sie im Rumpf montiert, so daß sie auch während des Fluges zugänglich war. Im einzelnen befanden sich in der DAS-Box

- der eigentliche Computer, in *"passive backplane"-Bauweise mit einer "flash-disc"* als Speichermedium,
- die Datenerfassungskarte für das FSSP-300 (zur Aufzeichnung der Partikeldaten und der Laserreferenzspannung),
- ein DC/DC-Konverter zur Stromversorgung für den Computer,
- elektronische Filter um die elektromagnetischer Kompatibilität (EMC) der einzelnen Komponenten des Meßsystems und des Systems als ganzem zu gewährleisten,
- eine elektronische Baugruppe mit analog-digital-Konverter (ADC) zur Überwachung der Betriebsspannungen für den Computer sowie zur Erfassung der Meßsignale von Temperaturmeßfühlern in der DAS-Box und im FSSP-300-Container,
- die Regelung für die Heizung der DAS-Box,



Abbildung 3.1: Der Datenerfassungscomputer (DAS-Box) auf der Geophysika, Position im Leitwerksträger hinter dem Fahrwerkschacht (vom Rad aus nach oben photographiert).

• eine sogenannte Wächter-Schaltung, mit welcher der Betriebszustand von Rechner und Datenerfassungsprogramm überwacht wurde, und die auch ein Kontrollsignal in das Cockpit leitete.

Vom FSSP-300 wurden folgende Daten an die Datenerfassungskarte übertragen:

- **Die Laserreferenzspannung;** diese ist ein Maß für die Intensität des Laserlichts und ein Indikator für das problemlose Funktionieren des Lasers.
- **Die Partikeldaten** als Kanalnummer für jedes einzelne gemessene Teilchen. Bei 31 Kanälen entspricht dies einer Information von fünf bit, die entsprechend über fünf verdrillte Doppelleitungen übertragen wurden.
- Das "strobe"-Signal, mit welchem der Datenerfassungskarte mitgeteilt wurde, wann ein Teilchen gemessen wurde und wann folglich die Kanaldaten – also die fünf bit, mit denen die Kanalnummer codiert ist – von der Datenerfassungskarte eingelesen werden mußten. Die Datenerfassungskarte erhöhte bei jedem *strobe*-Signal den Zähler des entsprechenden Kanals um eins und zwar so lange, bis die Daten von dem Computer ausgelesen und dann die Zähler wieder auf Null gesetzt wurden. Die Datenerfassungskarte arbeitete unabhängig von einem Programm, solange der Rechner lief. Auf der Karte waren zwei Zähleinheiten vorhanden, die wechselweise arbeiteten, d. h. während die eine die Daten aufzeichnete, konnte die andere vom Rechner ausgelesen werden, und es gab folglich keine durch den Lese-Schreib-Zyklus bedingten Totzeiten.

Die Zeitintervalle, in denen die Daten eingelesen wurden, konnten direkt über ein Programm festgelegt werden. Die Zeitintervalle, in denen die Daten aufgezeichnet wurden, lagen im Bereich von einer bis fünf Sekunden. Hierbei war zu beachten, daß wegen der zählstatistischen Fehler in der Regel wesentlich längere Zeitintervalle bei der Auswertung zusammengefaßt werden müssen. Kurze Aufzeichnungsintervalle ermöglichen aber eine flexible Auswahl der Anfangs- und Endzeiten dieser Auswertungsintervalle, und es können bestimmte Ereignisse – zum Beispiel beim Einflug in Wolken – genauer voneinander abgegrenzt werden (das Flugzeug fliegt in fünf Sekunden ungefähr einen Kilometer). Bei längeren Meßflügen mußten wegen der mit 10 Mbyte vergleichsweise geringen Speicherkapazität des verwendeten flash-disc fünf Sekunden Aufzeichnungsintervalle gewählt werden. Andere Aufzeichnungsmedien schieden wegen der hohen Anforderungen beim automatisierten Flugzeugeinsatz und der erforderlichen Vibrationsfestigkeit aus. Eine Festplatte hätte zudem in einem bedruckten Behälter montiert und auf Bodendruck gehalten werden müssen.

An Bord der Flugzeuge standen 28 V Gleichstrom (DC) und 115 V, 400 Hz Wechselstrom (AC) zur Verfügung. Für den Betrieb des Computers wurden die 28 VDC mit DC/DC-Konverter in die Betriebsspannungen (5 und ± 12 V) umgewandelt. Die 28 VDC wurden weiterhin für die Heizungen benötigt: Die (serienmäßige) Detektorheizung des FSSP-300 und die nachträglich eingebauten Heizungen im FSSP-300 und am FSSP-300-Container. Weiterhin war auf der Geophysika auch ein Beheizen der DAS-Box nötig, da diese im Leitwerksträger hinter dem Fahrwerk eingebaut war. Die 115 VAC wurden nur zum Betrieb des FSSP-300 selbst verwendet. Das FSSP-300 wurde von der DAS-Box aus, also nicht direkt vom Flugzeug aus, mit Strom versorgt, da sich in der DAS-Box auch die Sicherungen und elektrische Filterbausteine befanden.

Während des automatischen Meßbetriebes wurden die Betriebsspannungen und die Temperaturen an verschiedenen Meßpunkten in der DAS-Box und im FSSP-300 kontinuierlich gemessen und mit den Aerosolmeßdaten gespeichert. Im Computer wurde hierzu ein analog-digital-Konverter (ADC) eingebaut und die Betriebsspannugen durch geeignete Spannungsteiler auf die von dem ADC benötigten Werte transformiert. Die Elektronik zur Umwandlung der Meßspannungen von den Temperaturmeßfühlern (PT100) in für die ADC geeignete Spannungen befand sich ebenfalls in der DAS-Box. In dieser selbst waren zwei Temperaturmeßfühler angebracht. Drei weitere waren im FSSP-300-Container eingebaut und zwar ganz vorne – im Bereich des Detektors und des Lasers –, in der Elektronikeinheit und im hinteren Bereich des FSSP-300-Containers.

Auf der Geophysika konnte kein wissenschaftliches Personal mitfliegen. Der Pilot war alleine an Bord des Flugzeuges und konnte nicht mehr Aufgaben übernehmen, als die einzelnen Geräte nach einem festgelegten Plan ein- und auszuschalten. Damit der Pilot eine Kontrolle über den Status des Gerätes hatte und sehen konnte, ob ein Gerät arbeitete oder evtl. während des Fluges ausgefallen war, waren Kontrollampen im Cockpit installiert, die jeweils von den einzelnen Geräten angesteuert wurden. Im Falle des FSSP-300 diente hierfür die Wächter-Schaltung. Im Meßbetrieb gab der Computer – bei laufendem Meßprogramm – einmal in der Sekunde einen elektrischen Impuls an die Wächter-Schaltung. Diese hielt unter diesen Bedingungen ein Relais im angezogenen Zustand, mit entsprechendem Signal im Cockpit. Wenn das Signal vom Computer ausblieb, so wurde erst ein automatischer Neustart des Computers durchgeführt. Wurde auch dann noch kein Impuls vom Computer auf den Watchdog gegeben, wurde das Relais schließlich nicht mehr angezogen mit entsprechender Änderung der Anzeige im Cockpit.

Bei den anderen Flugzeugen waren die Anforderungen nicht so streng, da hier immer wissenschaftliches Personal zur Bedienung mitfliegen konnte. Gleichwohl lief das FSSP-300-System auch dort vollautomatisch, da es für diese Betriebsart auf der Geophysika ausgelegt war und so Personal zugunsten der anderen Instrumente eingespart werden konnte. Lediglich der Zeitpunkt des Einschaltens wurde variiert.

3.2 Das Höhenforschungsflugzeug Geophysika

Die Geophysika ist ein ehemaliges russisches Militärflugzeug vom Typ Myasishchev M-55, das jetzt für Forschungszwecke eingesetzt wird. Im Gegensatz zur amerikanischen ER-2 – einem zu Forschungszwecken umgebauten U-2 Fernaufklärer – wurde die M-55 erst in den 80er Jahren entwickelt und war ursprünglich für die Abwehr hochfliegender Ballone bzw. die Gefechtsfeldüberwachung konzipiert. Die Reichweite ist entsprechend mit ca. 4200 km auch geringer als die der ER-2, andererseits ist die Geophysika sehr viel flexibler im Flugeinsatz. Die Geophysika hat zwei Turbofantriebwerke, die Spannweite beträgt 37,5 m. Äußerlich auffällig ist vor allem der doppelte Leitwerksträger, konstruktiv bedingt durch die kurze Düse der Triebwerke.

Die maximale Flughöhe beträgt etwa 21.000 m bei bis zu 1500 kg Nutzlast, d. h. die Geophysika ist noch bei einem Druck von ca. 50 hPa flugfähig (entscheidend für die Flugfähigkeit ist die Dichte der Luft, die bei den entsprechenden Temperaturen ca. 0.09 kg m^{-3} beträgt, im Gegensatz zu ca.



Abbildung 3.2: Das russische Höhenforschungsflugzeug Geophysika. Das FSSP-300 ist an der linken Fläche montiert (aus THOMAS et al. [2002], ©2002 American Geophysical Union).

1,2 kg m⁻³ am Boden). Wegen dieser hohen Anforderungen mußte auch ein neues, superkritisches Flügelprofil entwickelt werden, das eine starke Wölbung der Unterseite im hinteren Bereich aufweist und außerdem starr ausgelegt ist, d. h. die Geopysika hat keine Wölbklappen oder ähnliches, lediglich Bremsklappen auf der Oberseite der Tragflächen [VALUYEV et al., 1994; WALUJEW et al., 1994].

Entsprechend der ursprünglichen Aufgabenstellung können mit der Geophysika auch komplexe Flugaufgaben geflogen werden, z.B. mehrere Abstiege auf niedrigere Flughöhen und Wiederaufstiege, um Vertikalprofile zu gewinnen. Auch können noch während des Fluges dem Piloten detaillierte Flugaufträge gegeben werden, oder aber der Pilot kann auf Basis des wissenschaftlichen Flugauftrages die Flugdurchführung den tatsächlich vorgefundenen Bedingungen anpassen. Mit großem Erfolg wurden während der APE-THESEO-Kampagne 1999 koordinierte Flüge mit zwei Flugzeugen durchgeführt, bei denen von einem tiefer fliegenden, mit Lidar ausgestatteten Flugzeug aus (in diesem Falle die Falcon der DLR) der Pilot der Geophysika gezielt in interessante Gebiete – z.B. in dünne Wolkenschichten – gelotst wurde. Eine solche Flugplanung und -durchführung ist im Bereich der Höhenforschungsflugzeuge zur Zeit nur mit der Geophysika möglich.

Da auf der Geophysika kein wissenschaftliches Personal zur Betreuung der Instrumente mitfliegen kann, müssen alle auf diesem Flugzeug eingesetzten Instrumente vollautomatisch betrieben werden. Das bedeutet auch, daß eventuell auftretende Fehlfunktionen von den Geräten selbst abgefangen werden müssen.

Meßkampagnen mit der Geophysika waren APE I in Rovaniemi (Finnland) [STEFANUTTI et al., 1999] und APE-THESEO auf Mahé (Seychellen), jeweils mit Vorkampagnen in Italien. Daten, die mit dem FSSP-300 auf der Geophysika gemessen wurden, werden sowohl im Kapitel über das stratosphärische Hintergrundaerosol vorgestellt (von Meßkampagnen in Italien und in Finnland) als auch im Kapitel über nichtsichtbare Wolken (von der APE-THESEO Meßkampagne auf den Seychellen im Februar 1999).

Flugsicherheitstests

Vor den Flugerprobungen waren umfangreiche Tests notwendig, die nach Flugsicherheitsnorm DO 160 [RADIO TECHNICAL COMMISSION FOR AERO-NAUTICS, 1989] in Zusammenarbeit mit den italienischen Projektpartnern bei der ENEA (Ente per le Nuove tecnologie, L'Energia e l'Ambiente) in Casaccia (Italien) durchgeführt wurden. Für die Zulassung des FSSP-300 und der DAS-Box zur Montage auf der Geophysika wurde sowohl die mechanische Belastbarkeit von Sondencontainer und DAS-Box, als auch die elektromagnetische Kompatibilität (EMC) der DAS-Box untersucht.

Die mechanische Belastbarkeit wurde getestet, indem die betreffenden Gegenstände definierten Vibrationsmustern ausgesetzt wurden. Hierzu wur-



Abbildung 3.3: Testaufbau für die Vibrationstests nach Flugsicherheitsnorm DO-160, für den Test in y-Richtung(links) und in z-Richtung (rechts).

den natürlich nur die Gehäuse ohne optische und elektronische Bauteile getestet, welche durch passend angebrachte Gewichte simuliert wurden, so daß Maße und Schwerpunkt gleich waren. Die bei den Tests auftretenden maximalen Belastungen sind so hoch, daß das Flugzeug selbst schon Schaden nähme, träten solche während des Fluges auf. Die gesamte Testprozedur mußte für jede der drei Raumrichtungen ausgeführt werden. In der Abbildung 3.3 ist der Testaufbau für Vibrationen in y- bzw. in z-Richtung zu sehen (Flugrichtung sei x). Die Anordnung für die x-Richtung entsprach der in y-Richtung mit gedrehtem Testcontainer. Die aufwendigen Testprozeduren mußten für den FSSP-300 Container mehrfach wiederholt werden. Das erste für die Tests angefertigte Containermodell wurde stark beschädigt, und es mußte ein komplett neues Modell angefertigt werden. Bei diesem war dann nur noch die Dimensionierung der Schrauben zur Befestigung des Containers am Flugzeug anzupassen. Bei der DAS-Box war die Anzahl der Schrauben zu erhöhen.

Bei den EMC-Tests wurde die Abstrahlung der DAS-Box und die Störungen auf den Zuleitungen in mehreren Wellenlängenbereichen gemessen. In Abbildung 3.4 sind die Meßanordnungen für die Frequenzbereiche 30 MHz bis 200 MHz und 200 MHz bis 1 GHz zu sehen. Das Hauptproblem waren



Abbildung 3.4: Aufbauten mit der DAS-Box für die Tests zur elektromagnetischen Kompatibilität (EMC) nach Flugsicherheitsnorm DO-160 für die Frequenzbereiche 30 MHz bis 200 MHz (links) und 200 MHz bis 1 GHz (rechts).

die Störungen auf den Leitungen, die teilweise deutlich über den Grenzwerten lagen. Ursache hierfür waren die DC/DC-Konverter, die zur Stromversorgung für den Rechner benötigt wurden. Diese erzeugen ein 400-kHz-Hochfrequenzsignal, da Zerhacker und Transformator in diesem Frequenzbereich arbeiten. Folgende Änderungen wurden zur Reduzierung der Störungen vorgenommen (siehe z. B. MARDIGUIAN [1983]): Verkürzen und Umlegen der Kabelbäume, Modifikation des Verkabelungskonzeptes und Zwischenschalten eines mehrstufigen, passiven elektrischen Filters zwischen DC/DC-Konverter und Stromeingang. Die Störungen wurden dadurch auf ein der Norm entsprechendes Maß reduziert. Das Meßgerät selbst wurde nicht in Hinblick auf EMC getestet, da es nur mit der DAS-Box direkt verbunden ist und auch die Stromversorgung über elektronische Filter durch die DAS-Box verläuft.

Die Flugsicherheitstests waren sehr aufwendig und haben inklusive Vorbereitungsphase, Testdurchführung, Modifikation und Nachbereitung mehrere Monate in Anspruch genommen. Die Tests müssen bei weiteren Meßkampagnen für die Geophysika nicht wiederholt werden. Die Testergebnisse konnten auch auf andere Instrumente, die entsprechende Systemkomponenten verwendeten, übertragen werden. So wurde das Gehäuse der DAS-Box auch für einen Kondensationskernzähler verwendet, bei dem die Vibrationstests nicht noch einmal durchgeführt werden mußten.

Temperaturregulierung

Das FSSP-300 ist nur für vergleichsweise moderate Umgebungsbedingungen von -40°C bis +40°C und bis zu einer Arbeitshöhe von 40.000 Fuß (12.200 m) ausgelegt. In der Tropopause und unteren Stratosphäre kann es aber bedeutend kälter werden, das Gerät mußte also entsprechend angepaßt werden. Der Container, mit dem das FSSP-300 an dem Flugzeug befestigt wird, wurde mit einer Isolation aus Glaswolle bzw. aus geschäumtem Isoliermaterial versehen. Außerdem wurden außen am Container und innen im Gerät, insbesondere vorne im Bereich der Detektoren und des Lasers, Heizelemente angebracht. Zunächst lief die Heizung in ungeregeltem Dauerbetrieb. Bei der Meßkampagne in Rovaniemi (Finnland) war dies möglich, weil wegen der niedrigen Temperaturen am Boden der Container auch bei stehendem Flugzeug nicht zu heiß werden konnte. Für die Tropenkampagne wurde dann aber eine Regelung ergänzt, da bei den Flügen auf den Seychellen Temperaturunterschiede von im Regelfall über 100°C (vom Boden zur Tropopause) in ca. einer halben Stunde ausgeglichen werden mußten. Am Boden wurden Temperaturen von über 30°C erreicht, im Bereich der Tropopause konnte es bis zu -85° C kalt werden.

Der Streulichtdetektor des FSSP-300 ist empfindlich gegenüber zu niedrigen Temperaturen. Dies stellte ein besonderes Problem dar, da der Detektor ganz vorne im Container angebracht ist und in direktem thermischem Kontakt zu den Hörnern steht, die durch die anströmende Luft stark gekühlt werden. Eine zusätzliche Heizung der Hörner ist aber nicht möglich, wie sich bei entsprechenden Tests herausstellte, da sich die Hörner verziehen, dadurch die optische Einstellung dejustiert wird und somit Partikel nicht mehr richtig erfaßt werden. Die vom Hersteller in den Hörnern eingebaute Heizung ist aber nur zur Enteisung der Optiken ausgelegt und zu schwach, um zur Temperaturregulierung zu dienen. Aufgrund der konstruktiven Randbedingungen ist es auch nicht möglich, den Detektor und die Hörner thermisch voneinander zu isolieren. Es wurde zusätzlich zur Containerheizung noch ein geheizter Aluminiumblock als thermischer Puffer an den Hörnern montiert (in der Halbkugel, die den Container nach vorne abschließt, siehe Abbildung 2.2 auf Seite 31).

Durch die Isolierung und die Heizungen konnte der Arbeitsbereich des FSSP-300 erweitert werden, und es kam nur noch selten zu Ausfällen. Eine Fehlfunktion des Detektors macht sich durch eindeutig nicht sinnvolle Meßergebnisse deutlich bemerkbar. Dadurch lassen sich die betreffenden Messungen leicht aussortieren. Die Temperaturregelung der Elektronikeinheit stellte hingegen kein Problem dar, da sie im hinteren Teil des Containers liegt und somit den größtmöglichen Abstand von der im Fluge direkt angeströmten Frontpartie hat.

3.3 Die anderen Forschungsflugzeuge

Alle weiteren Flugzeuge, auf denen das FSSP-300 bei den verschiedenen Meßkampagnen installiert wurde, sind zweistrahlige Geschäftsdüsenflugzeuge, die für sechs bis zehn Passagiere ausgelegt sind, so daß entsprechender Platz für diverse Instrumente zur Verfügung steht. Im Gegensatz zur Geophysika kann bei diesen Flugzeugen bei allen Flügen wissenschaftliches Personal mitfliegen, um die Instrumente zu bedienen und auch, um die Piloten während des Fluges zu beraten.

Die Integration des FSSP-300 erfolgte nach unterschiedlichen Konzepten, die im folgenden beschrieben werden. Aus diesen Darstellungen wird klar, daß es für die Installation der Meßsonde keine allgemeinen Standards für Flugzeuge gibt. Daher mußten für jeden Flugzeugtyp zum Teil technologisch aufwendige Konzeptionen im Rahmen dieser Arbeit erstellt werden, die zudem stringenten luftfahrttechnischen Anforderungen genügen mußten.

Falcon D-CMET

Die Mystere Falcon 20 E5 der DLR (Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt) in Oberpfaffenhofen ist als reines Forschungsflugzeug ausgebaut. Die maximale Flughöhe beträgt knapp 13 km, die maximale Reichweite 3700 km. Die Falcon kann eine Nutzlast von etwa einer Tonne aufnehmen. Von der DLR werden auch Lidar-Systeme auf der Falcon betrieben [DLR, Internetquelle].

Auf der Falcon stehen für Meßgeräte wie dem FSSP-300 bis zu sechs Container an den Tragflächen und unter dem Rumpf zur Verfügung, und es ist auch ein Datenerfassungssystem fest installiert, so daß sich ein Einbau der DAS-Box erübrigte. Wegen eines anderen Containerkonzeptes (keine Isolierung und Heizung am Container) kam es aber teilweise zu Problemen bei den Messungen, so daß im Inneren des FSSP-300 zusätzliche Heizelemente angebracht werden mußten.

Für die vorliegende Arbeit wurden FSSP-300-Daten von der POLSTAR-1-Meßkampagne in Kiruna (Schweden) vom Februar 1997 zum Thema der Entwicklung des stratosphärischen Hintergrundaerosols ausgewertet (Kapitel 5). Messungen des OLEX-Lidars von nichtsichtbaren Wolken während der APE-THESEO Meßkampagne auf den Seychellen werden im 6. Kapitel verwendet.



Abbildung 3.5: oben: Die DLR Falcon mit DLR Instrumentencontainer und montiertem FSSP-300. unten: Das FSSP-300 an der Cessna Citation der NLR.

Cessna Citation PH-LAB

Die Cessna Citation II ist ein Flugzeug der Niederländischen NLR (Nationaal Lucht- en Ruimtevaartlaboratorium), das speziell zu Forschungszwecken ausgebaut wurde. Die Reichweite beträgt bei einer maximalen Nutzlast von 1400 kg (inklusive Personal) 1100 km. Bei geringerer Nutzlast können bis zu 3000 km zurückgelegt werden. Es kann eine maximale Höhe von etwas über 13 km erreicht werden [NLR, Internetquelle].

Auf der Cessna Citation wurde das FSSP-300 vorne am Rumpf angebracht, nicht direkt, sondern auf einem Gestell, das einen ausreichenden Abstand vom Flugzeug gewährleistete, so daß Messungen außerhalb der Grenzschicht des Flugzeugrumpfes sichergestellt waren (siehe Abbildung 3.5). Diese Anordnung war bereits bei vorausgegangenen Meßkampagnen von einer Arbeitsgruppe der Universität Utrecht getestet worden [COR DAM, persönliche Mitteilung]. Die DAS-Box war in einem Gestell im Innern des Flugzeuges untergebracht, so daß auch während des Fluges das Instrument und der Computer ein- bzw. ausgeschaltet werden konnten.

Das Mainzer FSSP-300 flog auf der Cessna Citation während der ACE-2 Meßkampagne auf Teneriffa im Sommer 1997 [RAES et al., 2000]. Messungen von Saharastaub werden im 4. Kapitel vorgestellt.



Learjet D-CGFD

Abbildung 3.6: Der GFD Learjet, Außenlasttank der enviscope GmbH mit montiertem FSSP-300.

Der Learjet 35A wird von der GFD (Gesellschaft für Flugzieldarstellung mbH) betrieben, primär im Auftrag des Bundesamtes für Wehrtechnik und Beschaffung. Im Rahmen einer Kooperation mit der Firma enviscope GmbH kann das Flugzeug auch für wissenschaftliche Aufgaben genutzt werden. Die Ausrüstung wurde entsprechend erweitert. Die Reichweite des Learjet beträgt etwa 4000 km. Auch mit den Sonderausrüstungen im Außenbereich kann die maximale Flughöhe von 13,7 km erreicht werden [ENVISCOPE, Internetquelle].

Für die Installation am Learjet stand ein spezieller Außenlasttank der Firma enviscope GmbH zur Verfügung, in den das FSSP-300 samt Originalcontainer eingebaut wurde (siehe Abbildung 3.6). Die DAS-Box wurde im Inneren des Flugzeuges eingebaut, ähnlich der Anordnung in der Cessna Citation, so daß das Gerät bei Bedarf auch während des Fluges einfach einund ausgeschaltet werden konnte.

In dieser Konfiguration flog das FSSP-300 bei der POLSTAR-2-Meßkampagne in Kiruna (Schweden) im Februar 1998. Die Daten wurden für das 5. Kapitel zum stratosphärischen Hintergrundaerosol ausgewertet.

Teil II Ergebnisse

Kapitel 4

Saharastaub über dem Atlantik

4.1 Zielsetzung

Die Meßkampagne ACE-2 (Aerosol Characterization Experiment) wurde im Juni und Juli 1997 im Bereich des östlichen Atlantik durchgeführt. Das FSSP-300 flog im Rahmen des Teilprojekts FREETROPE auf einer Cessna Citation (siehe Abbildung 3.5 auf Seite 55 und Erläuterungen dort). Kampagneflughafen war Los Rodeos auf Teneriffa (16,3°W, 28,5°N). Das Ziel der Meßkampagne war die Messung von Aerosol und Spurenstoffen in der freien Troposphäre. Zur Aerosolcharakterisierung flogen u. a. das FSSP-300, ein CPC (Kondensationskernzähler) und ein PCASP (Passive Cavity Aerosol Spectrometer Probe). Auf Basis dieser Aerosolmessungen wurden z. B. Modellrechungen zur heterogenen Chemie und zum Ozonabbau durchgeführt [DE REUS et al., 2000].

In diesem Kapitel sollen die Messungen von Saharastaub analysiert werden, die während ACE-2 im Rahmen der vorliegenden Arbeit mit dem FSSP-300 über dem Atlantik gemacht wurden. Ziel war die Beschreibung der mikrophysikalischen Eigenschaften des Staubes, d. h. die Darstellung der Größenverteilungen. Da der Ursprung dieses Aerosols vor allem in der Sahara lag, werden im Folgenden meist die Begriffe "Staub" bzw. "Saharastaub" synonym für den allgemeinen Begriff des Aerosols verwendet.

Nach einer Einführung in die allgemeinen meteorologischen Gegebenheiten und Windsysteme im nächsten Abschnitt folgt eine Darstellung der großräumigen Lage der Messungen (Abschnitt 4.3) sowie eine meteorologische Analyse der Bedingungen am Meßtag (4.4). Nach einer Beschreibung der mikrophysikalischen Eigenschaften des Saharastaubes für die Auswertung der FSSP-300-Messungen (4.5) folgen die Beschreibung der gemessenen Größenverteilung des Saharastaubes und die Einordnung in Messungen aus der Literatur (4.6).

4.2 Meteorologische Rahmenbedingungen: allgemeine Windsysteme

Staubausbrüche aus den afrikanischen Wüstengebieten über den Atlantik sind kein außergewöhnliches Phänomen und bereits seit langem wissenschaftlich beschrieben. Bereits DOBSON [1781] berichtete im Zusammenhang mit dem *Harmattan* von Perioden mit schlechter Sicht, wofür er den Staub in der Luft verantwortlich machte. Weitere frühe Aufzeichnungen stammen von DARWIN [1846] und EHRENBERG [1849, 1862]. SEMMELHACK [1934] beschrieb das Auftreten von Staub über dem Atlantik und die jahreszeitlichen Schwankungen dieses Phänomens. Auch er machte den *Harmattan* genannten, über Afrika nach West wehenden Wind hierfür verantwortlich. Ein besonders beeindruckendes Beispiel eines Staubausbruchs über den Atlantik, der auch über die Kanarischen Inseln hinwegführte, ist auf dem Satellitenbild in Abbildung 4.1 zu sehen. Die Aufnahme wurde am 26. Februar 2000 gemacht.

Es gibt generell drei Windsysteme, die für den Transport von Staub aus der Sahara über Westafrika und den östlichen Atlantik verantwortlich sind



Abbildung 4.1: Satellitenbild eines Staubsturms vom 26. Februar 2000. Deutlich sichtbar wird Staub weit über den Atlantik transportiert. Die Kanarischen Inseln sind etwas unterhalb der Bildmitte eingezeichnet [Quelle: SEAWIFS PROJECT, NA-SA/GODDARD SPACE FLIGHT CENTER und ORBIMAGE, über Internet]. (im Folgenden nach SCHÜTZ [1977] und PYE [1987], siehe Abbildungen 4.2 und 4.3].

Der Passat

Vom Passat wird Luft in niedrigen Höhen aus den nordwestlichen Regionen Afrikas (Marokko und den Küstenregionen) nahezu parallel zur afrikanischen Küste nach Südwesten transportiert (schwarze Pfeile in Abbildung 4.2). Diese Winde transportieren Staub bis zu einer Höhe von 500 bis 1500 m. Der Bereich, in dem der Staub deponiert wird, reicht von der Küste bis zu den Kanarischen und Kapverdischen Inseln ("Canary Isl." bzw. "C. Verde Isl." in Abbildung 4.2) [TETZLAAF und WOLTER, 1980; SARNTHEIN et al., 1981; STEIN und SARNTHEIN, 1984].

Der "Saharan air layer"

Die zweite Quelle von Staub liegt in der südlichen Sahara und Sahelzone, wo es im nördlichen Sommer regelmäßig zu Staubaktivierung durch starke Bodenwinde im Bereich von Böenlinien kommt, welche die Sahelzone von



Abbildung 4.2: Wege von Luftmassen und Staubtransport im nordwestlichen Afrika. Passatwinde (schwarze Pfeile) und Saharan Air Layer in der mittleren Troposphäre (umrandete Pfeile) (aus Pye [1987], dort modifiziert nach STEIN und SARNTHEIN [1984], ©Swets & Zeitlinger).



Abbildung 4.3: Luftströmungen in der mittleren Troposphäre (schwarze Pfeile) und darunterliegene Passatwinde (*Trades*, umrandete Pfeile) im Nord-Sommer. Die Zahlen geben die Transportgeschwindigkeit in ms⁻¹ an (aus PYE [1987], dort modifiziert nach TETZLAAF und PETERS [1986], ©Geologische Vereinigung).

Ost nach West überqueren [TETZLAAF und WOLTER, 1980; TETZLAAF und PETERS, 1986]. Ein Teil des Staubes gelangt durch Konvektion in die mittlere Troposphäre und kann so eine bis zu sechs Kilometer hohe Staubschicht aufbauen. Schließlich wird der Staub von östlichen Winden (Saharan Air Layer), deren Intensität in drei bis vier Kilometer Höhe am stärksten ist (,700 mb level" in Abbildung 4.3), nach Westen transportiert (siehe auch Abbildung 4.2, dort die umrandeten Pfeile). Diese Staubausbrüche überqueren schließlich die Küste und auch die bodennahe Passatwindschicht, meist zwischen 15°N und 21°N [PROSPERO et al., 1970; CARLSON und PROSPE-RO, 1972; ERNST, 1974; PROSPERO und CARLSON, 1970]. Oft bekommen die östlichen Winde dann im Einfluß eines Hochdruckgebietes eine zunehmend südliche Komponente (Abbildung 4.3). Auf diese Weise gelangen die staubbeladenen Luftmassen auch zu den Kanarischen Inseln [TETZLAAF und PE-TERS, 1986]. Die Hauptausbreitungsrichtung der staubbeladenen Luftmassen ist jedoch nach Westen über den Atlantik. In manchen Jahren erreichten über 25% der mittleren und schwereren Staubausbrüche den Südamerikanischen Kontinent [Swap et al., 1996].

Der "Harmattan"

Das dritte Windsystem, das im Winterhalbjahr für Staubausbrüche verantwortlich ist, ist der *Harmattan*. Die Quellregion des Staubes ist weiter östlich gelegen, und der Staub wird von dort nach Südwest über den Golf von Guinea transportiert (siehe auch KALU [1977]). Für die hier vorgestellten Messungen ist dieses Windsystem ohne Bedeutung.

4.3 Beobachtungen bei ACE-2

Flüge mit Beobachtung von Staub

Bei dem Meßflug am 8. Juli 1997 wurde eine über 3000 Meter dicke, bis in 6000 m Höhe reichende, stark aerosolbeladene Luftschicht beobachtet. In dieser Schicht wurden auch noch große Teilchen – bis in den größten Kanal des FSSP-300, in diesem Falle 30 μ m – gemessen. Eine zweite Staubschicht wurde in ca. 1000 m Höhe beobachtet.

In Abbildung 4.4 (oben) sind die FSSP-300-Partikelmessungen des ganzen Fluges als Vertikalprofil aufgetragen. Eingezeichnet ist die Partikelanzahl- und die -volumenkonzentration als Funktion der Druckhöhe. Die während des Fluges gemessene Temperatur und die daraus berechnete potentielle Temperatur sind ebenfalls eingezeichnet. Die Höhenbereiche der Staubmessungen (die höhere S_h und die tiefere S_t) sind grau hinterlegt. In den fraglichen Bereichen sind Auf- und Abstieg durch Pfeile markiert.

Der Luftraum, in dem der Meßflug durchgeführt wurde, lag zwischen Teneriffa und der afrikanischen Küste (der küstennächste Punkt während des Fluges lag ungefähr 50 km vor der Küste). Der Flugweg ist in Abbildung 4.6 eingetragen. Der in Ost-West-Richtung verlaufende Flugabschnitt wurde insgesamt sechsmal auf verschiedenen Höhenstufen zwischen 4000 m und 11500 m durchflogen. Die zunächst auffallende Schicht lag etwa zwischen 2200 und 5700 Metern Höhe und ist deutlich am starken Anstieg der Aerosolparameter zu erkennen; auch das Verhältnis von Teilchenvolumen zu -konzentration, das als Indikator für die Anwesenheit größerer Teilchen dienen kann, war deutlich erhöht. Die Schicht wurde nicht überall beobachtet, der Einflug erfolgte bei Flug auf konstanter Höhe in 2700 m ungefähr 30 km östlich von Teneriffa.

Nach oben war die Schicht, die im Folgenden auch mit S_h bezeichnet wird, durch eine Temperaturinversion begrenzt (siehe auch das thermodynamische Diagramm im Anhang auf Seite 192). Die Staubkonzentration ging oberhalb der Temperaturinversion innerhalb von wenigen hundert Metern um zwei Größenordnungen zurück. In dem Profil scheint die Schicht in etwa 2700 m beim Aufstieg auch nach unten scharf begrenzt, was aber ein Darstellungsartefakt ist, da der Einflug in die Schicht wie schon erwähnt bei Flug auf konstanter Höhe erfolgte. Wie am Profil vom Abstieg zu erkennen ist, ging die Staubkonzentration über einen Bereich von fast tausend Metern zurück. Innerhalb der Schicht S_h nahm die Staubkonzentration mit zunehmender Höhe nur ganz leicht ab. Auffallend ist weiterhin die Konstanz der potentiellen Temperatur in der Schicht.



Abbildung 4.4: Vertikalprofil der Meßflüge vom 8. Juli (oben) und 10. Juli 1997 (unten) während ACE-2 auf Teneriffa. Die beobachteten Staubschichten (S_h und am 8. Juli auch S_t) sind grau hinterlegt. Die tiefere Staubschicht wurde nur beim Abstieg am 8. Juli 1997 beobachtet. Zwischen den beiden Schichten lag an diesem Tag eine Schicht niedriger Aerosolkonzentration H_z.

Eine zweite Staubschicht wurde in etwa 1000 m Höhe beobachtet, im Folgenden auch mit S_t bezeichnet. Diese Schicht war von der höheren eindeutig getrennt. Zwischen den beiden Staubschichten befand sich eine dünne Schicht niedriger Partikelkonzentration, weiterhin mit H_z bezeichnet. In dieser war die Teilchenkonzentration mit 0,25 cm⁻³ eine Größenordnung niedriger als in den beiden Staubschichten.

Wie auch aus den meteorologischen Analysen in Abschnitt 4.4 folgt, handelte es sich bei S_h und S_t um in mehrerlei Hinsicht verschiedene Staubschichten. Im Vertikalprofil ist zu erkennen, daß in der unteren Schicht die potentielle Temperatur nicht konstant war. Die Passatinversion war schwach ausgeprägt, dennoch deutlich zu erkennen und begrenzte die Staubschicht S_t nach oben. Die untere Grenze dieser Schicht wurde nicht durchflogen.

Die mit dem FSSP-300 gemessene Gesamtkonzentration betrug im Mittel 10 cm⁻³ für S_h und war mit rund 3 cm⁻³ in der unteren Schicht deutlich geringer. Das Partikelvolumen lag mit rund 200 μ m³/cm³ in der höheren Schicht etwa eine Größenordnung über dem in der unteren Schicht. Oberhalb der staubführenden Schichten, d. h. oberhalb 6000 m, lagen die Partikelkonzentrationen unter 0,1 cm⁻³. Auch bei den Ozonwerten waren Unterschiede zu beobachten: um 40 ppb in S_t und um 30 ppb in S_h, jeweils mit einer Varianz der Werte von ±3 bei einer Genauigkeit von 10%. Oberhalb S_h lagen die Ozonwerte zwischen 50 und 60 ppb. Zur genauen Bewertung der Ozonwerte in den Staubschichten müssen heterogene chemische Prozesse mit Beteiligung der Staubpartikel berücksichtigt werden, wie Modellierungen von DE REUS et al. [2000] zeigten.

Die höhere Staubschicht wurde auch noch bei einem weiteren Meßflug am 10. Juli 1997 beobachtet. Ein Vertikalprofil dieses Fluges ist ebenfalls in Abbildung 4.4 (unten) aufgetragen. Der Flugweg lag westlich von Teneriffa, also deutlich weiter weg vom Afrikanischen Kontinent als der erste Flug. Erhöhte Staubkonzentrationen – etwas niedriger als am 8. Juli und nicht so konstant – wurden zwischen etwa zwei- und viertausend Metern beobachtet. Einflug in die Staubchicht und Ausflug daraus erfolgten bei Flug auf konstanter Höhe, es kann also nicht gesagt werden, wie scharf diese Schicht nach unten und oben abgetrennt war. Auch bei diesem Flug war die potentielle Temperatur innerhalb der Schicht über die ganze Schichtdicke nahezu konstant.

Flüge ohne Staubmessungen

Der Abstieg erfolgte bei diesem Flug durchgehend außerhalb der Staubschicht, so daß von diesem Tag für beide Fälle ein Profil vorliegt, das ebenfalls in Abbildung 4.4 (unten) aufgetragen ist. Das Temperaturprofil zeigte außerhalb der Staubschicht keinerlei Besonderheiten. Es gab keinen Bereich konstanter potentieller Temperatur, und es wurde auch keine Temperaturinversion im Höhenbereich der Staubschichtobergrenze beobachtet.



Abbildung 4.5: Vertikalprofil von vier Meßflügen während ACE-2. Bei allen wurden keine Staubschichten beobachtet.

Für einen weiteren Vergleich mit Tagen ohne Staubbeobachtungen wurden in Abbildung 4.5 die Vertikalprofile von Meßflügen aufgetragen, die vor und nach den beiden "Staub-Flügen" durchgeführt wurden. Wie an der Partikelkonzentration zu erkennen ist, wurde jeweils nur Hintergrundaerosol gemessen, Zeiten mit Wolkenmessungen wurden nicht mit berücksichtigt. Die Aufstiege erfolgten meist in mehreren Stufen, so daß keine durchgehenden Profile erflogen wurden, und sind nicht dargestellt. Die Temperaturprofile waren sehr gleichmäßig und zeigten keinerlei Anhaltspunkte für eine Temperaturinversion oder einen Bereich konstanter potentieller Temperatur.

Diskussion

Die beiden Phänomene – konstante potentielle Temperatur und Temperaturinversion in Höhe des oberen Randes der Staubschicht – wurden nur in direktem Zusammenhang mit den Staubschichten beobachtet. An Tagen und in Regionen ohne Staubmessungen traten diese Besonderheiten im Temperaturprofil nicht auf. Es ist also davon auzugehen, daß diese Phänomene eine Folge der Staubschicht waren.

Die Beobachtungen sprechen für eine vollständige Mischung innerhalb der Staubschicht (siehe hierzu STULL [1988, S. 450ff]). Dies ist vor allem aus der Konstanz der potentiellen Temperatur abzuleiten, aber auch die leichte Abnahme der (ansonsten nahezu konstanten) Partikelkonzentration mit der Höhe (d. h. mit sinkendem Umgebungsdruck) weisen darauf hin [TRAUT-MANN, persönliche Mitteilung]. Die Inversion am oberen Rand der Schicht ist ebenfalls typisch für Mischungs-Schichten [STULL, 1988]. Die Mischung kann wiederum zur Stabilisierung der Staubschicht beitragen, d. h. die Staubpartikel in der Schicht halten. Die genaue Ursache für den Antrieb der Durchmischung ist noch nicht abschließend geklärt, möglich wäre ein Aufheizung durch Strahlungsabsorption der Partikel [TRAUTMANN, persönliche Mitteilung].

Bei der Durchmischung ist ein Wärmeaustausch jeweils benachbarter Luftpakete innerhalb der Schicht möglich, so daß sich die Temperatur angleicht. Unabhängig von diesem Wärmeaustausch, der nur zwischen unmittelbar benachbarten Luftpaketen erfolgt, findet bei der Auf- und Abbewegung der Luft auch die Temperaturänderung statt, die bei einem rein adiabatischen Prozeß aufträte, so daß schließlich über die ganze Höhe der Schicht die *potentielle* Temperatur konstant ist.

4.4 Meteorologische Analyse

Wetterlage

Die großräumige Wetterlage am Meßtage kann der NOAA-Analyse in Abbildung 4.6 entnommen werden. In Höhe der 500-hPa-Fläche, was etwa dem oberen Rand der Dunstschicht entspricht, ist ein Hochdruckgebiet über der Westsahara zu erkennen, ähnlich der schematischen Darstellung in Abbildung 4.3. Die reale Wetterlage entsprach also recht genau der theoretisch beschriebenen, für Staubausbrüche über den Atlantik typischen Wettersituation in dieser Gegend. Die Isobaren für den Bodendruck zeigen hingegen ein Tiefdruckgebiet über der westlichen Sahara und ein Hochdruckgebiet über dem Atlantik (Azorenhoch), zwischen denen Luft parallel zur Küste von Nordosten herangeführt wird. In den Tagen vor dem Meßflug hatte sich das Azorenhoch bis nach Westeuropa ausgedehnt, so daß auch kontinentale Luft herangeführt wurde [VERVER et al., 2000]. Am Tag des Meßfluges waren also tatsächlich in verschiedenen Höhen zwei unterschiedliche Windsysteme zu beobachten, und der Meßflug führte in zwei unterschiedliche Luftmassen. Vom Boden bis in etwa 1,5 km Höhe führte der Passat Luft und damit die Staubschicht S_t von Nordnordost heran, in der Höhe kam die Luft und damit auch der Staub der Schicht S_h aus dem Bereich des Saharan Air Layer.

Rückwärtstrajektorien

Um diese Zusammenhänge weiter abzusichern und den Weg der Luftmassen darzustellen, werden im Folgenden auch die Rückwärtstrajektorien betrachtet. In Abbildung 4.7 (modifiziert nach DE REUS et al. [2000]) sind



Abbildung 4.6: Die Wetterlage am 8. Juli 1997. Auf Meereshöhe reduzierter Bodendruck (durchgezogene Linien, Einheit: hPa) und geopotentielle Höhe der 500-hPa-Fläche (gestrichelte Linien, Einheit: Dekameter) [NOAA AIR RESEARCH LABORA-TORY, über Internet]. Der Flugweg ist durch die dick gepunktete Linie markiert. Der in Ost-West-Richtung verlaufende Flugabschnitt wurde sechsmal in verschiedenen Höhen geflogen.



Abbildung 4.7: Rückwärtstrajektorien für die Messungen von Saharastaub am 8. Juli 1997 (modifiziert nach DE REUS et al. [2000], ©2000 American Geophysical Union). Die Zahlen an den Trajektorien geben die Höhe des jeweiligen Luftpaketes zum Zeitpunkt der Flugzeugmessungen (Zeit = 0) an. Die gestrichelten Trajektorien (1,3 und 0,86 km) wurden über Internet berechnet [NOAA AIR RESOURCES LABORATORY].

die Trajektorien von verschiedenen Stellen des Meßfluges unterschiedlicher Höhe am Meßtage zu sehen. Dargestellt sind Ort und Höhe der verschiedenen Luftpakete in den fünf Tagen vor der Messung. Das obere Teilbild zeigt die geographische Projektion, das untere Teilbild zeigt die vertikale Projektion der Rückwärtstrajektorien mit dem Druck als Höhenskala. Die Zahlen an den Trajektorien geben die Druckhöhe des jeweiligen Luftpaketes in Kilometern zum Zeitpunkt der Flugzeugmessungen (Zeit = 0) an. Die Trajektorien werden im Folgenden mit dieser Höhe bezeichnet, z. B. als 2,7-km-Trajektorie.

In Ergänzung zu den Trajektorien aus DE REUS et al. [2000] wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit über Internet auch noch weitere Rückwärtstrajektorien berechnet [NOAA AIR RESOURCES LABORATORY]. Diese werden weiterhin auch als "NOAA-Trajektorien" bezeichnet. Zwei dieser Trajektorien (1,3 km und 0,86 km, gestrichelte Linien) wurden in Abbildung 4.7 eingetragen.

Die 8,5-km-Trajektorie in Abbildung 4.7 kommt als einzige über den Atlantik und verläuft durchgehend über dem Ozean. Da sie in einer hier nicht weiter interessierenden Höhe liegt, wird sie weiterhin nicht beachtet. Die übrigen Trajektorien können in drei Bereiche unterteilt werden, die sich auch im Profil in Abbildung 4.4 wiederfinden:

- Die tiefere Staubschicht S_t: Diese wird von der 0,9-km-Trajektorie repräsentiert, die sich in der geographischen Projektion von den anderen Trajektorien unterscheidet. Das betreffende Luftpaket wurde aus nordöstlichen Richtungen vom Passat in die Gegend von Teneriffa transportiert, wie es aufgrund der meteorologischen Analyse in dieser geringen Höhe zu erwarten war. Vorher verlief der Weg über der Iberischen Halbinsel. Wo genau die Quelle des Staubes dieser Schicht liegt, läßt sich also nicht genau sagen. Der Staub könnte aus bodennahen Schichten aufgenommen worden sein oder aber aus höheren Schichten einsedimentiert sein. Eine genauere Aussage würde eine sehr komplexe Analyse voraussetzen.
- Die höhere Staubschicht S_h : In der vertikalen Projektion in Abbildung 4.7 fallen vor allem zwei Trajektorien auf, die 2,7-km- und die 4,0km-Trajektorie, welche also zum Zeitpunkt der Flugzeugmessungen in dem Bereich der höheren Staubschicht S_h verliefen. Der geographische Ursprung liegt, wie bei den darüber liegenden Trajektorien, in der Sahara. Was die 2,7-km- und die 4,0-km-Trajektorie auszeichnet, ist der vertikale Verlauf. Die Luftpakete wurden mehrfach in einem 2500 Höhenmeter umfassenden Band auf und ab bewegt. Der niedrigste Punkt der 2,7-km-Trajektorie lag bei 1100 m, womit die Staubaufnahme erklärt werden kann.
Der Bereich oberhalb $\mathbf{S_h}$: Höhere Schichten der Troposphäre kamen zwar auch aus dem Bereich der Sahara, waren aber nicht staubbeladen. Die Partikelkonzentrationen lagen zwei Größenordnungen unter der in $\mathbf{S_h}$ gemessenen. Die entsprechenden 5,5-km- und 7,0-km-Trajektorien waren auch im berechneten Zeitraum nicht in tieferen Schichten. und es ist auch keine so starke Durchmischung zu erkennen, wie bei den Trajektorien der höheren Staubschicht $\mathbf{S_h}$.

Die beiden letztgenannten Bereiche – S_h und der Bereich darüber – liegen im Einflußbereich des Höhen-Hochdruckgebietes, das in der Analysekarte vom 8. Juli 1997 in Abbildung 4.6 zu erkennen ist (vergleiche wiederum die allgemeine Darstellung in Abbildung 4.3).

An der 1,3-km-NOAA-Trajektorie ist zu sehen, daß Luft aus dem Höhenband H_z zwischen den beiden Staubschichten seinen Ursprung über dem Atlantik hatte und nur einen kurzen Bogen über die afrikanische Küste zurücklegte, wo offensichtlich keine größeren Mengen Staub aus der darüberliegenden Luft einsedimentierten.

NOAA-Trajektorien wurden auch noch für weitere Punkte aus dem Meßgebiet der tieferen Staubschicht S_t berechnet. Ein Teil dieser Trajektorien verläuft nicht nur vor der Marokkanischen Küste, wie in Abbildung 4.7 der von Ost nach West verlaufende Abschnitt der 0,9-km-Trajektorie, sondern auch über dem Festland im Bereich des nördlichen Marokko (0,86-km-NOAA-Trajektorie). Dies betrifft den Zeitraum drei und vier Tage vor der Messung, gilt allerdings nur für den südöstlichen Teil der tieferen Staubschicht. Nach den NOAA-Trajektorien verlief der Weg der Luftmasse vom nordwestlichen Teil der Staubschicht S_t nur über europäisches Festland (d. h. die Iberische Halbinsel). Staub aus den Wüstengebieten Afrikas kann in diese Luftmasse nur durch Sedimentation aus darüberliegenden Luftschichten gelangt sein. Die beim Meßflug zwischen den beiden Staubschichten beobachtete Zwischenschicht H_z enthielt keine größeren Staubpartikel, was gegen Sedimentation spricht. H_z war jedoch sehr dünn, und es ist nicht auszuschließen, daß es sich nur um ein lokales Phänomen handelte.

Ein Unterschied zwischen den beiden Staubschichten ist die Zeit, die die Luftpakete über dem Meer verbracht haben. Die Luft der tieferen Schicht S_t war schon an den beiden Tagen vor dem Meßtag über dem Atlantik, die der höheren Schicht hingegen überquerte erst in der Nacht zum 8. Juli die Küste.

Die höhere Staubschicht wurde auch bei Bodenmessungen auf Teneriffa auf dem Vulkan Teide in 3570 m NN gemessen [FORMENTI et al., 2000]. Die aus Radiometer- und Sonnenphotometermessungen abgeleitete AOD (*aerosol optical depth*) zeigte am 8. Juli (dem Tag des hier diskutierten Meßfluges) und am 9. Juli 1997 deutlich erhöhte Werte: 0,14 und 0,13 bei 500 nm Lichtwellenlänge gegenüber 0,02 an Tagen ohne Staubbelastung (siehe auch die Diskussion auf Seite sastDiskussionAOD). Daten von Radiosonden zeigen, daß die relative Luftfeuchtigkeit innerhalb der Staubschicht S_h gleichmäßig mit der Höhe anstieg, von Werten unter 10% bis zu knapp 40% am oberen Rand der Schicht. In der tieferen Staubschicht S_t lag die relative Luftfeuchtigkeit über 70% [DE REUS et al., 2000].

4.5 Allgemeine mikrophysikalische Eigenschaften des Saharastaubes

Der bei Teneriffa beobachtete äolische – d. h. windgetragene – Staub ist das Endstadium einer Entwicklung des Staubaerosols, die ihren Anfang in den Wüstengebieten Afrikas hat. Bis zur Aussedimentation der Staubpartikel am Boden oder im Meer kann der Staub aber noch eine sehr große Strecke zurücklegen.

Betrachtet man eine Massen- oder Volumengrößenverteilung, die bei einheitlicher Dichte aller Aerosolpartikel äquivalent sind, so liegt das Maximum des Wüstensandes – also der Quelle des Staubaerosols – bei 200 μ m bis 500 μ m Partikeldurchmesser (JUNGE [1977], auch für das Folgende). In einem Sandsturm werden diese extrem großen Partikel nicht aufgewirbelt oder sedimentieren sofort wieder aus, d. h. sie können nicht als Partikel des Staubaerosols in der Luft beobachtet werden. Die Volumengrößenverteilung des Staubaerosols in Wüstenregionen hat ihr Maximum bei etwa 100 μ m bis 200 μ m. Dies ist nicht nur während eines Sandsturmes, sondern auch bei normalen Windgeschwindigkeiten zu beobachten, lediglich die Konzentrationen sind verschieden [SCHÜTZ und JAENICKE, 1974]. Diese immer noch als sehr groß zu bezeichnenden Partikel werden jedoch nicht über große Strecken vom Wind verfrachtet. Bei ausreichend starken Winden liegt das Maximum einer Volumengrößenverteilung bei etwa 50 μ m Durchmesser; dies ist dann Löß. Für aeolischen Staub schließlich ist eine Volumengrößenverteilung mit einem Maximum um 10 μ m bis 20 μ m zu erwarten.

In Tabelle 4.1 sind die Sedimentationsgeschwindigleiten für die Bedingungen in der Staubschicht S_h eingetragen. Auch die Zeit, die ein Teilchen braucht, um die Schichtdicke von 3000 m zu durchfallen, ist angegeben. Diese Zeit beträgt für ein 10 μ m großes Teilchen ca. vier Tage. Die Staubaufnahme in diese Luftschicht erfolgte innerhalb dieser Zeitspanne vor dem Meßflug. Erst bei Teilchengrößen über 20 μ m liegt die Fallzeit für 3000 m unter einem Tag.

Form der Staubpartikel

Die Auswertung der FSSP-300-Messungen setzt die Kenntnis der optischen Eigenschaften der gemessenen Partikel voraus (siehe auch Abschnitt 1.2 auf Seite 15 ff). Die Form der gemessenen Staubpartikel ist sicherlich nicht sphärisch, wie bei Anwendung der Mie-Theorie eigentlich vorausgesetzt; ein

Teilchendurchmesser	Sedimentationsgeschwindigkeit		Fallzeit 3000 m
$[\mu m]$	$[\mathrm{mms^{-1}}]$	$[{\rm m}{\rm h}^{-1}]$	[h]
2	0,37	1,3	2234,1
4	1,4	5,0	595,2
6	3,1	11,1	269,7
8	$5,\!4$	19,6	153,2
10	8,4	30,4	98,7
12	$12,\!1$	$43,\!6$	68,9
14	16,4	59,0	50,8
16	21,4	77,0	38,9
18	27,0	97,2	30,9
20	$33,\!3$	119,9	25,0
22	40,3	145,1	20,7
24	$47,\!9$	172,4	17,4
26	56,1	202,0	14,9
28	65,1	234,4	12,8
30	74,6	268,6	11,2

Tabelle 4.1: Teilchendurchmesser und sich daraus ergebende Sedimentationsgeschwindigkeit sowie Fallzeit für 3000 m für die Bedingungen in der Staubschicht bei ACE-2 (Druck: 600 hPa, Temperatur: 277 K, Teilchendichte für Quarz: 2,6 g cm⁻³).

anderer Zugang ist jedoch wegen der komplexen Form der Teilchen nicht möglich. Nach SCHÜTZ [1977] ist eine morphologische Identifizierung der Aerosolteilchen nur begrenzt möglich. Elektronenmikroskopische Auswertungen zeigen bei Saharaluft vor allem isometrische und blättrige Teilchen. Stark von einer Kugelform abweichende Partikelformen wie Stäbchen sind demnach aber nur bei zusätzlich maritim beeinflußtem Aerosol anzutreffen [SCHÜTZ, 1977].

Die Ergebnisse experimenteller Untersuchungen und Modellierungen zum Einfluß der Asphärizität der Partikel auf die Streufunktion wurden von KOEPKE und HESS [1988] (für das Folgende) veröffentlicht. Die Ergebnisse können aber nur einen groben Anhaltspunkt für die Interpretation der FSSP-300-Messungen liefern, da bei der Einzelpartikelstreuung Streuwinkel $< 30^{\circ}$ nicht untersucht wurden (die Winkelangaben beziehen sich auf die *Richtung* des einfallenden Lichtstrahles, die als 0° definiert wird; Rückstreuung wäre demnach 180°). Für Saharastaub haben KOEPKE und HESS [1988] nur die Streufunktion des Aerosols – d. h. des Partikelkollektivs – und nicht die einzelner Partikel betrachtet. Bei einzelnen Partikeln und unpolarisiertem Licht lieferte die Mie-Theorie bei Streuung in 30° (das FSSP-300 mißt 3° bis 15°) nahezu die gleichen Ergebnisse wie die asphärischen Partikel bis zu einem Mie-Größenparameter α von 20. Die größten Abweichungen gab es bei Seitwärtsstreuung (90°), welche beim FSSP-300 jedoch nicht gemessen wird. Die Unterschiede wurden mit zunehmender Absorption geringer. Modellierungen der Streufunktion des Aerosols – also nicht der Einzelpartikel – von KOEPKE und HESS [1988] zeigten zusätzlich, daß bei Saharastaub die Entfernung von der Quelle des Staubes entscheidenden Einfluß hat. Nur das frische Aerosol eines Sandsturms hatte 100% Unterschied zur Mie-Theorie bei 15° Vorwärtsstreuung. Bei diesem Streuwinkel – der auch die obere Grenze des FSSP-300 Streuwinkelbereichs ist – lagen die Abweichungen für Sahara-Aerosol unter 10%, wenn das Aerosol im Abstand von 2000 km und 5000 km zur Quellregion gemessen wird, also unter vergleichbaren Bedingungen wie bei den im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Messungen [KOEPKE und HESS, 1988].

Vergleichbare Ergebnisse lieferten theoretische Betrachtungen von MI-SHCHENKO et al. [1997], welche die Verhältnisse der Streufunktionen von Aerosolen sphärischer Partikel zu denen staubähnlicher Aerosole modellierten, wobei für letztere eine Mischung zufällig orientierter, polydisperser Sphäroide angenommen wurde. Auch von MISHCHENKO et al. [1997] wurden nicht die Streufunktionen einzelner Partikel, sondern die des Aerosols untersucht, mit prolaten oder oblaten Partikeln, jeweils bis zu einem Aspektverhältnis von 2,2 und bis zu einem Mie-Größenparameter von 25. Die Streufunktionsverhältnisse waren bei Streuung in Seitwärts- und vor allem in Rückwärtsrichtung recht hoch, bei Streuung in extreme Vorwärtsrichtung bis 10° hingegen lagen die Verhältnisse der Streufunktionen für alle untersuchten Aspektverhältnisse unter 1,1, bei Aspektverhältnissen von 1,6 und größer im Streuwinkelbereich von 10° bis 20° waren die Verhältnisse der Streufunktionen immer noch nicht größer als 1,2 [MISHCHENKO et al., 1997].

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß im Streuwinkelbereich des FSSP-300 (3° bis 15°) die Streufunktion des nichtsphärischen Aerosols – wenn überhaupt – nur gering erhöht ist gegenüber der Mie-Streufunktion von Aerosol aus rein sphärischen Partikeln. Daher bestehen gegen den Einsatz des FSSP-300 zur Messung gealterten Wüstenstaubes keine prinzipiellen Bedenken.

Optische Absorption der Staubpartikel

Eine wegen der starken Auswirkung auf den Streuquerschnitt kritische Größe ist der Imaginärteil des komplexen Brechungsindex, der die Absorption der Teilchen beschreibt und einen wesentlichen Einfluß auf die Interpretation der Messungen hat. Die Absorption ist stark von der Wellenlänge des Lichts abhängig, weshalb die Wellenlänge immer zu berücksichtigen ist.

CARLSON und BENJAMIN [1980] haben die Ergebnisse mehrerer Autoren für die Absorption von Aerosol aus der Sahara und anderen Wüsten zusammengestellt. Bei der Wellenlänge von 632,8 nm weichen die Angaben um mehr als eine Größenordnung voneinander ab, die Spanne des Imaginärteils des Brechungsindex reicht von 0,001 (in CARLSON und BENJAMIN [1980] nach WEISS [1976], ohne weitere Publikationsangabe) bis 0,011 [FISCHER und HÄNEL, 1972]. Letztere haben Schiffsmessungen auf dem Atlantik ausgewertet und einen Imaginärteil des Brechungsindex von 0,011 für trockene Luft bis 0,004 für höhere Feuchten ermittelt. Die übrigen Werte in der Übersicht aus CARLSON und BENJAMIN [1980] liegen zwischen 0,003 und 0,007.

Auswirkungen der Absorption auf die Berechnung der FSSP-300-Größenverteilungen

Um die Auswirkungen für die Interpretation der FSSP-300-Messungen erkennen zu können, wurden im Rahmen dieser Arbeit Größenzuordnungstabellen für das FSSP-300 erstellt, und damit aus den Daten der höheren Staubschicht die Größenverteilungen für drei verschiedene Werte der Absorption berechet: 0,01, 0,004, 0,001, und zum Vergleich auch ohne Absorption (d. h. der Imaginärteil des Brechungsindex ist 0). In Abbildung 4.8 sind die vier Größenverteilungen zu sehen und die Auswirkung unterschiedlicher Absorption für die Interpretation von ansonsten identischen Meßdaten klar zu erkennen.

Da sich die Streufunktionen (siehe Abbildung 1.1 auf Seite 15) im wesentlichen nur im Bereich $d_P > 5 \ \mu m$ unterscheiden, trifft dies auch auf die Größenverteilungen zu. Die Unterschiede der Größenverteilungen haben zwei Ursachen:

- 1. Die Durchmesser, die den Kanälen bzw. Kanalgrenzen der Größenverteilung zugeordnet werden, ändern sich. Dies ist ein direkter Effekt der Absorption und kann auch bei identischer Kanalzusammenlegung auftreten.
- 2. Die Kanäle des FSSP-300 werden unterschiedlich zusammengelegt. Dies ist ein indirekter Effekt der Absorption, da er rein gerätespezifisch ist.

Der zweite Effekt ist nur bei zwei Kanälen des FSSP-300 der Fall: Für die Absorptionswerte 0 und 0,001 werden die Kanäle 26-28 zusammengelegt, für 0,004 und 0,01 die Kanäle 25-27. Alle anderen Kanalzuordnungen sind für alle vier Größenverteilungen identisch (siehe Anhang A.3). Die entscheidende Auswirkung der Absorption ist die Kanal-Durchmesser-Zuordnung, da es sich hier um einen direkten mikrophysikalischen Effekt des Staubaerosols handelt. Durch die Absorption wird die Effizienz, mit der ein Teilchen das Licht streut, geringer – beschrieben durch den Streueffizienzfaktor in Gleichung 1.6 (Seite 13). Die Folgen einer geringeren Streueffizienz können direkt aus dieser Gleichung abgelesen werden: Bei gleichem Durchmesser ist



Abbildung 4.8: Anzahlgrößenverteilung derselben Aerosolmessung bei Variation der Absorption (d. h. des Imaginärteils des Brechungsindex).

der Streuquerschnitt kleiner, und umgekehrt hat bei gleichem Streuquerschnitt das Teilchen einen größeren Durchmesser, zumindest in eindeutig umkehrbaren Bereichen der Streufunktion.

Dies ist auch in den Größenverteilungen zu sehen, bei denen sich die Absorption in erster Linie bei Teilchen größer als 10 μ m auswirkt, weil nur hier die Unterschiede in den Streufunktionen ausreichend groß sind. Die betreffenden Kanäle der Größenverteilung werden zu größeren Partikeldurchmessern hin verschoben, oder anders ausgedrückt: Die Konzentration der großen Partikel steigt an. Der Ausgleich – das Integral, d. h. die Gesamtkonzentration muß gleich bleiben – erfolgt in dem Größenintervall, das von etwa 5 μ m bis zu 10-12 μ m reicht; hier sinkt die Konzentration.

Der Sattel in der Größenverteilung bei ca. 12-15 μ m in den Fällen stärkerer Absorption (0,004 und 0,01) resultiert primär aus der unterschiedlichen Kanalzusammenlegung. Da dies nur ein indirekter Effekt ist, sollte der Sattel nicht überinterpretiert werden, d. h. es sollten keine weitreichenden Aussagen zur Mikrophysik des Staubaerosols daraus abgeleitet werden. Für die weitere Auswertung wurde der Wert aus PATTERSON et al. [1977] verwendet (m = 1, 55-0, 004i bei 632,8 nm), zumal dieser Wert für auf Teneriffa gesammeltes Sahara-Aerosol ermittelt wurde. Ähnliche Werte wurden auch von anderen Autoren zur Auswertung von Messungen verwendet, z. B. FORMENTI et al. [2000], die mit m = 1, 55 - 0, 005i bei 500 nm arbeiten.

4.6 Bei ACE-2 gemessene Größenverteilungen des Saharastaubes

FSSP-300 Größen- und Volumenverteilungen

Von beiden am 8. Juli 1997 beobachteten Staubschichten wurden aus den FSSP-300-Messungen mittlere Größen- und Volumenverteilungen berechnet. Die Formen von Größenverteilungen aus verschiedenen Bereichen innerhalb der höheren Staubschicht S_h waren nicht signifikant verschieden, nur die



Abbildung 4.9: Anzahlgrößenverteilung (durchgezogene Linien) und Partikelvolumengrößenverteilung (gestrichelt) des bei ACE-2 am 8. Juli 1997 gemessenen Saharastaubes. Die dunklen, doppelten Linien sind von der tieferen Staubschicht S_t , die hellen, einfachen Linien von der höheren Staubschicht S_h . Der zählstatistische Fehler wird durch die Fehlerbalken angegeben.

Gesamtkonzentration variierte leicht. In Abbildung 4.9 sind die Ergebnisse dargestellt. Die Größenverteilungen – und somit auch die Volumenverteilungen – der beiden Staubschichten S_t und S_h haben bei den Partikeln mit einem Durchmesser > 2 µm nahezu die gleiche Form, auch wenn die Konzentration der tieferen Staubschicht fast eine Größenordnung niedriger ist; Abweichungen sind geringer als der zählstatistische Fehler. Die Volumenverteilung hat in beiden Staubschichten ein Maximum zwischen 10 µm und 15 µm. Die Spitze in der Volumenverteilung bei ca. 12 µm resultiert aus dem Sattel der Größenverteilung bei ca. 12 µm, und es gilt dafür das gleiche, was im letzten Abschnitt zur Interpretation des Sattels gesagt wurde.

Vollkommen verschieden hingegen sind die Größenverteilungen der beiden Staubschichten im Bereich $< 2 \ \mu$ m. In diesem Größenbereich ist nicht nur die Partikelkonzentration, sondern auch die Form der Größenverteilung verschieden. Die tiefere Schicht zeigt hier einen steilen Anstieg zu kleineren Teilchen hin. Bei Partikeldurchmessern $d_P < 0,5 \ \mu$ m ist die Konzentration sogar größer als in der höheren Staubschicht S_h. Die Größenverteilung von S_h hingegen hat bei den kleineren Teilchen (0,45 - 0,7 \ \mum) ein Plateau.

Weitere Partikelmessungen bei ACE-2

Die Größenverteilung der kleineren Partikel – unterhalb des Detektionslimits des FSSP-300 – wurden von anderen Arbeitsgruppen gemessen [DE REUS et al., 2000]. Diese Messungen vom 8. Juli 1997 aus der höheren Staubschicht wurden aus DE REUS et al. [2000] entnommen und in Abbildung 4.10 zusammen mit den FSSP-300 Größenverteilungen eingezeichnet.

Es ist zu erkennen, daß die Partikelkonzentration der höheren Staubschicht unterhalb des FSSP-300-Meßbereiches weiter zunahm. Der Anstieg war aber nicht so stark wie bei der Größenverteilung der tieferen Staubschicht S_t. Für S_t liegen keine Auswertungen der kleineren Partikel mit entsprechender Größenauflösung vor. Eine hier nicht gezeigte Grobauswertung mit nur zwei Größenbereichen (Gesamtkonzentration PCASP und CPC) zeigt aber eine Tendenz, daß in S_t das Maximum der Größenverteilung zu etwas größeren Durchmessern zwischen 0,1 μ m und 0,4 μ m verschoben war. Die Partikelkonzentration von S_t lag im ganzen Größenbereich kleiner einem Mikrometer über der Konzentration, die in der höheren Staubschicht gemessen wurde.

Diskussion

Wie in der Einleitung zu Abschnitt 4.5 ausgeführt, wurde für den bei Teneriffa beobachteten äolischen Staub ein Maximum der Volumenverteilung zwischen 10 μ m und 20 μ m erwartet [JUNGE, 1977]. Dies wurde auch in beiden Staubschichten beobachtet.



Abbildung 4.10: Größenverteilung des bei ACE-2 am 8. Juli 1997 gemessenen Saharastaubes. Messungen des FSSP-300 (siehe Abbildung 4.9), ergänzt durch die Messungen von Kernzähler (CPC), DMA und PCASP aus DE REUS et al. [2000]. Die Meßbereiche der verschiedenen Instrumente sind oben eingetragen. Die blauen Linien sind zum Vergleich Bodenmessungen von den Kapverdischen Inseln aus JAENICKE und SCHÜTZ [1978].

Die Tatsache, daß Partikel dieser Größe noch nicht aussedimentiert sind, kann mit der Durchmischung der Staubschicht erklärt werden, da diese bedeutet, daß auch entsprechende Aufwinde in der Staubschicht auftreten. Die Tatsache, daß die Staubschicht durchmischt ist, läßt sich an dem Temperaturprofil ablesen (siehe Diskussion auf Seite 68). Nach STULL [1988, S. 450ff] liegen die thermischen Aufwinde in Mischungs-Schichten über Land in der Größenordnung 1 m s⁻¹. Dieser Wert kann sicher nicht direkt für die vorliegende Situation angenommen werden. Es liegen keine Messungen vor, und es gibt auch noch keine Modelle zu dieser Thematik [TRAUTMANN, persönliche Mitteilung]. Der Tabelle 4.1 kann aber entnommen werden, daß selbst Partikel mit 30 μ m Durchmesser nur eine Sedimentationsgeschwindigkeit von 0,075 m s⁻¹ haben. Aufwinde in dieser Größenordnung – deutlich geringer

als für Mischungs-Schichten üblicherweise anzunehmen – würden also bereits zur Stabilisierung ausreichen.

Die Partikelmessungen mit dem FSSP-300, die im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführt wurden, passen sehr gut mit den anderen bei ACE-2 gemachten Partikelmessungen überein [DE REUS et al., 2000] (Abbildung 4.10). Es ist in diesem Zusammenhang auch zu berücksichtigen, daß drei vollkommen verschiedene Meßmethoden zum Einsatz kamen: Der CPC ist ein thermodynamisches Meßgerät, mit dem DMA werden Mobilitätsdurchmesser bestimmt, PCASP und FSSP-300 schließlich sind optische Meßverfahren.

Die Unterschiede der Größenverteilungen von höherer und tieferer Staubschicht könnten mehrere Ursachen haben.

- Zum einen ist es möglich, daß der unterschiedliche Ursprung der Luftmassen eine Ursache ist, d. h. daß schon das Hintergrundaerosol vor der Staubaufnahme unterschiedlich war. Die Rückwärtstrajektorien der höheren Staubschicht liegen einen bis fünf Tage vor der Messung ausschließlich über Afrika, primär über den Wüstengebieten. Die Rückwärtstrajektorien wurden nicht weiter zurückgerechnet, was wegen des größer werdenden Fehlers auch nicht sinnvoll ist. Die Luft der tieferen Schicht bewegte sich an den beiden Tagen vor der Messung über dem Atlantik und davor über dem nördlichen Marokko bzw. der Iberischen Halbinsel.
- Zum anderen ist es aber auch möglich, daß unterschiedliche Quellcharakteristik des Staubaerosols zu den verschiedenen Größenverteilungen führt. Messungen mineralischer Aerosole aus verschiedenen Wüstenregionen Afrikas von D'ALMEIDA und SCHÜTZ [1983] zeigen ein Maximum der Größenverteilung im Bereich zwischen 0,1 μ m und 0,2 μ m, was mit den hier vorgestellten Messungen von ACE-2 übereinstimmt. Die von D'ALMEIDA und SCHÜTZ [1983] gemessenen Größenverteilungen zeigen Unterschiede zwischen dem Aerosol aus verschiedenen Quellregionen. So unterscheiden sich im Durchmesserbereich um $1,5 \ \mu m$ die Konzentrationen von zwei verschiedenen Quellregionen um eine Größenordnung, während dieselben Größenverteilungen in anderen Größenbereichen nicht so stark voneinander abweichen. Die von D'AL-MEIDA und SCHÜTZ [1983] vorgestellten Messungen stammen aus Gegenden, die im Quellgebiet der höheren Staubschicht S_h lagen. Aus den (vermutlichen) Quellgebieten der tieferen Staubschicht liegen keine vergleichbaren Messungen vor.

Auf Basis der Größenverteilungen läßt sich die optische Dicke der Staubschicht (AOD – *aerosol optical depth*) abschätzen. Zur Herleitung der optischen Dicke siehe Gleichung 6.1 auf Seite 117 und die Erläuterungen dort. Bei einer Schichtdicke von 3500 m und einem mittleren Extinktionskoeffizienten von 0,075 km⁻¹ erhält man eine optische Dicke von ca. 0,26 [TRAUTMANN et al., 2003][in Vorbereitung]. Von FORMENTI et al. [2000] wurden am 8. Juli 1997 zwischen 7.00 und 13.00 Uhr auf Teneriffa AOD-Werte von 0,14 bis 0,15 gemessen (am Nachmittag sanken die Werte auf ca. 0,11). Es ist zu berücksichtigen, daß diese bodengestützten Messungen auf dem Vulkan Teide in 3600 m und damit innerhalb der Staubschicht erfolgten. Wenn man nur die Schichtdicke von 3600 m bis zum während des Fluges gemessenen Oberrand der Schicht bei ca. 5700 m berücksichtigt, erhält man aus den in-situ-Aerosolmessungen eine optische Dicke von 0,156, was als gute Übereinstimmung mit den Bodenmessungen von FORMENTI et al. [2000] zu sehen ist [TRAUTMANN et al., 2003][in Vorbereitung].

Literaturvergleich

Frühere Bodenmessungen von den Kapverdischen Inseln von JAENICKE und SCHÜTZ [1978] (siehe auch SCHÜTZ [1977]) sind als blaue Linien ebenfalls in Abbildung 4.10 eingezeichnet. Diese Messungen zeigen in einigen Punkten Ähnlichkeiten mit den Flugzeugmessungen vom 8. Juli 1997. Die obere, mit blauen Kreisen markierte Kurve stammt aus einer Periode erhöhter Aerosolkonzentration und ähnelt, auf Grund der Steigung im mittleren Bereich um 1 μ m der Größenverteilung, der höheren Staubschicht S_h. Die beiden anderen Messungen von den Kapverdischen Inseln zeigen hingegen auch den steilen Anstieg zu kleineren Partikeln unterhalb 0,8 μ m und einen flacheren Verlauf der Größenverteilung bei den Teilchen größer 0,8 μ m. Dies entspricht dem Verlauf der Größenverteilung der tieferen Staubschicht S_t, dort ist der Übergang bei 1 μ m.

Der Vergleich zeigt auch, daß im Bereich der großen Teilchen, oberhalb des Meßbereiches des FSSP-300, nicht mit einer weiteren Mode des Aerosols zu rechnen ist. Diese als "Riesenteilchen" bezeichneten Partikel sind auf dem Weg von der Quelle des Aerosols zum Meßort im wesentlichen aussedimentiert. Dieser Alterungsprozeß des Aerosols ist in Abbildung 4.11 bei einem Vergleich der ACE-2-Messungen mit den Größenverteilungen aus SCHÜTZ und JAENICKE [1974] zu erkennen (siehe auch die allgemeinen Ausführungen in Abschnitt 4.5 auf Seite 74). Verschiedene Bodenmessungen in der Sahara aus SCHÜTZ und JAENICKE [1974] zeigen eine von der Form her ähnliche Größenverteilung, unabhängig von der Gesamtkonzentration. Im Größenbereich zwischen 2 μ m und etwa 12 μ m haben die am 8. Juli 1997 bei Teneriffa gemessenen Größenverteilungen nahezu die gleiche Steigung wie die mittlere Größenverteilung in der Sahara. Zu größeren Teilchen hin brechen die bei ACE-2 gemessenen Größenverteilungen jedoch ab und haben in diesem Größenbereich fast die gleiche Steigung wie die Größenverteilung, die auf dem Atlantik gemessen wurde, die also auch ein durch Sedimentation gealtertes Aerosol repräsentiert.



Abbildung 4.11: Größenverteilung des bei ACE-2 am 8. Juli 1997 gemessenen Saharastaubes (braune und beige Linien, siehe Abbildung 4.9) im Vergleich zu Bodenmessungen in der Sahara und Schiffsmessungen auf dem Atlantik (blaue Linien, aus SCHÜTZ und JAENICKE [1974]).

4.7 Résumé

Bei der Meßkampagne ACE-2 wurden am 8. Juli 1997 von Teneriffa aus Flugzeugmessungen von äolischem Staub durchgeführt. Hierbei konnten zwei getrennte Staubschichten beobachtet werden, eine niedrige in bis zu 1500 m Höhe und eine höhere zwischen 2500 m und 6000 m. Die Wetterlage am Meßtage war nahezu idealtypisch mit einem Höhen-Hochdruckgebiet östlich von Teneriffa und einer Passat-Wetterlage in den bodennahen Schichten. Durch eine Analyse von Rückwärtstrajektorien konnte gezeigt werden, daß die beiden Staubschichten zu zwei verschiedenen Luftmassen gehörten, die von zwei Windsystemen in das Meßgebiet geführt worden waren, dem Passat und dem Ausläufer des Saharan air layer.

Die Analyse der Messungen mit dem FSSP-300 erforderte in Hinblick auf die Interpretation der Meßdaten einige Vorüberlegungen bezüglich der mirkophysikalischen Eigenschaften der Staubpartikel. Entscheidende Größe ist hierbei die optische Absorption der Staubpartikel. Dadurch müssen den größeren Kanälen des FSSP-300 signifikant größere Durchmesser zugeordnet werden, als es ohne Absorption der Fall wäre.

Das Maximum der mit dem FSSP-300 gemessenen Volumengrößenverteilung des Saharastaubes lag bei beiden Staubschichten in dem zu erwartenden [JUNGE, 1977] Größenbereich um ca. 15 μ m. Die Anzahlgrößenverteilung zeigte eine Staubmode mit einem Maximum bei 1 μ m bis 2 μ m Partikeldurchmesser.

Die beiden beobachteten Staubschichten unterschieden sich in der Gesamtkonzentration der mit dem FSSP-300 beobachteten Partikel. In der höheren Schicht S_h betrug die Partikelkonzentration 10 cm⁻³, in S_t nur 3 cm⁻³. Die Größenverteilungen unterschieden sich deutlich voneinander im Partikeldurchmesserbereich < 1 μ m. Im Meßbereich des FSSP-300 stieg die Größenverteilung der tieferen Staubschicht zu kleineren Partikeln hin steil an, im Gegensatz zur Größenverteilung der höheren Staubschicht, die in dem betreffenden Größenbereich flach verlief. Messungen der kleineren Partikel unter dem Meßbereich des FSSP-300 [DE REUS et al., 2000] zeigten, daß das Maximum der Größenverteilung von S_h bei 0,1 μ m lag.

Ein Literaturvergleich zeigte in mehreren Punkten Übereinstimmungen mit Bodenmessungen in den Quellgebieten des Staubes in der Sahara und in Sedimentationsgebieten im Atlantik (SCHÜTZ und JAENICKE [1974] bzw. JAENICKE und SCHÜTZ [1978]).

4.8 Ausblick

In der Regel gehen Berechnungen des Strahlungshaushalts und atmosphärischer Heizraten – bei der Einbindung von Wüstenstaubdaten in die Modelle – von Bodenmessungen oder Modellaerosolen aus (siehe u. a. QUIJANO et al. [2000]). Die Schichtung wird dabei von Fernmeßmethoden wie z. B. Lidar abgeleitet. Mit den hier vorgelegten Daten zu Schichtung und Größenverteilung des Aerosols können nun auch solche Berechnungen auf Basis von in-situ-Messungen des Staubes durchgeführt werden [TRAUTMANN et al., 2003] [in Vorbereitung].

Die hier vorgestellten Messungen gehören zu den nach wie vor wenigen in-situ-Messungen hochreichender Staubschichten. Daher ist es nötig, die Datenbasis durch weitere Messungen zu verbessern. Hierbei sollte nach Möglichkeit der gesamte Größenbereich des Staubaerosols erfaßt werden.

Kapitel 5

Das Hintergrundaerosol in der Stratosphäre

5.1 Zielsetzung

In diesem Kapitel sollen in-situ-Messungen des stratosphärischen Aerosols – der Junge-Schicht –, die im Rahmen der vorliegenden Arbeit in den Jahren 1996 bis 1998 durchgeführt wurden, in einem größeren Zusammenhang betrachtet werden. Hierzu dienen Vergleiche mit früheren in-situ-Messungen und langjährigen Lidar-Messungen, vor allem im Zusammenhang mit dem Ausbruch des Vulkans Pinatubo. Ziel dieser Arbeit war weiterhin ein Vergleich des Aerosols in verschiedenen Perioden ohne direkten vulkanischen Einfluß.

In der Einführung im folgenden Abschnitt werden die Theorien zum Ursprung der Junge-Schicht vorgestellt. Erläuterungen zu den verwendeten Daten von in-situ-Messungen folgen in Abschnitt 5.3. In Abschnitt 5.4 werden Langzeitbeobachtungen und Daten zu Vulkanausbrüchen vorgestellt. Die Auswertung von in-situ-Messungen mit FSSP-300 – eigene Messungen und frühere Messungen anderer Arbeitsgruppen – erfolgt in den Abschnitten 5.5 bis 5.6, wobei sowohl räumliche und zeitliche Entwicklung, als auch die Größenverteilungen betrachtet werden.

5.2 Einführung

Bereits in den 1950er Jahren wurde von C. Junge die nach ihm benannte Aerosolschicht in der Stratosphäre beschrieben, die aufgrund einer erhöhten Aerosolkonzentration zu identifizieren ist [JUNGE et al., 1961; JUNGE und MANSON, 1961]. Die Junge-Schicht kann immer und an allen Stellen der Erde beobachtet werden. Die Höhe, in der diese Schicht auftritt, ist nicht einheitlich, sondern nimmt von den tropischen Breiten zu den Polen hin ab. Das Maximum der Schicht – d. h. das Maximum der Partikelkonzentration – liegt in den Tropen bei etwa 25 km, in den Polarregionen bei etwa 17 km. Die Mächtigkeit der Schicht liegt zwischen 3 und 10 km. Die Partikelkonzentration ist nicht konstant, es gibt Zeiten hoher und Zeiten niedrigerer Konzentration. Dies wird in diesem Kapitel noch genauer untersucht. Die Partikel bestehen im wesentlichen aus Schwefelsäure mit einer Konzentration von 60 bis 86 Gewichtsprozenten. Die Konzentration der Schwefelsäure nimmt mit der Höhe zu wegen der geringer werdenden Wasserdampfkonzentration und der steigenden Temperatur [YUE et al., 1994]. Der Ursprung der Partikel, die diese Schicht bilden ist noch nicht abschließend geklärt, es gibt mehrere Hypothesen:

- Eintrag von Aerosolpartikeln aus der Troposphäre: Aerosolpartikel werden in der oberen Troposphäre gebildet und gelangen dann in die Stratosphäre. Dies ist primär in den Tropen von Bedeutung auf Grund der hochreichenden Konvektion in dieser Region. Durch die stratosphärische Strömung werden die Partikel global verteilt [BROCK et al., 1995].
- Heterogene Nukleation in der Stratosphäre: In der Stratosphäre vorhandene Partikel dienen als Kondensationskeime für das Schwefelsäureaerosol. Diese Partikel können vulkanischen Ursprungs sein, oder es sind metallische Partikel, die aus verdampfenden Meteoriten entstehen [TURCO et al., 1982]. Solche Partikel stellen mit unter 10% aber nur einen geringen Anteil des stratosphärischen Aerosols [SHERIDAN et al., 1994].

Homogene Nukleation von OCS und CS₂ in der Stratosphäre:

Das Aerosol der Junge-Schicht bildet sich aus den Ausgangsgasen OCS (Carbonylsulfid, auch COS abgekürzt) und CS₂. Quellen für OCS sind die Ozeane, Oxydation von CS₂ und anthropogene Quellen. Das OCS wird in der Stratosphäre zu SO₂ oxidiert [WARNECK, 1988, S. 497f]. Dies ist eine wichtige Quelle für das stratosphärische Aerosol. Ob mit diesem Prozeß alleine der Aufbau der Junge-Schicht erklärt werden kann, ist indes noch nicht abschließend geklärt. Es gibt Untersuchungen, die dafür sprechen [WILSON et al., 1997] und solche, die dagegen sprechen [CHIN, 1992; CHIN UND DAVIS, 1995; LEUNG et al., 2001].

Homogene Nukleation von SO_2 , das aus der oberen Troposphäre eingemischt wurde: Nach Modellierungen von MILLS [1996] ist dieser Prozeß möglicherweise wichtiger als die homogene Nukleation von OCS. Als Quelle für das SO_2 kommen auch kleinere Vulkanausbrüche in Frage, die zwar nicht bis in die Stratosphäre reichen, aber ausreichend SO_2 in die Troposphäre freisetzen, welches dann langsam in die Stratosphäre gelangt [HITCHMAN et al., 1994]. Homogene Nukleation von SO₂ großer Vulkanausbrüche: Durch große Vulkanausbrüche gelangen große Mengen SO₂ direkt in die Stratosphäre. Neben einer nur wenige Jahre anhaltenden starken Erhöhung der Aerosolkonzentration hat diese Quelle aber möglicherweise auch einen länger anhaltenden Einfluß, wie aus einer Studie von THOMA-SON et al. [1997a] gefolgert werden kann.

Die verschiedenen Hypothesen widersprechen sich nicht gegenseitig, es ist nicht nur möglich, sondern wahrscheinlich, daß jeder dieser Prozesse einen mehr oder weniger großen Beitrag zum Aufbau des stratosphärischen Aerosols liefert. Genaueren Aufschluß hierüber könnten in Zukunft beispielsweise Messungen mit Aerosol-Massenspektrometern liefern. Hierbei wird die Zusammensetzung einzelner Aerosolpartikeln in Hinblick auf chemische Verbindungen und Elemente bzw. Isotope untersucht. MURPHY et al. [1998] konnten mit dieser Technik in stratosphärischen Aerosolpartikeln Quecksilber und meteoritisches Material nachweisen, meist in jeweils unterschiedlichen Partikeln. Hieraus läßt sich folgern, daß zumindest ein Teil der Partikel (d. h. zumindest die Kondensationskerne) troposphärischen Ursprunges ist (bei Quecksilber) oder aus der oberen Atmosphäre stammt (bei Rückständen von Meteoriten) [MURPHY et al., 1998].

Ein wesentlicher Punkt in mehreren der aufgeführten Szenarien ist die Umwandlung von SO_2 in H_2SO_4 . Dieser Prozeß erfolgt in mehreren Reaktionsschritten (siehe z. B. BEKKI [1995]):

$$\begin{array}{rcl} \mathrm{SO}_2 + \mathrm{OH} + \mathrm{M} & \longrightarrow & \mathrm{HOSO}_2 + \mathrm{M} \\ \mathrm{HOSO}_2 + \mathrm{O}_2 & \longrightarrow & \mathrm{HO}_2 + \mathrm{SO}_3 \\ \mathrm{SO}_3 + \mathrm{H}_2 \mathrm{O} & \longrightarrow & \mathrm{H}_2 \mathrm{SO}_4 \end{array}$$
(5.1)

Die Schwefelsäure ist zunächst gasförmig, aber auf Grund des sehr niedrigen Dampfdruckes in der Atmosphäre stark übersättigt. Über den Prozeß der "gas-to-particle-conversion" (GPC) bildet sich aus dem Schwefelsäuredampf das Sulfataerosol:

$$H_2SO_4(Dampf) + H_2O \longrightarrow (GPC) \longrightarrow Sulfataerosol.$$
 (5.2)

Die Umwandlung des SO₂ in Sulfataerosol geschieht mit einer gewissen Zeitkonstante. Auch für den Rückgang des Aerosols gibt es entsprechende Zeitkonstanten. Als Zeitkonstante wird üblicherweise die Zeit angegeben, in der die Menge eines bestimmten Stoffes – zunächst SO₂ und dann die Konzentration der Aerosolpartikel – auf 1/e der Ausgangsmenge zurückgegangen ist; diese Zeit wird im Folgenden kurz mit "1/e-Zeit" oder $\tau_{1/e}$ bezeichnet.

Beobachtungen mit Satelliten und Modellrechnungen für die Umwandlung von SO₂ in stratosphärisches Sulfataerosol ergaben beim Ausbruch des El Chichon übereinstimmend eine 1/e-Zeit von 30 bis 40 Tagen [HEATH et al., 1983; MCKEEN et al., 1984] bzw. 39 Tagen [PINTO et al., 1989]. Nach

prä St. Helens	Hintergrundaerosol	bis Mai 1980			
Ausbruch des El Chichon, 4. April 1982					
El Chichon-Aerosol	vulkanisches Aerosol	bis 1985			
prä Pinatubo	Hintergrundaerosol	bis Juni 1991			
(=post El Chichon)	(höhere Konzentration als				
	prä St. Helens)				
Ausbruch des Pinatubo, 15. Juni 1991					
Pinatubo-Aerosol	vulkanisches Aersol bis 1996				
post Pinatubo	Hintergrundaerosol (Konzen-	bis heute			
	tration wie prä St. Helens,	(2003)			
	mittlerweile sogar niedriger)				

Tabelle 5.1: Die verschieden Phasen des stratosphärischen Aerosols im Kontext der beiden großen Vulkanausbrüche dieses Zeitraums.

dem Ausbruch des Pinatubo wurden von Satellitenmessungen 1/e-Zeiten von 33 bzw. 35 Tagen ermittelt [READ et al., 1993; BLUTH et al., 1992].

In den letzten 25 Jahren haben vor allem zwei Vulkanausbrüche einen starken und mehrere Jahre anhaltenden Einfluß auf die Junge-Schicht gehabt: der Ausbruch des El Chichon in Mexiko am 4. April 1982 und der Ausbruch des Pinatubo auf den Philippinen am 15. Juni 1991. Der Zeitraum kann in Phasen reinen Hintergrundaerosols in der Junge-Schicht und in solche vulkanisch beeinflußten Aerosols unterteilt werden. Bezüglich der Partikelanzahlkonzentration ist diese Einteilung willkürlich, es sind jedoch Unterschiede in der Größenverteilung des Aerosols zu beobachten [JÓNSSON et al., 1996] (siehe auch Abbildung 5.8). Schon vor dem Ausbruch des El Chichon war in der Junge-Schicht eine erhöhte Aerosolkonzentration zu beobachten durch den Ausbruch des Mount St. Helens (1980) und des Alaid (1981). Die Aerosolkonzentration vor dem Ausbruch des Mount St. Helens ist ein wichtiges Referenzmaß, da in dieser Zeit die Aerosolkonzentration der Junge-Schicht ein mehrere Jahre andauerndes Minimum erreicht hatte. In Tabelle 5.1 sind die einzelnen Phasen aufgeführt, die in dieser Arbeit mit der fettgedruckten Bezeichnung in der ersten Spalte benannt werden.

Die Bedeutung des vulkanischen Aerosols in der Junge-Schicht geht über den primären Effekt der Erhöhung der Partikelkonzentration hinaus. Partikel mit einem Durchmesser > 0, 1 μ m haben durch Absorption und Emission infraroter Strahlung Einfluß auf den Strahlungshaushalt der Stratosphäre. Hierdurch ändert sich nicht nur die Temperatur in den betreffenden Bereichen, sondern es kommt auch zu Veränderungen der stratosphärischen Zirkulation [WORLD METEOROLOGICAL ORGANIZATION 1994, 1994]. Dies hat wiederum Einfluß auf den Ozonhaushalt in der Stratosphäre. Das Ozon wird aber hauptsächlich direkt durch heterogene chemische Prozesse unter direkter Beteiligung der stratosphärischen Aerosolpartikel beeinflußt, d. h. zerstört. Erhöhte Partikelkonzentrationen verursachen eine Reduktion des Ozons während Winter und Frühjahr in den außertropischen Gebieten [WORLD METEOROLOGICAL ORGANIZATION 1998, 1998][siehe auch FAHEY et al., 1993]. Das vulkanische Aerosol hat also sowohl thermische als auch chemische Effekte.

5.3 Datenbasis und Datenverarbeitung

In dieser Arbeit wurden in-situ-Messungen aus den Jahren 1988 bis 1998 ausgewertet, die alle mit Meßgeräten des im 2. Kapitel beschriebenen Typs (FSSP-300) gemacht wurden. Daher ist eine durchgehende Vergleichbarkeit der Messungen gegeben. Eine Übersicht über die verschiedenen Meßkampagnen, von denen Ergebnisse verwendet wurden, ist auch der Tabelle 5.2 zu entnehmen.

AASE I, AASE II und SPADE waren US-amerikanischen Meßkampagnen mit dem Höhenforschungsflugzeug ER2. Sie wurden in den Jahren 1988 bis 1993 durchgeführt und umfassen somit die prä-Pinatubo-Periode und die Zeit des Pinatubo-Aerosols. Die FSSP-300-Messungen wurden von einer Arbeitsgruppe des NCAR (National Center for Atmospheric Research) durchgeführt. Die Daten wurden für diese Auswertung zur Verfügung gestellt [BORRMANN, persönliche Mitteilung, siehe Anhang C.3].

APE I, APE-ETC waren europäische Meßkampagnen, POLSTAR 1 und POLSTAR 2 deutsche Meßkampagnen. Sie wurden in den Jahren 1996 bis 1998 durchgeführt und liegen folglich in der post-Pinatubo-Periode. Die Messungen bei diesen vier Meßkampagnen wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführt.

Während der AASE-I-Meßkampagne wurden bei mehreren Flügen polare Stratosphärenwolken beobachtet, was anhand der gemessenen Temperaturen und der berechneten Sättigungstemperatur von Salpetersäuretrihydrat (NAT) eindeutig zu erkennen ist. Die Daten dieser Flüge wurden hier nicht verwendet. Weiterhin wurden – da nur das Hintergrundaerosol betrachtet werden soll – bei allen Flügen diejenigen Datensätze, die Wolkenmessungen enthalten, nicht berücksichtigt. Hierzu wurde das Verhältnis von Partikelvolumen bzw. Partikeloberfläche zu Partikelanzahl als Indikator verwendet und der betreffende Datensatz als Wolkenmessung verworfen, wenn dieser Indikator über einem bestimmten Grenzwert lag. Insgesamt wurden bei der Auswertung die Daten von 64 Flügen berücksichtigt.

Anhand der Vertikalprofile der verschiedenen Meßperioden wurden bestimmte Höhenbänder – bezüglich der potentiellen Temperatur – für die Analyse ausgewählt, dies sind 350 K, 410 K, 450 K und 480 K. Als Maß für die Höhe hat die potentielle Temperatur (θ) gegenüber der geometrischen Höhe in Metern den Vorteil, daß adiabatische Bewegungen von Luftpake-

pra P	matubo:						
	Messungen anderer Arbeitsgruppen:						
	US-amerikanische Meßkampagnen mit der ER2:						
	AASE I	Dez. 1988 – Feb. 1989	Stavanger (Norwegen)				
Pinatubo-Aerosol:							
	AASE II	Aug. 1991 – März 1992	Fairbanks (Alaska)				
			Bangor (Maine)				
	SPADE	Okt./Nov. 1992	Moffett Field				
		April/Mai 1993	(Kalifornien)				
post Pinatubo:							
	Messungen im Rahmen der vorliegenden Arbeit:						
	Kampagnen mit der Geopysika:						
	APE I	Nov./Dez. 1996	Pratica di Mare (Italien)				
		Dez. 1996 / Jan. 1997	Rovaniemi (Finnland)				
	APE-ETC	Dez. 1998	Forli (Italien)				
	Kampagnen mit Falcon und Learjet:						
	POLSTAR 1	Jan./Feb. 1997	Kiruna (Schweden)				
	POLSTAR 2	Jan./Feb. 1998	Kiruna (Schweden)				

Tabelle 5.2: Übersicht über die Meßkampagnen, von denen Daten für die Auswertung verwendet wurden, mit Angabe von Zeitraum und Startflughafen der Flugzeuge.

ten bei der Darstellung nicht berücksichtigt werden, da ein Luftpaket seine potentielle Temperatur behält, solange keine diabatischen Prozesse ablaufen. Die potentielle Temperatur kann in der unteren Stratosphäre für einen Zeitraum von mehreren Tagen als konservative Größe angenommen werden [LOEWENSTEIN et al., 1990]. Die Tropopause liegt in den arktischen Regionen um 300 K (Werte von APE I), steigt zu den mittleren Breiten hin auf etwa 340 K an (Werte von APE I und APE-ETC) und erreicht in den Tropen um 380 K (Werte von APE-THESEO). Die für die Auswertung ausgewählten Temperaturflächen entsprechen im Mittel Druckhöhen von 12,1, 16,3, 18,8 und 19,4 km mit einer Standardabweichung von etwa 0,75 km. Sowohl für größere als auch für niedrigere Werte der potentiellen Temperatur stehen nicht mehr ausreichend viele Meßdaten des FSSP-300 zur Verfügung, da sich die Flugzeuge zu selten in den entsprechenden Höhen aufgehalten haben. Ausgehend von Mittelwerten über zehn Sekunden, wurden Datensätze im Bereich der gewünschten potentiellen Temperatur ausgewählt, wobei jeweils θ -Temperaturbänder von ± 3 K um die oben angegebenen potentiellen Temperaturen berücksichtigt wurden. Über zusammenhängende Datensätze wurde anschließend gemittelt. Für die weitere Auswertung wurden nur Mittelungszeiten von über einer Minute verwendet. Auch für die farbkodierten Profile (Abbildungen 5.3 und 5.4) wurden aus zählstatistischen Gründen 60 s-Mittelwerte berechnet.

Für die weitere Auswertung ist bei den Messungen während des Winters noch zu berücksichtigen, ob die Daten aus dem Bereich des polaren Vortex stammen oder nicht. Der polare Vortex bildet sich im Winter als Folge diabatischer Abkühlung der Luft durch Abstrahlung im Infraroten. Es bildet sich ein Höhentiefdruckgebiet. Die Luft im Vortex sinkt ab, es kommt zu einer Verbindung von unterer und oberer Stratosphäre, und es wird auch Luft aus der Mesosphäre eingemischt. Durch Temperatur- und Druckgradienten zu den mittleren Breiten hin entstehen meridionale Ausgleichswinde, die durch die Corioliskraft abgelenkt werden. Hierdurch bildet sich schließlich der Vortex. Die Vortexuntergrenze liegt im allgemeinen einige Kilometer oberhalb der Tropopause, die Vortexobergrenze bei ca. 30 km. Der Austausch von Luft aus dem Vortex zu mittleren Breiten durch die Vortexwand hindurch ist stark eingeschränkt.

Eine Unterscheidung zwischen innerhalb und außerhalb des Vortex betrifft die Höhen mit einer potentiellen Temperatur von 450 und 480 K. Die Höhen mit 410 und 350 K liegen unterhalb des Vortex. Der Vortex kann schon anhand niedrigerer Aerosolkonzentrationen identifiziert werden [BORRMANN et al., 1993, 1995] (siehe Abschnitt 5.5). Als unabhängige Indikatoren, Messungen innerhalb und außerhalb des Vortex zu unterscheiden, dienten vor allem die N₂O Werte oder – wenn es keine entsprechenden Messungen gab – die Ozonwerte. Wegen der Absinkbewegung der Luft innerhalb des Vortex sind dort die N_2O Werte bei gleicher potentieller Temperatur niedriger als außerhalb, der Übergang erfolgt über wenige Grad geographischer Breite, und die Absolutwerte sind abhängig von der potentiellen Temperatur [LOEWENSTEIN et al., 1990]. Bei Ozon werden umgekehrt innerhalb des Vortex höhere Werte beobachtet. Zur Unterscheidung, ob Luft von außer- oder innerhalb des Vortex gemessen worden war, wurden für $\theta =$ 450 K Mischungsverhältnisse von 175 ppb N_2O bzw. 2500 ppb Ozon, für $\theta = 480$ K Mischungsverhältnisse von 150 ppb N₂O bzw. 3000 ppb Ozon als Grenzwert verwendet.

5.4 Langzeitbeobachtungen der Junge-Schicht

Zunächst soll die längerfristige Entwicklung der Junge-Schicht dargestellt werden. Kontinuierliche Messungen sind mit Lidar und von Satelliten aus möglich. JÄGER et al. [1999] haben die Zeitreihe der Lidarstation in Garmisch-Partenkirchen veröffentlicht. Die Daten wurden für Abbildung 5.1 von dort übernommen. Bei den Meßwerten handelt es sich um den Partikelrückstreukoeffizienten, integriert über den Bereich von einem Kilometer über der Tropopause bis zum oberen Rande der Junge-Schicht [JÄGER und



Abbildung 5.1: Langzeitmessung des Lidar in Garmisch-Partenkirchen (Lidar-Daten aus JÄGER et al. [1999]; JÄGER [2001]) und in diesem Zeitraum liegende Vulkanausbrüche; Erläuterungen im Text.

HOMBURG, 1998]. Dieser Wert ist proportional zur Partikelkonzentration in der Junge-Schicht.

In die Graphik wurden ferner die Daten von Vulkanausbrüchen eingetragen. Diese wurden Listen aus drei verschiedenen Quellen entnommen. Die drei Datensätze stimmen nicht genau überein, manche Vulkanausbrüche sind nur in jeweils einem Datensatz vermerkt. Die Einheit VEI Volcanic Explosivity Index haben die Daten aus BLUTH et al. [1997] (graue, ausgefüllte Dreiecke) und NOAA-NESDIS [Internetquelle] (leere Dreiecke). Die Daten aus HAYAKAWA [Internetquelle] haben die Einheit "Magnitude" (senkrechte Striche).

Magnitude (M)ist eine logarithmische Skala mit $M = \log m_T - 7$. Hierbei ist m_T die sogenannte Tephramasse in kg. Mit Tephra werden die durch Gase mitgerissenen vulkanischen Auswurfprodukte bezeichnet, wobei Lava nicht berücksichtigt wird. Der Volcanic Explosivity Index ist eine Größe, in die mehrere für die explosive Stärke eines Vulkanausbruchs maßgebliche Parameter eingehen, vor allem das Volumen des ausgeworfenen Materials, die Höhe der Säule, die Dauer des Ausbruchs, der Eintrag von Material in die Troposphäre und Stratosphäre sowie die Klassifikation und Art des Ausbruchs [NEWHALL und SELF, 1982].

Im Gegensatz zu explosiven Vulkanausbrüchen – z. B. dem des Pinatubo – ist die Bedeutung effusiver Vulkane (z. B. der Ätna) für das stratosphärische Aerosol noch nicht geklärt. Die Auswirkungen eines explosiven Vulkanausbruchs auf die Stratosphäre sind von vielen Faktoren abhängig und insbesondere bei kleineren Vulkanausbrüchen schwer abzuschätzen. Neben dem VEI sind auch die Eruptionsrate, der Abstand des Vulkans zur Tropopause, damit auch die geographische Lage und nicht zuletzt die Menge des emittierten SO₂ von Bedeutung. Man kann also nicht nur von der Stärke eines Ausbruchs (VEI oder M) auf die Relevanz für die Stratosphäre schließen [BLUTH et al., 1997].

Die in der Tabelle auf Seite 90 eingeführten Perioden sind ebenfalls in Abbildung 5.1 eingetragen. Folgende Punkte seien an der Zeitreihe Lidar-Messungen in dieser Abbildung hervorgehoben:

- Das Maximum des Lidarsignals (Partikelrückstreuung) wird erst mehrere Monate nach dem Vulkanausbruch erreicht, sowohl beim Ausbruch des El Chichon als auch beim Ausbruch des Pinatubo.
- In der Periode des El Chichon-Aerosols und des Pinatubo-Aerosols wurden Regressionsgeraden in der Zeitreihe eingetragen. Der Rückgang des Vulkanaerosols in der Stratosphäre erfolgt mit einer 1/e-Zeit von einem Jahr, wenn die Partikelrückstreuung zugrunde gelegt wird. Bei Umrechnung zu anderen Größen Gesamtmasse, -oberfläche oder optische Dicke ergeben sich längere 1/e-Zeiten 1,08, 1,38 bzw. 1,2 Jahre –, da sich die Größenverteilung des Aerosols mit der Zeit ändert. Jede Variable hat also ihre eigene 1/e- Zeit [JÄGER et al., 1997] (1/e-Zeiten für den Pinatubo-Ausbruch). Die Werte passen auch zu den Daten anderer Veröffentlichungen, wobei bei kleinen Vulkanausbrüchen kürzere 1/e-Zeiten gemessen wurden [BLUTH et al., 1997].
- In der Zeit des Rückganges des Vulkanaerosols sind im Lidarsignal jährliche periodische Schwankung zu erkennen. Diese sind von der Jahreszeit und nicht vom zeitlichen Abstand zum Vulkanausbruch abhängig.
- Das Niveau des Hintergrundaerosols in der prä-St.-Helens-Periode ist in der Zeitreihe markiert. Nach der Phase des El Chichon-Aerosols wurde es zunächst nicht wieder erreicht. Die Partikelrückstreuung – d. h. die Aerosolkonzentration der Junge-Schicht – war in der prä-Pinatubo-Periode mehr als doppelt so hoch wie in der prä-St.-Helens-Periode. Der Grund hierfür ist noch nicht abschließend geklärt. Erst in der post-Pinatubo-Periode wurden die niedrigen Werte der prä-St.-Helens-Periode wieder erreicht und mittlwerweile sogar unterschritten.

 Es fällt auf, daß die zur Verfügung stehenden Statistiken in der post-Pinatubo-Periode weniger Vulkanausbrüche verzeichnen als in der prä-Pinatubo-Periode. Dies allein kann aber nach dem oben bereits gesagten noch nicht als hinreichende Begründung für die unterschiedliche Ausprägung der Junge-Schicht dienen. Es könnte aber ein möglicher Erklärungsansatz sein.



Abbildung 5.2: Zeitliche und räumliche Entwicklung des stratosphärischen Aerosols anhand der Aerosoloberflächenkonzentration in 15,5 und 20,5 km Höhe, abgeleitet aus SAGE-II-Satellitenmessungen. Die Zahlen bezeichnen Ort und Zeitpunkt wichtiger Vulkanausbrüche: 1 – Ruiz, 2 – Kelut, 3 – Pinatubo (der stärkste Ausbruch im Beobachtungszeitraum), 4 – Hudson. (Graphiken zusammengestellt aus THOMASON et al. [1997b], (©1997 American Geophysical Union)

Während mit Lidar nur an einem Ort gemessen wird, kann mit Satellitenmessungen auch noch die geographische Verteilung des stratosphärischen Aerosols bestimmt werden. In Abbildung 5.2 ist eine solche Zeitreihe des Stratospheric Aerosol and Gas Experiment (SAGE II) (aus THOMA-SON et al. [1997b]) zu sehen. Aufgetragen ist farbkodiert die Partikeloberflächenkonzentration als Funktion der Zeit und der geographischen Breite. Die Partikeloberflächenkonzentration ist direkt proportional zu den Extinktionsmessungen des SAGE-II-Satelliten [THOMASON et al., 1997b]. Die Partikelanzahlkonzentration hat allerdings bei den mit dem FSSP-300 gemessenen Daten einen geringeren Fehler als die Partikeloberflächenkonzentration (siehe Abschnitt 2.4). Daher wird bei der Auswertung der FSSP-300-Messungen im Folgenden die Partikelanzahlkonzentration betrachtet. Beide Größen sind aber für einen qualitativen Vergleich ausreichend korreliert. In Abbildung 5.2 sind mit 15,5 km und 20,5 km Höhen dargestellt, die auch mit den Höhenforschungsflugzeugen ER-2 und Geophysika erreicht werden und somit auch bei den in-situ-Messungen erfaßt wurden.

Die Folgen einzelner, größerer Vulkanausbrüche sind zu erkennen; das prägnanteste Ereignis im Beobachtungszeitraum ist der Ausbruch des Pinatubo. Am linken Bildrand sind auch noch die Auswirkungen des El Chichon-Ausbruchs im April 1982 zu sehen. In Übereinstimmung mit der Lidar-Zeitreihe aus Garmisch-Partenkirchen in Abbildung 5.1 ist auch den SAGE-II-Messungen aus 20,5 km zu entnehmen, daß das Maximum der Aerosolkonzentration erst im Januar/Februar 1992 erreicht wurde, also etwa ein halbes Jahr nach dem Vulkanausbruch des Pinatubo. Dies gilt für alle nördlichen Breiten, in den südlichen Breiten wurde das Maximum noch später erreicht.

Gut zu erkennen ist, daß der Bereich hoher Partikel- bzw. Oberflächenkonzentration zu den Polen hin absinkt: in 20,5 km Höhe befindet sich das Maximum in den Tropen, in 15,5 km Höhe hingegen in den mittleren und polaren Breiten. Dies liegt an dem immer zu beobachtenden Absinken der Junge-Schicht zu den Polen hin.

Dem oberen Teilbild in Abbildung 5.2, das die Situation in 15,5 km Höhe darstellt, ist weiterhin zu entnehmen, daß die Aerosolkonzentration einem deutlichen Jahresgang unterliegt und zwar sowohl in Zeiten ohne starke Vulkanische Aktivität, als auch in den Jahren nach dem Ausbruch des Pinatubo. In 20,5 km Höhe im unteren Teilbild kann der antarktische Vortex klar identifiziert werden (rosa Markierung – ca. 0,1 μ m² cm⁻³). Auch innerhalb des Vortex stieg die Aerosolkonzentration in der Phase des Pinatubo-Aerosols an (blaue Markierung – ca. 1 μ m² cm⁻³ – und violette Markierung).



Abbildung 5.3: Die geographische Verteilung der Aerosolkonzentration in der Atmosphäre als Funktion von nördlicher Breite und potentieller Temperatur (als Höhenskala), in verschiedenen Zeitabschnitten (mit Angabe der jeweiligen Meßkampagne). Die Farbkodierung ist für alle Bilder gleich. Bild **A**: Die Situation $6\frac{1}{2}$ Jahre nach dem Ausbruch des El Chichon mit niedriger Aerosolkonzentration. Die Lage des polaren Vortex oberhalb 420 K und nördlich 70°N ist gut zu erkennen. In den ersten Monaten nach dem Ausbruch des Pinatubo im Juni 1991 ist das Vulkanaerosol noch ungleichmäßig verteilt (Bild **B**).

Abbildung 5.4 (nächste Seite): Bild C: Die Aerosolverteilung zur Zeit des Maximums der Aerosolkonzentration, auch hier ist der polare Vortex deutlich abgesetzt. Im Laufe der Jahre geht die Aerosolkonzentration immer weiter zurück (Bild D) und erreicht schließlich Werte, die noch unterhalb derer von 1989 liegen (Bild **E**).



5.5 Flugzeuggestützte in-situ-Messungen

Für einen Überblick über die räumliche und zeitliche Entwicklung des stratosphärischen Aerosols anhand der in-situ-Messungen mit einem FSSP-300 wurden die Graphiken in Abbildungen 5.3 und 5.4 angefertigt. Darin ist die Aerosolkonzentration farbkodiert als Funktion der geographischen Breite und der potentiellen Temperatur als Höhenskala aufgetragen. Die geographische Länge der Beobachtung spielt in diesem Zusammenhang keine Rolle, da die Entwicklung des Aerosols diesbezüglich in kürzeren Zeitskalen erfolgt. Es wurde für alle Teilbilder dieselbe Farbkodierung verwendet. Die Angaben zu den Partikelkonzentrationen in der folgenden Beschreibung sind genauer und können sich daher geringfügig von den Werten der Farbkodierung in den Abbildungen unterscheiden. Die Teilbilder zeigen Daten von jeweils fünf bis zwölf Meßflügen. Die Bezifferung der folgenden Absätze bezieht sich auf die entsprechende Kennung der Teilbilder in den Abbildungen 5.3 und 5.4:

prä Pinatubo:

A. Vor dem Ausbruch des Pinatubo fand die Meßkampagne AASE I statt. Die Aerosolkonzentration lag im größten Bereich der Stratosphäre zwischen 0,5 und 1,0, nur selten bis 1,2 Teilchen pro cm³. In der Graphik ist an der unter 0,4 cm⁻³ liegenden Partikelkonzentration (blaugrüne und blaue Markierung) die Lage des polaren Vortex oberhalb 430 K und nördlich 70°N zu erkennen. Innerhalb des Vortex lagen die Partikelkonzentrationen zwischen 0,05 und 0,4 cm⁻³, nur bei einem Flug waren mit 0,02 cm⁻³ noch geringere Werte gemessen worden.

Pinatubo-Aerosol:

- B. In den ersten Monaten nach dem Ausbruch am 15. Juni 1991 war das Vulkanaerosol noch sehr ungleichmäßig in der Stratosphäre verteilt. Das Minimum – noch im Bereich der prä-Pinatubo-Werte – und das Maximum der Konzentration lagen fast drei Größenordnungen auseinander.
- C. In der Zeit von November 1991 bis März 1992 lag das Maximum der Partikelkonzentration nach dem Ausbruch des Pinatubo. Oberhalb 440 K waren außerhalb des Vortex bei der Partikelkonzentration nun keine großen geographischen Schwankungen mehr zu beobachten. Der polare Vortex (oberhalb 440 K, nördlich 55°N) weist aber auch in dieser Phase mit Werten unter 3 cm⁻³ eine deutlich niedrigere Aerosolkonzentration auf. Außerhalb des Vortex lag die Konzentration meist um 10 cm⁻³. Der Vortex erstreckte sich nicht immer so weit nach Süden wie in diesem Beobachtungszeitraum.
- D. Im April und Mai 1993 waren die Werte der Partikelkonzentration bereits deutlich gefallen. Es ist die Jahreszeit, in der sich der polare

Vortex auflöst, aber es sind immer noch zwei Bereiche verschiedener Konzentration zu erkennen, da sich die Luft aus dem Vortex nicht so schnell vermischt und anhand niedriger Konzentrationen identifiziert werden kann.

post Pinatubo:

E. Mehr als fünf Jahre nach dem Ausbruch des Pinatubo schließlich waren wieder Werte erreicht, die noch unter denen lagen, die vor dem Ausbruch des Pinatubo gemessen worden waren. Die Grenze zwischen innerhalb und außerhalb des Vortex lag bei etwa 0,1 cm⁻³, und selbst außerhalb des Vortex wurden keine Werte über 0,4 cm⁻³ gemessen. Solch niedrige Werte waren in der prä-Pinatubo-Phase nur innerhalb des Vortex gemessen worden.

Wie schon bei den SAGE-II-Messungen in Abbildung 5.2 ist auch in dieser Darstellung zu sehen, daß die Junge-Schicht in den höheren Breiten in geringerer Höhe zu beobachten ist als in den niedrigeren Breiten (siehe vor allem Teilbilder A, C und E in den Abbildungen 5.3 und 5.4). Auf 400 K liegen die höheren Konzentrationen in höheren Breiten, auf 450 K ist es umgekehrt.

Diskussion: Minimalwerte der Partikelkonzentration und Vortex-Filamente

Der niedrigste Meßwert innerhalb des polaren Vortex lag unabhängig von den sonst gemessenen Konzentrationen vor dem Ausbruch des Pinatubo (d. h. $6\frac{1}{2}$ Jahre nach dem Ausbruch des El Chichon) und $5\frac{1}{2}$ Jahre nach dem Ausbruch des Pinatubo bei 0,02 cm⁻³, was aber jeweils nur bei einem Flug für nur kurze Zeit gemessen wurde. Da dieser Werte in der prä-Pinatubo-Phase bei einem θ -Werten von 470 K gemessen wurde, erscheint er nicht in den Zeitreihen, die im folgenden Abschnitt besprochen werden. Die prä-Pinatubo-Messung erfolgte bei AASE I am 10. Februar 1989. Die post-Pinatubo-Messung bei APE I erfolgte am 29. Dezember 1996 [THOMAS et al., 1997].

Bei dem Flug am 29. Dezember 1996 kreuzte der Flugweg filamentartige Strukturen des Vortex, wie Analysen der potentiellen Vorticity für den 29. Dezember 1996 ergaben [REDAELLI et al., 1997]. Die niedrigen Aerosolkonzentrationen können mit diesen Strukturen des Vortex in Zusammenhang gebracht und daher mit Luft aus dem Vortex erklärt werden. Für den AASE-I-Flug liegen keine vergleichbaren Berechnungen vor, die niedrigen Aerosolwerte wurden aber auch im Bereich des Vortex beobachtet. Auch bei einem weiteren Flug während APE I am 31. Dezember 1996 können niedrige Partikelkonzentrationen mit einem Vortex-Filament in Zusammenhang gebracht werden (zur Analyse der potentiellen Vorticity für diesen Flug siehe DRAGANI et al. [2002]). Die Partikelkonzentrationen waren in diesem Falle mit ca. $0, 1 \text{ cm}^{-3}$ jedoch nicht so extrem niedrig. Außerhalb des Filamentes waren die Partikelkonzentrationen um einen Faktor von ca. zwei höher.

Die Bildung von Filamenten ist ein Vorgang, bei dem Luft aus den mittleren Breiten in den Vortex hinein- oder aus dem Vortex herausgemischt werden kann [PLUMB UND et al., 1994]. Diese Vorgänge sind irreversibel. Der Luftaustausch durch die Vortexwand hindurch ist ansonsten stark eingeschränkt. In Filamenten herausgemischte Luftpakete behalten zunächst ihre Vortexcharakteristik, vermischen sich dann aber mit der neuen Umgebungsluft, so daß die Vortexsignatur durch langlebige Spurenstoffe, wie N₂O, zunehmend verloren geht.

5.6 Zeitreihen der in-situ-Messungen

Wie in Abschnitt 5.3 beschrieben, wurden aus den Daten der in-situ-Messungen vier Höhenbereiche herausgefiltert, wobei die potentielle Temperatur als Höhenmaßstab diente. Die so erstellten Zeitreihen der Partikelanzahlkonzentration sind in den Abbildungen 5.5 und 5.6 zu sehen. Zum Vergleich wurde die Lidar-Zeitreihe aus Garmisch-Partenkirchen [JÄGER et al., 1999], bei der die ganze Junge-Schicht erfaßt wurde, mit abgebildet.

Bei den Daten der 450-K- und 480-K-Flächen müssen im Winter Bereiche innerhalb und außerhalb des polaren Vortex unterscheiden werden; die Messungen aus dem Bereich des polaren Vortex sind durch dreieckige Symbole dargestellt. In der 480-K-Zeitreihe (Abbildung 5.5, oben) wurden die Zeitbereiche markiert, aus denen die Daten für die Abbildungen 5.3 und 5.4 verwendet wurden.

Die Daten der 350-K-Fläche (Abbildung 5.6 unten) können für die ersten zwei Jahre nach dem Pinatubo-Ausbruch nicht verwendet werden, da sie aus jeweils nicht vergleichbaren geographischen Regionen stammen. In den Bereichen 36°N bis 39°N wurde teilweise schon troposphärische Luft gemessen. Für dieses Höhenband liegen aber noch Messungen aus dem Jahre 1998 vor (Meßkampagne POLSTAR 2 in Kiruna (Nordschweden) und eine Messung aus dem Dezember 1998 aus Forli (Italien)), weshalb auch dieser Höhenbereich mit dargestellt ist. Diese sind rein stratosphärische Messungen.

Die in den Abbildungen für die in-situ-Messungen angegebenen 1/e-Zeiten des Pinatubo-Aerosols sind als obere Grenzwerte anzusehen, da für den Zeitraum zwischen Anfang 1993 und Ende 1996 keine Daten vorliegen. Aufgrund der Lidar-Messungen ist aber davon auszugehen, daß das prä-St.-Helens-Niveau der Aerosolkonzentration schon früher im Jahre 1996 erreicht wurde und nicht erst bei den in-situ-Messungen im Dezember. Wären zu dieser früheren Zeit in-situ-Messungen durchgeführt worden, hätten diese vermutlich eine kürzere 1/e-Zeit ergeben. Wegen dieser Unsicherheit dürfen die verschiedenen 1/e-Zeiten von Lidar und in-situ-Messungen nicht als Wi-



Abbildung 5.5: Zeitreihen von FSSP-300 in-situ-Messungen (siehe auch BORRMANN et al. [2000b]) und Lidar-Messungen aus Garmisch-Partenkirchen [JÄGER et al., 1999]. Kleine Balken im oberen Bild: Zeitspannen für die Graphiken in den Abbildungen 5.3 und 5.4.



Abbildung 5.6: Wie Abbildung 5.5, die in-situ-Messungen stammen aus niedrigeren Höhenbereichen (410 K und 350 K potentielle Temperatur), die unterhalb des polaren Vortex liegen.

derspruch zueinander interpretiert werden. Es wurden zur Berechnung der 1/e-Zeit nur die außerhalb des polaren Vortex liegenden in-situ-Meßwerte ab März 1992 verwendet. Unter Einbeziehung weiterer NASA-Kampagnen in den Jahren 1994 und 1995 kommen Jónsson et al. [1996] zu einer 1/e-Zeit für die Aerosoloberfläche von 1,1 Jahren.

Folgende Beobachtungen aus den Zeitreihen der in-situ-Messungen mit dem FSSP-300 sind hervorzuheben, wobei gegebenenfalls auf die Unterscheidung innerhalb und außerhalb des polaren Vortex zu achten ist:

- Auf den hohen Flächen (450 und 480 K, Abbildung 5.5) erfolgte die Einmischung des vulkanischen Aerosols in den Monaten August bis Oktober 1991 nicht so gleichmäßig, wie auf der niedrigeren (410 K). Auf 410 K lagen – anders als in größeren Höhen – nach dem Ausbruch des Pinatubo keine Meßwerte mehr im Bereich der Konzentrationen, die vor dem Ausbruch gemessen wurden (Abbildung 5.6, oben).
- Bei den Messungen von Januar bis März 1992 war es umgekehrt: bei 410 K variierten die Werte stärker als bei 450 und 480 K außerhalb des Vortex.
- 3. Wie auch bei den Lidar-Daten wurde das Maximum der Partikelkonzentration erst mehreren Monate nach dem Vulkanausbruch erreicht, allerdings schon zum Jahreswechsel und nicht erst Februar/März, wie bei den Lidar-Daten.
- 4. Innerhalb des Vortex war eine größere Variabilität zu beobachten, noch im Februar 1992 waren einige Werte so niedrig wie vor dem Ausbruch des Pinatubo. Im November 1992 wurde nur in den mittleren Breiten gemessen.
- 5. In der Zeit des Rückganges der erhöhten Partikelkonzentration vom Maximum im Frühjahr 1992 bis zu den Messungen im Winter 1996/97 – war eine gute Übereinstimmung von in-situ-Messungen außerhalb des Vortex und Lidar-Daten zu erkennen.
- 6. Die Beobachtungen zu Zeiten des ungestörten Hintergrundaerosols prä Pinatubo 1988/89 und post Pinatubo 1996/97 – unterschieden sich in den absoluten Konzentrationen, nicht aber in der Streuung der Werte. Auch überlagerten sich in den 480-K- bzw. 450-K-Höhen in beiden Zeitperioden die Wertebereiche, die innerhalb und außerhalb des Vortex beobachtet wurden.
- 7. Die langfristige Entwicklung auf der 350-K-Fläche in der post-Pinatubo-Periode – nach dem Rückgang auf prä-St.-Helens-Niveau – entsprach auch der Lidar-Zeitreihe. Die einzelne Messung im Dezember 1998 kann zwar nicht als Bestätigung dienen, lag aber in dem erwarteten Band und widersprach somit nicht dem Trend.

Punkt 2 wurde schon von JÓNSSON et al. [1996] beschrieben, die bezüglich der Daten vom Winter 1992 zwei verschiedene Regime definierten, eines oberhalb 450 K und eines unterhalb 420 K. Die beiden Regime unterscheiden sich in der Entwicklung des Vulkanaerosols, sowohl in der Entstehungsphase als auch beim Rückgang der erhöhten Aerosolkonzentrationen. Wie den Beobachtungen aus Punkt 1 zu entnehmen ist, kann auch schon für die Daten aus 1991 eine entsprechende Einteilung vorgenommen werden. Die Ursache für die Unterschiede der beiden Regime sind verschiedene Zeitskalen für die horizontale Mischung von niedrigeren zu höheren geographischen Breiten [JÓNSSON et al., 1996; TREPTE et al., 1993].

Ergänzenden Messungen von Kondensationskernen

Ein weiterer Aspekt der Entwicklung des Aerosols in der Junge-Schicht nach einem Vulkanausbruch kann Abbildung 5.7 entnommen werden. Hier sind die Messungen der Kondensationskerne, also der Gesamtkonzentration aller Partikel im Bereich 0,02 bis 1 μ m Durchmesser [WILSON et al., 1989], als Zeitreihe aufgetragen, entsprechend der Zeitreihen der FSSP-300-Messungen in den beiden vorigen Abbildungen. Die Konzentrationswerte der Kondensationskerne sind nur im August 1991 um einen Faktor von ca. 5



Abbildung 5.7: Zeitreihe der Konzentration der Kondensationskerne, entsprechend Abbildung 5.5. Lidar-Zeitreihe aus JÄGER et al. [1999] zum Vergleich.

deutlich erhöht gegenüber den prä-Pinatubo-Messungen. Schon im Oktober 1991 wurden deutlich niedrigere Werte gemessen, teilweise schon wieder im Bereich der prä-Pinatubo-Messungen. Im Winter 1991/1992 sind die Konzentrationen der Kondensationskerne fast schon wieder auf prä-Pinatubo-Niveau, allerdings bei geringerer Streuung der Werte. Dies gilt für die Höhen 450 und 480 K (siehe auch die Darstellung in Jónsson et al. [1996]). Auch hier fällt auf, daß bei 410 K eine andere Entwicklung zu beobachten ist. Aus dieser Höhe liegen jedoch keine Werte aus dem August 1991 vor.

Die Beobachtungen scheinen zwei Entwicklungsschritte beim stratosphärischen Aerosol anzuzeigen. Zunächst bilden sich Partikel durch Kondensation aus dem gasförmigen SO₂ mit der recht kurzen 1/e-Zeit von 30-40 Tagen. Die so gebildeten Partikel koagulieren und bilden größere Partikel, wobei die Koagulationsrate proportional zum Quadrat der Partikelkonzentration ist. Dieser Prozeß war, wie eben gezeigt, schon im Oktober 1991 im wesentlichen abgeschlossen. Die Zahl der Partikel im Koagulations-Mode des Aerosols also die Partikel, die mit dem FSSP-300 gemessen werden – steigt aber an und erreicht erst ein halbes Jahr nach dem Vulkanausbruch ihr Maximum. Dies scheint einen weiteren Entwicklungsschritt der Aerosols anzuzeigen. Weitere Kondensation von SO_2 als Ursache ist aber unwahrscheinlich, da dies den beobachteten 1/e-Zeiten für SO₂ wiederspräche. Gegen weitere Koagulation spricht, daß dann in einem Größenbereich die Partikelkonzentration auch zurückgehen müßte. Eine mögliche Erklärung bieten TREPTE et al. [1993]. Demnach wurden bei den verschiedenen Meßkampagnen der ER-2 verschiedenen Luftmassen untersucht, die beim Ausbruch des Pinatubo unterschiedlich stark mit SO₂ angereichert wurden. (Zu dieser Thematik siehe auch JÓNSSON et al. [1996]; WILSON et al. [1993].)

5.7 Größenverteilung des stratosphärischen Aerosols

In diesem Abschnitt werden Größenverteilungen aus den verschiedenen Phasen des stratosphärischen Aerosols untersucht. Dabei sollen eventuelle Ähnlichkeiten, aber auch Unterschiede dargestellt werden. Vor allem ist von Interesse, ob sich die im vorigen Abschnitt untersuchten Unterschiede in der Gesamtkonzentration zwischen prä- und post-Pinatubo-Aerosol auch in den Größenverteilungen widerspiegeln.

In Abbildung 5.8 sind Größenverteilungen zusammengefaßt, die repräsentativ für die verschiedenen Phasen des stratosphärischen Aerosols sind: Zum einen vulkanisch beeinflußtes Aerosol in der Phase des Pinatubo-Aerosols (braun) und zum anderen das ungestörte stratosphärische Hintergrundaerosol aus der prä-Pinatubo- (blau) und der post-Pinatubo-Phase (grün). Die potentielle Temperatur lag bei den Messungen im Bereich von 470 bis



Abbildung 5.8: Größenverteilung des stratosphärischen Aerosols nach dem Ausbruch des Pinatubo im Vergleich zu den Zeiten ohne starken vulkanischen Einfluß.

485 K, nur bei der Messung vom Dezember 1998 bei 430 K (hier liegen keine Daten von höheren θ -Werten vor). Es wurden lange Mittelungsintervalle gewählt – 15 Minuten bis über eine Stunde – um einen geringen zählstatistischen Fehler zu erreichen, der im Größenbereich $d_P < 1 \ \mu$ m unter 5% liegt. Bei den größeren Partikeln ist der zählstatistische Fehler größer als 10%. Bei den Messungen vom Dezember 1998 liegt der zählstatistische Fehler auch bei den kleinen Partikeln zwischen 10 und 16%.

In der Zeit der höchsten Anzahlkonzentration des Pinatubo-Aerosols im Winter 1991/1992 lag das Maximum der Größenverteilung zwischen 0,5 und 0,7 μ m Partikeldurchmesser mit kleineren Abweichungen bei einzelnen Messungen. Größenverteilungen in WILSON et al. [1993] und JÓNSSON et al. [1996] zeigen weiterhin, daß in großen Höhen (18 km in WILSON et al. [1993] bzw. > 480 K in JÓNSSON et al. [1996]) dies ein absolutes Maximum ist, d. h. kleinere Partikel traten in niedrigerer Konzentration auf. Das Pinatubo-Aerosol hatte sich also im Koagulations-Mode des Aerosols angereichert.
Der Rückgang der Teilchenkonzentration erfolgte durch Sedimentation der Partikel des Koagulationsmode. Die Form der Größenverteilung wurde zunächst kaum beeinflußt, was damit erklärt werden kann, daß aus den betrachteten Höhenbereichen die Teilchen nicht nur heraussedimentieren, sondern auch aus noch größeren Höhen hineinsedimentieren. Selbst in April/Mai 1993 wurden noch sehr ähnliche Größenverteilungen beobachtet, aber auch Größenverteilungen, deren Maximum geringfügig zu kleineren Durchmessern verschobenen war, wie im Mai 1993 (hellbraune Kurve in Abbildung 5.8). Bei dieser Größenverteilung fällt auch auf, daß die Konzentration der 1,3-µm-Partikel etwas stärker zurückgegangen ist als die der Partikel um $0.6 \ \mu m$ Partikeldurchmesser. Die Partikel mit $d_P = 2.5 \ \mu m$ sind sogar schon auf einem Nieveau, das vor dem Ausbruch beobachtet wurde. Dies kann mit einer etwas höheren Sedimentationsgeschwindigkeit der größeren Partikel erklärt werden (bei entsprechenden Umgebungsbedingungen ca. 0.3 mm s^{-1} bei $d_P = 2.5 \ \mu m$ gegenüber 0.05 mm s⁻¹ bei 0.75 μm). Auch wenn keine genauen Angaben zum zählstatistischen Fehler gemacht werden können, da für diese Messungen keine primären Partikeldaten vorliegen, ist wegen der langen Mittelungszeiten von mindestens 15 Minuten von einer Signifikanz der Unterschiede auszugehen [BORRMANN, persönliche Mitteilung]. Weitere Prozesse, die für den Rückgang der Partikelkonzentration verantwortlich sind, sind nach JÓNSSON et al. [1996] vertikaler Transport und Mischung, die vor allem für den weiteren Rückgang des Aerosols im Jahre 1994 verantwortlich sind. Im niedrigeren Regime ($\theta < 450$ K) sind Transportprozesse und Stratosphären-Troposphären-Austausch die primären Prozesse für den Rückgang der Aerosolkonzentration [JÓNSSON et al., 1996].

Von diesen Größenverteilungen des Pinatubo-Aerosols sind die Größenverteilungen aus den Phasen prä Pinatubo und post Pinatubo deutlich verschieden. Die Größenverteilungen in Abbildung 5.8 zeigen Messungen außerhalb des polaren Vortex. Das Maximum lag in diesen Zeiten des ungestörten Hintergrundaerosols außerhalb des Meßbereichs des FSSP-300. Auswertungen der AASE-I-Daten von WILSON et al. [1992] zeigen ein Maximum zwischen 0,1 und 0,2 μ m Durchmesser. Wie in Abbildung 5.8 zu sehen ist, unterschieden sich die Formen der Größenverteilungen in den beiden Phasen ohne vulkanischen Einfluß nicht wesentlich, nur bei 0,5 μ m Durchmesser ist eine Variation zu erkennen. Die Unterschiede zwischen den beiden Zeiträumen sind nicht größer als Unterschiede zwischen verschiedenen Größenverteilungen innerhalb dieser Zeiträume. Der Unterschied zwischen den beiden Ser SSP-300 nur in der Gesamtkonzentration der Aerosolpartikel, wie schon in den Zeitreihen in Abschnitt 5.6 zu sehen war.

In Abbildung 5.9 sind weitere Größenverteilungen des nicht vulkanisch beeinflußten Aerosols der Junge-Schicht zu sehen. Hier sind jetzt auch Messungen innerhalb des polaren Vortex dargestellt (gestrichelt), und bei diesen sind auch Unterschiede zwischen der prä-Pinatubo- und der post-PinatuboPhase zu beobachten. Die Farbzuordnungen zu den Meßzeiträumen entsprechen denen in Abbildung 5.8.

Unterschiede sind vor allem bei den Messungen während AASE I zu erkennen, zwischen Größenverteilungen, die innerhalb und solchen, die außerhalb des Vortex gemessen wurden. Die Unterschiede zwischen den Dezemberund den Februar-Messungen während der AASE-I-Meßkampagne (außerhalb des polaren Vortex) ist auf in allen Jahren zu beobachtenden jahreszeitlichen Variation der Gesamtaerosolkonzentration zurückzuführen (siehe auch die Satellitenbeobachtungen in Abbildung 5.2).

Die Größenverteilungen von AASE-I-Messungen innerhalb des Vortex unterscheiden sich von allen anderen Größenverteilungen: Bei den kleinen Partikeln ($d_P < 0,65\mu$ m) sind sie deutlich steiler. Ob die Größenverteilung bei den größeren Partikeln ($d_P > 1 \mu$ m) tatsächlich flacher war, oder ob es sich um ein Artefakt handelt, kann nicht mit Sicherheit gesagt werden, da die primären Partikeldaten nicht vorliegen. Es ist aber möglich, daß nur



Abbildung 5.9: Größenverteilung des stratosphärischen Aerosols in Zeiten ohne den Einfluß von großen Vulkanausbrüchen.

einzelne Partikel pro Kanal gemessen wurden, so daß keine weitere Analyse möglich ist.

Größenverteilungen gleicher Gesamtkonzentration, die bei APE I – also post Pinatubo – innerhalb des Vortex gemessen wurden, unterscheiden sich von den inner-Vortex-Messungen der prä-Pinatubo-Periode. Sie zeigen nur ein kleines mehr oder weniger stark ausgeprägtes Nebenmaximum bei $0.5 \ \mu$ m. Auch ist die Größenverteilung nicht so steil, die Steigung entspricht eher den Messungen außerhalb des Vortex.

Anhand von Abbildung 5.9 können die Größenverteilungen, die in der prä-Pinatubo- und post-Pinatubo-Periode außerhalb des Vortex gemessen wurden, genauer verglichen werden. Wie schon in Abbildung 5.8 zeigen sich bei Partikeldurchmessern $d_P > 0,5 \ \mu m$ keine Unterschiede in der Form der Größenverteilung, nur die Gesamtkonzentration war post Pinatubo geringer. Bei allen Größenverteilungen ist ein kleines Nebenmaximum oder ein Sattel bei etwa 0,5 μ m Durchmesser zu beobachten. Bei den post-Pinatubo-Messungen ist dies ausgeprägter als bei den prä-Pinatubo-Messungen. Ohne Kenntnis der kleineren Partikel unterhalb des FSSP-300-Meßbereiches kann dies aber nicht weiter interpretiert werden.

Analysen von Messungen der AASE-I-Meßkampagne von WILSON et al. [1992], die mit einem Streulichtinstrument anderen Typs (PCAS) gewonnen wurden, zeigen ebenfalls einen Sattel in der Größenverteilung. Der Bereich reicht dort von 0,5 μ m bis 0,7 μ m, ist also zu größeren Durchmessern hin etwas verbreitert.

5.8 Résumé

In diesem Kapitel wurde das Aerosol der Junge-Schicht in drei Perioden untersucht: Mit der prä-Pinatubo- und der post-Pinatubo-Periode waren dies zwei Phasen, in denen kein Einfluß großer Vulkanausbrüche vorhanden war, d. h. es wurde reines Hintergrundaerosol beobachtet. Mit dem Pinatubo-Aerosol konnte andererseits das Aerosol nach dem größten Vulkanausbruch des letzten Jahrhunderts untersucht werden.

Bei einem Vergleich der beiden Perioden mit Hintergrundaerosol ist zunächst der deutliche Unterschied in der Gesamtkonzentration auffallend, obwohl beide Perioden mit über fünf Jahren eine vergleichbare Zeitspanne nach großen Vulkanausbrüche liegen. Bei den in-situ-Messungen lag die Konzentration prä Pinatubo einen Faktor von ca. drei über den Werten, die post Pinatubo gemessen wurden; bei der zum Vergleich herangezogenen Lidar-Zeitreihe aus Garmisch-Partenkirchen liegt der Unterschied bei einem Faktor von ca. zwei. Die letzten verfügbaren Lidar-Messungen aus dem Jahre 2000 liegen noch unterhalb der Werte, die in der prä-St.-Helens-Periode beobachtet wurden und bislang als die niedrigsten beobachteten Werte galten.

Die Entwicklung des Aerosols nach dem Ausbruch des Pinatubo konnte an Hand der in-situ-Messungen dargestellt werden. Das Aerosol war in den ersten Monaten nach dem Ausbruch ungleichmäßig verteilt, und es dauerte länger als ein halbes Jahr, bis die Entwicklung abgeschlossen war und die Größenverteilung des Aerosols ein Maximum zwischen 0,5 und 0,7 μ m Partikeldurchmesser aufwies.

Bei einem Vergleich der Größenverteilungen in den Perioden reinen Hintergrundaerosols muß zwischen Messungen innerhalb und außerhalb des polaren Vortex unterschieden werden. Bei den Messungen außerhalb des Vortex ist in den beiden Perioden des Hintergrundaerosols die Form der Größenverteilung bei Teilchen > 0,5 μ m nicht verschieden. Bei kleineren Partikeln sind geringe Unterschiede zwischen den prä-Pinatubo- und post-Pinatubo-Perioden zu erkennen. Bei den Messungen innerhalb des Vortex zeigen sich Unterschiede der Größenverteilungen sowohl zwischen den beiden Perioden (prä und post Pinatubo) als auch im Vergleich zu den Messungen außerhalb des Vortex.

5.9 Ausblick

Die Untersuchung des stratosphärischen Aerosols ist bei weitem noch nicht abgeschlossen, auch wenn es sich bei der Junge-Schicht um ein seit langem bekanntes Phänomen handelt. Die in den letzten Jahren beobachtete extrem niedrige Partikelkonzentration in der Junge-Schicht wirft die Frage auf, wie niedrig diese überhaupt werden kann und welcher Mechanismus der Partikelbildung ein Absinken auf Null verhindert. Hierfür kommen vor allem die homogene Nukleation von einerseits OCS und CS₂, sowie andererseits SO₂ kleinerer Vulkanausbrüche in Frage (zu den Mechanismen siehe Seite 88). Bei extrem niedrigen Partikelkonzentrationen in der Junge-Schicht muß gegebenenfalls auch wieder der Einfluß der Luftfahrt näher untersucht werden. Dies ist ein Punkt, der wegen des erhöhten Partikelkonzentrations-Nieveaus in der prä-Pinatubo-Periode bereits von HOFMANN [1991] in die Diskussion gebracht wurde, in der damals zunächst vermuteten Größenordnung aber keine Rolle spielt.

Eine Erweiterung des Meßbereiches des FSSP-300 durch weiterer Instrumente, vor allem Kondensationskernzähler (CPC), ist für eine weitere Beobachtung der Junge-Schicht wichtig. Auf der Geophysika wurde mittlerweile ein Kondensationskernzähler erfolgreich eingesetzt [CURTIUS, WEIGEL, persönliche Mitteilung]. Während mit dem vom FSSP-300 gemessenen Partikelgrößenbereich vor allem längerfristige Trends beobachtet werden können, ist ein Kondensationskernzähler zum Erfassen kurzfristiger Quellereignisse wichtig.

Da es gerade beim Hintergrundaerosol eines breiten Fundamentes bedarf, sowohl was die möglichst lückenlose Kontinuität der Zeitreihe anbelangt, als auch in Bezug auf die statistische Relevanz der Schlußfolgerungen, wäre eine Zusammenarbeit vieler Arbeitsgruppen sinnvoll. Weiter ist zu bedenken, daß auch Daten von Meßflügen verwendet werden können, die primär andere wissenschaftliche Fragestellungen verfolgten, da bei den meisten Flügen zumindest kurzzeitig auch Hintergrundaerosol gemessen wird. Wenn Flugzeugund Ballonmessungen berücksichtigt werden, könnte ein recht enges Meßnetz aufgebaut werden.

Ein weiterer Punkt ist in Hinblick auf bestimmte Aspekte die fachübergreifende Zusammenarbeit, z. B. von Meteorologen und Vulkanologen, was die Auswirkung von Vulkanausbrüche anbelangt. Dies betrifft sowohl eine möglichst umfassende Registrierung der Vulkanausbrüche – was bei kleinen Vulkanen in unbewohnten Gebieten nicht trivial ist – als auch die Messung und Bewertung der verschiedenen Parameter, die für die Entwicklung der Junge-Schicht von Bedeutung sind.

Kapitel 6

Subvisual clouds – nichtsichtbare Wolken

6.1 Zielsetzung

Das Phänomen der nichtsichtbaren Wolken in der oberen Troposphäre und Tropopausenregion ist zwar schon seit den 70er Jahren bekannt, hat aber erst in den letzten Jahren verstärkt Aufmerksamkeit gefunden. Bedeutung haben die nichtsichtbaren Wolken möglicherweise für die Dehydrierung der Luft beim Übergang in die Stratosphäre, für die Luftchemie in diesem Bereich der Atmosphäre und für den Strahlungshaushalt. Genaue Aussagen können noch nicht gemacht werden, da noch zu wenig über diese Wolken bekannt ist. Auch Modelle zur Wolkenbildung und Erhaltung der Wolken über die beobachteten Zeiträume sind noch nicht gesichert. Insbesondere die Mikrophysik dieser Wolken ist noch kaum erforscht. Die wenigen in-situ-Messungen aus dem Jahre 1973 wurden erst viele Jahre später veröffentlicht und umfassen den Partikelgrößenbereich von 3 bis 50 bzw. 300 μ m.

Für ein besseres Verständnis der Mikrophysik der Wolken, der Wolkenbildung und des Einflusses der Wolken im Zusammenhang mit den genannten Themen sind weitere Beobachtungen und Messungen nötig. Ziel der in diesem Kapitel vorgestellten Messungen war es daher, weitere in-situ-Daten tropischer, nichtsichtbarer Wolken zu erhalten. Mit dem FSSP-300 konnten auch Partikel unter drei Mikrometer Durchmesser gemessen und somit erstmals der Übergang zum Hintergrundaerosol erfaßt werden.

Weitere Ziele im Zusammenhang der APE-THESEO Meßkampagne, in deren Rahmen die Messungen durchgeführt wurden, war es, die Messungen in einen größeren Zusammenhang zu stellen. Dies betraf die meteorologischen Bedingungen, Beziehungen zu den Messungen anderer Instrumente und schließlich die Einbindung der Ergebnisse in Modelle. Hierbei standen die Themen der Wolkenbildung im Bereich der tropischen Tropopause und der Dehydrierung der Stratosphäre im Vordergrund [STEFANUTTI et al., 2002].

Das in diesem Kapitel umgesetzte Ziel der vorliegenden Arbeit war vor allem die detaillierte Beschreibung der Phänomenologie der nichtsichtbaren Wolken aufgrund der Meßdaten von FSSP-300 und anderer Instrumente. Zunächst erfolgt in einer ausführlichen Literaturübersicht im Abschnitt 6.2 eine Darlegung des Themas und des Wissensstandes (siehe hierzu auch LYNCH und SASSEN [2002]. In den weiteren Abschnitten folgt die Beschreibung der Flüge (6.3), der in-situ-Messungen mit FSSP-300 und weiteren Instrumenten (6.4 und 6.6) sowie der Lidar-Messungen (6.5 und 6.6). Analysen zur Meteorologie an den Meßtagen erfolgen in den Abschnitten 6.7 und 6.7. Die mit dem FSSP-300 gemessenen Größenverteilungen werden in Abschnitt 6.9 beschrieben, mit den bislang veröffentlichten Messungen verglichen und es werden schließlich die optischen Dicken der Wolken daraus abgeleitet (6.10). Schließlich werden einige Hypothesen im Zusammenhang mit den Daten von APE-THESEO erörtert (6.11). Eine Diskussion der Ergebnisse erfolgt jeweils im thematischen Kontext.

6.2 Bisherige Kenntnisse

Begrifflichkeit und Definition

Unter der Bezeichnung "nichtsichtbare Wolke" (*subvisual cloud*) werden alle Wolken zusammengefaßt, die ein einziges Kriterium erfüllen, nämlich das der sogenannten "Nichtsichtbarkeit". Entstehung, Beobachtungsort und Persistenz der Wolke, die Mikrophysik der Wolkenteilchen und andere Attribute, die man mit einer Wolke verbindet, sind für diese Definition ohne Bedeutung. In dieser Arbeit wird der englische Begriff *subvisual* mit "nichtsichtbar" übersetzt, um eventuelle Mißverständnisse mit dem Begriff "unsichtbar" zu vermeiden. In der englischsprachigen Literatur werden die Begriffe *subvisual* und *subvisible* synonym verwendet. Ebenso wird auch häufig von nichtsichtbaren Cirren gesprochen, wobei man allerdings von einer recht freien und allgemeinen Definition von "Cirrus" ausgeht, nämlich einfach im Sinne einer Wolke, die aus Eispartikeln besteht.

Die nichtsichtbaren Wolken sind nur mit bloßem Auge nicht zu sehen, mit Meßgeräten wie zum Beispiel Lidar oder in-situ-Instrumenten können sie hingegen beobachtet werden. Der Begriff der Nichtsichtbarkeit geht von einem am Boden stehenden, senkrecht nach oben schauenden Beobachter aus. Es kann unter Umständen sein, daß bei Schrägsicht – z. B. aus einem auf Wolkenhöhe fliegenden Flugzeug heraus – die Wolken sichtbar sind, da die Sichtstrecke durch die Wolke in diesem Falle viel länger ist.

Das aus Messungen ableitbare Kriterium für die Sichtbarkeit – beziehungsweise die Nichtsichtbarkeit – ist die optische Dicke. Die optische Dicke τ ist eine dimensionslose Zahl, und bei einer bestimmten Wellenlänge λ des

Lichtes ist diese

$$\tau = \int_{z_u}^{z_o} K_{ext,\lambda}(z) dz , \qquad (6.1)$$

wenn die Wolke in der Höhe z zwischen z_u und z_o beobachtet wird. Bei einer homogenen Wolke, die eine räumlich konstante Größenverteilung der Wolkentröpfchen aufweist, vereinfacht sich die Gleichung zu

$$\tau = K_{ext,\lambda} \cdot (z_o - z_u) \,. \tag{6.2}$$

Darin ist $K_{ext,\lambda}$ der Extinktionskoeffizient. Dieser beschreibt die durch Streuung und Absorption hervorgerufene Schwächung der Lichtintensität pro Längeneinheit, hat also die Dimension Länge⁻¹. Die optische Dicke beschreibt die Schwächung der Intensität des Lichtes beim Durchgang durch die betreffende Luftschicht bzw. Wolke. Für die Lichtintensität gilt dann

$$\overline{I}_{ext} = I_0 \, e^{-\tau} \,, \tag{6.3}$$

wenn I_0 die Intensität des einfallenden und \overline{I}_{ext} die des durch Extinktion geschwächten Lichtstrahles ist.

Der Extinktionskoeffizient ist abhängig vom Partikeldurchmesser und der Wellenlänge des Lichtes. Bei einer festen Wellenlänge λ gilt:

$$K_{ext,\lambda} = \int_0^\infty Q_{ext,\lambda} \frac{\pi d_P^2}{4} \left(\frac{dN}{dd_P}\right) dd_P \tag{6.4}$$

 $\begin{array}{ll} Q_{ext,\lambda} & \text{Extinktions effizienz faktor} \\ Q_{ext,\lambda} \frac{\pi d_P^2}{4} & \text{Extinktions querschnitt } [\text{m}^2 \text{ bzw. } \mu \text{m}^2] \\ N & \text{Anzahlkonzentration } [\text{m}^{-3} \text{ bzw. } \text{cm}^{-3}] \\ \frac{dN}{dd_P} & \text{Größenverteilung } [\text{m}^{-3}\text{m}^{-1} \text{ bzw. } \text{cm}^{-3}\mu\text{m}^{-1}] \end{array}$

Die Größenverteilung ist die mikrophysikalische Meßgröße, die in die Berechnung eingeht. Bezüglich des Extinktionseffizienzfaktors $Q_{ext,\lambda}$ müssen allgemeine Annahmen über die optischen Eigenschaften der Teilchen gemacht werden (Brechungsindex, Form der Teilchen), wie schon bei der Berechnung der Größenverteilung. Der Extinktionseffizienzfaktor ist analog dem Streueffizienzfaktor in Gleichung 1.6 zu verstehen und gleich diesem dimensionslos. (Für die Herleitungen siehe z. B. VAN DE HULST [1957].)

Der Übergang von sichtbar zu nichtsichtbar ist fließend, eine scharfe Abgrenzung somit eigentlich nicht möglich, und es wurden auch verschiedene, auf Lidar-Messungen beruhende Grenzwerte vorgeschlagen. SCHMIDT et al. [1993] gingen von einer optischen Dicke von 0,05 bei einer Wellenlänge von 532 nm aus und 0,03 für eine Wellenlänge von 11 μ m (beide Wellenlängen sind bei Lidarsystemen gebräuchlich). Ein anderer Wert, der sich mittlerweile in der neueren Literatur durchgesetzt hat, ist eine optische Dicke von 0,03 im sichtbaren Licht, ein Wert, der von Beobachtungen in mittleren Breiten abgeleitet wurde [SASSEN et al., 1989].

Phänomenologie

Die ersten Messungen nichtsichtbarer Wolken erfolgten mit Lidar in den frühen 1970er Jahren [UTHE und RUSSELL, 1977] (Messungen aus dem Jahre 1973 in HEYMSFIELD [1986]). Diese frühen Beobachtungen aus den Tropen (Marshall-Inseln) zeigten eine ca. 500 m dicke Wolke, die über 19 Stunden lang im Bereich der Tropopause vom Lidar zu sehen war. Zeitweise waren zwei dünne Schichten mit einem Abstand von etwa 500 m zu beobachten, ein Phänomen, das auch während der APE-THESEO-Meßkampagne auftrat.

SCHMIDT et al. [1993] und SCHMIDT und LYNCH [1995] unterscheiden fünf Typen nichtsichtbarer Wolken: (1.) Äquatoriale/ITCZ-Wolken, (2.) Wolken mit Ursprung im Bereich des Jetstream, (3.) mit Kaltfronten assoziierte Wolken, (4.) orographische nichtsichtbare Wolken und (5.) andere Wolkenarten wie Wolken im Bereich über Cb-Amboß-Wolken und Kondensstreifenüberreste. Die Lebensdauer der Wolken reicht von Minuten (Wolkentyp 5) bis zu Tagen (Typ 1). Die Wolken treten in Höhen zwischen 12 und 18 km auf, an oder in der Nähe der Tropopause mit geometrischen Dicken unter einem Kilometer [LYNCH, 1993].

Daß laminare Cirren auch eine sehr große räumliche Ausdehnung haben, zeigten die Beobachtungen des *Lidar In-space Technology Experiment* (LITE) [WINKER und TREPTE, 1998]. Die wenige hundert Meter dicken Wolken erstreckten sich horizontal im Bereich der tropischen Tropopause über Entfernungen von bis zu 2700 km. Diese dünnen Wolkenschichten waren außergewöhnlich homogen und traten sowohl in ansonsten wolkenfreier Atmosphäre auf, als auch über tieferen, ausgedehnten, konvektiven Wolkensystemen. Zwischen 20°S und 30°N wurden laminare Cirren mit einer Häufigkeit von 14% – bezogen auf die Gesamtmeßzeit – beobachtet [WIN-KER und TREPTE, 1998].

Eine die Jahre 1985 bis 1990 umfassende Klimatologie nichtsichtbarer Wolken auf Basis von satellitengestützten Extinktionsmessungen wurde von WANG et al. [1996] vorgestellt. Die Existenz nichtsichtbarer Wolken oberhalb und unterhalb der mittleren Tropopause wurde für den gesamten untersuchten Bereich zwischen 60°N und 60°S nachgewiesen. Bei diesen Satellitenmessungen liegt das Maximum der Wolkenbeobachtungen in den Tropen mit einer Vorkommenshäufigkeit (occurrence frequency) von 45% in 15 km Höhe um den Äquator. In mittleren und höheren Breiten sinkt die Vorkommenshäufigkeit auf Werte um 20%. Jahreszeitliche Schwankungen betreffen vor allem die Lage des Maximums in den Tropen. Auf der Nordhalbkugel werden in den mittleren Breiten die nichtsichtbaren Wolken etwas häufiger beobachtet als auf der Südhalbkugel. Die Angaben zur Vorkommenshäufigkeit bei WANG et al. [1996] sind nicht im Widerspruch zu denen von WINKER und TREPTE [1998] zu sehen. Bei WANG et al. [1996] handelt es sich um einen Maximalwert, bei WINKER und TREPTE [1998] um den Durchschnittswert einer deutlich weiter ausgedehnten Region.

Bei Langzeitmessungen (1997 bis 1999) von Cirren mittels Lidar in den mittleren Breiten wurden Cirren mit einer Wahrscheinlichkeit von etwas über 10% auch oberhalb der Tropopause beobachtet [GOLDFARB et al., 2001].

Die Temperatur, bei der die Wolken beobachtet werden, ist verschieden, abhängig von der geographischen Breite. Im Bereich der tropischen Tropopause liegt die Temperatur bei ca. -80° C oder sogar darunter, in den mittleren Breiten hingegen nicht wesentlich unter -60° C.

Der in polaren Breiten beobachtete *haze mode* ist ein Grenzfall zu den nichtsichtbaren Wolken. Er wird unter Bedingungen gemessen, bei denen noch keine Nukleation von Eispartikeln auftritt, wird aber von satellitengestützten Messungen (z. B. SAGE II) als nichtsichtbare Wolke angesehen [PETZOLD et al., 2000]. Das Maximum des haze mode liegt bei etwa einem Mikrometer Durchmesser, also deutlich unter den Werten, die für nichtsichtbare Wolken in der Literatur genannt werden und im Rahmen der vorliegenden Arbeit gemessen wurden.

Mikrophysikalische Eigenschaften

Das Wissen um die Mikrophysik ist auf sehr wenige in-situ-Messungen beschränkt. Erste in-situ-Messungen innerhalb nichtsichtbaren Wolken wurden von BARNES [1980] veröffentlicht, der den Begriff sub-visible cirrus einführte. Bei der Beobachtung großer Partikel in der freien Atmosphäre unterhalb von Cirren hatten die größten Teilchen, die mit einer PMS 1D-Sonde gemessen wurden, eine Größe im Bereich von 200 μ m Partikeldurchmesser. Aus Messungen mit einer PMS-ASSP-Sonde wurde eine Anzahlkonzentration in wolkenfreier Atmosphäre von 10⁴ m⁻³ berechnet mit einem Maximum der Verteilung zwischen 2 μ m und 10 μ m. Innerhalb der Wolken lag das Maximum der Größenverteilung bei 4 μ m oder darunter. Dies betrifft Messungen in den mittleren Breiten, bei Messungen in den Tropen konnte die Tropopause nicht erreicht werden, gut zwei Kilometer darunter wurden aber auch noch nichtsichtbare Cirren beobachtet, jedoch mit kleinerer Maximalgröße der Teilchen [BARNES, 1980].

Als grundlegend für nichtsichtbare Cirren wurden von LYNCH [1993] folgende Eigenschaften vorgeschlagen: Nichtsichtbare Cirren bestehen aus nichtsphärischen Eispartikeln wie Plättchen, stäbchenförmigen oder auch klumpigen Teilchen oder auch Clustern mit einer größten Länge von weniger als 50 μ m. Der Eiswassergehalt soll dabei unter 0, 2 mg m⁻³ liegen, die Anzahlkonzentrationen unter 0,05 cm⁻³. Dieser Wert wurde aus Veröffentlichungen von Lidar-Messungen abgeleitet bzw. von in-situ-Beobachtungen, bei denen nur Teilchen mit einem Durchmesser größer 3 μ m gemessen worden waren [HEYMSFIELD, 1986; SASSEN et al., 1989; BARNES, 1980]. Somit betrifft dieser Wert nur die Konzentration dieser Wolkenteilchen ohne kleinere Wolkenteilchen und ohne das nicht zu Wolkenteilchen aktivierte (interstitielle) Aerosol, das zu einem Teil auch noch vom FSSP-300 erfaßt wird. Ähnliche Werte für den Eiswassergehalt geben auch SCHMIDT et al. [1993] an: 0,08 bis 0,2 mg m⁻³ für nichtsichtbare ITCZ-Cirren und höhere Werte mit bis zu 1 mg m⁻³ nur für orographische nichtsichtbare Wolken.

Auf Basis von Lidar- und Strahlungsmessungen in den mittleren Breiten und mit der Annahme, daß es sich bei den Wolkenteilchen um hexagonale Eiskristalle handelt, wurden von SASSEN et al. [1989] mikrophysikalische Größen abgeleitet, wonach eine mittlere Teilchengröße von 25 μ m effektiver Durchmesser und eine Anzahlkonzentration von 0,025 cm⁻³ zu erwarten sind.

In-situ-Messungen nichtsichtbarer Wolken mit einem formvar replicator [HEYMSFIELD, 1986] an der tropischen Tropopause im Bereich der Marshall-Inseln zwischen 16,2 und 16,7 km Höhe zeigten zu je 50% trigonale Platten und säulenförmige Kristalle bei Temperaturen von -83°C bis -84°C innerhalb der Wolke. Die trigonalen Platten hatten bei kleinen Partikelgrößen ein Dicken-Durchmesser-Verhältnis von fast 1. Die von dem Replikator detektierten Teilchen liegen im Größenbereich von 5 μ m – der unteren Detektionsgrenze – bis 50 μ m. Messungen mit einem ASSP – einem Gerät mit ähnlicher Funktionsweise wie ein FSSP und einem Meßbereich von 3 μ m bis 30 μ m – ergaben Teilchenkonzentrationen von 0,05 cm⁻³ in der beobachteten Cirrusschicht mit einer mittleren Teilchenlänge von 5 μ m und einem Eiswassergehalt von 0,1 mg m⁻³ oder $\approx 10^{-6}$ ppmv.

KNOLLENBERG et al. [1993] verwendeten ein modifiziertes FSSP-100 zur Messung von Eiskristallen in Ambossen von Cumulonimben. Die beobachteten Teilchen waren quasi sphärisch oder von niedrigem Längenverhältnis. Die Größenverteilungen zeigen Maxima oder zumindest Schultern bei etwa 20 μ m mit Anzahldichten (dN/dd_P) kleiner als 0,01 cm⁻³ μ m⁻¹ bei Temperaturen von -40° C.

Messungen aus dem Jahre 1973 von den Marshall-Inseln, die von MCFAR-QUHAR et al. [2000] veröffentlicht wurden, zeigten, daß keine Eiskristalle größer als 17 μ m von einem ASSP gemessen wurden. Mit einem 1DC-Meßgerät wurden Partikel im Größenbereich von 20 bis 50 μ m beobachtet, die Konzentration dieser Teilchen lag jedoch eine Größenordnung unter der des Maximums der Größenverteilung bei etwa 6 μ m (siehe Abbildung 6.18). Weitere Messungen von MCFARQUHAR und HEYMSFIELD [1996] zeigen, daß große Eisteilchen in Amboßwolken von quasi-sphärischer Form oder hexagonale Platten sind. Mit einem Video Ice Particle Sampler wurde ferner gezeigt, daß über 90% der Kristalle im Größenbereich von 5 μ m bis 10 μ m bis 100 μ m quasi sphärisch und nicht scharfkantig sind. Eine Schlußfolgerung der Autoren ist, daß die Teilchenformen, die in tropischen Cirren zu finden sind, sich signifikant von denen unterscheiden, die üblicherweise in Cirren der mittleren Breiten zu finden sind.

Auch aufgrund der unterschiedlichen Temperaturen an der Tropopause in den Tropen und den mittleren Breiten (um 190 K bzw. über 210 K) ist es durchaus möglich, daß sich die Wolken in Entstehung und Mikrophysik der Teilchen voneinander unterscheiden. Genaueres läßt sich beim gegenwärtigen Kenntnisstand noch nicht sagen.

Wolkenbildung

Mehrere Konzepte zur Entstehung nichtsichtbarer Wolken wurden in den letzten Jahren veröffentlicht, wobei der Bereich der tropischen Tropopause im Vordergrund stand. Zum gegenwärtigen Zeitpunkt kann keines der Modelle als gesichert angesehen werden, was nicht zuletzt an der unzureichenden Datenbasis von in-situ-Messungen liegt.

Sehr allgemein stellte bereits BARNES [1980] die Hypothese auf, natürliche Hebungsmechanismen in der Atmosphäre seien Ursache für die Wolkenbildung. Aufgrund von Beobachtungen, bei denen die dünnen Cirren in 100 bis 200 km Entfernung von hochreichenden Wolken auftraten, nahmen PRABHAKARA et al. [1988] an, daß die dünnen Cirrenschichten durch Ausbreitung von dickeren Cirren entstehen, die sich zunächst über Gebieten starker Konvektion – wie der ITCZ – bilden. Beobachtungen von dünnen Cirren in Gebieten ohne Konvektion sprechen allerdings dafür, daß dies zumindest nicht der einzige Mechanismus ist (siehe z. B. HEYMSFIELD [1986]; WINKER und TREPTE [1998]).

Varianten dieser beiden Hypothesen verwenden JENSEN et al. [1996b] für Modellrechnungen. Die dünnen Cirrenschichten können demnach Reste des Cirrenausläufers vom Amboß einer konvektiven Wolke sein, oder aber die Wolken bilden sich durch homogene Nukleation in feuchten Luftschichten, die durch langsame Aufwinde synoptischer Größenordnung angehoben werden. Für das erste Szenario ergeben sich volumenäquivalente Radien der Wolkenteilchen zwischen 2 μ m und 20 μ m. Bei der Annahme großräumiger Aufwinde ist von Partikelanzahlkonzentrationen der Eiskristalle von 0,5 cm⁻³ bei Volumenäquivalentradien von 4 μ m bis 10 μ m auszugehen. Daraus resultiert eine optische Dicke von 0,02.

In einem weiteren Artikel von JENSEN et al. [1996a] wurden Simulationen vorgestellt, mit denen die Bildung von Eiswolken im Temperaturminimum von Schwerewellen mit Periodenlängen von 1 bis 2 Stunden analysiert wurden. Die Ergebnisse deuten auf eine erhöhte Anzahl von Eiskristallen im Radiusbereich von 2 μ m bis 4 μ m hin als Folge der tiefen Temperaturen und schneller Abkühlung.

Die relative Feuchte über Eis (RHI) liegt im Bereich der tropischen Tropopause bei Werten von 50 bis über 100%, was von JENSEN et al. [1999] aus Mikrowellen Limb Messungen mit dem UARS (Upper Atmospheric Research Satellite) abgeleitet wurde. Hohe RHI-Werte werden selbst in wolkenfreien Gebieten erreicht, und wenn jene im Bereich von 80 bis 100% liegen, reicht ein Anheben der betreffenden Luftpakete um wenige hundert Meter – z. B. durch eine langsame Aufwärtsbewegung der Luftmasse – aus, Übersättigung zu erreichen und damit das Teilchenwachstum auszulösen, das dann zur Bildung der dünnen Cirrenschichten führt. Wenn diese Aufwärtsbewegung der Luft langanhaltend ist, kann auch die lange Lebensdauer der Wolken damit erklärt werden.

Modellierung der Wolkeneigenschaften

Bei der Modellierung von Nachtbedingungen dünner Cirrenschichten gingen BOEHM et al. [1999] von der Hypothese aus, daß es sich dabei um Reste von Cirren aus Cumulonimbus-Ausläufern handelt. Das Modell stützt sich auf Messungen im Wolkenoberrand von tropischen Cumulonimben [KNOLLEN-BERG et al., 1993] und in tropischen Cirren [MCFARQUHAR und HEYMS-FIELD, 1996], wobei zur Initialisierung Größenverteilungen von Eispartikeln mit Modalradien von 10 μ m und 20 μ m verwendet wurden. Diese Modellierungen ergaben, daß die Eiskristalle in tropischen Cirren Modalradien von weniger als 10 μ m haben müssen, da andernfalls die Lebenszeiten der Wolken kürzer wären, als es die Beobachtungen wissen lassen.

Ausgehend von Lognormalverteilungen der Wolkenteilchen mit unterschiedlichen Modalparametern schlossen ROSENFIELD et al. [1998] aus ihren Modellierungen, daß 2 μ m große Teilchen zu große Streuverhältnisse liefern, verglichen mit den Beobachtungen mit Lidar. Teilchen mit 6 μ m Radius hingegen ergeben eine gute Übereinstimmung der beobachteten mit den berechneten Rückstreuverhältnissen und optischen Dicken.

Chemie der Wolkenteilchen

Bezüglich der chemischen Zusammensetzung der Wolkenteilchen kamen HA-MILL und FIOCCO [1988] zu dem Ergebnis, daß unter den tropischen atmosphärischen Bedingungen Partikel aus NAT (Salpetersäuretrihydrat) stabil sein können, ähnlich wie bei polaren Stratosphärenwolken. Diese Modellierungen gehen von Abschätzungen bezüglich der HNO₃-Werte und des Wassergehaltes aus und verwenden die von der tropischen Tropopause bekannten sehr niedrigen Temperaturen. OMAR und GARDNER [2001] versuchten diese Hypothese mit Lidar-Messungen des LITE-Satelliten zu unterstützen. Auch HERVIG und MCHUGH [2002] beschreiben auf Basis satellitengestützter Transmissionsmessungen Wolken aus NAT-Partikeln im Bereich der tropischen Tropopause. Die meisten Artikel zum Thema nichtsichtbarer Wolken gehen jedoch implizit oder explizit von der Annahme aus, daß die Wolkenteilchen zum überwiegenden Teil aus Wassereis bestehen, allerdings ohne daß es hierfür direkte Hinweise aus in-situ-Messungen gegeben hätte. Durch die bei APE-THESEO gemachten Messungen konnte die Eis-Hypothese auch experimentell untermauert werden. Die Partikelmessungen wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführt und werden in diesem Kapitel vorgestellt. Siehe zum Thema Eis- versus NAT-Hypothese die Ausführungen in der Diskussion auf den Seiten 157f.

Da die nichtsichtbaren Wolken in der Regel im Bereich der Tropopause auftreten, unter Umständen sogar darüber (siehe hierzu die Anmerkung im Abschnitt zur Phänomenologie, S. 118), können heterogene chemische Reaktionen auf den Wolkenteilchen bei der chemischen Zusammensetzung der Luft in dieser Region eine Rolle spielen. Dies kann sowohl die Menge an Ozon oder NO_v in der Tropopausenregion betreffen [BORRMANN et al., 1996; So-LOMON et al., 1997], aber auch die Chemie des Chlors. Sind die Reaktionskoeffizienten für Chlorverbindungen hoch, wie das bei Eispartikeln der Fall ist, so reichen schon geringe Werte der Partikeloberfläche aus, Reaktionen dieser chemischen Spezies aufrecht zu erhalten [FAHEY et al., 1993; KEIM et al., 1996]. Somit könnten schon geringe Mengen kleiner Wolkenteilchen, wie bei nichtsichtbaren Wolken, in diesem Kontext von Bedeutung sein. Daher ist neben der Kenntnis der Partikeloberfläche, wie sie aus den hier vorgelegten Messungen abgeleitet werden kann, auch die Kenntnis der chemischen Zusammensetzung der Wolkenteilchen in der gegenwärtigen Diskussion dieses Themas [BREGMAN et al., 2002] von Bedeutung. Auswirkungen hat die chemische Zusammensetzung auf den Brechungsindex und damit auf die Auswertung von optischen Meßverfahren, sowohl bei der Fernerkundung als auch bei in-situ-Messungen, wie z. B. den im Rahmen der vorliegenden Arbeit gemachten. Schließlich sind auch die reaktiven Aufnahmekoeffizienten für heterogene chemische Reaktionen von der Zusammensetzung der Partikel abhängig.

6.3 Die APE-THESEO-Meßkampagne in den Tropen

Die Meßkampagne APE-THESEO wurde vom 19. Februar bis zum 11. März 1999 von der Seychelleninsel Mahé aus durchgeführt. Meßträger für die verschiedenen Meßinstrumente war das russische Höhenforschungsflugzeug M-55 Geophysika. Ein Lidar (OLEX) wurde auf der DLR-Falcon geflogen. Damit war es auch möglich, während des Fluges dem Piloten der Geophysika detaillierte Fluganweisungen zu geben, wenn mit dem Lidar der vorausfliegenden Falcon interessante Beobachtungen gemacht worden waren.

Die weiteren Meßinstrumente, deren Ergebnisse neben denen des FSSP-300 zur Auswertung im Rahmen dieser Arbeit herangezogen wurden und die – mit Ausnahme des OLEX-Lidar – auf der Geophysika flogen, waren:

UCSE: Grundinstrumentierung der Geophysika. Für die vorliegende Arbeit wurden Temperatur, Druck, wahre Eigengeschwindigkeit, Windgeschwindigkeit und -richtung verwendet. Aus UCSE-Temperatur- und -Druckwerten wurde auch die potentielle Temperatur berechnet.

- **ECOC** (Electro-Chemical Ozone Cell): in-situ-Ozon-Mischungsverhältnis [Kyrö et al., 2000]. ECOC erfaßte über einen GPS-Empfänger auch die geographische Position.
- **FISH** (Fast In-situ Stratospheric Hygrometer): Gesamtwassergehalt (d. h. Gasphase und Partikel) [Zöger et al., 1999].
- MAL (Miniature Airborne Lidar): ein Mikrojoule-Lidar auf der Geophysika, mißt Rückstreuung und Depolarisation bei 532 nm in dem Bereich von 300 bis maximal 1000 m über dem Flugzeug [MATTHEY et al., 2000].
- **MAS** (Multiwavelength Aerosol laser Scatterometer): Dieses Gerät mißt die Aerosol Rückstreuung in direkter Umgebung seitlich des Flugzeugs bei drei verschiedenen Wellenlängen [ADRIANI et al., 1999]. Es werden das Rückstreuverhältnis (BSR) und die Depolarisation (DR) angegeben.
- **OLEX** (Ozone Lidar EXperiment): Lidar auf der DLR-Falcon, mißt die Rückstreuung bei 354, 532 und 1064 nm und die Depolarisation bei 532 nm [WIRTH und RENGER, 1996].

Die Arbeitsgruppen und Namen der beteiligten Wissenschaftler sind im Anhang C.3 aufgelistet.

Aus den Daten der Instrumente, die das rückgestreute Licht messen (MAL, MAS, OLEX), können Aussagen über die Partikelkonzentration und die Aerosoldepolarisation (Volumendepolarisation durch das Aerosol) abgeleitet werden.

Die Meßflüge

Die Bedeutung der nichtsichtbaren Wolken wird in verschiedenen Zusammenhängen diskutiert – Dehydrierung der Luft beim Übergang in die Stratosphäre, heterogene Chemie und Strahlungshaushalt. Wie in Abschnitt 6.2 beschrieben, gibt es verschieden Hypothesen zur Bildung der nichtsichtbaren Wolken, und auf Grund der bisherigen Beobachtungen lassen sich keine eindeutigen Zuordnungen zum sonstigen troposphärischen Wettergeschehen machen. Daher wurden bei APE-THESEO Flüge bei unterschiedlichen Wetterlagen durchgeführt, so z. B. Wetterlagen ohne und mit Konvektion und teilweise Flüge in die direkte Nähe hochreichender Cumulonimben.

Bei den Messungen während APE-THESEO von Mahé (Seychellen) aus, wurden mit dem FSSP-300 bei zwei Flügen Wolkenteilchen sichtbarer und nichtsichtbarer Cirren in verschiedenen Höhenbereichen gemessen [THOMAS et al., 2002]. Der Flug am 24. Februar 1999 galt einem Cumulonimbus-System, bei dem Cirrenausläufer und weiterhin ausgedehnte dünne Wolkenschichten im Bereich der Tropopause beobachtet wurden. Im METEOSAT-Satellitenbild in Abbildung 6.1 (oben) ist das Cb-System mit einem Durch-



Abbildung 6.1: METEOSAT IR Satellitenbilder zum 2. und 3. Flug bei APE-THESEO vom 24. bzw. 27. Februar 1999, jeweils mit eingetragenem Flugweg der Geopysika. Die kältesten Bereiche sind farbcodiert, dunkelblau für die tiefsten Temperaturen. Der Bildausschnitt reicht jeweils von 40° bis 70°O und von 20°S bis 10°N. Die Zeiten sind hier Ortszeit (UTC+3h).

messer von 500 bis 600 km zu erkennen (im Bild in dem Bereich mit der feineren Gradeinteilung). Die kälteren und damit höchsten Bereiche der Wolke sind durch Falschfarbendarstellung hervorgehoben, dunkelblau für die kältesten Wolkenteile.

Am 27. Februar ist auf dem Infrarot-Satellitenbild an den tiefen Temperaturen auch hochreichende Konvektion zu erkennen, jedoch hat sich kein Cb-System gebildet, das dem vom 24. Februar vergleichbar wäre. Der Flugweg führte auch nicht direkt in die Kernbereiche der Konvektion, sondern in mehr oder weniger großem Abstand daran vorbei. Vom FSSP-300 liegen nur Daten vom Aufstieg vor, die übrigen Daten sind auf Grund eines während des weiteren Fluges aufgetretenen Instrumentendefekts nicht verwertbar. Die Geophysika durchflog in diesem Flugabschnitt einen Cirrus, dessen oberer Rand ca. 1000 m unterhalb der Tropopause lag. Der Abschnitt des Flugweges, bei dem mit dem FSSP-300 Wolkenpartikel gemessen wurden, ist im Satellitenbild in Abbildung 6.1 (unten) farbig markiert.

In Abbildung 6.1 ist – an Stelle der sonst verwendeten koordinierten Weltzeit (UTC) – jeweils die Ortszeit (LT) angegeben, die für die Seychellen gegenüber UTC drei Stunden vorgeht.

6.4 In-situ-Messungen des Aerosols

Die Zeitreihe des gesamten 2. Fluges vom 24. Februar 1999 ist in Abbildung 6.2 dargestellt. Aufgetragen sind in 30-s-Mittelwerten die FSSP-300 Aerosolmessungen (Gesamtpartikelkonzentration und -volumen) sowie der Druckhöhen- und Temperaturverlauf. Messungen in Wolken sind vor allem an dem starken Anstieg des Partikelvolumens zu erkennen. Die einzelnen Wolkenereignisse, d. h. Zeiten, in denen vom FSSP-300 Teilchen größer als 1 μ m gemessen wurden, sind durch Pfeile markiert. Die Wolken, die in diesem Kapitel betrachtet werden, sind mit Kennungsbuchstaben (A, B, C, D) versehen.

Schon anhand der Zeitreihe der Aerosoldaten in Abbildung 6.2 können die beobachteten Wolken in zwei Gruppen eingeteilt werden: zum einen Wolken, bei denen nicht nur das Partikelvolumen, sondern auch die Partikelanzahlkonzentration deutlich anstieg, zum anderen die Wolken, bei denen die Konzentration nur geringfügig über der Konzentration des Hintergrundaerosols lag. Letzteres waren die Wolken A_1 , A_2 , A_3 und D, und diese waren alle "nichtsichtbar", während B und C "sichtbar" waren.

Eine weitere Einteilung ist anhand der Höhe möglich, in der die Wolken beobachtet wurden. In Abbildung 6.3 sind die Höhenprofile der beiden Flüge zu sehen. Aufgetragen sind die mit dem FSSP-300 gemessenen Aerosolparameter, die Temperatur, das Ozonmischungsverhältnis sowie der Gesamtwassergehalt und das daraus abgeleitete Sättigungmischungsverhältnis über Eis.



Abbildung 6.2: Zeitreihe des 2. Fluges bei APE-THESEO vom 24. Februar 1999.

Im Profil vom 24. Februar 1999 (Abbildung 6.3, oben) fallen oberhalb 10 km zwei Höhenschichten auf, in denen Cirren beobachtet wurden, wiederum zu erkennen an dem Anstieg des Partikelvolumens (vergleiche auch mit den OLEX-Lidarbildern in den Abbildungen 6.5 und 6.6). Der Teil des Fluges, der für das Profil verwendet wurde, ist in Abbildung 6.2 markiert, es ist der zweite Teil des Fluges einschließlich der Wolke B. Die tiefere der beiden Wolkenschichten wurde während des Aufstiegs, des Zwischenabstiegs und des Abstiegs in 13 bis 14 km Höhe beobachtet (Wolken B, C und D). Direkt unterhalb der Tropopause in fast 17 Kilometern Höhe wurde die höhere, ausgedehnte und sehr dünne Wolkenschicht mit der Geophysika durchflogen. An drei Stellen wurden Wolkenpartikel dieser Schicht vom FSSP-300 detektiert (Wolken A₁, A₂ und A₃). Die in einigen Aufnahmen des OLEX-Lidar zu sehende Doppelschicht an der Tropopause wurde bei den in-situ-Messungen mit der Geophysika nicht gesehen.

Die anderen Wolken wurden in Höhen zwischen den beiden Wolkenschichten beobachtet, während die Geophysika einen langsamen Abstieg über dem Turm des Cumulonimbus-Systems machte. Da der Pilot aus Sicherheitsgründen nicht weit in die Wolke einfliegen konnte, wurden immer nur kleine Bereiche am Rande der Wolke für eine halbe bis eine Minute durch-



Abbildung 6.3: oben: Profil über die gesamte Flughöhe der zweiten Hälfte des 2. Meßfluges vom 24. Februar 1999. unten: Profil der FSSP-300-Messungen vom 3. Meßflug bei APE-THESEO am 27. Februar 1999. Zur Einteilung der Wolkenbereiche siehe Abbildung 6.9 und Erläuterungen dort. (Beide Abbildungen modifiziert nach THOMAS et al. [2002].)

flogen. Diese Messungen werden hier nicht weiter betrachtet, sind aber ein Hinweis darauf, daß die Konvektion bis in diesen Bereich der Troposphäre – den sogenannten "Tropical Tropopause Layer" – reichte.

Die am 27. Februar 1999 durchflogene Wolke wurde mit etwa 16,5 km zwar in großer Höhe, aber doch deutlich unterhalb der Tropopause beobachtet. Diese Wolke ist bezüglich der Variabilität der Partikelkonzentration recht inhomogen, wie auch die Wolken B, C und D vom 24. Februar. Im Vertikalprofil fällt vor allem der obere Bereich der Wolke auf (Bereich 4), bei dem die Partikelkonzentration nicht wesentlich über der des Hintergrundaerosols liegt, wie schon in den nichtsichtbaren Wolken (A und D) am 24. Februar. Die einzelnen Bereiche der Wolke werden in Abschnitt 6.6 betrachtet.

Die Kurven für den Gesamtwassergehalt zeigen sowohl am 24. Februar für die Wolken an der Tropopause als auch für die Wolke am 27. Februar klar eine Übersättigung bezüglich Eis an. Für die tiefere Wolkenschicht am 24. Februar liegen keine entsprechenden Daten vor.

Die Lage der (thermischen) Tropopause ist in den Temperaturprofilen an beiden Tagen deutlich und eindeutig am Temperaturminimum zu erkennen. Nahezu auf gleicher Höhe liegt die "Ozon-Tropopause", d.h. die Höhe, in der die Ozonwerte rasch von troposphärischen auf stratosphärische Werte ansteigen. Im Profil vom 24. Februar wurden auch noch die Temperaturdaten zweier Sondenaufstiege eingetragen, anhand derer zu erkennen ist, daß das von der Geophysika erflogene Temperaturminimum tatsächlich die Tropopause markiert. Bis zu einer Höhe von 26,5 km stieg die Temperatur quasi monoton von ca. 185 K auf ca. 220 K an.

Anmerkung zur Tropopausenhöhe

Bei den Beobachtungen von nichtsichtbaren Wolken auch oberhalb der tropischen Tropopause [WINKER und TREPTE, 1998; WANG et al., 1996] (siehe Seite 118f) ist zu beachten, daß es sich nicht um in-situ-Messungen handelte und auch die Tropopausenhöhen nicht direkt bestimmt wurden. Die in den Artikeln angegebenen mittleren Tropopausenhöhen liegen bei 16,5 bzw. 16 km. Bei den im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Messungen bei APE-THESEO lag die thermische Tropopause in 17,2 bis 17,8 km geometrischer Höhe (16,9 bis 17,4 km Druckhöhe). Die nichtsichtbaren Wolken wurden hierbei in etwa 16,9 bis 17,5 km geometrischer Höhe (16,5 bis 17,1 km Druckhöhe) beobachtet. Das heißt, die Höhe der Wolken lag oberhalb der klimatologisch mittleren Tropopausenhöhe, tatsächlich aber traten die Wolken unterhalb der Tropopause auf.

6.5 Lidar-Messungen am 24. Februar 1999

Räumlicher Zusammenhang von Lidar- und in-situ-Messungen

Um die Wolkenmessungen der einzelnen Meßinstrumente zueinander und zur Lage des Cumulonimbus besser beurteilen zu können, wurden diese in Abbildung 6.4 mit den Flugwegen der beiden Flugzeuge in einen Ausschnitt des METEOSAT-Bildes eingezeichnet. Markiert sind die Bereiche, in denen das FSSP-300 Wolkenteilchen gemessen hat, sowie der Bereich in dem von MAL die Cirrenschicht an der Tropopause gesehen wurde. Beide Instrumente sind auf der Geophysika geflogen. Das FSSP-300 hat während des gesamten Fluges gemessen.

Die Messungen des DLR OLEX-Lidars auf der Falcon – von dem die tiefere Cirrenschicht während der gesamten Betriebszeit gesehen wurde – sind ebenso eingetragen. Weiterhin ist markiert, wann die Cirrenschicht an der Tropopause zu erkennen war. Diese nichtsichtbare Wolkenschicht wurde nicht immer vom Lidar beobachtet, was aber teilweise mit Abschattung durch die tieferen Wolken erklärt werden kann. Im Bereich des Cumulonimbus mußte das OLEX wegen Turbulenzen ausgeschaltet werden, so daß für Wolken A₁ und B keine vergleichbaren Lidar-Messungen vorliegen.

Beobachtungen des OLEX-Lidar

Die Abbildungen 6.5 und 6.6 zeigen Aufnahmen des OLEX-Lidar vom 24. Februar 1999 bei drei verschiedenen Wellenlängen (Abbildung 6.6) bzw. nur für 1064 nm (Abbildung 6.5). Dargestellt sind die jeweiligen Rückstreuverhältnisse. Die Farbkodierung ist für verschiedene Wellenlängen nicht einheitlich. Bei einem Vergleich mit dem Vertikalprofil in Abbildung 6.3 ist zu beachten, daß dort die Ordinate die Druckhöhe wiedergibt, während in den Lidarbildern die geometrische Höhe als Maßstab dient.

Auch in den Lidaraufnahmen sind die beiden getrennten Wolkenbereiche zu erkennen:

- 1. Die sehr dünne Cirrenschicht an der Tropopause. Teilweise ist sie als Doppelschicht ausgebildet.
- Darunter, deutlich von der Schicht an der Tropopause getrennt, die dickere Schicht, die zwischen 12 und fast 15 Kilometern liegt. Diese Wolken sind stark strukturiert. Teilweise umfaßt auch diese Schicht zwei, voneinander getrennte Wolkenbänder.

Die tiefere Wolkenschicht ist in sehr verschiedenen Stadien zu beobachten, es ist an einigen Stellen ein fließender Übergang zu erkennen von sichtbar bis nichtsichtbar, d. h. von höheren optischen Dicken zu niedrigeren, so z. B. in Abbildung 6.5 bei dem Wolkenband in 14 km Höhe vom rechten



Abbildung 6.4: Flugwege von Geophysika und DLR-Falcon des 2. Fluges bei APE-THESEO vom 24. Februar 1999. Erläuterungen im Text.



Abbildung 6.5: DLR OLEX, Lidar-Messung vom 24. Februar 1999, Rückstreuverhältnis bei 1064 nm. Messungen vom letzten Flugabschnitt der DLR-Falcon, als Geophysika und Falcon weitgehend zeitgleich mit relativ geringem Abstand geflogen sind. Die Höhenskala gibt die geometrische Höhe an (aus THOMAS et al. [2002], ©2002 American Geophysical Union).

Bildrand (sichtbar) zum linken Bildrand (nichtsichtbar). Die in-situ-Messung des sichtbaren Teils dieser Wolkenschicht mit dem FSSP-300 (Wolke C) erfolgte zeitgleich ca. 17 km querab des Flugweges der Falcon. In Abbildung 6.5 ist dies der Bereich von Markierung 210 km bis zum rechten Bildrand (siehe auch Abbildung 6.4). Aus dem Lidarbild ist auch zu ersehen, daß die Wolke über eine Entfernung von 17 km – dem Abstand von Lidar und in-situ-Messungen – nicht so stark variiert, als daß die Ergebnisse nicht mehr vergleichbar wären. Die in-situ-Messung von Wolke C zeigt die gleiche Schichtung mit höherer Konzentration im oberen Teil der Wolke als im unteren (siehe auch Abbildung 6.11).

Ein nichtsichtbarer Bereich der tieferen Wolkenschicht wurde während des Aufstieges sowohl in-situ mit dem FSSP-300 gemessen (Wolke D), als auch mit dem OLEX-Lidar. Der Abstand zwischen in-situ-Messung und Lidar-Messung betrug ungefähr 25 km (siehe auch die Übersicht in Abbildung 6.4). Das Lidarbild ist hier nicht gezeigt, entspricht aber im wesentlichen dem Zustand, der in Abbildung 6.5 etwa bei Markierung 140 km zu erkennen ist (die Schicht mit der Unterkante bei 14 km Höhe). In Abbildung 6.11 (linkes Teilbild) ist das Höhenprofil der FSSP-300-Messungen von Wolke D aufgetragen. Die beim Partikelvolumen zu erkennende Schichtung – mit höheren Werten im unteren Teil der Wolke – kann, was die FSSP-300-Messungen anbelangt, wegen der schlechten Zählstatistik nur als



Abbildung 6.6: OLEX-Lidar-Messungen des mittleren Flugabschnittes der DLR-Falcon vom 24. Februar 1999. Die Höhenskala gibt die geometrische Höhe an.

qualitativer Hinweis gewertet werden. Diese in-situ-Beobachtung ist aber in Übereinstimmung mit den Lidar-Messungen, die auch eine Schichtung mit höherer Rückstreuung im unteren Teil der Wolke zeigen.

Die Persistenz der Wolken läßt sich gut am mittleren Flugabschnitt der DLR-Falcon erkennen, der fast durchgehend vom OLEX-Lidar dokumentiert wurde (Abbildung 6.6). Die Falcon flog auf dem Rückweg vom Cumulonimbus eine Strecke direkt nach Norden und nahezu denselben Weg wieder zurück, wobei auch der Flugweg des ersten Flugabschnittes (Hinflug zum Cb) geschnitten wurde. Dieser Flugabschnitt ist auch in der Übersicht in Abbildung 6.4 zu erkennen: der Flugweg ungefähr entlang des 51. Längengrades. Der Umkehrpunkt liegt auf dem Lidarbild (Abbildung 6.6) ziemlich genau in der Mitte bei der Markierung 315 km, der zweimal geflogene Flugweg beginnt bei etwa 60 km und endet am rechten Bildrand. Für diesen Weg brauchte die Falcon etwa 45 Minuten. Es fällt die hohe Symmetrie der Wolken zum Umkehrpunkt auf, sogar die tiefere Cirrenschicht hat sich in der Zeit zwischen Hin- und Rückflug nicht wesentlich verändert. Die doppelte Cirrenschicht an der Tropopause wurde beim Hinflug auch schon gesehen, wobei zwischen der ersten und letzten Beobachtung etwa zweieinhalb Stunden liegen (siehe auch Abbildung 6.4).

Die in-situ-Messung der Tropopausenwolken mit dem FSSP-300 (Wolke A_2) erfolgte nur wenige Kilometer querab von dem Bereich, der auch mit dem OLEX-Lidar beobachtet wurde. In Abbildung 6.6 sind dies die ersten 15 km der Messung (im Bild ganz links). Die Geophysika flog jedoch erst 45 Minuten später dort. Für Wolke A_1 liegen keine vergleichbaren Lidar-Messungen vor. Wolke A_3 wurde fast zeitgleich von FSSP-300 und OLEX-Lidar gemessen, die Bereiche überschneiden sich räumlich allerdings kaum. Da die Wolkenschicht in diesem Bereich über große Strecken sehr konstant ist, kann von einem entsprechenden Zustand im Bereich der in-situ-Messungen ausgegangen werden (in Abbildung 6.6 rechts vom Bildrand und in einem hier nicht gezeigten Lidarbild, das sich in den wesentlichen Punkten aber nicht unterscheidet). Es ist zu erkennen, daß mit Wolken A_2 und A_3 nahezu identische Zustände der Wolkenschicht an der Tropopause gemessen wurden.

Diese Beobachtungen verdeutlichen auch, welche Probleme bei der Flugdurchführung in komplexen meteorologischen Situationen bezüglich der Koordinierung zweier so unterschiedlicher Flugzeuge zu berücksichtigen sind.

MAL-Messungen

Ein Ausschnitt der Messungen des auf der Geophysika montierten Lidarsystems (MAL) ist in Abbildung 6.7 zu sehen (aus THOMAS et al. [2002]). Dargestellt ist das Rückstreuverhältnis und die Volumendepolarisation bei 532 nm. Im unteren Teilbild sind die Ergebnisse der FSSP-300-Messungen eingetragen: die Gesamtkonzentration und die Konzentration der Wolkenpartikel mit $d_P > 1, 1 \ \mu m$. Die Cirrenschicht an der Tropopause wurde von



Abbildung 6.7: Zeitreihe der Messungen des auf der Geophysika fliegenden Lidars (MAL) und der FSSP-300-Wolkenmessungen vom 24. Februar 1999 (siehe auch Abbildung 6.2). Die Höhenskala gibt die geometrische Höhe an (aus THOMAS et al. [2002], ©2002 American Geophysical Union, die Berechnungen der FSSP-300-Daten in dieser Graphik wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführt).

MAL auch schon vor dem in Abbildung 6.7 dargestellten Flugabschnitt gemessen. Die Ergebnisse der MAL-Messungen beeinflussen die Interpretation und Berechnung der FSSP-300-Größenverteilungen (siehe Erläuterungen im Abschnitt 6.9).

Diskussion

Ein wichtiger Punkt ist, daß die dünnen Wolken an der Tropopause meist nur bei 1064 nm zu erkennen sind, nicht bei den beiden anderen Wellenlängen, was mit dem bei 1064 nm günstigeren Signal-Rausch-Verhältnis zu erklären ist. Dies ist bei fast allen an diesem Tage gewonnenen Lidarbildern zu beobachten, nur in wenigen Fällen und dann auch nur sehr schwach ist die Cirrenschicht an der Tropopause bei 532 oder 354 nm zu sehen. Dieser Sachverhalt ist bei einem Vergleich mit anderen Lidar-Aufnahmen in der Literatur zu berücksichtigen, da diese in der Regel bei 532 nm gemessen wurden (z. B. WINKER und TREPTE [1998]. Die bei APE-THESEO beobachteten Cirrenschichten an der Tropopause waren also optisch dünner als die von früheren Lidar-Messungen bekannten. Daraus folgt auch, daß die Angabe von 14% für die von LITE-Lidar-Messungen abgeleitete Vorkommenshäufigkeit für Cirren an der tropischen Tropopause [WINKER und TREPTE, 1998] nach oben korrigiert werden muß (siehe Abschnitt 6.2, Seite 118).

Diejenigen Bereiche der dünnen Cirrenschicht an der Tropopause, die in den OLEX-Lidarbildern auch noch sehr schwach bei 532 und 354 nm zu erkennen sind, sind in Abbildung 6.6 am rechten und linken Bildrand zu sehen. Es handelt sich gerade um die Bereiche, die mit den FSSP-300 in-situ-Messungen assoziiert werden können – Wolke A_3 und insbesondere Wolke A_2 . Dies ist für die spätere Betrachtung wichtig: Die in-situ-Messungen mit dem FSSP-300 zeigen eine extrem niedrige Konzentration an Wolkenpartikeln und repräsentieren doch einen sowohl optisch als auch geometrisch dickeren Bereich der an diesem Tag beobachteten Wolkenschicht an der Tropopause.

An den in Abbildung 6.4 eingetragenen OLEX-Lidar-Messungen ist zu erkennen, daß die Cirrenschicht an der Tropopause über große Entfernungen hinweg als Doppelschicht ausgebildet war. An diesem Tag (24. Februar 1999) waren über die Hälfte der mit OLEX-Lidar beobachteten Cirren an der Tropopause solche Doppelschichten. Es handelte sich also bei diesem Meßflug keinesfalls um ein seltenes Phänomen. Schon bei einer der ersten Lidarbeobachtungen solcher Wolken im Jahre 1973 wurde teilweise eine Doppelschicht beobachtet [HEYMSFIELD, 1986], weshalb die Vermutung naheliegt, daß dieses Phänomen generell nicht außergewöhnlich ist.

Die Messungen mit MAL – dem Lidar auf der Geophysika – in Abbildung 6.4 zeigen, daß sich diese Cirrenschicht durchgehend auch über ein Gebiet hochreichender Konvektion erstreckt, ohne daß das MAL-Lidarsignal eine Struktur zeigte, die damit in Zusammenhang gebracht werden könnte. Schließlich ist in Abbildung 6.4 zu sehen, daß die FSSP-300-Messungen dieser hohen Cirrenschicht an sehr verschiedenen Orten relativ zum Cumulonimbus erfolgten: Wolke A_1 mit knapp hundert Kilometern vergleichsweise nahe an den höchsten Bereichen des Cumulonimbus, Wolken A_2 und A_3 mehrere hundert Kilometer entfernt. Die Größenverteilungen der Wolkenteilchen dieser drei Messungen unterscheiden sich jedoch nicht (siehe Abschnitt 6.9).

6.6 In-situ- und Lidar-Beobachtungen am 27. Februar 1999

Die Wolke, die am 27. Februar 1999 von der Geophysika beim Aufstieg durchflogen wurde, ähnelt in ihrer Strukuturierung den Cirren im Ausläufer des Cumulonimbus vom 24. Februar (vergleiche Abbildung 6.5 und 6.6). Die OLEX-Lidarbilder dieser Wolke sind in Abbildung 6.8 zu sehen. Dargestellt sind die Rückstreuung bei 1064 und 532 nm (mit anderer Farbcodierung als in Abbildung 6.6) sowie die Depolarisation bei 532 nm. Der Flugweg der Geophysika ist mit Markierung der einzelnen Wolkenabschnitte (siehe auch Abbildung 6.9) in das Lidarbild eingezeichnet, jeweils mit der geographischen Breite als Abszisse, den Lidarbildern entsprechend. Die Höhenskala des Geophysikaflugweges ist in dieser Abbildung die geometrische Höhe (GPS des ECOC Instrumentes).

Wie den Zeitachsen – unten im Bild – zu entnehmen ist, lagen der Zeitpunkt von Lidar-Messung und Durchflug der Geophysika etwa 25 Minuten auseinander. OLEX-Lidar- und FSSP-300-Wolkenmessungen stimmen aber doch gut überein, insbesondere der Einflug in die Wolke. Hier haben OLEX-Lidar und die Geophysika-Instrumente nahezu am selben Ort gemessen. Beim Ausflug aus der Wolke war die Geophysika jedoch etwas über 10 km vom Punkt der entsprechenden Lidar-Messungen entfernt.

Auf dem Satellitenbild in Abbildung 6.1 (unten) ist im Bereich der Wolkenmessungen auch eine Wolke zu erkennen. Durch einen Vergleich verschiedener Satellitenbilder konnten die Windverhältnisse in Höhe dieser Wolke ermittelt und dann mit den in-situ-Messungen der Geophysika verglichen werden. Wie diese Analyse ergab, lag die auf dem Satellitenbild zu sehende Wolke unterhalb der von OLEX-Lidar und den Geophysika-Instrumenten beobachteten Wolke.

Die Zeitreihen der Daten der in-situ-Meßinstrumente auf der Geophysika sind in Abbildung 6.9 zu sehen. Aufgetragen sind in 10 s Mittelwerten: die FSSP-300-Messungen (Partikelanzahl- und Partikelvolumenkonzentration), Gesamtwassergehalt und die MAS-Daten (Rückstreuung und Depolarisation), weiter Temperatur, Druckhöhe und Ozonmischungsverhältnis.

Die gesamten Wolkenmessungen wurde in vier Bereiche aufgeteilt (siehe auch das Profil in Abbildung 6.3, unten):

 Die FSSP-300-Partikelkonzentration lag unter 0,35 cm⁻³, im Mittel 0,18 cm⁻³, der Gesamtwassergehalt war relativ konstant bei 7-8 ppm. Die MAS-Signale bewegten sich auf mittlerem Niveau, d. h. deutlich über den Werten außerhalb der Wolke, aber niedriger als in Teil 2 und Teil 3. Dies ist in Übereinstimmung mit den OLEX-Lidarsignalen im Bereich des Flugweges.



Abbildung 6.8: Lidarbilder der Wolke, die am 27. Februar 1999 von der Geophysika durchflogen wurde (siehe auch Abbildungen 6.3 und 6.9). Der Flugweg der Geophysika ist eingetragen. Die Höhenskala gibt die geometrische Höhe an. Wolkenbereiche 1 bis 4 entsprechend der Einteilung in Abbildung 6.9. Weitere Erläuterungen im Text.

- 2. Die FSSP-300-Partikeldaten, der Gesamtwassergehalt und die MAS-Daten zeigten höhere Werte als in Teil 1. Die FSSP-300-Partikelkonzentration stieg mit 0.41 cm^{-3} auf über das doppelte an.
- 3. Der Flugweg lag nun bezüglich der Druckhöhe knapp 300 m höher, die Temperatur war 2 bis 3 K niedriger und die Ozonwerte stiegen leicht an. Gegenüber Teil 2 war die FSSP-300-Partikelkonzentration nahezu konstant. Rückstreuung und Depolarisation von MAS und vom



Abbildung 6.9: Zeitreihe der in-situ-Wolkenmessungen vom 27. Februar 1999 (siehe auch Profil in Abbildung 6.3 und Lidarbild in Abbildung 6.8). MAS BSR: Rückstreuung, MAS DR: Depolarisation. (Nach THOMAS et al. [2002], Messung und Berechnung der FSSP-300-Daten erfolgte im Rahmen der vorliegenden Arbeit.)

OLEX-Lidar waren im Vergleich zu Teil 2 nochmals erhöht, der Gesamtwassergehalt war aber niedriger als in Teil 2.

4. Dieser Wolkenteil unterschied sich deutlich von den vorigen. Die Geophysika hatte hier den oberen Randbereich der Wolke durchflogen (siehe Abbildung 6.8). Die Partikelkonzentration sank auf 0,009 cm⁻³. Ebenso ging der Gesamtwassergehalt und die MAS-Rückstreuung auf die niedrigsten Werte innerhalb der Wolke zurück. Alle Meßwerte in Teil 4 lagen aber noch über denen, die oberhalb der Wolke beobachtet wurden. Mit knapp 194 K war die Temperatur noch niedriger als in Teil 3 der Wolke. Die Ozonwerte erreichten ein lokales Maximum von ca. 87 ppb.

Der Teil 4 der Wolke ähnelt in einigen Punkten den Wolken A und D, die am 24. Februar 1999 beobachtet wurden: Der Gesamtwassergehalt war in Teil 4 nur gering gegenüber den Bereichen außerhalb der Wolke erhöht, wie bei den Wolken A. Die Gesamtkonzentration lag nur gering über der des Hintergrundaerosols. Die Konzentration der Wolkenpartikel war in Teil 4 nur dreimal so hoch wie in den Wolken A und D (siehe Tabelle 6.1), in Teil 1 und 3 war sie eine Größenordnung höher.

6.7 Meteorologische Analyse: Thermodynamische Diagramme

Beide Flüge sind in Abbildung 6.10 bzw. 6.12 als θ -T-Diagramme dargestellt, d. h. es wurde der Temperaturverlauf des ganzen Fluges mit der potentiellen Temperatur θ als Höhenskala aufgetragen. Es wurden jeweils gleitende 31-Sekundenmittel von Temperatur und θ verwendet und die Bereiche mit Wolkenmessungen farbig markiert. Es ist zu beachten, daß Feuchtund Trockenadiabaten in dem dargestellten Temperaturbereich parallel verlaufen. Ergänzend wurden auch noch die Ozonprofile eingetragen. Stüve-Diagramme von Sondenaufstiegen, die von Mahé aus an den beiden Tagen durchgeführt wurden, sind im Anhang B ab Seite 191 zu finden.

Im Diagramm des Fluges vom 24. Februar 1999 in Abbildung 6.10 sind die Höhenbänder der verschiedenen Wolkenbereiche zu erkennen. Bezüglich der potentiellen Temperatur lagen alle Bereiche, in denen die dünne Cirrenschicht an der Tropopause beobachtet wurde, auf einer Höhe. Die geometrische Höhe (GPS) hingegen unterschied sich um 200 bis 400 m, bei einer Wolkendicke von 300 m. Die Ozonwerte fingen direkt über der Cirrenschicht zu stratosphärischen Werten hin anzusteigen. Unterhalb der Cirrenschicht an der Tropopause und innerhalb der Wolken sind die Ozonwerte nur teilweise konstant. Eine genauere Betrachtung der Ozonprofile erfolgt im Abschnitt 6.11.



Abbildung 6.10: θ -T Diagramm mit Ozonprofil des ganzen Meßfluges vom 24. Februar 1999 bei APE-THESEO. Die Bereiche der Wolkenmessungen mit dem FSSP-300 sind durch dicke, farbige Linien markiert.

Die Temperaturinversion oberhalb der Cirren im Cb-Ausläufer ist nur bei den Wolken C und D zu beobachten (Abbildungen 6.10 und 6.11). Beide Wolken sind mehrere hundert Kilometer vom Zentrum des Cumulonimbus entfernt. Deutlich näher am Cb wurde Wolke B beobachtet, und hier ist nur eine Stufe der Temperatur im θ -T-Diagramm zu erkennen, keine Inversion. Die potentielle Temperatur ist innerhalb der Wolken C und D über große Bereiche nahezu konstant, auch unterhalb der Wolken ist die Atmosphäre teilweise indifferent geschichtet und das Stüve-Diagramm (Seite 193) weist vom Boden bis zur Inversion eine nahezu feuchtindifferente Schichtung auf, erst darüber ist die Schichtung stabil. Dieser Bereich stabiler Schichtung ist der Tropical Tropopause Layer, mit dem in der neueren Literatur der Bereich der tropischen Atmosphäre bezeichnet wird, in dem Konvektion eine bedeutend geringere Rolle spielt als in tieferen Bereichen der Troposphäre. Es wird auch von einer mixing barrier in 14 km Höhe gesprochen [FOLKINS et al., 1999], und die Oberseite des am 24. Februar beobachteten Cumulonimbusausläufers und somit auch der Übergang zu stabiler Schichtung befindet sich gerade in dieser Höhe. Wie an diesem Tage reicht die Konvektion auch über



Abbildung 6.11: Profil der tieferen Cirrenschicht im Ausläufer des Cumulonimbus. Zu Wolken C und D siehe auch OLEX-Lidar in Abbildung 6.5.

diese Grenze hinaus, dies geschieht aber im allgemeinen sehr unregelmäßig. Neuere Modellierungen von DESSLER [2002] lassen darauf schließen, daß ein signifikanter Anteil der aufsteigenden Luftmassen die Barriere in 14 km Höhe überwinden und bis in eine Höhe von ca. 17 km ($\theta = 380 K$) aufsteigen kann.

Bei der tieferen Cirrenschicht im Ausläufer des Cumulonimbus ist eine Stufung auch beim Ozon zu beobachten: sowohl oberhalb der Wolken (in Abbildung 6.11 bei 14500 m), als auch in der Wolke oder unterhalb der Wolken (in Abbildung 6.10 der Bereich zwischen den θ -Werten 345 und 355 K). Bei letzterem gehen die Ozonwerte auf etwa die Hälfte zurück, von um 80 ppb auf unter 40 ppb. In Abbildung 6.11 ist der Höhenbereich dieser Cirren mit Druckhöhe als Ordinate dargestellt, und es ist in dieser Darstellung zu erkennen, daß die Stufe in den Ozonwerten höchstens schwach mit den Wolken korreliert ist, es besteht kein kausaler Zusammenhang. Bei Wolke B – nahe am Cumulonimbus – erfolgt der Übergang innerhalb der Wolke, bei Wolke C – einige hundert Kilometer vom Zentrum des Cb entfernt – liegt die Stufe unterhalb der Wolke. Auch wenn zwischen Wolken und der Ozonabstufung keine Kausalität besteht, kann diese Beobachtung aber ein Hinweis sein auf dynamische Prozesse, die auf beides Einfluß haben, z. B. Mischungsprozesse im Zusammenhang mit der Ausbreitung der Cirrenschicht. An den Ozonwerten ist zu erkennen, daß es sich in jedem Falle um troposphärische Luft handelt. Auch am 27. Februar kann eine ähnliche Stufung des Ozongehaltes beobachtet werden und auch hier liegt die Wolke in dem Bereich von ungefähr 80 ppb.

Das Temperaturprofil (Abbildung 6.12) weist am 27. Februar Unterschiede zum 24. Februar auf, die Atmosphäre ist auch unterhalb der Wolke stabil geschichtet. Der Übergang von indifferenter zu stabiler Schichtung erfolgt schon in 11 bis 12 km Höhe, wie dem Stüve-Diagramm auf Seite 194 zu entnehmen ist. In unmittelbarer Umgebung der Wolke ähnelt das Temperaturprofil jedoch dem vom 24. Februar im Bereich der Cirrenausläufer des Cumulonimbus.



Abbildung 6.12: θ -T Diagramm mit Ozonprofil des ganzen Meßfluges vom 27. Februar 1999 bei APE-THESEO. Der Bereich der Wolkenmessung mit dem FSSP-300 ist durch dicke, farbige Linien markiert. Zu den Teilbereichen der Wolke siehe Abbildungen 6.9 und 6.3.
6.8 Meteorologische Analyse: Windregime der Cirrenschichten

Die beiden Wolkensysteme, die am 24. Februar 1999 beobachtet wurden – die niedrige Cirrenschicht im Ausläufer des Cumulonimbus und die Wolken an der Tropopause – zeigen in den Lidarbildern keinerlei Verbindung auf. Auch frühere Lidar-Messungen (z. B. WINKER und TREPTE [1998] zeigten, daß dünne Wolkenschichten an der Tropopause und tiefere Wolken konvektiven Ursprungs voneinander getrennt und auch unabhängig voneinander auftreten. Um mehr über die meteorologischen Gegebenheiten während der Messungen zu erfahren und Aussagen über eventuelle Zusammenhänge oder Unterschiede der verschiedenen Wolken ableiten zu können, werden in diesem Abschnitt die Windverhältnisse an den verschiedenen Meßtagen analysiert.

Das UCSE-Meßsystem auf der Geophysika liefert in-situ-Messungen sowohl der Windgeschwindigkeit als auch der Windrichtung (Abbildung 6.14). Für die gleichen Parameter wurden Karten von der NOAA-Datenbank über Internet abgerufen (Abbildung 6.13). Schließlich liegen noch die Windmessungen der Radiosondenaufstiege von den Seychellen vor (im Anhang auf Seite 193). Die Kombination der verschiedenen Datensätze erlaubt sowohl eine umfassende Darstellung des horizontalen Windfeldes als auch der Vertikalstruktur.

Für Abbildung 6.13 wurden aus der NOAA-Datenbank mit den Druckflächen 200, 150, 100 und 50 hPa vier Höhenbereiche ausgewählt. Die niedrigen Cirren im Cb-Ausläufer lagen auf der Höhe der 150 hPa Druckfläche, die Cirren an der Tropopause wurden bei etwa 90 hPa beobachtet und somit etwas oberhalb der dargestellten 100 hPa Fläche. Der Flugweg der Geophysika ist in den beiden betreffenden Teilkarten eingetragen, Mahé ist der nordöstlichste Punkt des Flugweges, das Cumulonimbus-System der südwestliche Bereich (vergleiche auch mit Abbildung 6.4). Die Windgeschwindigkeit ist aus der Länge der Windrichtungspfeile zu ersehen und kann auch an den Isotachen abgelesen werden. Die Einheit der Isotachen in den Karten ist Knoten (1 kt $\approx 0.5 \text{ m s}^{-1}$).

In Abbildung 6.14 sind die UCSE-Daten von Windgeschwindigkeit und Windrichtung in gleitenden 21-s-Mittelwerten aufgetragen. Als Höhenskala dient wie in den θ -T-Diagrammen die potentielle Temperatur. Aus Darstellungsgründen wurde der gesamte Flug in zwei Teilbildern dargestellt, der erste Teil umfaßt die Zeit bis Wolke B, Teil zwei Wolke B und dannach (siehe Abbildung 6.2). Die Bereiche der Wolkenmessungen mit dem FSSP-300 sind rot oder orange markiert. Bei Windgeschwindigkeiten unter 3 m s⁻¹ wird die Bestimmung der Windrichtung ungenau, was aber für die hier durchgeführte Analyse ohne Bedeutung ist. Der Unterschied in der Richtungsbestimmung



Abbildung 6.13: Windanalyse für den 24. Februar 1999, 6.00 Uhr UTC – zu diesem Zeitpunkt war die Geophysika beim Aufstieg in die Stratosphäre –, für verschiedene Druckhöhen. Dargestellt sind Windrichtung und Windgeschwindigkeit (sowohl Länge der Windvektoren als auch Isotachen). In Abbildung 6.14 sind zum Vergleich die Windmessungen mit der Geophysika dargestellt. Die Einheit der Isotachen ist Knoten, 1 kt \approx 0,5 m s⁻¹. Der Flugweg der Geophysika ist mit anderer Kartenprojektion dargestellt. Die Graphiken wurden über Internet auf der web-Seite der NATIONAL OCEANIC AND ATMOSPHERIC AD-MINISTRATION – AIR RESOURCES LABORATORY erzeugt; FNL-Archiv, Initialisierungszeit: 16.2.1999, 00 UTC.



Abbildung 6.14: Winddaten der Geophysika (UCSE) vom 2. Meßflug bei APE-THESEO vom 24. Februar 1999. Siehe auch Abbildung 6.13. Bereiche der Wolkenmessungen mit dem FSSP-300 sind rot oder orange gezeichnet, blau und schwarz dient zur Unterscheidung verschiedener Flugabschnitte mit Hintergrundaerosol.

zwischen Auf- und Abstieg in der Stratosphäre von 45° ist als absoluter systematischer Fehler anzunehmen (unteres Teilbild).

Sowohl die NOAA- als auch die UCSE-Winddaten zeigen qualitativ ein ähnliches Bild:

- Auf der 150 hPa-Fläche, der Höhe der niedrigen Cirrenschicht, kommt der Wind aus Süd bis Südwest, d. h. er weht im Bereich des Flugweges tangential zum Cb-System.
- Ausgehend von dieser Höhe dreht der Wind mit zunehmender Höhe von südlichen Richtungen nach Ost und kommt etwas unterhalb der Tropopause aus Ost bis Nordost. Das heißt, der Wind weht in Höhe der dünne Cirrenschicht in Richtung auf den Cumulonimbus.
- Die in-situ-Messungen mit UCSE zeigen in Höhe der Wolken an der Tropopause deutlich unterschiedliche Windgeschwindigkeiten: Nahe am Cb ist sie – bei Wolke A₁ – mit unter 5 m s⁻¹ am geringsten. In größerer Entfernung – im Bereich der Wolken A₂ und A₃ – wurden Windgeschwindigkeiten von 10 bis 15 m s⁻¹ gemessen. Die NOAA-Karten zeigen für die Bereiche der Wolkenmessungen (Wolken A) Windgeschwindigkeiten unter 5 m s⁻¹, aber auch in den NOAA-Karten ist ein Anstieg der Windgeschwindigkeit entlang des Flugweges nach Mahé zu erkennen, also die gleiche Tendenz wie bei den UCSE Daten.
- Umgekehrt ist es bei der niedrigen Cirrenschicht. Hier zeigen NOAAund UCSE-Daten eine gute Übereinstimmung: Nahe am Cb in Wolke B wurden mit großer Streuung um 10 m s⁻¹ gemessen (Abbildung 6.14, unten). Dieser Bereich liegt in der 150 hPa NOAA-Karte in Abbildung 6.13 im Bereich der 20-kt-Isotache ($\approx 10 \text{ m s}^{-1}$). In Wolke C (ca. 650 km entfernt) wurden in-situ unter 5 m s⁻¹ gemessen, die entsprechende Stelle liegt auf der Karte im Bereich der 10-kt-Isotache ($\approx 5 \text{ m s}^{-1}$).
- Für den Bereich der Seychellen wurden bei beiden Sondenaufstiegen (00 Uhr und 12 Uhr) in den verschiedenen Höhen weitgehend übereinstimmende Windrichtungen beobachtet, d. h. die Windverhältnisse sind über diesen Zeitraum von 12 Stunden relativ konstant, unabhängig von Tag und Nacht.

Am 27. Februar 1999 waren wieder verschiedene Windregime in verschiedenen Höhen zu beobachten, zu erkennen in den Daten der Sondenaufstiege (im Anhang auf Seite 194). Zwischen 200 und 110 hPa kam der Wind aus Süd bis Südwest, darunter und darüber aus östlichen Richtungen. Dies deckt sich mit hier nicht gezeigten in-situ-Messungen der Geophysika. Die mit dem FSSP-300 beobachtete Wolke wurden an dem oberen Rand dieses Südwindregimes beobachtet, der oberste Teil der Wolke (Teil 4) im Bereich des stärksten Richtungsgradienten. Die mit der Geophysika gemessenen Windgeschwindigkeiten sind innerhalb der Wolke mit bis zu 15 m s⁻¹ höher als unmittelbar unter- und oberhalb der Wolke mit 10 bis 11 m s⁻¹, somit sind die Bedingungen ähnlich denen von Wolke D am 24. Februar (Abbildung 6.14, oben). Die Wolke vom 27. Februar ist somit auch in Bezug auf das Windregime mit den Wolken im Ausläufer des Cumulonimbus am 24. Februar 1999 zu vergleichen.

Interessant ist noch ein Vergleich mit einem Tag ohne Wolkenbildung (Stüve-Diagramme auf Seite 195f). Am 6. März wurde ein Flug entlang des 55. Längenkreises bis 19°S durchgeführt und keinerlei Wolken gemessen, weder in-situ noch oberhalb 15 Kilometern mit dem OLEX-Lidar. Ein Zwischenabstieg erfolgte zwischen dem 17. und 19. Breitengrad, die entsprechenden Sondenaufstiege sind Serge-Frolow (Réunion) und Vacoas (Mauritius). Im Bereich der Seychellen ist das Temperaturprofil nicht zu sehr verschieden von dem des 24. Februar, es wurde jedoch oberhalb 300 hPa keine Winddrehung beobachtet. Die Geophysika-Windmessungen entsprechen den in den Stüve-Diagrammen dargestellten Angaben im wesentlichen. Im Bereich des Zwischenabstiegs – südlich der ITCZ – ist die Schichtung oberhalb 300 hPa stabil, und es tritt zwischen 500 hPa und der Tropopause keine Winddrehung auf. Die Geophysika-Messungen zeigen die im Stüve-Diagramm von Serge-Frolow bei 100 hPa eingetragene Winddrehung direkt an der Tropopause in etwa 90 hPa.

Diskussion

Die Analysen zeigen, daß die beiden Wolkenschichten nicht nur deutlich voneinander getrennt sind, wie die Lidarbilder zeigen, sondern auch im Bereich verschiedener Windregime liegen. Auch der Bezug zum Cumulonimbus-System ist sehr verschieden. Es ist sogar davon auszugehen – und dies ist ein wichtiger Befund –, daß sich die Cirrenschicht an der Tropopause unabhängig von dem Cumulonimbus gebildet hat und besteht. Hierfür spricht die Tatsache, daß in Höhe der Cirrenschicht der Wind in Richtung auf das Cb-System weht und mit zunehmender Entfernung vom Cb stärker wird. Es ist zwar möglich, daß sich ähnliche Wolkenstrukturen auch luvseitig von auslösenden konvektiven Wolken ausbreiten, jedoch ist davon auszugehen, daß dies nicht über die hier beobachteten großen Entfernungen von mehreren hundert Kilometern und schon gar nicht gegen einen mit der Entfernung stärker werdenden Wind geschieht.

Die Sondenaufstiege zeigen, daß die Windverhältnisse im Zeitraum von Mitternacht bis Mittag relativ konstant sind. Solchermaßen gleichbleibende, relativ konstante Umgebungsbedingungen sind auch aufgrund der beobachteten Persistenz der Wolken zu erwarten.

Der Hauptunterschied zwischen den beiden Tagen mit und dem Tag ohne Cirrenbildung an der Tropopause sind die Winddrehungen im Bereich der oberen Tropopause, vor allem direkt am Übergang zum *Tropical Tropopause Layer*. Diese Winddrehungen wurden an Tagen mit Wolkenbildung beobachtet. Im Gegensatz dazu wurde an dem Tag ohne Cirrenbildung eine relativ konstante Windrichtung oberhalb 300 hPa oder sogar oberhalb 500 hPa zumindest bis zur Tropopause oder sogar über diese hinweg beobachtet. Ob zwischen Winddrehung und Wolkenbildung ein Zusammenhang besteht, muß im Rahmen weiterer Beobachtungen geklärt werden.

6.9 Größenverteilungen von Cirren und Hintergrundaerosol

Bislang wurden nur sehr wenige Größenverteilungen von nichtsichtbaren Wolken publiziert, und diese lieferen keine Information über Teilchen mit einem Durchmesser $d_P < 3 \ \mu m$. Die bei APE-THESEO gemessenen Größenverteilungen sind somit eine wichtige Erweiterung des Wissens um diese Wolken. Interessant sind weiterhin Ähnlichkeiten zwischen den verschiedenen beobachteten Wolken.

Vorbetrachtungen / Schlußfolgerungen aus Depolarisationsmessungen

Die Messungen der Depolarisation sind von Interesse, da sie Einfluß auf die Interpretation der FSSP-300-Messungen haben. Für den 24. Februar liegen entsprechende Beobachtungen von MAL – dem auf der Geophysika geflogenen Lidar – vor, die in Abbildung 6.7 zusammengefaßt sind. Für den 27. Februar 1999 können die in Abschnitt 6.6 vorgestellten Ergebnisse von MAS herangezogen werden.

Bei den Werten der Depolarisation ist zu beachten, daß die Volumendepolarisation zunächst nur ein Maß für die Partikelanzahlkonzentration ist [CAIRO et al., 1999]. Die Aerosoldepolarisation, die für MAL berechnet wurde, liegt zwischen 25 und 35%. Aus den Beobachtungen der Depolarisation kann geschlossen werden, daß die beobachteten Partikel asphärisch sind. Dies macht die Anwendung der T-Matrix-Methode bei der Interpretation der FSSP-300-Messungen erforderlich. Es entspricht auch Beobachtungen von MCFARQUHAR und HEYMSFIELD [1996] und STRÖM et al. [1997], die leicht asphärische Partikel bei den kleineren Wolkenteilchen beobachtet haben. Da nur von einer geringen Asphärizität auszugehen ist, wurde ein Aspektverhältnis von 0,7 bis 0,9 angenommen und die entsprechende T-Matrix-Streufunktion bei der Berechnung der Größenzuordnungstabellen zu Grunde gelegt [Luo, persönliche Mitteilung].

Bei den Messungen vom 24. und 27. Februar 1999 erbrachte die Kalibrierung des FSSP-300 andere Ergebnisse – d. h. Kanalzuordnungen – als gewöhnlich. Auf Basis der Kalibrierung konnten die Daten auf die übliche Weise ausgewertet werden, nachdem eine spezielle Größenzuordnungstabelle



Abbildung 6.15: Größenverteilung der beim APE-THESEO-Flug vom 24. Februar 1999 gemessenen nichtsichtbaren Cirren (nach THOMAS et al. [2002], Messungen und Berechnungen erfolgten im Rahmen der vorliegenden Arbeit).

erstellt worden war. Es muß aber ein ungefähr 20% höherer Fehler bei der Durchmesserbestimmung angenommen werden.

Die dünnen Cirren an der Tropopause (24. Februar 1999)

Als erstes sind in Abbildung 6.15 die Größenverteilungen der am 24. Februar 1999 beobachteten dünnen Wolkenschicht – die Wolkenmessungen A_1 , A_2 und A_3 – zu sehen. Die Unterschiede zwischen diesen drei Messungen sind wegen der geringen Teilchenzahl statistisch nicht signifikant. Aus diesem Grunde wurde eine Größenverteilung aus dem Mittel dieser drei Beobachtungen berechnet und im weiteren verwendet.

Es fällt auf, daß die Größenverteilung für Teilchen mit $d_P \leq 1 \ \mu m$ in der Wolke sich nicht oder nur sehr gering von der des Hintergrundaerosols unterscheidet. Es wurden jeweils das Hintergrundaerosol ober- und unter-

halb der Wolke betrachtet, sowie der Bereich, in dem auf Wolkenhöhe keine Wolke beobachtet wurde. Die Unterschiede der Größenverteilungen dieser verschiedenen Meßungen liegen im Bereich der üblichen Variabilität des Hintergrundaerosols.

Bei den in-situ-Messungen mit dem FSSP-300 konnte wegen der unzureichenden Zählstatistik keine Struktur der dünnen Cirrenschicht beobachtet werden, doch auch bei den Lidar-Messungen mit OLEX oder MAL konnte keine Schichtung oder innere Struktur der dünnen Cirren an der Tropopause festgestellt werden.

Wolken im Cumulonimbus-Ausläufer (24. Februar 1999)

In Abbildung 6.16 sind die Größenverteilungen der drei Wolkenmessungen aus dem Ausläufer des Cumulonimbus zu sehen (Wolken B, C und D, siehe auch die Profile in Abbildung 6.11). Für Wolke B, die bezüglich der Partikelkonzentration sehr inhomogen war, sind auch noch die Größenverteilungen von Bereichen mit vergleichsweise hoher bzw. niedriger Konzentration angegeben. Für Wolke C, die eine deutliche Schichtung aufwies, sind auch die Größenverteilungen der oberen Schicht – mit höherer Teilchenkonzentration – und der unteren Schicht dargestellt. Für Wolke D kann wegen der geringen Zählrate bei der Betrachtung der Größenverteilungen keine weitere Unterteilung vorgenommen werden, auch wenn in vergleichbaren OLEX-Lidarbildern eine Schichtung zu erkennen ist.

Es fällt sowohl bei den Größenverteilungen (Abbildung 6.16) als auch bei den Lidarbildern (Abbildungen 6.5 und 6.6) die große Bandbreite der Aerosolkonzentration auf, wobei aber das relative Maximum der Größenverteilung sich bezüglich des Partikeldurchmessers nicht verschiebt. Bei den $10-\mu$ m-Teilchen liegen die Konzentrationswerte von Wolke B und Wolke D zwei Größenordnungen auseinander, bei den kleineren immerhin noch eine Größenordnung. Die Größenverteilungen unterscheiden sich also deutlich bei Verhältnis von Teilchen größer als 1 μ m zu Teilchen kleiner als 1 μ m, die Konzentration der großen Teilchen steigt in dichteren Wolken stärker als die Konzentration der kleineren Partikel. Ob der Sattel in der Größenverteilung bei ca. $0.9 \ \mu m$ Partikeldurchmesser, der teilweise beobachtet wurde, eine Mode des Aerosols ist, die bei höherer Gesamtpartikelkonzentration auftritt, d. h. ob es sich um Teilchen handelt, die von unterhalb des Detektionslimits in den Meßbereich des FSSP-300 hineinwachsen, könnte nur bei Vorliegen eines Modells zur Wolkenbildung geklärt werden. Ein Meßartefakt kann aber auch nicht ganz ausgeschlossen werden. Für die Betrachtung der nichtsichtbaren Wolken ist dieses Phänomen aber ohne weitere Bedeutung.

Auffallend in Abbildung 6.16 ist die Größenverteilung der nichtsichtbaren Wolke D, die sich kaum von den Größenverteilungen der ebenfalls nichtsichtbaren Wolken A_1 , A_2 und A_3 unterscheidet (Abbildung 6.15), obgleich die Wolken ansonsten verschieden sind, wie in den vorigen Abschnitten darge-



Abbildung 6.16: Größenverteilungen der am 24. Februar 1999 im Cb-Ausläufer gemessenen Cirren (Wolken B, C und D). Wolke D ist nichtsichtbar. (Modifiziert nach THOMAS et al. [2002], Messungen und Berechnungen erfolgten im Rahmen der vorliegenden Arbeit.)

legt wurde. Auch bei der Wolke D
 unterscheidet sich die Größenverteilung bei den Partikeln kleiner als 1
 $\mu \rm m$ nicht von der Größenverteilung des Hintergrunda
erosols ober- und unterhalb der Wolke, im Gegensatz zu Wolken B und C.

Größenverteilungen der Beobachtungen vom 27. Februar 1999

In Abbildung 6.17 sind die Größenverteilungen zu sehen, die in den verschiedenen Bereichen der Wolke vom 27. Februar 1999 gemessen wurden. Die große Variabilität, die sich schon in den Lidarbildern zeigte, spiegelt sich auch in den Größenverteilungen wieder. Die Konzentrationen liegen bei den großen Teilchen um 10 μ m eine Größenordnung auseinander, und wie bei den Cirren im Cumulonimbus-Ausläufer, die am 24. Februar beobachtet wurden, sind die Unterschiede in der Konzentration der Partikel kleiner als 1 μ m nicht so stark. Die Größenverteilungen von Teil 2 und Teil 3 der Wolke vom 27. Februar entsprechen etwa der von Wolke C vom 24. Februar, die



Abbildung 6.17: Größenverteilungen der mit dem FSSP-300 gemessenen Wolkenteilchen in den vier in Abbildung 6.9 markierten Abschnitten (nach THOMAS et al. [2002], Messungen und Berechnungen erfolgten im Rahmen der vorliegenden Arbeit).

von Teil 4 ähnelt der von Wolke D. Teil 4 repräsentiert aber nur den oberen Rand und kältesten Bereich der Wolke, während die Größenverteilung von Wolke D den Durchschnitt der gesamten Wolke vom unteren bis zum oberen Rand darstellt (eine weitere Aufteilung ist wegen der dann zu schlechten Zählstatistik nicht sinnvoll). In Teil 4 der Wolke vom 27. Februar ist aber auch schon die Konzentration der Partikel kleiner als 1 μ m gegenüber dem Hintergrund leicht erhöht.

Diskussion: Literaturvergleich der Größenverteilungen

In Abbildung 6.18 ist die gemittelte Größenverteilung der Cirrenschicht an der Tropopause zu sehen im Vergleich mit den beiden bislang veröffentlichten Größenverteilungen, die beide von einer Meßkampagne auf den tropischen Marshall-Inseln im Jahre 1973 stammen, aber erst 1996 bzw. 2000 veröffentlicht wurden [HEYMSFIELD und MCFARQUHAR, 1996: MCFARQUHAR et al., 2000]. Die in McFARQUHAR et al. [2000] publizierten sechs Größenverteilungen wurden für diese Darstellung gemittelt, die vertikalen Fehlerbalken geben die Standardabweichung vom Mittelwert an. Unter die Abszisse reichende Fehlerbalken bedeuten, daß die Standardabweichung vom Mittelwert größer ist als der Mittelwert. Bei den APE-THESEO-Messungen geben die Fehlerbalken den zählstatistischen Fehler an. Unter die Abszisse reichende Fehlerbalken bedeuten hier, daß in dem betreffenden Kanal nur ein Teilchen gemessen wurde. Bei der Größenverteilung von HEYMSFIELD und MCFAR-QUHAR [1996] ist kein Fehler angegeben. Die horizontalen Fehlerbalken markieren bei allen drei Größenverteilungen die Kanalbreite der jeweiligen Meßinstrumente.

Die beiden aus der Literatur übernommen Größenverteilungen wurden mit mehreren Meßgeräten gewonnen. Die kleinsten Partikel wurden jeweils mit einem ASSP gemessen, das ähnlich arbeitet wie ein FSSP. Das Meßprinzip ist bei beiden Instrumenten dasselbe, auch beim ASSP wird das von einem Partikel axial in Vorwärtsrichtung gestreute Licht gemessen [GAYET, 1976]. Der nächstgrößere Meßbereich wurde mit einem 1DC-Meßgerät gemessen, der größte Meßbereich (bei HEYMSFIELD und McFarquhar [1996]) mit einem 1DP-Meßgerät. In beiden Fällen wurde die Wolke in 16,5 km Höhe beobachtet. Die geometrische Dicke betrug bei MCFARQUHAR et al. [2000] 500 Meter, für HEYMSFIELD und McFARQUHAR [1996] liegen keine Angaben hierzu vor. In beiden Veröffentlichungen wird die Länge als Maß für die Partikelgröße angegeben. Da das für die Messungen der kleineren Partikel verwendete ASSP nach demselben Prinzip funktioniert wie das FSSP-300, ist davon auszugehen, daß die Daten auch in entsprechender Weise interpretiert wurden, die Ergebnisse also direkt vergleichbar sind. Genauere Angaben sind in den Artikeln nicht gemacht worden.

Die Ähnlichkeit der Größenverteilungen der Wolken A, B, C, und D bezüglich der Lage des Maximums bei etwa 10 μ m (Abbildungen 6.15 und



Abbildung 6.18: Mittlere Größenverteilung der beim APE-THESEO Flug vom 24. Februar 1999 gemessenen nichtsichtbaren Cirren an der Tropopause. Vergleich mit Größenverteilungen aus HEYMSFIELD und MCFARQUHAR [1996] und MCFARQUHAR et al. [2000] (nach THOMAS et al. [2002], die Größenverteilungen der APE-THESEO-Meßkampagne wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit berechnet).

6.16) paßt auch zu den Beobachtungen von MCFARQUHAR et al. [2000] und HEYMSFIELD und MCFARQUHAR [1996] (Abbildung 6.18). Auch bei deren Größenverteilungen von Wolken an der Tropopause stimmt die Lage des Maximums bei 5 bis 7 μ m Partikellänge überein, trotz des großen Unterschiedes in der Partikelkonzentration. Die Tatsache, daß der Durchmesserbereich des Maximums der Größenverteilung der Wolkenteilchen mit etwa 10 μ m bei den APE-THESEO Messungen mit dem entsprechenden Wert aus den beiden genannten Publikationen (um 6 μ m) nicht genau übereinstimmt, kann auf unterschiedliche Charakteristika der verwendeten Streulichtmeßgeräte zurückzuführen sein, zumal bei den hier vorgestellten Messungen während APE-THESEO zusätzliche Korrekturen angewendet werden mußten, die eine zusätzliche Unsicherheit von etwa 20% zu kleineren Durchmessern hin bedeuten. Letztendlich besteht auch die Möglichkeit, das die Partikel bei den Messungen von 1973 und von APE-THESEO tatsächlich nicht gleich groß waren.

Bei der APE-THESEO-Meßkampagne konnten keine Partikel größer als 20 μ m gemessen werden. Die Größenverteilung aus McFarquhar et al. [2000] zeigt aber, daß die Konzentration im Bereich 20 bis 50 μ m eine Größenordnung unter der des Maximums der Größenverteilung bei 6 μ m liegt. Bei der Größenverteilung aus HEYMSFIELD und McFarquhar [1996] ist in diesem Größenbereich zwar ein deutlich stärker betontes relatives Maximum, die Konzentration im Bereich des ersten Maximums bei 5 bis 10 μ m liegt aber zwei Größenordnungen über den Messungen von APE-THESEO, und es ist durchaus möglich, daß bei solch wesentlich höheren Konzentrationen auch die Teilchen bis 100 μ m stärker vertreten sind.

Diskussion: Vergleich der Eis- und NAT-Hypothesen

Wie schon in Abschnitt 6.2 ("Chemie der Wolkenteilchen", Seite 122) dargelegt, gehen die meisten Autoren davon aus, daß die Wolkenteilchen der nichtsichtbaren Cirren an der Tropopause aus Wassereis bestehen, nur in wenigen Veröffentlichungen wird die These vertreten, daß es sich um Teilchen aus NAT (Salpetersäuretrihydrat) handelt. Auch die Auswertungen der vorliegenden Arbeit gehen davon aus, daß die Wolkenteilchen aus Wassereis bestehen. Es sollen an dieser Stelle aber dennoch die Unterschiede, die sich aus diesen beiden Überlegungen ergeben, analysiert werden. Der Unterschied für die Auswertung der FSSP-300-Daten liegt in der Verwendung eines anderen Brechungsindex (1,48 für NAT, 1,31 für Eis). In Abbildung 6.19 wurden die Größen- und Volumenverteilungen der Cirren an der Tropopause für beide Möglichkeiten zusammengestellt, wiederum auf Grundlage der Summengrößenverteilung der drei Einzelereignisse A_1 , A_2 und A_3 ; die Fehlerbalken entsprechen dem zählstatistischen Fehler.

Es ist zu erkennen, daß bei den Wolkenteilchen $(d_P > 1 \ \mu m)$ die Unterschiede zwischen der Annahme Eis oder NAT nicht statistisch signifikant



Abbildung 6.19: Größenverteilung und Volumenverteilung der beim APE-THESEO-Flug vom 24. Februar 1999 gemessenen nichtsichtbaren Cirren für die Alternativen Eis oder NAT. Mittelung aller drei gemessenen Wolkenereignisse an der Tropopause aus Abbildung 6.15. Unter die Abszisse reichende Fehlerbalken, die den zählstatistischen Fehler angeben, bedeuten hier, daß in dem betreffenden Kanal nur ein Teilchen gemessen wurde.

sind. Der größte Kanal der Größenverteilung, der nur in der Berechnung für NAT auftritt, repräsentiert ein einziges Teilchen und bedeutet daher auch eine nicht-signifikante Abweichung. Die Abweichungen bei den Partikeln kleiner als ein Mikrometer sind für die Betrachtung der Wolkenteilchen ohne Belang. Es ist auch zu beachten, daß eine Verbesserung der Zählstatistik im Bereich der Teilchen um 10 μ m Durchmesser die beiden Thesen nicht unterscheidbarer machen würde, da die Unterschiede in jedem Falle zu gering sind. Nur bei Teilchen größer als 15 μ m könnten sich Unterschiede ergeben, wenn sich bei ausreichender Datenmenge der in der Abbildung 6.19 zu erkennende Trend bestätigte. Hierzu sind weitere Messungen nötig.

LUO et al. [2002a,b] und PETER et al. [2002] verwendeten für ihre Modellierungen der bei APE-THESEO beobachteten Cirren die in diesem Kapitel vorgestellten Partikelmessungen mit dem FSSP-300, sowie Wasser- und HNO₃-Messungen. HNO₃ wurde bei APE-THESEO mit einem CVI-TDL gemessen (*Counterflow Virtual Impactor – Tunable Diode Laser spectrometer*). Mit diesem Meßgerät wurde praktisch kein HNO₃ in den Wolkenteilchen der Cirren festgestellt LUO et al. [2002a,b]. Nur beim Einflug in eine tropische Zyklone während eines anderen Fluges – also in einem ganz anderen meteorologischen Zusammenhang – wurde HNO₃ beobachtet [PETER et al., 2002]. Auch die in diesen Veröffentlichungen gemachten Modellierungen bestätigen die Eis-Hypothese.

Diskussion: Vergleich mit Modellierungen

Auf Seite 122 wurden Modellierungen der Wolkeneigenschaften aufgeführt. Die in diesem Kapitel besprochenen Messungen von APE-THESEO liegen bezüglich der Partikeldurchmesser innerhalb der Wertebereiche, die mit den Modellen berechnet wurden.

JENSEN et al. [1996b] kamen je nach angenommenem Entwicklungs-Szenario der Wolken zu Partikelradien von 2 bis 20 μ m bzw. 4 bis 10 μ m. Das Maximum der Größenverteilungen der FSSP-300-Messungen von APE-THESEO liegt also jeweils im unteren Bereich der Modellergebnisse. JENSEN et al. [1996a] gaben 8 μ m als größten Durchmesser bei zwei verschiedenen Szenarien an, die in-situ-Messungen liegen hier etwas höher, aber die Abweichung liegt im Bereich der Fehlergrenzen. In beiden Artikeln lieferten die Modelle mit Partikelkonzentrationen von 0,1 bis 0,5 cm⁻³ Werte, die bis zu zwei Größenordnungen über den in-situ gemessenen liegen.

BOEHM et al. [1999] kamen zu dem Ergebnis, daß die Modalradien kleiner sein müssen als 10 μ m. Das Maximum der mit dem FSSP-300 gemessenen Größenverteilungen liegt bei einem Durchmesser von 10 μ m und erfüllt damit die Folgerungen dieses Modells.

Die Modellierung von ROSENFIELD et al. [1998] grenzt die möglichen Radien zu kleineren Werten hin ab. Radien von 2 μ m können mit diesem Modell nicht erklärt werden, wohl aber Radien von 6 μ m. Auch hier stimmen Modell und Meßergebnisse im Rahmen des Meßfehlers gut überein.

6.10 Optische Dicke der Wolken

Ergebnisse von APE-THESEO

Um die verschiedenen Wolkenbeobachtungen in einem größeren Zusammenhang betrachten zu können, wurden in Tabelle 6.1 die verschiedenen Wolkenparameter zusammengefaßt. Für die bei APE-THESEO beobachteten Wolken wurden die optischen Dicken nach der in Abschnitt 6.2 auf Seite 116 beschriebenen Methode berechnet (Gleichung 6.2 bzw. 6.4), wobei der Effizienzfaktor für die Extinktion nach der Mie-Theorie berechnet wurde. Für die dünnen Cirren an der Tropopause (Wolke A) wurde der Mittelwert

Wolke	Konzentr	ation der	geometr.	optische
	Wolkenteilchen $[\rm cm^{-3}]$		Dicke	Dicke
	$\geq 1, 1 \mu m$	$\geq 3\mu m$	[m]	
nichtsichtbar, weniger als 500 m unter der Tropopause:				
24.2.1999: A	0,011	0,007	300	0,0004
McFarquhar				
et al. (2000)		0,053	500	0,007
nichtsichtbar, mehr als 1 km unter der Tropopause:				
24.2.1999: D	0,012	0,005	650	0,0008
27.2.1999, Teil 1	0,082	0,047	1200	0,009
Teil 1 mit Teil 3	0,082; 0,29	0,047; 0,18	800; 800	0,024
Teil 4	0,031	0,016		
sichtbar, mehr als 1 km unter der Tropopause:				
24.2.1999: C	0,288	0,180	1100	0,037
24.2.1999: B	0,873	0,542	1100	0,12

Tabelle 6.1: Wolkenparameter der bei APE-THESEO beobachteten Wolken und entsprechende Werte aus MCFARQUHAR et al. [2000] zum Vergleich: Konzentration der Wolkenteilchen (d. h. Teilchen größer 1,1 bzw. 3 μ m), geometrische Dicke und die optische Dicke (dimensionslos). Weitere Erläuterungen im Text.

der drei Wolkenmessungen angegeben. Die optischen Dicken dieser und der entsprechenden Wolke aus MCFARQUHAR et al. [2000] liegen deutlich unter den oben (Seite 116 f) eingeführten Grenzwerten (0,03 bzw. 0,05) für nichtsichtbare Wolken. Die optische Dicke der Wolke aus MCFARQUHAR et al. [2000] liegt aber noch eine Größenordnung über der bei APE-THESEO gemessenen von Wolke A. In HEYMSFIELD und MCFARQUHAR [1996] wurden keine Angaben zur optischen und geometrischen Dicke der Wolke gemacht.

Bei den Wolken hoher Teilchenkonzentration – im wesentlichen Wolke B und C, die am 24. Februar im Cumulonimbus-Ausläufer gemessen wurden – kann nicht ausgeschlossen werden, daß auch noch größere Teilchen vorhanden waren, die mit dem FSSP-300 nicht gemessen werden konnten; die Angaben in der Tabelle sind also als Minimalwerte zu verstehen. Die Wolken A_2 und A_3 wurden mit dem FSSP-300, wie der Vergleich mit den Lidarbildern zeigte, an sowohl geometrisch als auch optisch relativ dicken Stellen gemessen, hier geben die Werte also eine obere Grenze für die an diesem Tage beobachtete dünne Cirrenschicht an der Tropopause an. Da sich die Größenverteilungen nicht signifikant unterscheiden (siehe Abbildungen 6.15 und 6.16), ist die optische Dicke von Wolke D nur aufgrund der etwas größeren geometrischen Dicke etwas höher als die optische Dicke der Wolken A (siehe Tabelle 6.1).

Zur Berechnung der optischen Dicke der Wolke vom 27. Februar 1999 wurden die geometrischen Dicken aus dem Lidarbild (Abbildung 6.8) abgeleitet. Zur Einteilung der Wolke in verschiedene Bereiche siehe Abschnitt 6.6. Wegen der Inhomogenität der Wolke wurden zwei Werte der optischen Dicke berechnet:

- 1. Wenn man von einer geometrischen Dicke von 1200 m bei einer einheitlichen Größenverteilung wie in Wolkenbereich 1 ausgeht, so erhält man eine optische Dicke von 0,009 (0,006) bei 532 nm (11 μ m) Wellenlänge. Dies ist deutlich unter dem Grenzwert, und die Wolke ist als nichtsichtbar anzusehen.
- 2. Die zweite Berechnung geht von zwei Bereichen mit einer geometrischen Dicke von je 800 m aus. Für den einen Teil wurde die Größenverteilung von Wolkenbereich 3 angenommen (im 1064-nm-Lidarbild in Abbildung 6.8 der Bereich mit einem Rückstreuverhältnis größer als 37, rot markiert). Für den anderen Teil wurde wieder die Größenverteilung von Wolkenbereich 1 angesetzt. Damit erhält man eine gesamte optische Dicke von 0,024 (0,015). Dies ist nur knapp unter dem Grenzwert von 0,03 nach SASSEN et al. [1989].

Diese Berechnungen gehen von der Annahme aus, daß keine signifikante Konzentration größerer Teilchen – die nicht mehr vom FSSP-300 detektiert werden – in der Wolke auftritt. Somit sind die Werte als untere Grenze für die optische Dicke anzusehen.

Diskussion / Literaturvergleich

Von SASSEN UND CHO [1992] wurden nichtsichtbare Cirren in den mittleren Breiten (40°N) vor allem auf Grundlage von Lidar-Messungen untersucht und der Zusammenhang von geometrischen und optischen Dicken dargestellt, wie in Abbildung 6.20 zu sehen. In diese Graphik wurden die Beobachtungen von APE-THESEO und auch die Daten aus MCFARQUHAR et al. [2000] eingezeichnet.

Es werden damit nichtsichtbare Wolken aus den Tropen mit solchen aus mittleren Breiten verglichen, und es ist auch zu berücksichtigen, daß die Daten mit verschiedenen Methoden gewonnen wurden: SASSEN UND CHO [1992] haben mit Fernerkundungsmeßgeräten gearbeitet, während die Daten aus den Tropen von in-situ-Messungen abgeleitet wurden. Unabhängig von diesen methodischen Unterschieden besteht die Übereinstimmung über einen großen Bereich hinweg, sowohl was die geometrische als auch was die optische Dicke anbelangt. Es läßt sich daraus ableiten, daß zumindest in dieser Hinsicht keine Unterschiede zwischen nichtsichtbaren Cirren in den Tropen und den mittleren Breiten bestehen.



PHYSICAL CLOUD THICKNESS, $\Delta Z(km)$

Abbildung 6.20: Optische Dicke von Cirren in Relation zur geometrischen Dicke. Graphik aus SASSEN UND CHO [1992], ergänzt um die in-situ-Messungen aus der vorliegenden Arbeit von APE-THESEO sowie dem Meßergebnis aus MCFARQUHAR et al. [2000] (nach THOMAS et al. [2002], die Daten der APE-THESEO-Meßkampagne wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit bestimmt).

Für die am 27. Februar 1999 beobachtete Wolke wurden zwei Werte für die optische Dicke berechnet, verschiedene geometrische Dicken und Größenverteilungen voraussetzend. Beide Werte sind in die Graphik eingetragen, und es ist zu erkennen, wie sehr sich die Parameter schon bei einer einzigen Wolke ändern können.

Schon aus den vorigen Betrachtungen folgte, über welchen großen Bereich sich das Phänomen der nichtsichtbaren Cirren erstreckt, sowohl im Hinblick auf die Teilchenkonzentration als auch bezüglich der äußeren atmosphärischen Bedingungen. Hier wird nun die große Variabilität im Hinblick auf die geometrische, aber vor allem die optische Dicke deutlich. Bemerkenswert ist in der Darstellung in Abbildung 6.20 wiederum die Ähnlichkeit der Wolken A und der Wolke D, die auch eine sehr ähnliche Größenverteilung haben, aber zu den zwei in mehrerer Hinsicht verschiedenen Cirrenschichten zählen, die am 24. Februar 1999 beobachtet wurden. Innerhalb der tieferen Cirrenschicht im Ausläufer des Cumulonimbus (Wolken B, C und D) erstrecken sich die Werte der optischen Dicken über mehr als zwei Größenordnungen.

6.11 Hypothesen zu den Mechanismen der Tropopausenwolken

Schon recht früh wurde auf die Möglichkeit hingewiesen, daß großräumige Aufwinde im Bereich der Tropopause Ursache für die Bildung oder zumindest die Persistenz der dünnen Cirrenschichten sein können [BARNES, 1980]. Bei Modellierungen im Rahmen des APE-THESEO-Projekts wurden u.a. die in der vorliegenden Arbeit besprochenen Ergebnisse der in-situ-Messungen mit dem FSSP-300 verwendet [PETER et al., 2000, 2002; Luo et al., 2002b]). Diese Arbeiten kommen zu dem Ergebnis, daß großräumige vertikale Luftbewegungen, die in diesem Bereich der ITCZ häufig vorkommen, die dünnen Cirrenschichten an der Tropopause stabilisieren. Voraussetzung ist, daß der Aufwind zur Tropopause hin schwächer wird, was mit Modellierungen des ECMWF (European Centre for Medium-Range Weather Forecasts) zur vertikalen Luftbewegung übereinstimmt. Weitere Voraussetzung ist, daß oberhalb der Wolke die Luft übersättigt über Eis ist, unterhalb der Wolke jedoch nicht gesättigt. Ein zu kleines Teilchen wird durch den Aufwind nach oben aus der Wolke herausgetragen. Dort kommt es in übersättigte Luft und wächst an, bis es von dem schwächer werdenden Aufwind nicht mehr getragen werden kann und wieder zurück in den Bereich der Wolke sedimentiert. Fällt umgekehrt ein zu großes Teilchen aus der Wolke heraus, so kommt es in Luft, die untersättigt ist. Ein solches Teilchen wird dann durch Sublimation Masse verlieren bis es durch den Aufwind wieder in die Wolke getragen werden kann. Mit diesem Mechanismus kann auch die beobachtete lange Persistenz der Wolken erklärt werden [PETER et al., 2000, 2002; Luo et al., 2002b].

Es ist nun auch möglich, aus dem Ozonprofil auch im Bereich unterhalb der Tropopause die Aufwindverhältnisse in diesem Bereich zunächst qualitativ abzuschätzen [M. VOLK, persönliche Mitteilung]. Für den Bereich der unteren Stratosphäre wurden die Zusammenhänge u. a. von AVAL-LONE und PRATHER [1996] dargestellt. Ausgangspunkt ist die Tatsache, daß die Ozonentstehungsrate neben weiteren Parametern mit der Höhe variiert. Durch gleichmäßige, vertikale Luftbewegung in der Größenordnung mm s⁻¹, bildet sich ein für die Stärke dieses Aufwindes charakteristisches Ozonprofil. Für diese Betrachtungsweise – vor allem im Zusammenhang mit der Ozonchemie – wird in der Literatur der Begriff "*Ozone photochemical clock*" verwendet. Je geringer die Vertikalbewegung der Luft ist, desto größer wird der Gradient des Ozons, d. h. desto flacher wird der Graph bei einer Darstellung wie in Abbildung 6.21. Bei vergleichsweise stärkerer Vertikalbewegung schließlich kann es zu nahezu höhenkonstanter Ozonkonzentration kommen. Eine genauere und quantitative Analyse ist im vorliegenden Falle nicht möglich, da die Informationen über Spurengase (z. B. OH-Radikale) und Strahlungsflüße, die bei der Synthese des Ozons eine Rolle spielen, nicht vorliegen.

Die Tatsache, daß die dünne Wolkenschicht nicht überall auftrat, ist sowohl aus den Lidar als auch aus den in-situ-Messungen zu erkennen: Kurz vor dem Aufstieg in die Stratosphäre, bei dem die dünne, nichtsichtbare Cirrenschicht beobachtet wurde, war die Geophysika schon einmal durch den Höhenbereich der Cirren gestiegen, ohne daß jedoch vom FSSP-300 Wolkenteilchen gemessen wurden. Die Steigrate der Geophysika war in beiden Fällen ähnlich, und das Flugzeug hielt sich auch lange genug in dem entsprechenden Höhenbereich auf, so daß ausgeschlossen werden kann, daß nur zufällig keine Wolkenpartikel gemessen wurden.

In Abbildung 6.21 sind auf Basis gleitender 30-s-Mittelwerte die Ozonprofile eingetragen für Bereiche, in denen dünne Cirren an der Tropopause beobachtet wurden, und auch für die genannten Bereiche, in denen dies nicht der Fall war. Das Profil im Bereich der Wolke A_1 wurde nicht zur Analyse herangezogen, da sich die Meßpunkte über einen zu großen horizontalen Bereich erstrecken. Bei den Wolken A_2 und A_3 hingegen und in den wolkenfreien Bereichen ist zwischen 16 und 17 km Höhe eine Tendenz klar zuerkennen: Größere Ozongradienten d. h. eine flachere Kurve des Ozonprofils wurden im Bereich ohne Wolken beobachtet und sind ein Zeichen für geringere vertikale Luftbewegung. Im Bereich der Wolken hingegen nimmt das Ozon mit der Höhe nur in geringem Maße zu und zeigt damit stärkere Vertikalbewegung der Luft an. Dieser Sachverhalt stützt die These, daß leichte Aufwinde in der Tropopausenregion zur Bildung oder zumindest Stabilisierung der dünnen Cirrenschichten beitragen.

Ein Vergleich mit den Ozonprofilen des APE-THESEO-Fluges vom 6. März 1999, bei dem keine Wolken beobachtet wurden, zeigt, daß dieser Ansatz zunächst nur in einem engen räumlichen und zeitlichen Zusammenhang wie am 24. Februar 1999 Erklärungen liefern kann. An jenem Tage wurden auch unterschiedliche Ozongradienten beobachtet und zwar auch solche, bei denen am 24. Februar Wolken beobachtet wurden. Allerdings stammen die Profile aus Bereichen mit großem zeitlichem und räumlichem Abstand, zudem noch innerhalb und außerhalb der ITCZ. Man muß davon ausgehen, daß sich die unterschiedlichen Ozonprofile nicht nur aufgrund unterschiedlicher vertikaler Luftbewegung, sondern auch aufgrund unterschiedlicher Ozonent-



Abbildung 6.21: Ozonprofil im Tropopausenbereich, Vergleich von Bereichen mit und ohne nichtsichtbare Cirren; siehe Text.

stehungsraten entwickelt haben. Zu einer genaueren Analyse fehlen die Daten weiterer Spurengase.

Ein Vergleich der Ozonprofile beider Tage in der untersten Stratosphäre zwischen 90 und 70 hPa zeigt, daß in diesem Bereich durchgehend deutliche Unterschiede der Ozonkonzentration von etwa 50% zu verzeichnen sind. Durch einen Vergleich mit einer entsprechenden Darstellung in AVALLONE und PRATHER [1996] ist auch zu erkennen, daß von deutlichen Unterschieden bei der Geschwindigkeit der vertikalen Luftbewegung auszugehen ist, welche in dieser Höhe im Bereich 0,2 bis 0,4 mm s⁻¹ liegt.

Für verschiedene Partikeldurchmesser im Größenbereich der beobachteten Wolkenteilchen wurden die knapp unterhalb der Tropopause zu erwartenden Sedimentationsgeschwindigkeiten und Fallzeiten für 300 m – die Dicke der Wolkenschicht – berechnet. Die Ergebnisse sind in Tabelle 6.2 zusammengefaßt. Für die Dichte der Partikel wurde ein Wert von 0,9 angenommen [KNOLLENBERG et al., 1982]. Die Temperatur betrug in der Wolke A₁ 192 K, der Druck 95 hPa, in den Wolken A₂ und A₃ 189 K und 90 hPa, die Unterschiede bei den Ergebnissen sind zu vernachlässigen.

Teilchendurchmesser	Sedimentationsgeschwindigkeit		Fallzeit $300 \mathrm{m}$
[µm]	$[\mathrm{mms^{-1}}]$	[m/h]	[h]
6	$1,\!5$	5,4	56
8	2,4	8,6	35
10	$3,\!8$	13,7	22
12	$5,\!5$	19,8	15

Tabelle 6.2: Teilchendurchmesser und sich daraus ergebende Sedimentationsgeschwindigkeit sowie Fallzeit für 300 m für die Bedingungen an der Tropopause bei APE-THESEO.

Das Maximum der Größenverteilung der bei APE-THESEO beobachteten nichtsichtbaren Wolken liegt bei einem Partikeldurchmesser um 10 μ m. Zur Stabilisierung ist also ein der Fallgeschwindigkeit entsprechender Aufwind von knapp 4 mm s⁻¹ nötig. Die Betrachtungen von PETER et al. [2000] zeigen, daß die Aufwinde bei APE-THESEO in dieser Größenordnung lagen und auch mit der Höhe geringer wurden, was wiederum zu den Ozonprofilen in der untersten Stratosphäre paßt (siehe obigen Vergleich mit AVALLONE und PRATHER [1996]).

6.12 Résumé

Bei Messungen im Bereich der tropischen Tropopause und oberen Troposphäre im Rahmen der Meßkampagne APE-THESEO konnten verschiedene Arten nichtsichtbarer Cirren beobachtet werden. Es wurden sowohl Wolken im Ausläufer eines Cumulonimbus als auch dünne Cirrenschichten nur wenige hundert Meter unterhalb der thermischen Tropopause gemessen.

Die Ergebnisse der in-situ-Messungen von Hintergrundaerosol und Wolkenteilchen, die im Rahmen der vorliegenden Arbeit mit einem Meßgerät des Typs FSSP-300 gemacht wurden, waren:

- Die Konzentration der Wolkenteilchen (d. h. Teilchen mit $d_P \ge 1 \ \mu m$) war in den ausgedehnten, dünnen, nichtsichtbaren Wolkenschichten an der Tropopause mit 0,011 cm⁻³ extrem niedrig.
- Auch in der tieferen Wolkenschicht im Ausläufer des Cumulonimbus wurden in einem nichtsichtbaren Bereich solch niedrige Konzentrationen gemessen.
- Die Größenverteilungen zeigen ein Maximum der Wolkenteilchen bei ungefähr 10 μ m Durchmesser. Dies gilt sowohl für die dünne Wolkenschichten an der Tropopause als auch für die Wolken im Ausläufer des Cumulonimbus. Vor allem bei den dichteren und damit sichtbaren

Bereichen ist zu berücksichtigen, daß keine Teilchen größer als 25 $\mu {\rm m}$ gemessen werden konnten.

• In den nichtsichtbaren Wolken – an der Tropopause und im Ausläufer des Cumulonimbus – waren die Größenverteilungen nur bei den Wolkenteilchen (d. h. Teilchen mit $d_P \geq 1 \ \mu m$) von den Größenverteilungen des Hintergrundaerosols verschieden. Bei den kleineren Partikeln waren zwischen Messungen innerhalb und direkt außerhalb der Wolken keine signifikanten Unterschiede zu beobachten.

Eine vergleichende Analyse der Ergebnisse anderer Instrumente bei APE-THESEO sowie meteorologische Analysen ergab weiterhin:

- Wie die Beobachtungen des OLEX-Lidar ergaben, erfolgten die Messungen A_2 und A_3 der dünnen Cirrenschicht an der Tropopause mit dem FSSP-300 in vergleichsweise dickeren und dichteren Bereichen dieser Wolken.
- Die dünnen Cirrenschichten waren mit wenigen Ausnahmen z. B. im Bereich von Wolke A₂ – vom OLEX-Lidar nur bei der Wellenlänge 1064 nm zu sehen und nicht bei 532 bzw, 354 nm.
- In den Wolken im Bereich der Tropopause wurden mit 192 bzw. 189 K sehr niedrige Temperaturen gemessen.
- Die verschiedenen beobachteten Wolkenschichten lagen im Bereich unterschiedlicher Windregime. Aufgrund der Analyse ist davon auszugehen, daß die Cirrenschicht an der Tropopause nicht in direktem Zusammenhang mit der hochreichenden Konvektion des Cumulonimbus zu sehen ist.
- Eine qualitative Analyse im Kontext der *ozone photochemical clock* ergab für den einen Meßtag einen ersten Hinweis auf Zusammenhänge der Wolkenbildung oder -persistenz mit unterschiedlich starken vertikalen Luftbewegungen.

Die an der Tropopause beobachteten Cirren sind mit ihrer geringen geometrischen Dicke von teilweise nur 250 m bei einer gleichzeitigen Ausdehnung von bis zu 300 km und einer Persistenz von zumindest zweieinhalb Stunden bei der in der Atmosphäre zu erwartenden Turbulenz ein erstaunliches Phänomen, zumal diese Wolken vermutlich erheblich länger bestehen, als durch die hier vorgestellten Beobachtungen gezeigt wurde. Zur Erklärung der Beobachtungen sind spezielle Mechanismen anzunehmen. Mit einem Modell, das unter Verwendung der hier vorgestellten Messungen und weiterer Daten von Luo et al. [2002a] entwickelt wurde, können die Beobachtungen reproduziert werden.

Bei einem Vergleich mit früheren Publikationen zu diesem Thema sind folgende Punkte hervorzuheben:

- Im Rahmen der Meßgenauigkeit Übereinstimmung der mit dem FSSP-300 gemessenen Größenverteilungen und früherer Messungen im betreffenden Größenbereich.
- Kein Widerspruch bezüglich der beobachteten Größe der Wolkenpartikel zu Modellen.
- Die Relation von geometrischer und optischer Dicke von sichtbaren und nichtsichtbaren Wolken liegt im Bereich der Werte, die von Lidar-Messungen abgeleitet worden waren.
- Die Wolken gehören wahrscheinlich zu den optisch dünnsten, die je in der oberen Troposphäre in-situ und mit Lidar beobachtet wurden.

6.13 Ausblick

Bei weiteren Meßkampagnen mit in-situ-Messungen sollten folgende Aufgaben berücksichtigt werden:

- Bei der Partikelmessung steht die Erweiterung des beobachteten Partikelgrößenbereichs zu kleineren als auch zu größeren Teilchen im Vordergrund. Mit dem FSSP-300 können nur die größten Partikel des Hintergrundaerosols gemessen werden und in den Wolken nur die kleinen Wolkenteilchen bis etwa 25 μ m. Zu den größeren Teilchen hin sollte der Meßbereich erweitert werden, damit geklärt werden kann, ob wesentlich größere Teilchen in den dünnen Cirren an der Tropopause tatsächlich nur von geringer Bedeutung sind. Ein Kondensationskernzähler wird mittlerweile auf der Geophysika betrieben [CURTIUS, WEIGEL, persönliche Mitteilung].
- Es sollten weitere Spurengase gemessen werden. Zum einen in Hinblick auf die Ozonchemie, zum anderen im Zusammenhang mit der *ozone photochemical clock*.
- Im selben Zusammenhang ist bei der Durchführung künftiger Flüge zu berücksichtigen, nicht nur längere Flugabschnitte auf konstanter Höhe zu fliegen, was bei APE-THESEO bewußt gemacht wurde, um längere Sammelzeiten zu ermöglichen. Es sollten möglichst auch zusammenhängende Profile mit vergleichsweise größerer Steig- und Sinkgeschwindigkeit erflogen werden.

Bei der Modellbildung ist die Theorie der vertikalen Luftbewegung – d. h. die Bedeutung von Aufwinden für die Bildung und die Persistenz der Cirren – weiter zu untersuchen. Auch die anderen Theorien zu dieser Thematik sollten berücksichtigt werden. Das Thema der *ozone photochemical clock* kann evtl. auch mit den vorhandenen Daten von APE-THESEO noch genauer betrachtet werden, auch wenn eine quantitative Berechnung nicht möglich ist.

Da nur drei Tage mit Messungen zu meteorologischen Analysen herangezogen werden konnten, können einige Auffälligkeiten hierbei noch nicht als tatsächlich signifikant angesehen werden. Bei der meteorologischen Analyse sollte es möglich sein, weitere Ergebnisse zu erhalten, ohne neue Messungen machen zu müssen. Zu den umfangreichen LITE-Messungen könnte es z. B. genug Radiosondenaufstiege geben, die in ausreichendem zeitlichen und räumlichen Zusammenhang stehen. Bei zukünftigen Meßkampagnen sollten entsprechende Messungen von Anfang an berücksichtigt werden.

Ein weiteres Thema ist die Dehydrierung der Luft beim Übergang in die Stratosphäre. In diesem Zusammenhang wird schon länger die Möglichkeit der "Gefriertrocknung" an der Tropopause diskutiert. Mit den dünnen Cirrenschichten an der Tropopause kann dieser Vorgang nun auf Basis experimenteller Befunde modelliert werden. Eine Gruppe im Rahmen des APE-THESEO-Prokjekts arbeitet gegenwärtig an Modellen zur Dehydrierung, zu denen auch die in der vorliegenden Arbeit vorgestellten Meßergebnisse beitragen [Luo et al., 2002a] [eingereicht]. Auch zu dieser Thematik sind weitere Beobachtungen zur Absicherung und Verfeinerung der theoretischen Berechnungen nötig und werden bei künftigen Meßkampagnen auch möglich sein.

Zusammenfassung

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden flugzeuggestütze Messungen des atmosphärischen Aerosols durchgeführt. Bei dem hierfür eingesetzten Meßinstrument handelte es sich um ein FSSP-300 der Firma PMS. Dieses Gerät mißt die Intensität des von einzelnen Aerosolpartikeln in Vorwärtsrichtung gestreuten Lichts und somit den partiellen Streuquerschnitt der Partikel. Diese Meßergebnisse sind dann in Partikeldurchmesser umzurechnen, was je nach Aerosoltyp auf Basis der Mie-Theorie erfolgte oder unter Anwendung der T-Matrix-Methode bei asphärischen Partikeln. Neben der Form der Partikel ist weiterhin der Brechungsindex der Teilchen von entscheidender Bedeutung bei der Interpretation der Messungen. Der Meßbereich des FSSP-300 umfaßt Partikel im Durchmesserbereich von ca. 0,4 bis 20 μ m, wobei diese Grenzen je nach angenommenem Brechungsindex variieren.

Das FSSP-300-Meßsystem – das Meßgerät und ein Datenerfassungscomputer – wurde vor allem für den vollautomatischen Einsatz auf dem russischen Höhenforschungsflugzeug M-55 Geophysika konzipiert. Die Geophysika kann bis in eine Höhe von 21 km aufsteigen und ist damit neben der amerikanischen ER-2 das einzige Flugzeug dieser Art. Das Meßsystem wurde auch noch auf drei weiteren Forschungsflugzeugen installiert und somit im Rahmen dieser Arbeit auf sieben Meßkampagnen eingesetzt. Drei verschiedene, bei diesen Meßkampagnen beobachtete Aerosoltypen wurden für die vorliegende Arbeit untersucht.

Saharastaub

Bei der Meßkampagen ACE-2 wurden im Juli 1997 von Teneriffa aus mit Flugzeugmessungen zwei Schichten äolischen Staubes beobachtet. Die tiefere Schicht reichte bis in 1500 m Höhe, die höhere Schicht bis in 6000 m bei einer Dicke von über 3000 m. Wie eine Analyse der Wetterlage und von Rückwärtstrajektorien zeigten, waren die zwei Staubschichten zwei verschiedenen Luftmassen zuzuordnen, die durch verschiedene Windsysteme in das Gebiet um Teneriffa transportiert worden waren: Die tiefere Schicht vom Passat, die höhere Schicht von den Ausläufern des *Saharan air layer*, die durch ein Höhen-Hochdruckgebiet nach Teneriffa umgelenkt wurden. Ursprungsgebiet des Staubes der höheren Schicht war die Sahara.

Die Gesamtpartikelkonzentration im Meßbereich des FSSP-300 war in der tieferen Staubschicht mit 3 cm⁻³ niedriger als in der höheren Staubschicht, in der 10 $\rm cm^{-3}$ gemessen wurden. Für die Partikelgrößenanalyse der FSSP-300-Messungen mußten die lichtabsorbierenden Eigenschaften des Wüstenstaubs berücksichtigt werden. Das Maximum der mit dem FSSP-300 gemessenen Volumengrößenverteilung des Saharastaubes lag bei beiden Staubschichten im Größenbereich von ca. $15\mu m$, die Anzahlgrößenverteilung zeigte eine Staubmode mit einem Maximum bei 1 bis 2 μ m Partikeldurchmesser. Die Größenverteilungen der beiden Staubschichten unterschieden sich im Partikeldurchmesserbereich $< 1 \ \mu m$ deutlich voneinander, bei den größeren Teilchen hingegen waren die Formen der Größenverteilungen gleich. Messungen der kleineren Partikel von anderen Arbeitsgruppen zeigten, daß in der höheren Schicht das Maximum der Größenverteilung bei $0.1 \ \mu m$ lag. Ein Vergleich mit früheren Veröffentlichungen zeigte in einigen Punkten Ahnlichkeiten mit Größenverteilungen des Staubes, der bei Bodenmessungen auf den Kapverdichen Inseln beobachtet wurde.

Die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit wurden sowohl bei der Modellierung heterogener Prozesse der Ozonchemie verwendet [DE REUS et al., 2000] als auch bei der Modellierung der Strahlungseigenschaften der Staubschichten [TRAUTMANN et al., 2003] [in Vorbereitung].

Hintergrundaerosol

In diesem Kapitel wurden Messungen des stratosphärischen Aerosols – der Junge-Schicht – in zwei Perioden ohne vulkanischen Einfluß und in der Phase nach dem Ausbruch des Vulkans Pinatubo vorgestellt. Frühere Messungen anderer Arbeitsgruppen wurden durch eigene Messungen fortgeführt, so daß insgesamt der Zeitraum von 1988 bis 1998 abgedeckt wurde. Kontinuierliche Messungen aus diesen Jahren liegen mit der Lidar-Zeitreihe aus Garmisch-Partenkirchen vor.

Die beiden Perioden reinen Hintergrundaerosols liegen mit über fünf Jahren eine vergleichbare Zeitspanne nach großen Vulkanausbrüchen. Die bei den in-situ-Messungen mit einem FSSP-300 beobachteten Gesamtkonzentrationen des Aerosls war aber in der prä-Pinatubo-Periode einen Faktor von ca. drei höher als in der post-Pinatubo-Periode, in welcher wieder die niedrige Konzentration der prä-St.-Helens-Periode erreicht wurde.

Die Größenverteilung des stratosphärischen Aerosls zeigt in der Zeit nach dem Ausbruch des Pinatubo ein Maximum zwischen 0,5 und 0,7 μ m. Dieser Zustand wurde ca. ein halbes Jahr nach dem Vulkanausbruch erreicht. Bei einem Vergleich der Größenverteilungen in den Perioden reinen Hintergrundaerosols ohne vulkanischen Einfluß unterscheiden sich Messungen

von außerhalb des polaren Vortex außer in der Konzentration nur bei Partikeldurchmessern kleiner 0,5 μ m. Ansonsten waren die Formen der Größenverteilungen nicht verschieden. Die Messungen innerhalb des Vortex zeigen jedoch Unterschiede in den Formen der Größenverteilungen sowohl zwischen der prä-Pinatubo- und der post-Pinatubo-Periode als auch im Vergleich zu den Messungen außerhalb des Vortex.

Ergebnisse der Auswertungen dieses Kapitels wurden in BORRMANN et al. [2000b] veröffentlicht.

Nichtsichtbare Wolken

Bei den Flügen über dem Indischen Ozean während der Meßkampagne APE-THESEO auf den Seychellen wurden verschiedene Schichten von Cirren im Bereich des Ausläufers eines Cumulonimbus und direkt an der Tropopause beobachtet. Letztere und auch einige Bereiche der ersteren waren nichtsichtbar, d. h. hatten eine optische Dicke von weniger als 0,03 im sichtbaren Licht.

Die verschiedenen Schichten konnten sowohl mit in-situ-Instrumenten, als auch mit Lidar gemessen werden. In Übereinstimmung mit früheren Beobachtungen waren auch die bei APE-THESEO beobachteten Cirrenschichten an der Tropopause sehr ausgedehnt – über mehrere hundert Kilometer – und sehr homogen. Unterschiede zu früheren Beobachtungen lagen vor allem in der sehr geringen optischen Dicke und Partikelkonzentration. Die Wolken waren im Gegensatz zu früheren Veröffentlichungen fast nie mit dem 532-nm-Lidar zu sehen, sondern durchgehend nur bei 1064 nm.

Eine Untersuchung der meteorologischen Rahmenbedingungen ergab, daß an den Tagen, an denen nichtsichtbare Cirren an der Tropopause beobachtet wurden, im Bereich der oberen Troposphäre eine Schichtung in Bezug auf die Windrichtung auftrat und die verschiedenen Wolkenschichten verschiedenen Windregimen zugeordnet werden konnten. Auf Grund der Windverhältnisse im Bereich der Tropopause ist davon auszugehen, daß die dort beobachtete dünne, nichtsichtbare Cirrenschicht nicht in direktem Zusammenhang mit dem beobachteten Cumulonimbus-System steht.

Die Partikelkonzentration in den dünnen Wolken an der Tropopause ist bei den im Rahmen dieser Arbeit gemachten Messungen deutlich niedriger gewesen als in den wenigen Veröffentlichungen, die es bislang gibt. Erstmals konnte auch der Größenbereich unterhalb 3 μ m bis 0,5 μ m erfaßt werden und somit auch ein Vergleich mit dem Hintergrundaerosol durchgeführt werden. Die Größenverteilungen der extrem dünnen nichtsichtbaren Wolken unterscheiden sich vom Hintergrundaerosol direkt oberhalb und unterhalb der Wolken nur durch die Partikel größer als ein Mikrometer, also die eigentlichen Wolkenteilchen; die Konzentrationen der kleineren Partikel ist gleich. Die Größenverteilung der Wolkenteilchen mit $d_P > 1 \ \mu$ m hat ein Maximum bei ca. 10 μ m, die Konzentration dieser Partikel liegt bei ca. 0,01 cm⁻³. Es gibt mehrere Hypothesen zu Entstehung und Persistenz der dünnen Cirrenschichten an der tropischen Tropopause. Für die Beobachtungen bei APE-THESEO ist davon auszugehen, daß großräumige vertikale Luftbewegungen in der Größenordnung von mm s⁻¹ dafür verantwortlich sind. Eine qualitative Analyse in Hinblick auf die *ozone photochemical clock* weist in diese Richtung und zeigt auch interessante Möglichkeiten für die weitere Forschung.

Die in diesem Kapitel vorgestellten Messungen wurden in zwei Artikeln veröffentlicht [THOMAS et al., 2002; PETER et al., 2002]. Diese Ergebnisse wurden weiterhin sowohl bei der Modellierung der Stabilisierungsmechanismen der dünnen Cirrenschichten an der Tropopause verwendet [Luo et al., 2002b], als auch bei der Modellierung der Dehydrierung im Bereich der Tropopause und untersten Stratosphäre [Luo et al., 2002a] [eingereicht].

Anhang

Anhang A

Tabellen

A.1 Liste der Akronyme

1-dimensional particle probe		
Airborne Arctic Stratospheric Experiment		
Wechselstrom/-Spannung		
Aerosol Characterization Experiment		
analog-digital Konverter (analog digital converter)		
Aerosol Optical Depth		
¹ Airborne Polar Experiment bzw.		
2 Airborne Platform for Earth Observation		
$APE(^2)$ – Extended Test Campaign		
$APE(^2)$ – Third European Stratospheric Experiment		
on Ozone		
Aerosol Scattering Spectrometer Probe		
Bundesministerium für Bildung und Forschung		
Cumulonimbus		
Kondensationskernzähler (Condensation		
Nuclei bzw. Particle Counter)		
Counterflow Virtual Impactor - Tunable Diode Laser		
spectrometer		
Data Acquisition System		
Gleichstrom/-Spannung		
Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt		
Differentieller Mobilitäts-Analysator		
European Centre for Medium-Range Weather Fore-		
casts		
Electro-Chemical Ozone Cell		
Elektro-Magnetische Kompatibilität ("Compatibili-		
ty")		
Ente per le Nuove tecnologie, L'Energia e l'Ambiente		

FISH	Fast In-situ Stratospheric Hygrometer
FREETROPE	Free Troposphere Experiment
FSSP	Forward Scattering Spectrometer Probe
GPC	gas-to-particle-conversion
GPS	Global Positioning System
IAS	angezeigte Eigengeschwindigkeit gegenüber Luft
	(indicated air speed)
IDL	Interactive Data Language
ITCZ	Innertropische Konvergenzzone (Convergence Zone)
Lidar	Light Detection and Ranging
LITE	Lidar In-space Technology Experiment
MAL	Miniature Airborne Lidar
MAS	Multiwavelength Aerosol laser Scatterometer
MAS-BSR	MAS-Rückstreuverhältnis
MAS-DR	MAS-Depolarisation
NASA	National Aeronautics and Space Administration
NAT	Salpetersäuretrihydrat (Nitric Acid Trihydrate)
NCAR	National Center for Atmospheric Research
NESDIS	National Environmental Satelite, Data, & Information
	Service
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration
OLEX	Ozone Lidar EXperiment
PCASP	Passive Cavity Aerosol Spectrometer Probe
PMS	Particle Measurement Systems
PNRA	Programma Nazionale di Ricerche in Antartide
POLSTAR	Polares Stratosphärisches Aerosol-Experiment
RHI	relative Feuchte über Eis (<i>relative humidity over ice</i>)
SAGE	Stratospheric Aerosol and Gas Experiment
SPADE	Straotspheric Photochemistry, Aerosols and Dynamics
	Expedition
TAS	wahre Eigengeschwindigkeit gegenüber Luft
	(true air speed)
THESEO	Third European Stratospheric Experiment on Ozone
UARS	Upper Atmospheric Research Satellite
UTC	Koordinierte Weltzeit (Coordinated Universal Time)
VEI	Volcanic Explosivity Index

A.2 Liste der Variablen

	Mie-Größenparameter
	Zenitwinkel
Κ	potentielle Temperatur
	Azimutwinkel
	optische Dicke
Jahre	1/e-Zeit
cm^2	Querschnittsfläche des FSSP-300 Meßvolumens
$\mu { m m}^2$	Streuquerschnitt
$\mu { m m}^2$	partieller Streuquerschnitt (des FSSP-300)
$\mu { m m}$	Partikeldurchmesser
	Streufunktion
$\mu { m m}^{-2}$	geometrischer Partikelquerschnitt
${\rm Wm^{-2}}$	Intensität des einfallenden Lichtes
${\rm Wm^{-2}}$	Intensität des durch Extinktion geschwächten Lichtes
${\rm Wm^{-2}}$	Intensität des gestreuten Lichtes
m^{-1}	Wellenzahl
m^{-1}	Extinktionskoeffizient
\mathbf{kt}	Knoten (1 kt $\approx 0,5 \text{ m s}^{-1}$)
	(komplexer) Brechungsindex
kg	Tephramasse
	Magnitude (eines Vulkanausbruchs)
cm^{-3}	Anzahlkonzentration
	Partikelanzahl
	Extinktionseffizienzfaktor (<i>extinction efficiency</i>)
	Streueffizienzfaktor (scattering efficiency)
m	Entfernung vom Streuzentrum
s	Anfangs- und Endzeit einer Messung
Κ	Temperatur
cm^3	mit dem FSSP-300 gemessenes Luftvolumen
${\rm ms^{-1}}$	wahre Eigengeschwindigkeit gegenüber der Luft
m	Höhe von oberem und unterem Wolkenrand
	$\begin{array}{c} \\ {\rm K} \\ \\ {\rm Jahre} \\ {\rm cm}^2 \\ {\rm \mu m}^2 \\ {\rm \mu m}^2 \\ {\rm \mu m}^2 \\ {\rm \mu m}^{-2} \\ {\rm Wm}^{-2} \\ {\rm Wm}^{-2} \\ {\rm Wm}^{-2} \\ {\rm Wm}^{-2} \\ {\rm Wm}^{-1} \\ {\rm m}^{-1} \\ {\rm kt} \\ \\ {\rm kg} \\ \\ {\rm cm}^{-3} \\ \\ {\rm m} \\ {\rm s} \\ {\rm K} \\ {\rm cm}^3 \\ {\rm m} {\rm s}^{-1} \\ {\rm m} \\ \end{array}$

A.3 Tabellen für Größenverteilungen

Auf den folgenden Seiten befinden sich die Tabellen, die für die Umrechnung der Kanäle des FSSP-300 in Größenverteilungen verwendet wurden. Zur Methodik der Auswertung siehe Abschnitt 1.2 ab Seite 15. Die Tabellen wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit erstellt mit Ausnahme der Tabelle für m = 1,44 [BORRMANN, persönliche Mitteilung]. Der als mittlerer Durchmesser angegebene Wert ist das geometrische Mittel aus unterem und oberem Durchmesser.

Für die Kalibrierung mit Latex-Aerosol (m = 1, 58) wird keine Größenzuordnungstabelle mit Kanalzusammenfassungen benötigt, da bei der Kalibrierung gerade die Kanalzuordnung mit einem quasi-monodispersen Aerosol bekannter Größe überprüft wird. Die Tabelle für m = 1,58 enthält alle Partikeldurchmesser, die der jeweiligen Kanalgrenze zugeordnet werden können. Die Mie-Streufunktion ist ebenfalls dargestellt mit eingetragenen Kanalgrenzen (bezüglich des Streuquerschnittes).
FSSP-300	unterer	mittlerer	oberer	$d\log d_P$	Größenverteilung
Kanalnummer	Durch	$messer, d_P$	$[\mu m]$		Kanalnummer
1	0,36	0,384	0,41	0,0564	1
2	0,41	0,429	$0,\!45$	0,0404	2
3	0,45	0,474	$0,\!5$	0,0457	3
4	0,5	0,519	0,54	0,0334	4
5	0,54	0,559	$0,\!58$	0,0310	5
6	0,58	0,604	$0,\!63$	0,0359	6
7	$0,\!63$	0,654	$0,\!68$	0,0331	7
8	$0,\!68$	0,795	0,93	0,136	8
9	$0,\!68$	0,795	$0,\!93$	$0,\!136$	8
10	$0,\!68$	0,795	$0,\!93$	$0,\!136$	8
11	0,93	1,339	1,93	0,317	9
12	0,93	1,339	$1,\!93$	0,317	9
13	0,93	1,339	$1,\!93$	0,317	9
14	1,93	2,617	$3,\!55$	0,264	10
15	1,93	2,617	$3,\!55$	0,264	10
16	1,93	2,617	$3,\!55$	$\begin{array}{c} 0,264 \\ 0,264 \\ 0,264 \\ 0,264 \end{array}$	10
17	1,93	2,617	$3,\!55$		10
18	1,93	2,617	$3,\!55$		10
19	$\begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$		5,1 0,157		11
20			5,1	$0,\!157$	11
21	5,1	5,932	6,9	0,1312	12
22	6,9	7,572	8,31	0,0807	13
23	8,31	9,028	9,81	0,0720	14
24	9,81	10,49	11,22	0,0583	15
25	11,22	12,20	13,27	0,0728	16
26	11,22	12,20	$13,\!27$	0,0728	16
27	13,27	14,25	15,31	0,0621	17
28	$13,\!27$	14,25	$15,\!31$	0,0621	17
29	15,31	19,13	23,91	0,193	18
30	15,31	19,13	$23,\!91$	$0,\!193$	18
31	15,31	19,13	$23,\!91$	$0,\!193$	18

Tabelle A.2: Brechungsindex m = 1, 44 - 0i für stratosphärisches Aerosol.

FSSP-300	unterer	mittlerer	oberer	$d\log d_P$	Größenverteilung
Kanalnummer	Durch	messer, d_P	$[\mu m]$		Kanalnummer
1	0,306	0,330	0,358	0,0681	1
2	0,358	0,382	0,408	0,0567	2
3	0,408	0,432	0,459	0,0511	3
4	0,459	$0,\!477$	$0,\!497$	0,0345	4
5	0,497	0,515	0,535	0,0319	5
6	0,535	0,567	0,601	0,0505	6
7	0,601	0,623	0,647	0,0320	7
8	0,647	0,663	0,681	0,0222	8
9	0,681	1,036	1,577	0,364	9
10	0,681	1,036	1,577	0,364	9
11	0,681	1,036	1,577	0,364	9
12	0,681	1,036	1,577	0,364	9
13	0,681	1,036	1,577	0,364	9
14	1,577	2,109	2,823	0,252	10
15	1,577	$2,\!109$	2,823	0,252	10
16	1,577	$2,\!109$	2,823	0,252	10
17	$1,\!577$	2,109	$2,\!823$	0,252	10
18	2,823	3,469	4,263	0,179	11
19	2,823	3,469	$4,263 \\ 4,263$	0,179	11
20	2,823	3,469		$0,\!179$	11
21	2,823	$3,\!469$	4,263	0,179	11
22	4,263	6,350	9,46	0,346	12
23	4,263	$6,\!350$	9,46	0,346	12
24	4,263	$6,\!350$	9,46	0,346	12
25	4,263	$6,\!350$	9,46	0,346	12
26	9,46	11,41	13,76	0,162	13
27	9,46	11,41	13,76	0,162	13
28	9,46	11,41	13,76	0,162	13
29	13,76	14,62	15,55	0,0531	14
30	15,55	17,81	20,4	0,117	15
31	15,55	$17,\!81$	20,4	0,117	15

Tabelle A.3: Brechungsindex m = 1,55 - 0i, d. h. ohne Absorption zum Vergleich mit Brechungsindices von Saharastaub (mit gleichem Realteil von m, aber verschiedenen Werten des Imaginärteils).

FSSP-300	unterer	mittlerer	oberer	$d\log d_P$	Größenverteilung
Kanalnummer	Durch	$messer, d_P$	$[\mu m]$		Kanalnummer
1	0,306	0,331	0,358	0,0681	1
2	0,358	0,382	0,408	0,0567	2
3	0,408	0,432	$0,\!459$	0,0511	3
4	$0,\!459$	0,477	0,497	0,0345	4
5	0,497	0,515	0,535	0,0319	5
6	0,535	0,567	0,602	0,0512	6
7	0,602	0,624	0,647	0,0313	7
8	0,647	0,664	0,682	0,0228	8
9	0,682	1,037	1,578	0,364	9
10	$0,\!682$	1,037	1,578	0,364	9
11	$0,\!682$	1,037	1,578	0,364	9
12	$0,\!682$	1,037	1,578	0,364	9
13	$0,\!682$	1,037	1,578	0,364	9
14	1,578	2,110	2,824	0,252	10
15	1,578	2,110	2,824	0,252	10
16	1,578	$2,110 \\ 2,110$	2,824	0,252	10
17	1,578		$2,\!824$	0,252	10
18	2,824	3,827	5,187	0,264	11
19	2,824	3,827	$5,\!187$	0,264	11
20	2,824	3,827	$5,\!187$	0,264	11
21	2,824	3,827	$5,\!187$	0,264	11
22	5,187	7,248	10,13	0,291	12
23	5,187	7,248	$10,\!13$	0,291	12
24	5,187	7,248	$10,\!13$	0,291	12
25	5,187	7,248	$10,\!13$	0,291	12
26	10,13	12,24	14,79	0,164	13
27	10,13	12,24	14,79	0,164	13
28	$10,\!13$	12,24	14,79	0,164	13
29	14,79	15,69	16,66	0,0517	14
30	16,66	19,99	24,	0,158	15
31	$16,\!66$	19,99	24,	$0,\!158$	15

Tabelle A.4: Brechungsindex m = 1,55 - 0,001i für Saharastaub (CARLSON und BENJAMIN [1980], nach WEISS [1976] (ohne weitere Publikationsangabe).

FSSP-300	unterer	mittlerer	oberer	$d \log d_P$	Größenverteilung		
Kanalnummer	Durch	messer, d_P	$[\mu m]$		Kanalnummer		
1	0,31	0,334	0,36	0,0649	1		
2	0,36	0,384	0,41	0,0564	2		
3	0,41	0,434	0,46	0,0499	3		
4	0,46	0,479	0,5	0,0362	4		
5	0,5	0,519	0,54	0,0334	5		
6	0,54	0,569	0,6	0,0457	6		
7	0,6	0,623	0,648	0,0334	7		
8	0,648	$0,\!665$	0,684	0,0234	8		
9	0,684	1,039	1,58	0,363	9		
10	0,684	1,039	1,58	0,363	9		
11	0,684	1,039	1,58	0,363	9		
12	0,684	1,039	1,58	0,363	9		
13	13 0,684		1,58	0,363	9		
14	1,58	2,114	2,83	0,253	10		
15	1,58	2,114	2,83	0,253	10		
16	1,58	2,114	2,83	0,253	10		
17	1,58	$2,\!114$	2,83	0,253	10		
18	$ \begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$		5,23	0,266	11		
19			$\begin{array}{c cccc} 5,23 & 0,266 \\ 5,23 & 0,266 \end{array}$		11		
20					11		
21	2,83	$3,\!847$	5,23	0,266	11		
22	5,23	7,745	11,47	0,341	12		
23	5,23	7,745	11,47	0,341	12		
24	5,23	7,745	11,47	0,341	12		
25	11,47	13,05	14,86	0,112	13		
26	11,47	$13,\!05$	14,86	0,112	13		
27	11,47	$13,\!05$	14,86	0,112	13		
28	14,86	18,85	23,92	0,206	14		
29	14,86	$18,\!85$	23,92	0,206	14		
30	23,92	27,23	31,	0,112	15		
31	23,92	$27,\!23$	31,	0,112	15		

Tabelle A.5: Brechungsindex m = 1,55 - 0,004i für Saharastaub [PATTERSON et al., 1977].

FSSP-300	unterer	mittlerer	oberer	$d\log d_P$	Größenverteilung
Kanalnummer	Durch	$messer, d_P$	$[\mu m]$		Kanalnummer
1	0,306	0,331	0,36	0,0705	1
2	0,36	0,384	0,411	0,0575	2
3	0,411	0,435	0,461	0,0498	3
4	0,461	0,479	0,499	0,0343	4
5	0,499	0,519	0,541	0,0350	5
6	0,541	0,573	0,607	0,0499	6
7	0,607	0,628	0,651	0,0303	7
8	$0,\!651$	0,669	0,689	0,0246	8
9	$0,\!689$	1,044	1,582	0,361	9
10	$0,\!689$	1,044	1,582	0,361	9
11	$0,\!689$	1,044	1,582	0,361	9
12	$0,\!689$	1,044	1,582	0,361	9
13	$0,\!689$	1,044	1,582	0,361	9
14	1,582	2,118	2,838	0,253	10
15	1,582	2,118	2,838	0,253	10
16	1,582	$2,118 \\ 2,118$	2,838	0,253	10
17	$1,\!582$		$2,\!838$	0,253	10
18	2,838	3,881	5,31	0,272	11
19	2,838	3,881	5,31	0,272	11
20	2,838	3,881	$5,\!31$	0,272	11
21	2,838	3,881	5,31	0,272	11
22	5,31	8,212	12,7	0,378	12
23	5,31	8,212	12,7	0,378	12
24	5,31	8,212	12,7	0,378	12
25	12,7	14,27	16,05	0,101	13
26	12,7	14,27	$16,\!05$	0,101	13
27	12,7	14,27	$16,\!05$	0,101	13
28	16,05	20,52	26,26	0,213	14
29	$16,\!05$	20,52	$26,\!26$	0,213	14
30	26,26	31,29	37,3	0,152	15
31	$26,\!26$	31,29	37,3	0,152	15

Tabelle A.6: Brechungsindex m = 1, 55 - 0, 01i für Saharastaub [FISCHER und HÄNEL, 1972].

FSSP-300	unterer	mittlerer	oberer	$d\log d_P$	Größenverteilung	
Kanalnummer	Durch	messer, d_P	$[\mu m]$		Kanalnummer	
1	0,43	0,468	0,51	0,0741	1	
2	$2 \qquad 0.51 \qquad 0.539 \qquad 0.57$		0,57	0,0483	2	
3	0,57	0,599	0,63	0,0434	3	
4	4 0,63	0,661	0,695	0,0426	4	
5	5 0,695		0,726 0,76		5	
6	0,76	0,789	0,82	0,0330	5	
7	0,82	0,849	0,88	0,0306	6	
8	0,88	0,938	1	0,0555	6	
9	0,88	0,938	1	0,0555	6	
10	1	1,058	1,12	0,0492	7	
11	1	1,058	1,12	0,0492	7	
12	1,12	1,833	3	0,427	8	
13	$\begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$		3	0,427	8	
14			3	0,427		
15 1,12		1,833	3	0,427	8	
16	$ \begin{array}{c ccccccccccccccccccccccccccccccccccc$		3	0,427	8	
17			8,6	$0,\!457$	9	
18			8,6	0,457	9	
19			8,6	0,457	9	
20	3	5,079	8,6	0,457	9	
21	8,6	9,592	10,7	0,0948	10	
22	8,6	9,592	10,7	0,0948	10	
23	8,6	9,592	10,7	0,0948	10	
24	10,7	11,47	12,3	0,0605	11	
25	10,7	11,47	12,3	0,0605	11	
26	12,3	13,49	14,8	0,0803	12	
27	12,3	13,49	14,8	0,0803	12	
28	14,8	16,90	19,3	0,115	13	
29	14,8	16,90	19,3	0,115	13	
30	19,3	21,96	25,	0,112	14	
31	19,3	$21,\!96$	25,	0,112	14	

Tabelle A.7: Brechungsindex m = 1,31 für Eis, T-Matrix-Methode, Aspektverhältnis 0,75 bis 0,85.

FSSP-300	unterer	mittlerer	oberer	$d\log d_P$	Größenverteilung
Kanalnummer	Durch	$messer, d_P$	$[\mu m]$		Kanalnummer
1	0,365	0,401	0,442	0,0831	1
2	0,442	0,469	0,498	0,0518	2
3	0,498	0,520	0,545	0,0391	3
4	0,545	0,577	$0,\!612$	0,0503	4
5	0,612	0,641	0,672	0,0406	5
6	$0,\!672$	$0,\!695$	0,719	0,0293	5
7	0,719	0,762	0,809	0,0512	6
8	0,809	0,837	0,868	0,0305	6
9	0,868	0,926	0,99	0,0571	7
10	$0,\!99$	1,052	$1,\!12$	0,0535	7
11	$0,\!99$	1,052	$1,\!12$	0,0535	7
12	0,868	1,274	$1,\!87$	0,333	7
13	0,868	1,281	$1,\!89$	0,337	7
14	1,89	2,493	$3,\!29$	0,241	8
$\begin{array}{c cccc} 15 & 1,87 \\ 16 & 1,87 \end{array}$		2,480	$3,\!29$	0,245	8
		2,484	3,3	0,246	8
17	17 3,3		$8,\!63$	0,417	9
18	$3,\!29$	5,328	$8,\!63$	0,418	9
19	$3,\!29$	5,328	$8,\!63$	0,418	9
20	$8,\!63$	9,918	11,4	0,121	10
21	$8,\!63$	9,918	11,4	0,121	10
22	$8,\!63$	9,918	11,4	0,121	10
23	11,4	12,81	14,4	0,101	11
24	11,4	12,81	$14,\!4$	0,101	11
25	11,4	12,81	$14,\!4$	0,101	11
26	14,4	17,30	20,8	0,159	12
27	14,4	17,30	20,8	0,159	12
28	14,4	17,30	20,8	$0,\!159$	12
29	20,8	24,97	30,	0,159	13
30	20,8	24,97	30,	0,159	13
31	20,8	24,97	30,	$0,\!159$	13

Tabelle A.8: Brechungsindex m = 1,48 für NAT, T-Matrix-Methode, Aspektverhältnis 0,75 bis 0,85.

	1	0,30										
	2	0,35										
	3	0,40										
	4	0,45										
	5	0,49										
	6	0,53										
	7	0,60										
	8	0,64										
	9	0,67										
	10	0,78	$1,\!21$	1,26	1,29	1,32	1,36	$1,\!38$				
	11	0,82	$1,\!07$	$1,\!12$	$1,\!16$	$1,\!40$						
	12	0,96	$1,\!04$	$1,\!41$								
	13	1,48										
	14	1,54										
	15	1,60										
	16	1,69	2,26	2,27	2,28	$2,\!50$						
	17	1,84	$2,\!10$	$2,\!62$								
	18	2,70	3,35	3,36	3,40	3,52	$3,\!54$	3,56				
	19	2,79	3,20	3,22	$3,\!24$	3,67	$3,\!69$	3,70				
4	20	3,81										
-	21	3,95	$4,\!38$	$4,\!46$	4,47	$4,\!81$						
	22	4,96										
	23	5,10	$5,\!18$	5,19	$5,\!47$	$5,\!97$						
4	24	6,12	$6,\!51$	$6,\!51$	$6,\!55$	$6,\!90$	$7,\!64$	$7,\!66$				
4	25	7,08	$7,\!44$	$7,\!96$								
4	26	9,52	9,57	$9,\!59$	10,21	$10,\!24$	10,35	10,39	$10,\!44$	10,46	10,49	$10,\!53$
4	27	10,91	11,46	$11,\!47$	$11,\!53$	$11,\!55$	11,59	11,91				
4	28	12,09	$12,\!56$	$13,\!01$								
	29	13,20	$13,\!20$	13,26	$13,\!50$	$14,\!05$	14,09	$14,\!10$				
,	30	15,36	15,79	$15,\!89$	$15,\!89$	16,26						
,	31	16,56	$16,\!69$	16,76	16,78	$17,\!40$	17,92	18,00	$18,\!08$	$18,\!18$		
		20,01	20,05	20,09	20,21	20,48	20,51	20,71				

Tabelle A.9: Kanalgrenzen des FSSP-300 für Latex-Aerosol (m = 1, 58). In der ersten Spalte stehen die Kanalnummern, in den folgenden Spalten die Partikeldurchmesser. In einer Zeile stehen die Partikeldurchmesser für die jeweilige Kanaluntergrenze (und somit die Kanalobergrenze des vorigen Kanals). Mehrere Durchmesser bei einer Kanalgrenze sind eine Folge der Mehrdeutigkeiten der Mie-Streufunktion (siehe Abbildung A.1). In der letzten Zeile stehen die Partikeldurchmesser für die Kanalobergrenze von Kanal 31. Mit dieser Tabelle und Abbildung A.1 können geeignete Partikelgrößen für eine Kalibrierung mit Latex-Aerosol bestimmt werden.



Abbildung A.1: Mie-Streufunktion für Latex-Aerosol (m = 1,58) und die Streugeometrie des FSSP-300 (Streuwinkel 3° bis 15°). Die horizontalen Linien sind die Kanalgrenzen des FSSP-300.

Anhang B

Thermodynamische Diagramme

Auf der folgenden Seite befindet sich das thermodynamische Diagramm für den 8. Juli 1997 für Teneriffa [Quelle: ACE-2 Datenbank, TRAUTMANN, persönliche Mitteilung], zur Auswertung der ACE-2 Daten im 4. Kapitel. Weiter folgen die Stüve Diagramme zu den Auswertungen im 6. Kapitel vom 24. Februar, 27. Februar und 6. März 1999, den Tagen des zweiten, dritten und fünften Meßfluges der Geophysika bei APE-THESEO [UNIVERSITÄT WYOMING, über Internet]. Stationen: Seychellen (Rawinsonde, Stationskennung: 63985, FSSS) für den 24. und 27. Februar und den 6. März 1999; für den 6. März auch noch Serge-Frolow (Réunion, 61976) und Vacoas (Mauritius, 61995). Geographische Breite und Länge der Stationen sind mit den Kürzeln SLAT und SLON angegeben.

Die nach rechts geneigten, geraden, grünen Linien (ACE-2) bzw. die senkrechten blauen Linien (APE-THESEO) sind Linien gleicher Temperatur. Die nach links geneigten, geraden, grünen Linien (ACE-2 und APE-THESEO) sind die Trockenadiabaten. Die gekrümmten blauen Linien (ACE-2 und APE-THESEO) sind Feuchtadiabaten. Bei den Stüve-Diagrammen von APE-THESEO sind auch noch die Linien gleicher spezifischer Feuchte (violett) eingetragen. Die Temperaturprofile sind die dicke, blaue Linie (ACE-2) bzw. die obere, dicke, schwarze Linie (APE-THESEO). Die Profile der spezifischen Feuchte sind die dicke, gestrichelte, blaue Linie (ACE-2) bzw. die untere, dicke, schwarze Linie (APE-THESEO).



Abbildung B.1: Teneriffa, 8. Juli 1997, 12:00 Uhr















Anhang C

Bibliographie, Datenquellen

C.1 Zeitschriften und Monographien

Die Zahlen hinter den einzelnen Einträgen der Bibliographie verweisen auf die Seiten, auf denen die betreffende Veröffentlichung zitiert wird.

- Adriani, A., F. Cairo, M. Viterbini, S. Mandolini, L. Pulvirenti und G. D. Donfrancesco (1999): Multiwavelength aerosol scatterometer for airborne experiments to study the stratospheric particle optical properties. *J. Atmos. Ocean. Tech.* **16**, 1329–1336. \rightarrow 124
- Avallone, L. M. und M. J. Prather (1996): Photochemical evolution of ozone in the lower tropical stratosphere. J. Geophys. Res. **101**, 1457–1461. \rightarrow 163, 165, 166
- Barnes, A. A. (1980): Observations of ice particles in clean air. J. Rech. Atmos. 14, 311 315. $\rightarrow 119, 121, 163$
- Baumgardner, D. und S. Skinner (1989): Forward scattering spectrometer probe (FSSP) calibration and maintenance procedure manual. Research Aviation Facility, National Center for Atmospheric Research, Boulder, Colorado. $\rightarrow 30$
- Bekki, S. (1995): Oxidation of volcanic SO₂: A sink for stratospheric OH and H₂O. *Geophys. Res. Lett.* **22**, 913–916. \rightarrow 89
- Bluth, G. J. S., S. D. Doiron, C. C. Schnetzler, A. J. Krueger und L. S. Walter (1992): Global tracking of the SO₂ clouds from the June, 1991 Mount Pinatubo eruptions. *Geophys. Res. Lett.* **19**, 151–154. \rightarrow 90

- Bluth, J. S. G., W. I. Rose, I. E. Sprod und A. J. Krueger (1997): , Stratospheric loading of sulfur from explosive volcanic eruptions. *J. Geol.* **105**, $671-683. \rightarrow 94, 95$
- Boehm, M. T., J. Verlinde und T. P. Ackerman (1999): On the maintenance of high tropical cirrus. J. Geophys. Res. 104, 24423–24433. \rightarrow 122, 159
- Borrmann, S., J. E. Dye, D. Baumgardner, J. C. Wilson, H. H. Jonsson, C. A. Brock, M. Loewenstein, J. R. Podolske, G. V. Ferry und K. S. Barr (1993): , In-situ measurements of changes in stratospheric aerosol and the N₂O-aerosol relationship inside and outside of the polar vortex. *Geophys. Res. Lett.* **20**, 2559–2562. \rightarrow 93
- Borrmann, S., J. E. Dye, D. Baumgardner, M. H. Proffitt, J. J. Margitan, J. C. Wilson, H. H. Jonsson, C. A. Brock, M. Loewenstein, J. R. Podolske und G. V. Ferry (1995): Aerosols as dynamical tracers in the lower stratosphere: Ozone versus aerosol correlation after the Mount Pinatubo eruption. J. Geophys. Res. 100, 11147–11156. $\rightarrow 93$
- Borrmann, S., S. Solomon, J. E. Dye und B. Luo (1996): The potential of cirrus clouds for heterogeneous chlorine activation. *Geophys. Res. Lett.* **23**, 2133–3136. \rightarrow 123
- Borrmann, S., B. Luo und M. I. Mishchenko (2000a): Application of the T-matrix method to the measurement of aspherical (ellipsoidal) particles with forward scattering optical particle counters. J. Aerosol Sci. **31**, 789–799. $\rightarrow 11, 24, 28$
- Borrmann, S., A. Thomas, V. Rudakov, V. Yushkov, B. Lepuchov, T. Deshler, N. Vinnichenko, V. Khattatov und L. Stefanutti (2000b): Stratospheric aerosol measurements in the Arctic winter of 1996/1997 with the M-55 Geophysika high-altitude research aircraft. *Tellus* **52B**, 1088–1103. $\rightarrow 103, 173$
- Bregman, B., P.-H. Wang und J. Lelieveld (2002): Chemical ozone loss in the tropopause region on subvisible clouds, calculated with a chemistry-transport model. J. Geophys. Res. 107. \rightarrow 123
- Brock, C. A., P. Hamill, J. C. Wilson, H. H. Jonsson und K. R. Chan (1995): , Particle formation in the upper troposphere: A source of nuclei for the stratospheric aerosol. *Science* **270**, 1650–1653. \rightarrow 88
- Cairo, F., G. D. Donfrancesco, A. Adriani, L. Pulvirenti und F. Fierli (1999): , Comparison of various linear depolarization parameters measured by lidar. *Appl. Opt.* **38**, 4425–4432. \rightarrow 150
- Carlson, T. N. und S. G. Benjamin (1980): Radiative heating rates for Saharan dust. J. Atmos. Sci. 37, 193–213. → 15, 16, 76, 77, 183

- Carlson, T. N. und J. M. Prospero (1972): The large-scale movement of Saharan air outbreaks over the equatorial North Atlantic. *J. Appl. Meteorol.* **11**, 283–297. $\rightarrow 64$
- Chin, M. (1992): Atmospheric studies of carbonyl sulfide and carbon disulfide and their relationship to stratospheric background sulfur aerosol. Ph.D. thesis, Georgia Institute of Technology. $\rightarrow 88$
- Chin, M. und D. D. Davis (1995): A reanalysis of carbonyl sulfide as a source of stratospheric background sulfur aerosol. J. Geophys. Res. 100, $8993-9006. \rightarrow 88$
- d'Almeida, G. A. und L. Schütz (1983): Number, mass and volume distribution of mineral aerosol and soils of the Sahara. J. Climate Appl. Meteor. 22, 233–243. → 82
- Darwin, C. (1846): An account of the fine dust which often falls on vessels in the Atlantic Ocean. *Quart. J. Geol. Soc. London.* **2**, 26–30. \rightarrow 62
- de Reus, M., F. Dentener, A. Thomas, S. Borrmann, J. Ström und J. Lelieveld (2000): Airborne observations of dust aerosol over the North Atlantic Ocean during ACE-2 Indications for heterogenous ozone destruction. J. Geophys. Res. **105**, 15263–15275. $\rightarrow 61, 67, 69, 71, 72, 74, 80, 81, 82, 85, 172$
- Dessler, A. E. (2002): The effect of deep, tropical convection on the tropical tropopause layer. J. Geophys. Res. 107, 10.1029/2001JD000511. \rightarrow 143
- Dobson, M. (1781): An account of the Harmattan, a singular African wind. *Phil. Trans. Roy. Soc. Lond.* **71**, 46–57. \rightarrow 62
- Dragani, R., G. Redaelli, G. Visconti, A. Mariotti, V. Rudakov, A. R. MacKenzie und L. Stefanutti (2002): High resolution stratospheric tracer fields reconstructed with lagrangian techniques: a comparative analysis of predictive skill. J. Atmos. Sci. 59, 1943–1958. $\rightarrow 102$
- Ehrenberg, C. G. (1849): Passatstaub und Blutregen. Abhanld. Kgl. Akad. Wiss S. 269–460. $\rightarrow~62$
- Ehrenberg, C. G. (1862): Erläuterungen eines neuen wirklichen Passatstaubes aus dem atlantischen Dunkelmeere vom 29. Oct. 1861. *Monatsber. Kgl. Preuss. Akad. Wiss.* S. 202–224. $\rightarrow 62$
- Ernst, J. A. (1974): African dust layer sweeps into the southwest North Atlantic area. Am. Met. Soc. Bull. 5, 1352–1353. $\rightarrow 64$
- Fahey, D. W., S. R. Kawa, E. L. Woodbridge, P. Tin, J. C. Wilson, H. H. Jonsson, J. E. Dye, D. Baumgardner, S. Borrmann, D. W. Toohey, L. M.

Avallone, M. H. Proffitt, J. Margitan, M. Loewenstein, J. R. Podolske, R. J. Salawitch, S. C. Wofsy, M. K. W. Ko, D. E. Anderson, M. R. Schoeberl und K. R. Chan (1993): In situ measurements constraining the role of sulphate aerosols in mid latitude ozone depletion. *Nature* **363**, 509–514. \rightarrow 43, 91, 123

- Fischer, K. und G. Hänel (1972): Bestimmung physikalischer Eigenschaften atmosphärischer Aerosolteilchen über dem Atlantik. "Meteor" Forschungs-Ergebnisse Reihe B 8, 59–62. \rightarrow 77, 185
- Folkins, I., M. Loewenstein, J. Podolske, S. J. Oltmans und M. Proffitt (1999): A barrier to vertical mixing at 14 km in the tropics: Evidence from ozonesondes and aircraft measurements. *J. Geophys. Res.* **104**, 22095–22102. \rightarrow 142
- Formenti, P., M. O. Andreae und J. Lelieveld (2000): Measurements of aerosol optical depth above 3570 m asl in the North Atlantic free tropopsphere: results from ACE-2. *Tellus* **52B**, 678–693. \rightarrow 73, 79, 83
- Gaines, S. E. und R. S. Hipskind (1992): Format specification for data exchange. Version 1.1. \rightarrow 37, 38
- Gayet, J.-F. (1976): Sur les performances de l'ASSP de Knollenberg pour la Granulométrie des nuages. J. Rech. Atmos. 10, 105–118. \rightarrow 155
- Gayet, J.-F., G. Febvre und H. Larsen (1996): The reliability of the PMS FSSP in the presence of small ice crystals. J. Atmos. Ocean. Technol. 13, 1300–1310. \rightarrow 14, 39
- Goldfarb, L., P. Keckhut, M.-L. Chanin und A. Hauchecorne (2001): Cirrus climatological results from lidar measurements at OHP (44°N, 6°E). *Geophys. Res. Lett.* **28**, 1687–1690. \rightarrow 119
- Hamill, P. und G. Fiocco (1988): Nitric acid aerosols at the tropical tropopause. *Geophys. Res. Lett.* **15**, 1189–1192. \rightarrow 122
- Heath, D. F., B. M. Schlesinger und H. Park (1983): Spectral change in the ultraviolet absorption and scattering properties of the atmosphereassociated with the eruption of El Chichon: Stratospheric SO₂ budget and decay. *Eos Trans. Am. Geophys. Union* **64**, 197. \rightarrow 89
- Hervig, M. und M. McHugh (2002): Tropical nitric acid clouds. Geophys. Res. Lett. **29**, 10.1029/2001GL014271. \rightarrow 122
- Heymsfield, A. J. (1986): Ice particles observed in a cirriform cloud at -83 °C and implications for polar stratospheric clouds. J. Atmos. Sci. 43, $851-855. \rightarrow 40, 118, 119, 120, 121, 136$

- Heymsfield, A. J. und G. M. McFarquhar (1996): High albedos of cirrus in the tropical pacific warm pool: Microphysical interpretations from CEPEX and from Kwajalein, Marshall Islands. J. Atmos. Sci. 53, 2424–2451. \rightarrow 155, 156, 157, 160
- Hinds, W. C. (1999): Aerosol technology, properties, behavior, and measurement of airborne particles. New York etc.: John Wiley and Sons, 2. Auflage. $\rightarrow 33$
- Hitchman, M. H., M. McKay und C. R. Trepte (1994): A climatology of stratospheric aerosol. J. Geophys. Res. 99, 20689–20700. $\rightarrow 88$
- Hofmann, D. J. (1991): Aircraft sulphur emissions. Nature **349**, 659. $\rightarrow 112$
- Jaenicke, R. und L. Schütz (1978): Comprehensive study of physical and chemical properties of the surface aerosols in the Cape Verde Islands region. J. Geophys. Res. 83, 3585–3599. → 81, 83, 85
- Jäger, H., T. Deshler, F. Homburg und V. Freudenthaler (1997): Five years of lidar observations of the Pinatubo eruption cloud. In: 18th international laser radar conference proceedings. $\rightarrow 95$
- Jäger, H. und F. Homburg (1998): A new aerosol background level in the stratosphere? Lidar obeservations of the period 1976 to 1997. In: U. N. Singh, S. Ismail und G. K. Schwemmer (Hrsg.): 19th international laser radar conference. S. $335-338. \rightarrow 93$
- Jäger, H., R. Mücke und J. Harris (1999): The stratospheric aerosol layer after the decay of the Pinatubo perturbation. In: *Fifth Europen workshop* on stratospheric Ozone, St. Jean de Luz, France, September 1999. \rightarrow 93, 94, 102, 103, 106
- Jäger, H. (2001): The stratospheric aerosol layer observed by lidar at Garmisch-Partenkirchen. In: Max-Planck-Institut für Meteorologie, Report No. 317: The German aerosol lidar network: Methodology, data, analysis. S. 125–130. $\rightarrow 94$
- Jensen, E. J., O. B. Toon, L. Pfister und H. B. Selkirk (1996a): Dehydration of the upper troposphere and lower stratosphere by subvisible cirrus clouds near the tropical tropopause. *Geopys. Res. Lett.* **23**, 825–828. \rightarrow 121, 159
- Jensen, E. J., O. B. Toon, H. B. Selkirk, J. D. Spinhirne und M. R. Schoeberl (1996b): On the formation and persistence of subvisible cirrus clouds near the tropical tropopause. J. Geophys. Res. **101**, 21361–21375. \rightarrow 121, 159

- Jensen, E. J., W. G. Read, J. Mergenthaler, B. J. Sandor, L. Pfister und A. Tabazadeh (1999): High humidities and subvisible cirrus near the tropical tropopause. *Geophys. Res. Lett.* **26**, 2347–2350. \rightarrow 121
- Jónsson, H. H., J. C. Wilson, C. A. Brock, J. E. Dye, G. V. Ferry und K. R. Chan (1996): Evolution of the stratospheric aerosol in the northern hemisphere following the June 1991 volcanic eruption of Mount Pinatubo: Role of tropospheric-stratospheric exchange and transport. J. Geophys. Res. 101, 1553–1570. → 90, 105, 106, 107, 108, 109
- Junge, C. E., C. W. Chagnon und J. E. Manson (1961): Stratospheric aerosols. J. Meteorol. 18, 81–108. $\rightarrow 87$
- Junge, C. E. und J. E. Manson (1961): Stratospheric aerosol studies. J. Geophys. Res. 66, 2163–2182. $\rightarrow 87$
- Junge, C. (1977): The importance of mineral dust as an atmospheric constituent. In: C. Morales (Hrsg.): Saharan dust – mobilization, transport, deposition. Chichester, New York, Brisbane, Toronto: John Wiley and Sons, S. 61 ff. \rightarrow 74, 80, 85
- Kalu, A. (1977): The African dust plume: Its characteristics and propagation across west Africa in winter. In: C. Morales (Hrsg.): Saharan dust – mobilization, transport, deposition. Chichester, New York, Brisbane, Toronto: John Wiley and Sons, S. 95 ff. $\rightarrow 65$
- Karberg, S. (2002): Die Spur des Staubes. Bild der Wissenschaft. $\rightarrow 6$
- Keim, E. R., D. W. Fahey, L. A. Del Negro, E. L. Woodbridge, R. S. Gao, P. O. Wennberg, R. C. Cohen, R. M. Stimpfle, K. K. Kelly, E. J. Hintsa, J. C. Wilson, H. H. Jonsson, J. E. Dye, D. Baumgardner, S. R. Kawa, R. J. Salawitch, M. H. Proffitt, M. Loewenstein, J. R. Podolske und K. R. Chan (1996): Observations of large reductions in the NO/NO_y ratio near the mid-latitude tropopause and the role of heterogeneous chemistry. *Geophys. Res. Lett.* **23**, 3223 – 3226. \rightarrow 123
- Knollenberg, R. G., A. J. Dascher und D. Huffmann (1982): Measurement of the aerosol and ice crystal populations in tropical stratospheric cumulonimbus anvils. *Geophys. Res. Lett.* **9**, 613–616. \rightarrow 165
- Knollenberg, R. G., K. Kelly und J. C. Wilson (1993): Measurements of high number densities of ice crystals in the tops of tropical cumulonimbus. *J. Geophys. Res.* S. 8639–8664. \rightarrow 120, 122
- Koepke, P. und M. Hess (1988): Scattering functions of tropospheric aerosols: the effects of nonspherical particles. Appl. Opt. 27, 2422–2430. \rightarrow 75, 76

- Kyrö, E., R. Kivi, T. Turunen, H. Aulamo, V. V. Rudakov, V. V. Khattatov, A. R. MacKenzie, M. P. Chipperfield, A. M. Lee, L. Stefanutti und F. Ravegnani (2000): Ozone measurements during the Airborne Polar Experiment: aircraft instrument validation, isentropic trends, and hemispheric fields prior to the 1997 Arctic ozone depletion. J. Geophys. Res. 105, 14599–14611. \rightarrow 124
- Leung, F. T., A. J. Colussi, G. C. Toon und M. R. Hoffmann (2001): Isotopic enrichment of atmospheric carbonyl sulfide: constraining the contribution of carbonyl sulfide to the stratospheric aerosol layer. In: *Proceedings of* the American Geophysical Union fall annual meeting 2001. $\rightarrow 88$
- Loewenstein, M., J. R. Podolske und K. R. Chan (1990): N₂O as a dynamical tracer in the Arctic vortex. *Geophys. Res. Lett.* **17**, 477–480. \rightarrow 92, 93
- Luo, B. P., T. Peter, S. Fueglistaler, H. Wernli, M. Wirth, C. Kiemle, H. Flentje, V. Yushkov, V. Khattatov, V. Rudakov, A. Thomas, S. Borrmann, G. Toci, P. Mazzinghi, J. Beuermann, C. Schiller, F. Cairo, G. D. Donfrancesco, A. Adriani, C. Volk, J. Strom, K. Noone, V. Mitev, A. R. MacKenzie, K. Carslaw, T. Trautmann, V. Santacesaria und L. Stefanutti (2002a): Dehydration potential of ultrathin clouds at the tropical tropopause. *eingereicht bei Geophys. Res. Lett.* → 158, 159, 167, 169, 174
- Luo, B. P., T. Peter, H. Wernli, M. Wirth, C. Kiemle, H. Flentje, V. A. Yushkov, V. Khattatov, V. Rudakov, A. Thomas, S. Borrmann, G. Toci, P. Mazzinghi, J. Beuermann, C. Schiller, F. Cairo, G. D. Donfrancesco, A. Adriani, C. Volk, J. Strom, K. Noone, V. Mitev, A. R. MacKenzie, K. Carslaw, T. Trautmann, V. Santacesaria und L. Stefanutti (2002b): Ultrathin tropical tropopause clouds (UTTCs): II. Stabilisation mechanisms. Atmos. Chem. Phys. Disc. \rightarrow 158, 159, 163, 174
- Lynch, D. K. (1993): Subvisual cirrus: what it is and where you find it. In: *SPIE Proceedings*, Bd. 1934. S. 264–274. \rightarrow 118, 119
- Lynch, D. K. und K. Sassen (2002): Subvisual cirrus. In: D. K. Lynch, K. Sassen, D. O. Starr und G. Stephens (Hrsg.): *Cirrus*. Oxford, New York: Oxford University Press. $\rightarrow 116$
- Mardiguian, M. (1983): How to control electrical noise. Gainesville: Don White Consultants, 2. Auflage. $\rightarrow 52$
- Matthey, R., V.Mitev, G. Mileti, V. Makarov, A. Turin, M. Morandi und V. Santacesaria (2000): Miniature aerosol lidar for automated airborne application. In: G. Kamerman (Hrsg.): *Proceedings of SPIE: Laser radar technology and application V*, Bd. 4035. S. 44–53. $\rightarrow 124$

- McFarquhar, G. M. und A. J. Heymsfield (1996): Microphysical characteristics of three anvils sampled during the Central Equatorial Pacific Experiment. J. Atmos. Sci. 53, 2401–2423. \rightarrow 40, 120, 122, 150
- McFarquhar, G. M., A. J. Heymsfield, J. Spinhirne und B. Hart (2000): Thin and subvisual tropopause tropical cirrus: Observations and radiative impacts. J. Atmos. Sci. 57, 1841 – 1853. \rightarrow 120, 155, 156, 157, 160, 161, 162
- McKeen, S. A., S. C. Liu und C. S. Kiang (1984): On the chemistry of stratospheric SO₂ from volcanic eruptions. *J. Geophys. Res.* **89**, 4873–4881. \rightarrow 89
- Mie, G. (1908): Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen. Ann. Phys. 25, 377–445. $\rightarrow 11$
- Mills (1996): Stratospheric sulfate aerosol: A microphysical model. Ph.D. thesis, University of Boulder, Colorado. $\rightarrow 88$
- Mishchenko, M. I. (1991): Light scattering by randomly oriented axially symmetric particles. J. Opt. Soc. Am. 8, 871–882. $\rightarrow 11$
- Mishchenko, M. I., L. D. Travis, R. A. Kahn und R. A. West (1997): , Modelling phase functions for dustlike tropospheric aerosols using a shape mixture of randomly oriented polydisperse spheroids. *J. Geophys. Res.* **102**, 16831–16847. \rightarrow 76
- Mishchenko, M. I., J. W. Hovenier und L. D. Travis (Hrsg.) (2000): Light scattering by nonspherical particles: Theory, measurements, and applications. San Diego u. a.: Academic Press. $\rightarrow 11, 24$
- Murphy, D. M., D. S. Thomson und M. J. Mahoney (1998): In-situ measurements of organics, meteoritic material, mercury, and other elements in aerosol at 5 to 19 kilometers. *Science* **282**, 1664–1669. \rightarrow 89
- Newhall, C. G. und S. Self (1982): The Volcanic Explosivity Index (VEI): An estimate of explosive magnitude for historical volcanism. J. Geophys. Res. 87, 1231–1238. \rightarrow 95
- Omar, A. H. und C. S. Gardner (2001): Observations by the Lidar In-space Technology Experiment (LITE) of high-altitude cirrus clouds over the equator in regions exhibiting extremely cold temperatures. J. Geophys. Res 106, 1227–1236. \rightarrow 122
- Patterson, E. M., D. A. Gillette und B. H. Stockton (1977): Complex index of refraction between 300 and 700 nm for Saharan aerosol. J. Geophys. Res. 82, 3153–3160. \rightarrow 79, 184

- Peter, T., B. P. Luo, C. Kiemle, H. Flentje, M. Wirth, S. Borrmann, A. Thomas, A. Adriani, F. Cairo, G. D. Donfrancesco, L. Stefanutti, V. Santacesaria, K. S. Carslaw und A. R. MacKenzie (2000): Ultrathin subvisible cirrus clouds at the tropical tropopause. In: B. N. Hale und M. Kulmala (Hrsg.): 15th Int. Conf. Nucl. Atmos. Aerosols, American Institute of Physics. S. 619–622. \rightarrow 163, 166
- Peter, T., B. Luo, H. Wernli, M. Wirth, C. Kiemle, H. Flentje, V. Yushkov, V. Khattatov, V. Rudakov, A. Thomas, S. Borrmann, G. Toci, P. Mazzinghi, J. Beuermann, C. Schiller, F. Cairo, G. D. Donfrancesco, A. Adriani, C. Volk, J. Strom, K. Noone, V. Mitev, A. R. MacKenzie, K. Carslaw, T. Trautmann, V. Santacesaria und L. Stefanutti (2002): Ultrathin tropical tropopause clouds (UTTCs): I. Cloud morphology and occurrence. *Atmos. Chem. Phys. Disc.* \rightarrow 158, 159, 163, 174
- Petzold, A., C. Hoell, B. Kärcher, J. Beuermann, C. Schiller, H. Ziereis, und H. Schlager (2000): In situ observations of aerosol properties above ice saturation in the polar tropopause region. *J. Geophys. Res.* **105**, 29387–29395. \rightarrow 119
- Pinto, J. P., R. P. Turco und O. B. Toon (1989): Self-limiting physical and chemical effects in volcanic eruption clouds. J. Geophys. Res. 94, 11165– 11174. → 89
- Plumb und et al. (1994): Intrusions into the lower stratospheric arctic vortex during the winter of 1991-1992. J. Geophys. Res. **99**, 1089–1105. $\rightarrow 102$
- Prabhakara, C., R. S. Fraser, G. Dalu, M.-L. C. Wu und R. J. Curran (1988): , Thin cirrus clouds: Seasonal distribution over oceans deduced from Nimbus-4 IRIS. J. Appl. Meteor. **27**, 379–399. \rightarrow 121
- Prospero, J. M., E. Bonatti, C. Schubert und T. N. Carlson (1970): Dust in the Caribbean atmosphere traced to an African dust storm. *Earth Planet.* Sci. Lett. 9, 287–293. $\rightarrow 64$
- Prospero, J. M. und T. N. Carlson (1970): Radon-222 in the North Atlantic trade winds: Its relationship to dust transport from Africa. *Science* 167, 974–977. $\rightarrow 64$
- Pye, K. (1987): Aeolian dust and dust properties. London u. a.: Academic Press. $\rightarrow 63, 64$
- Quijano, A. L., I. N. Sokolik und O. B. Toon (2000): Radiative heating rates and direct radiative forcing by mineral dust in cloudy atmospheric conditions. J. Geophys. Res. **105**, 12207–12219. $\rightarrow 85$

- Radio Technical Commission for Aeronautics (1989): RTCA/DO-160C Environmental conditions and test procedures for airborne equipment. Technical report, Radio Technical Commission for Aeronautics, Washington D.C. $\rightarrow 50$
- Raes, F., T. Bates, F. McGovern und M. van Liedekerke (2000): The 2nd aerosol characterization experiment (ACE-2): general overview and main results. *Tellus* **52B**, 111–125. \rightarrow 56
- Read, W. G., L. Froidevaux und J. W. Waters (1993): Microwave limb sounder measurement of stratospheric SO₂ from the Mt. Pinatubo volcano. *Geophys. Res. Let.* **20**, 1299–1302. \rightarrow 90
- Redaelli, G., V. Rizzi, G. Visconti, A. R. MacKenzie, M. P. Chipperfield,
 V. V. Rudakov und L. Stefanutti (1997): Trajectory analyses of polar vortex during APE/POLECAT. In: N. Harris, I. Kilbane-Dawe und G. Amanatidis (Hrsg.): Polar stratospheric ozone 1997 Proceedings of the fourth European symposium, Bd. 66 von European Commission Air pollution research report. S. 74–77. → 101
- Rosenfield, J. E., D. B. Considine, M. R. Schoeberl und E. V. Browell (1998): , The impact of subvisible cirrus near the tropical tropopause on stratospheric water vapor. *Geophys. Res. Lett.* **25**, 1883–1886. \rightarrow 122, 159
- Sarnthein, M., G. Tetzlaaf, B. Koopman, K. Wolter und U. Pflaumann (1981): , Glacial and interglacial wind regimes over the eastern subtropical Atlantic and northwest Africa. *Nature* **293**, 193–196. \rightarrow 63
- Sassen, K., M. K. Griffin und G. C. Dodd (1989): Optical scattering and microphysical properties of subvisual cirrus clouds and climatic implications. J. Appl. Meteor. 28, 91–98. → 117, 119, 120, 161
- Sassen, K. und B. S. Cho (1992): Subvisual-thin cirrus lidar dataset for satellite verification and climatological research. J. Appl. Meteor. **31**, 1275–1285. \rightarrow 161, 162
- Schmidt, E. O., J. M. Alvarez, M. A. Vaughan und D. P. Wylie (1993): A review of subvisual cirrus morphology. In: *SPIE Proceedings*, Bd. 1934. S. $230-239. \rightarrow 117, 118, 120$
- Schmidt, E. O. und D. K. Lynch (1995): Subvisual cirrus: associations to the dynamic atmosphere and radiative effects. In: *SPIE Proceedings*, Bd. 2578. S. 68–75. \rightarrow 118
- Schütz, L. und R. Jaenicke (1974): Particle number and mass distribution above 10^{-4} cm radius in sand and aerosol of the sahara desert. J. Appl. Meteor. **13**, 863–870. \rightarrow 74, 83, 84, 85

- Schütz, L. (1977): Die Saharastaub-Komponente über dem subtropischen Nord-Atlantik. Ph.D. thesis, Universität Mainz. $\rightarrow 63, 75, 83$
- Semmelhack, W. (1934): Die Staubfälle im nordwest-afrikanischen Gebiet des Atlantischen Ozeans. Ann. Hydr. 62, 273–277. $\rightarrow 62$
- Sheridan, P. J., C. A. Brock und J. C. Wilson (1994): Aerosol particles in the upper troposphere and lower stratosphere: Elemental composition and morphology of individual particles in northern latitudes. *Geophys. Res. Lett.* **21**, 2587–2590. \rightarrow 88
- Sokolik, I. N. und O. B. Toon (1999): Incorporation of mineralogical composition into models of the radiative properties of mineral aerosol from UV to IR wavelengths. J. Geophys. Res. **104**, 9423–9444. \rightarrow 16
- Solomon, S., S. Borrmann, R. R. Garcia, R. Portmann, L. Thomason, L. R. Poole, D. Winker und M. P. McCormick (1997): Heterogeneous chlorine chemistry in the tropopause region. J. Geophys. Res. **102**, 21411–21429. $\rightarrow 123$
- Stefanutti, L., A. R. MacKenzie, S. Balestri, V. Khattatov, G. Fiocco, E. Kyrö und T. Peter (1999): Airborne polar experiment Polar ozone, leewaves, chemistry, and transport (APE-POLECAT): Rationale, road map and summary of measurements. J. Geophys. Res. **104**, 23941–23959. \rightarrow 50
- Stefanutti, L., A. R. MacKenzie, V. Santacesaria, A. Adriani, S. Balestri, S. Borrmann, V. Khattatov, P. Mazzinghi, V. Mitev, V. Rudakov, C. Schiller, G. Toci, M. Volk, V. Yushkov, H. Flentje, C. Kiemle, G. Redaelli, K. S. Carslaw, K. Noone und T. Peter (2002): The APE-THESEO tropical campaign: an overview. *eingereichter Artikel.* \rightarrow 116
- Stein, R. und M. Sarnthein (1984): Late neogene events of atmospheric and oceanic circulation offshore northwest Africa: high-resolution record from deep-sea sediments. In: E. M. v. Zindern Bakker (Hrsg.): *Palaeoecology of Africa and of the surrounding islands and Antarctica*, Bd. 16. Cape Town, Balkema. $\rightarrow 63$
- Ström, J., B. Strauss, T. Anderson, F. Schröder, J. Heintzenberg und P. Wendling (1997): In situ observations of the microphysical properties of young cirrus clouds. J. Atmos. Sci. 54, 2542–2553. → 11, 25, 40, 150
- Stull, R. B. (1988): An introduction to boundary layer meteorology. Kluwer Acedemic Publishers. $\rightarrow 68, 69, 81$
- Swap, R., S. Ulanski, M. Cobbett und M. Garstang (1996): Temporal and spatial characteristics of Saharan dust. J. Geophys. Res. 101, 4205–4220. $\rightarrow 64$

- Tetzlaaf, G. und K. Wolter (1980): Meteorological patterns and the transport of mineral dust from the North African continent. In: *Palaeoecol. Afr. Surround. Isl.*, Bd. 12. S. 31–42. $\rightarrow 63, 64$
- Tetzlaaf, G. und M. Peters (1986): Deep-Sea sediments in the eastern equatorial Atlantic off the African coast and meteorological flow patterns over the Sahel. *Geol. Rundsch* **75**, 71–79. $\rightarrow 64$
- Thomas, A., S. Borrmann, V. Yushkov, V. Rudakov, B. Lepouchov, V. Galaktionov, S. Merkulov, J. Dye, N. Vinnichenko, V. Khattatov, L. Stefanutti, A. Adriani, T. Peter und A. R. MacKenzie (1997): In-situ stratospheric aerosol measurements on the M-55 Geophysika high altitude aircraft inside and outside the 1996/97 polar vortex. In: N. Harris, I. Kilbane-Dawe und G. Amanatidis (Hrsg.): *Polar stratospheric ozone 1997 Proceedings of the fourth European symposium*, Bd. 66. S. 167–170. \rightarrow 101
- Thomas, A., S. Borrmann, C. Kiemle, F. Cairo, M. Volk, J. Beuermann, B. Lepuchov, V. Santacesaria, R. Matthey, V. Rudakov, V. Yushkov, A. R. MacKenzie und L. Stefanutti (2002): In-situ measurements of background aerosol and subvisible cirrus in the tropical tropopause region. J. Geophys. Res. **107**(D24), 4763, doi:10.1029/2001JD001385. \rightarrow 49, 124, 128, 132, 134, 135, 139, 151, 153, 154, 156, 162, 174, 215
- Thomason, L. W., G. S. Kent, C. R. Trepte und L. R. Poole (1997a): A comparison of the stratospheric aerosol background periods of 1979 and 1989 to 1991. J. Geophys. Res. **102**, 3611–3616. \rightarrow 89
- Thomason, L. W., L. R. Poole und T. Deshler (1997b): A global climatology of stratospheric aerosol surface area density deduced from Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II measurements: 1984-1994. J. Geophys. Res. 102, 8967–8976. \rightarrow 96, 97
- Trautmann, T., A. Thomas und S. Borrmann (2003): Assessment of mineral dust radiative forcing based on in-situ size distribution measurements during ACE2. in Vorbereitung. $\rightarrow 83, 85, 172$
- Trepte, C. R., R. E. Veiga und M. P. McCormick (1993): The poleward dispersal of Mount Pinatubo volcanic aerosol. J. Geophys. Res. 98, 18563– 18573. → 106, 107
- Turco, R. P., R. C. Whitten und O. B. Toon (1982): Stratospheric aerosols: Observations and theory. *Rev. Geophys. Space Phys.* **20**, 233–279. \rightarrow 88
- Uthe, E. E. und P. B. Russell (1977): Lidar observations of tropical high altitude cirrus clouds. In: Proc. of the IAMAP symposium on radiation in the atmosphere, Garmisch-Partenkirchen, Germany, 19 28. August 1976. S. 242 -244. \rightarrow 118

- Valuyev, N., A. Velovich und K. Schwarz (1994): The unusual career of the Myasishev high-altitude aircraft. Airforce Monthly S. 2–3. $\rightarrow 50$
- van de Hulst, H. C. (1957): Light scattering by small particles. New York, London: John Wiley & Sons. $\rightarrow 11, 117$
- Verver, G., F. Raes, D. Vogelezang und D. Johnson (2000): The 2nd aerosol characterization experiment (ACE-2): meteorological and chemical context. *Tellus* **52B**, 126–140. $\rightarrow 69$
- Walujew, N., A. Welowitsch und KS (1994): Ballonjäger im Umwelteinsatz. Flug Revue **39**, 66–70. $\rightarrow 50$
- Wang, P.-H., P. Minnis, M. P. McCormick, G. S. Kent und K. M. Skeens (1996): , A 6-year climatology of cloud occurrence frequency from Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II observations (1985-1990). J. Geophys. Res. 101, 29407–29429. → 118, 129
- Warneck, P. (1988): Chemistry of the natural atmosphere, Bd. 41 von International Geophysics Series. Academic Press. $\rightarrow 88$
- Wilson, J. C., M. Loewenstein, D. W. Fahey, B. Gary, S. D. Smith, K. K. Kelly, G. V. Ferry und K. R. Chan (1989): Observations of condensation nuclei in the airborne Antarctic ozone experiment: Implications for new particle formation and polar stratospheric cloud formation. J. Geophys. Res. 94, 16437–16448. $\rightarrow 106$
- Wilson, J. C., M. R. Stolzenburg, W. E. Clark, M. Loewenstein, G. V. Ferry, K. R. Chan und K. K. Kelly (1992): Stratospheric sulfate aerosol in and near the northern hemisphere polar vortex: The morphology of the sulfate layer, multimodal size distributions, and the effect of denitrification. J. Geophys. Res. 97, 7997–8013. → 109, 111
- Wilson, J. C., H. H. Jonsson, C. A. Brock, D. W. Toohey, L. M. Avallone, D. Baumgardner, J. E. Dye, L. R. Poole, D. C. Woods, R. J. DeCoursey, M. Osborn, M. C. Pitts, K. K. Kelly, K. R. Chan, G. V. Ferry, M. Loewenstein, J. R. Podolske und A. Weaver (1993): In situ observations of aerosol and chlorine monoxide after the 1991 eruption of Mount Pinatubo: Effect of reactions on sulfate aerosol. Science 261, 1140–1143. → 107, 108
- Wilson, J. C. et al. (1997): Distribution of aerosol properties in the upper troposphere and lower stratosphere in the latitude region from 0 to 80 N. In: Annual meeting of the American association for aerosol research, Denver Colorado, USA, October 13-17. $\rightarrow 88$
- Winker, D. M. und C. R. Trepte (1998): Laminar cirrus observed near the tropical tropopause by LITE. *Geopys. Res. Let.* **25**, 3351–3354. \rightarrow 118, 121, 129, 136, 145

- Wirth, M. und W. Renger (1996): Evidence of large scale ozone depletion within the arctic polar vortex 94/95 based on airborne LIDAR measurements. *Geophys. Res. Letters* **23**, 813–816. \rightarrow 124
- World Meteorological Organization 1994 (1994): Global ozone research and monitoring project – Report No. 37: Scientific assessment of ozone depletion: 1994. Technical report, World Meteorological Organization. \rightarrow 90
- World Meteorological Organization 1998 (1998): Global ozone research and monitoring project – report No. 44: Scientific assessment of ozone depletion: 1998. Technical report, World Meteorological Organization. $\rightarrow 91$
- Yue, G. K., L. R. Poole, P.-H. Wang und E. W. Chiou (1994): Stratospheric aerosol acidity, density, and refractive index deduced from SAGE II and NMC temperature data. J. Geophys. Res. 99, 3727–3738. → 88
- Zöger, M., A. Afchine, N. Eicke, M.-T. Gerhard, D. McKenna, U. Mörschel, U. Schmidt, V. Tan, F. Tuitjer, T. Woyke und C. Schiller (1999): FISH: A novel family of balloonborne and airborne Lyman-a photofragment fluorescence hygrometers. J. Geophys. Res. **104**, 1807–1816. \rightarrow 124

C.2 Internet

Die hier angegebenen Internetadressen geben den Stand zum Zeitpunkt der Auswertung wieder. Da sich Internetadressen häufig ändern, kann die Gültigkeit nicht garantiert werden; über die jeweiligen Organisationen und deren hier ebenfalls angegebene Internetadressen sollte ein Zugriff aber in jedem Falle möglich sein.

DLR (Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt, http://www.dlr.de), Flugbetriebe (http://www.dlr.de/FB), DLR-Falcon D-CMET: http://www.dlr.de/FB/OP/d-cmet_d.html http://www.dlr.de/FB/euraser/a_dlr_falcon.html

enviscope GmbH (www.enviscope.de), Meßplattformen. Learjet 35A D-CGFD http://www.enviscope.de/learjet.htm

Hayakawa, Y., Faculty of Education, Gunma University http://www.edu.gunma-u.ac.jp/ Homepage Prof. Yukio Hayakawa mit Katalog zu Vulkanausbrüchen http://storm.edu.gunma-u.ac.jp/~hayakawa/catalog/2000W NLR (Nationaal Lucht- en Ruimtevaartlaboratorium, www.nlr.nl), Research Facilities, Air Transport. PH-LAB: Cessna Citation II research aircraft. http://www.nlr.nl/public/facilities/f108-03

NOAA (National Oceanic and Atmospheric Administration, www.noaa.gov), Air Resources Laboratory, Realtime Environmental Applications and Display sYstem (READY): http://www.arl.noaa.gov/ready

- Analyse Karten: Archived Meteorology Model Output Graphics -Analysis Maps - FNL http://www.arl.noaa.gov/ready/amet.html
- Rückwärtstrajektorien mit HYSPLIT Model (Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html

NOAA (National Oceanic and Atmospheric Administration, www.noaa.gov), NESDIS (National Environmental Satelite, Data, & Information Service), National Geophysical Data Center

http://www.ngdc.noaa.gov/ngdc.html

für Statistik zu Vulkanausbrüchen (von obiger Internetadresse über "Hazards"):

http://www.ngdc.noaa.gov/seg/hazard/volcano.shtml

SeaWiFS Project, NASA/Goddard Space Flight Center (http://seawifs.gsfc.nasa.gov/SEAWIFS.html) und ORBIMAGE (http://www.orbimage.com/) Satellitenbild eines Staubausbruchs über den Atlantik http://seawifs.gsfc.nasa.gov/SEAWIFS/HTML/dust.html

University of Wyoming (www.uwyo.edu), Department of Atmospheric Science, Weather, Upper Air, Soundings (für Thermodynamische Diagramme): http://weather.uwyo.edu/upperair/sounding.html

C.3 Quellen der verwendeten Daten, Programme

Daten aus Veröffentlichungen wurden entsprechend gekennzeichnet und sind in den beiden vorigen Abschnitten aufgeführt. Die Quellen nicht allgemein zugänglicher Daten sind im Folgenden angegeben. Außerdem ist das Programm angegeben, mit dem die Mie-Streufunktionen berechnet wurden.

Programm für Mie-Streufunktion

Berechnung von Streulichtintensitäten bei Streuung an Partikeln. © 1991, GSF (Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH) in Zusammenarbeit mit Hoechst AG.

Streufunktionen nach T-Matrix-Methode

Dr. Beiping Luo Institute for Atmospheric and Climate Science, ETH Zürich

Hintergrundaerosol

Neben eigenen Meßergebnissen wurden Daten aus den folgenden vom NASA Ames Research Center herausgegebenen Datenbanken der jeweiligen Meßkampagnen mitverwendet:

AASE	S. Hipskind, S. Gaines (Hrsg.). Edition 2, Juli 1990
	NASA Upper Atmospheric Research Program
AASE II	S. Gaines, P. Hathaway, S. Hipskind (Hrsg.). Edition 1,
	Juli 1992
	NASA Upper Atmospheric Research Program
SPADE	NASA Upper Atmospheric Research Program P. Hathaway, S. Gaines, S. Hipskind (Hrsg.). Edition 1,
SPADE	NASA Upper Atmospheric Research Program P. Hathaway, S. Gaines, S. Hipskind (Hrsg.). Edition 1, Januar 1994

Nichtsichtbare Wolken

Wie bereits ausgeführt, wurden neben den eigenen Partikelmessungen auch Daten und Messungen der angegebenen Meßinstrumente folgender Arbeitsgruppen verwendet, Erläuterungen zu den Instrumenten befinden sich in Abschnitt 6.3.

UCSE	Boris Lepouchov						
	Myasishev Design Bureau, Zhukovky, Region Moskau,						
	Rußland						
ECOC	Dr. Vladimir Rudakov						
	Central Aerological Observatory, Dologprudny, Region						
	Moskau, Rußland						
FISH	Dr. Cornelius Schiller, Dr. Jürgen Beuermann						
	Forschungszentrum Jülich GmbH						
MAS	Dr. Alberto Adriani, Dr. Francesco Cairo, Dr. Guido Di						
	Donfrancesco						
	CNR - Istituo di Scienze dell'Atmosphera e del Clima,						
	Rom, Italien						
MAL	Dr. Valentin Mitev, Dr. Renaud Matthey, Dr. Vincenzo						
	Santacesaria						
	Observatoire de Neuchatel, Schweiz						
OLEX	Dr. Christoph Kiemle						
	DLR Oberpfaffenhofen - Institut für Physik der Atmo-						
	sphäre, Arbeitsgruppe Lidar						

Anhang D

Vorab veröffentlichte Ergebnisse dieser Arbeit

Wesentliche Ergebnisse der Auswertung zum Thema der nichtsichtbaren Wolken (Kapitel 6) wurden in einem Artikel im *Journal of Geophysical Research* veröffentlicht [THOMAS et al., 2002]. Dieser Artikel ist auf den folgenden Seiten abgedruckt. Der Abdruck erfolgt mit Genehmigung der American Geophysical Union. ©2002 American Geophysical Union.

In situ measurements of background aerosol and subvisible cirrus in the tropical tropopause region

Andreas Thomas,¹ Stephan Borrmann,^{1,2} Christoph Kiemle,³ Francesco Cairo,⁴ Michael Volk,⁵ Jürgen Beuermann,⁶ Boris Lepuchov,⁷ Vincenzo Santacesaria,⁸ Renaud Matthey,⁹ Vladimir Rudakov,¹⁰ Vladimir Yushkov,¹⁰ A. Robert MacKenzie,¹¹ and Leopoldo Stefanutti⁸

Received 12 October 2001; revised 3 July 2002; accepted 22 July 2002; published 19 December 2002.

[1] In situ aerosol measurements were performed in the Indian Ocean Intertropical Convergence Zone (ITCZ) region during the Airborne Polar Experiment-Third European Stratospheric Experiment on Ozone (APE-THESEO) field campaign based in Mahé, Seychelles between 24 February and 6 March 1999. These are measurements of particle size distributions with a laser optical particle counter of the Forward Scattering Spectrometer Probe (FSSP)-300 type operated on the Russian M-55 highaltitude research aircraft Geophysica in the tropical upper troposphere and lower stratosphere up to altitudes of 21 km. On 24 and 27 February 1999, ultrathin layers of cirrus clouds were penetrated by Geophysica directly beneath the tropical tropopause at 17 km pressure altitude and temperatures below 190 K. These layers also were concurrently observed by the Ozone Lidar Experiment (OLEX) lidar operating on the lower-flying German DLR Falcon research aircraft. The encountered ultrathin subvisual cloud layers can be characterized as (1) horizontally extending over several hundred kilometers, (2) persisting for at least 3 hours (but most likely much longer), and (3) having geometrical thicknesses of 100-400 m. These cloud layers belong to the geometrically and optically thinnest ever observed. In situ particle size distributions covering diameters between 0.4 and 23 µm obtained from these layers are juxtaposed with those obtained inside cloud veils around cumulonimbus (Cb) anvils and also with background aerosol measurements in the vicinity of the clouds. A significant number of particles with size diameters around 10 µm were detected inside these ultrathin subvisible cloud layers. The cloud particle size distribution closely resembles a background aerosol onto which a modal peak between 2 and 17 µm is superimposed. Measurements of particles with sizes above 23 μ m could not be obtained since no suitable instrument was available on Geophysica. During the flight of 6 March 1999, upper tropospheric and lower stratospheric background aerosol was measured in the latitude band between 4°S and 19°S latitude. The resulting particle number densities along the 56th meridian exhibit very little latitudinal variation. The concentrations for particles with sizes above 0.5 µm encountered under these background conditions varied between 0.1 and 0.3 particles/cm³ of air in altitudes between 17 and 21 km. INDEX TERMS: 0305 Atmospheric Composition and Structure: Aerosols and particles (0345, 4801); 0320 Atmospheric Composition and Structure: Cloud physics and chemistry; 0365 Atmospheric Composition and Structure: Troposphere-composition and chemistry; 4801 Oceanography: Biological and Chemical: Aerosols (0305); KEYWORDS: subvisual, cirrus, tropics, tropopause, background, aerosol

Citation: Thomas, A., et al., In situ measurements of background aerosol and subvisible cirrus in the tropical tropopause region, *J. Geophys. Res.*, *107*(D24), 4763, doi:10.1029/2001JD001385, 2002.

¹Institut für Physik der Atmosphäre, Universität Mainz, Mainz, Germany.

Frankfurt, Germany.

Copyright 2002 by the American Geophysical Union. 0148-0227/02/2001JD001385\$09.00

⁶Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre (ICG-1), Forschungszentrum Jülich GmbH, Jülich, Germany.

⁷Myasishchev Design Bureau, Moscow, Russia.

- ⁸Istituto di Ricerca sulle Onde Elettromagnetiche, CNR, Florence, Italy.
- ⁹Observatoire Cantonal, Neuchâtel, Switzerland.
- ¹⁰Central Aerological Observatory, Moscow, Russia.

¹¹Environmental Science Department, Lancaster University, Lancaster, UK.

AAC 8 - 1

Max-Planck-Institut für Chemie, Mainz, Germany.

³Institut für Physik der Atmosphäre, DLR, Oberpfaffenhofen, Germany.

⁴Istituto di Scienze dell'Atmosfera e del Clima, CNR, Rome, Italy. ⁵Institut für Meteorologie und Geophysik, Universität Frankfurt,
AAC 8 - 2

1. Introduction

[2] Subvisual cirrus clouds are known since the early 1970s mainly through lidar measurements [*Uthe and Russell*, 1977; *Heymsfield*, 1986]. These clouds, frequently occurring near the local tropopause, often are of considerable horizontal extent. For this reason they possibly play a role in dehydration and the mechanisms behind the dryness in the lower stratosphere. Also the cloud particles could influence the gas phase chemistry by heterogeneous reactions. Knowledge of the particle sizes and other microphysical properties, chemical composition and formation mechanisms of these clouds is very limited, because only few results of in situ measurements are available in the literature.

1.1. Definitions and Phenomenology

[3] Cloud layers of a few hundred meters to 1 km thickness occurring in the vicinity of the tropical mean tropopause, horizontally extending over up to 2700 km were reported by Winker and Trepte [1998] based on LITE (Lidar In-space Technology Experiment) measurements. Observations showed them as thin sheets of unusual homogeneity in clear air, frequently above intense tropical thunderstorms. By comparing midlatitude lidar measurements of subvisual clouds with visual cirrus, Sassen et al. [1989] defined clouds as subvisual, if their optical thickness τ_c is below $\tau_c \simeq 0.03$ at visible wavelengths. Schmidt et al. [1993] and Schmidt and Lynch [1995] used as threshold criterion a visible optical depth of $\tau_c \leq 0.05$ and introduced, mainly based on possible cloud formation mechanisms, five classes of subvisual clouds. These are (1) equatorial/Intertropical Convergence Zone (ITCZ) clouds, (2) clouds of origin near jet streams, (3) clouds associated with cold fronts, (4) orographically generated subvisual clouds, and (5) other types like anvil top clouds or contrail residues. They estimated cloud persistence times ranging from minutes for "class 5" to days for "class 1." SAGE II extinction observations of zonally averaged occurrence frequencies of subvisual cirrus clouds are given by Wang et al. [1996] for latitudes ranging from -60° S to +60°N. The measured 6-year climatology clearly demonstrates the existence of such clouds in this entire latitude band, both above and below the average tropopause location, with an occurrence frequency maximum in the tropics.

1.2. Microphysical Properties

[4] Adopting $\tau_c \leq 0.05$ as threshold for the visible optical depth, Lynch [1993] proposed the following as "baseline properties": Subvisual cirrus clouds consist of nonspherical ice particles like plates, columns, bullets, or clusters having long dimension sizes smaller than 50 µm, and are of number densities below 50 L^{-1} with an ice water content (IWC) not above 2×10^{-1} mg/m³ (These number were obtained by ASSP measurements with a lower size detection limit of $3 \,\mu\text{m}$). The clouds occur at altitudes between 12 and 18 km at or near the tropopause and have geometrical thicknesses below 1 km. Similarly Schmidt et al. [1993] quote liquid or ice water contents of $0.08-0.2 \text{ mg/m}^3$ for subvisual ITCZ cirrus clouds with the exception of their "class 4," where significantly higher values $(0.2-1.0 \text{ mg/m}^3)$ can be reached. Sassen et al. [1989] also derived estimations of cloud particle sizes (based on a low number of observations at midlatitudes and assuming small hexagonal ice crystals) to be on average near 25 µm effective diameter. For number

concentrations they provide values near 25 L^{-1} . Barnes [1980] presented in situ observations of large particles in clear air at midlatitude and tropical latitudes when flying under cirrus clouds and labeled these as subvisible cirrus. The largest sizes obtained with a PMS 1D probe were around 200 µm and concerning the number density it is stated "Generally, the maximum concentrations in cloudless skies have been 10^4 counts/m³ with the peak in the distribution in the $2-10 \ \mu m$ range as determined by the ASSP." In situ measurements by Heymsfield [1986] in thin layers of cirrus clouds above the (tropical) Marshall islands between 16.2 and 16.7 km altitude utilizing a formvar replicator showed a 50% mixture of trigonal plates and columns at inside cloud temperatures of -83° C to -84° C. The trigonal plates detected had thickness to diameter ratios of nearly 1.0 at small sizes. The sizes detected by the replicator range from the lower detection limit of 5-50µm. Concurrent ASSP measurements showed mean concentrations throughout the layer of 0.05 cm⁻³ (i.e., 50 L⁻¹) and the mean diameter was estimated to 5 µm with IWC typically around 10⁻¹ mg/m³. Knollenberg et al. [1993] adopted a combination of modified Forward Scattering Spectrometer Probe (FSSP)-100 and 2D probe to measure ice crystals in cumulonimbus (Cb) anvils over Micronesia and concluded for the smaller crystals that these "are quite dense and quasi spherical or of low aspect ratio." The size distributions exhibit a peak at 20 µm with number densities expressed as dN/dD below 10^{-2} cm⁻³ μ m⁻¹ at temperatures near -40° C. In situ measurements from the Marshall Islands (December 1973) presented by McFarquhar et al. [2000] showed that no crystals larger than 17 µm were detected by the ASSP (size detection range: $2-30 \mu m$), while the presence of particles as large as 20-50 µm was indicated by a 1DC probe. Other investigations by McFarquhar and Heymsfield [1996] show that large ice particles in tropical anvil clouds are of quasi-circular and hexagonal platelike shape. Their Video Ice Particle Sampler (VIPS) analyses furthermore show that over 90% of those crystals with sizes from 5–10 to 100 μ m are quasi-circular in shape exhibiting rounded edges. They also concluded that the observed particle habits inside tropical cirrus significantly differ from those commonly found in midlatitude cirrus clouds.

1.3. Suggested Mechanisms for Cloud Formation

[5] Although a variety of possible mechanisms for creating and supporting such clouds have been introduced in the literature, this question still seems unresolved requiring more measurements and theoretical discussion.

[6] Barnes [1980] diffusely conjectured "natural lifting motions within the atmosphere" as cloud generation mechanism. By means of satellite measurements over convectively active areas like the ITCZ region, *Prabhakara et al.* [1988] observed that thin cirrus clouds were present 100–200 km away from high-reaching thick clouds. They suggested that the cold tops of such thick clouds possibly are the source of spreading thin cirrus sheets. In opposition to this view, *Heymsfield* [1986] observed thin cirrus at the tropopause in absence of convection. *Jensen et al.* [1996a] assume for the formation of thin cirrus that either these layers are residues of cirrus outflow from deep convection cloud anvils, or that such layers form at the tropical tropopause by the slow synoptic scale uplifting of a moist air layer and



Figure 1. The Russian high-altitude research aircraft "Geophysica" before takeoff on the airport of Mahé, Seychelles. The mounting of the FSSP-300 sonde underneath the left wing is shown in the small photo.

homogeneous nucleation. For the outflow scenario ice particle equivalent volume radii between 2 and 20 μ m result for the matured clouds. For the slow-uplifting-scenario peak ice crystal number densities of 0.5 cm^{-3} and equivalent volume radii of 4-10 µm result with visible optical depth of 0.02. Also Jensen et al. [1996b] performed simulations of the tropical ice cloud formation in the temperature minima of gravity waves using wave periods of 1-2 hours. The results indicate that high numbers of ice crystals with sizes between 2 and 4 µm radius can form due to the low temperatures and rapid cooling. With respect to the availability of sufficient water vapor, Jensen et al. [1999] presented water vapor measurements with error analysis from the Microwave Limb Sounder on the UARS (Upper Atmospheric Research Satellite). These show relative humidities often reaching near saturation with respect to ice in the tropical upper troposphere. The detected humidity values cover large-scale areas and an uplift with cooling by a few hundred meters suffices for ice nucleation and growth, as well as for supporting formation and persistence of thin cirrus.

1.4. Modeling of the Cloud Properties

[7] Some of the observational results have found entry into model calculations. For example, Boehm et al. [1999] implement initial ice particle size distributions for modeling the nighttime conditions of cirrus outflow remnants in the tropics with modal radii of 10 and 20 µm based on the measurements by Knollenberg et al. [1993] and McFarquhar and Heymsfield [1996]. These model calculations suggest, that ice crystals in tropical cirrus must have modal radii less than 10 μ m, because otherwise the cloud lifetime would be too small in comparison with the observations. Using lognormal size distributions of varying modal parameters for subvisual tropical cirrus, Rosenfield et al. [1998] conclude that 2 µm particles lead to scattering ratios above those observed by lidar. If size radii of 6 µm are tried instead, the observations match the calculated backscatter ratios and optical depths.

[8] It has to be noted that tropical subvisual clouds occur at the tropopause in an environment characterized by temperatures below -80° C, while at midlatitudes these temperatures are not much less than -60° C. Therefore cloud particle habits and microphysical properties in tropical clouds might differ from those at midlatitudes.

1.5. Chemical Composition and Effects

[9] Concerning the chemical composition of the subvisual cloud particles, *Hamill and Fiocco* [1988] suggested that tropical atmospheric conditions allow for NAT (Nitric Acid Trihydrate) particles to remain stable. *Omar and Gardner* [2001] tried to supply experimental evidence for this by means of spaceborne lidar measurements. Most of the references quoted implicitly or explicitly assume that the particles detected in the subvisual cirrus clouds consist of ice as main constituent.

[10] Since the subvisual clouds frequently occur at or even above the tropopause [Wang et al., 1996; Winker and Trepte, 1998] heterogeneous chemical reactions on the cloud particles could play a role for the chemical composition of the air in this region. Such chemistry could for example affect the ozone or NOv abundances [Borrmann et al., 1996; Solomon et al., 1997] in the tropopause region. For chlorine related reactions to proceed efficiently already low values of reactive particulate surface area suffice, as has been shown by Fahey et al. [1993], and Keim et al. [1996] provided the involved reactive uptake coefficients are high as is the case for particles consistent of ice. Therefore thin populations of small particles like represented by subvisual cirrus clouds could play a role in this respect. For this issue, which is a matter of current debate [e.g., Bregman et al., 2002], also detailed knowledge of the chemical composition of the cloud particles is critical.

1.6. Tropical In Situ Measurements During the 1999 Airborne Polar Experiment-Third European Stratospheric Experiment on Ozone (APE-THESEO) Campaign

[11] The APE-THESEO campaign (described by L. Stefanutti et al., The APE-THESEO tropical campaign, submitted manuscript, 2002) was carried out from 19 February to 11 March 1999, utilizing the Russian M-55 high-altitude



Figure 2. Meteosat IR image of the Cb cloud from 24 February 1999, where the visible outflow region approximately corresponds to the white area. The Geophysica flight path is traced in black, and the various colored areas correspond to cloud penetrations where in situ data were obtained (see text for details). Decreasing cloud top temperatures are color coded from purple toward dark blue.



Figure 3. Vertical profiles of temperature, ozone and water vapor mixing ratios, and measured aerosol properties for the flight of 24 February 1999. The thin black line indicates the water vapor mixing ratio necessary for saturation with respect over ice at the encountered ambient conditions. The thick light gray line depicts the total water vapor measurements from FISH. In the cloud regions, these two lines coincide, thus indicating saturation.

research aircraft Geophysica [*Stefanutti et al.*, 1999] and the DLR Falcon, both based on the island of Mahé (Seychelles, 55°31′E longitude, 4°40′S latitude). The purpose of this paper is to present in situ particle size distribution measurements obtained during this campaign from ultrathin tropical tropopause subvisual cirrus clouds, the outermost regions of various anvil outflow clouds, cloud patches near a Cb turret, as well as background aerosol measurements in the tropical upper troposphere and lower stratosphere. For this study the data of coordinated concurrent Geophysica and DLR Falcon flights from 24 to 27 February 1999 are used. Additionally size resolved aerosol measurements of the tropical upper tropospheric and lowermost stratospheric background atmosphere are presented utilizing the data of the 6 March 1999 Geophysica flight.

2. Methodology

[12] The aerosol particle size distributions were measured in situ on board of Geophysica by means of a FSSP-300 optical particle detection instrument covering a particle diameter size range from roughly 0.41 to 23 μ m (dependent on the refractive index of the particles) in 31 size bins [*Baumgardner et al.*, 1992]. Specific arrangements were implemented to ensure the instrument's operation extending over the moist, hot ground conditions to the dry, cold conditions (\approx -90°C) encountered in the tropical tropopause region and to enable transitions between these extremes within 25 min. The FSSP-300 pod installation under the left wing of Geophysica is shown in Figure 1. The data acquisition and control computer was mounted in a specially designed unpressurized, thermally controlled container box inside the airplane's wheel compartment.

[13] The conversion of the individual particle light scattering signals to particle sizes was performed adopting Mie theory for background aerosol conditions, while for the cloud encounters the T-matrix method was applied according to the study of *Borrmann et al.* [2000]. An optical refractive index of 1.44 was assumed for the stratospheric



Figure 4. Size distributions of the subvisual cloud layer (labeled as "A" in Figure 3) at the tropical tropopause near 17 km. Due to counting statistics, the three curve segments do not significantly differ from each other at sizes above 2 μ m. The curves labeled "BG" correspond to background aerosol measurements outside of (but close to) the cloud.

and uppermost tropospheric sulfuric acid aerosol background particles. This implies a certain simplification because Geophysica did not fly high above the tropical tropopause region and therefore particles other than sulfuric acid droplets might have been sampled also. However, the particle size channels as given by the instrument above 0.9 µm are wide because due to the "Mie-ambiguities" several size bins have to be combined here to wider channels. Thus a some variation of the refractive index (either due to dilute versus concentrated sulfuric acid droplets or particles of different composition) will not result in greatly changed size distributions. For the aspherical cirrus cloud particles the T-matrix calculations were performed using 1.31 as refractive index for ice. Despite hypotheses concerning the chemical composition of the cloud particles suggesting that nitric acid may be involved, for this study the sampled particles are assumed to be ice. This mainly because the concurrent in situ total water measurements on Geophysica indicate saturation or supersaturation with respect to ice for all cloud events analyzed. For the particle shape rotationally symmetric ellipsoids with an axis length ratio of 0.8 were assumed.

[14] The data frames taken for each sample were of 2-5 s accumulation time. Before deriving particle size distributions all entering data frames recorded inside clouds with this high resolution were individually inspected for possible artifacts introduced by the presence of larger cloud particles

(i.e., with sizes beyond the upper detection limit of the FSSP-300). None of the sampling data frames taken from the clouds of 24 and 27 February 1999 were affected by this kind of error. Also based on the presence of particles larger than 5 μ m, it was decided during these frame-by-frame inspections whether a data reduction using Mie theory or the T-matrix method was adopted in order to differentiate between inside-cloud and background aerosol data sets. Commonly out of the 2–5 s data frames larger flight time intervals of at least 60 s had to be averaged together for the FSSP-300 data due to the very low atmospheric particle number densities and the corresponding demands of counting statistics.

[15] It is important to note that the upper size detection threshold of the FSSP-300 arrangement is near 23 μ m, which implies certain limitations. In cirrus decks connected with anvils larger particles may be present albeit in much



Figure 5. Size distributions of three different parts of a Cb outflow cirrus. "Cloud B" and "Cloud C" qualify as visible based on their optical depths. Based on the FSSP-300 data, "Cloud D" would be subvisual. However, if larger particles were present, the optical thickness might be higher. The letters "B," "C," and "D" correspond to the data with the same label in Figure 3.



Figure 6. OLEX lidar observations in terms of geometrical altitude during the last flight leg (descent) of the 24 February 1999 flight. The backscatter ratio at 1064 nm is color coded and displayed as vertical cross section through the atmosphere above the aircraft. The backscatter ratio is defined for this figure as the ratio of total (aerosol plus air molecular) backscatter coefficient divided by pure air molecular backscatter coefficient.

lower number densities [*Heymsfield and McFarquhar*, 1996]. For this reason the size distribution measurements presented in this study for Cb outflow clouds highlight the properties of the smallest hydrometeors only. Also the optical properties derived from the size distribution measurements pertain to the size limits inherent in the FSSP-300 design. However, with regard to possible heterogeneous chemistry effects the particulate surface area supplied by the small sized particles may be sufficient to drive certain reactions near saturation [*Fahey et al.*, 1993; *Keim et al.*, 1996].

[16] Besides these in situ aerosol measurements, the remote sensing instruments MAL (Miniature Airborne Lidar) and MAS (Multiwavelength Aerosol laser Scatterometer) probed the near range around the aircraft. MAL is a microjoule lidar operating at 532 nm [Matthey et al., 2000] and capable of parallel and perpendicular polarization of the backscattered light signal. MAS is an instrument similar to a backscatter sonde using three different wavelengths [Adriani et al., 1999] and delivers time series of backscatter ratio (BSR) as well as depolarization ratio (DR). Measurements performed by means of the FISH (Fast In situ Stratospheric Hygrometer) instrument [Zöger et al., 1999] delivered total water data, i.e., the sum of gas phase and particulate water. The ozone mixing ratio was measured by an electrochemical cell sensor (ECOC) from the Central Aerological Observatory (CAO) in Moscow [Kyrö et al., 2000] and N₂O was measured as tracer gas by HAGAR [Riediger et al., 2000]. The altitudes given in this study for the in situ measurements are pressure altitudes.

[17] For the flights of 24 and 27 February 1999, as well as on 6 March 1999, the meteorological research aircraft Falcon of DLR (German Aerospace Center) preceeded Geophysica performing lidar measurements above 10 km. On board of the Falcon the 4-wavelength aerosol and ozone lidar, Ozone Lidar Experiment (OLEX) was installed zenith-viewing [*Wirth and Renger*, 1996]. It provided 2D vertical cross sections of cirrus and subvisible cirrus cloud backscatter ratio at 354, 532 and 1064 nm, of the depolarization at 532 nm and of stratospheric ozone along the flight path. By means of these measurements Geophysica, usually taking off 30 to 60 min after the DLR Falcon, could be guided by the Falcon crew into regions with clouds of interest.

3. Subvisual Clouds Near the Tropical Tropopause

[18] On 24 February 1999 a Cb cloud system of approximately 400 km diameter was studied by means of concurrent, coordinated Falcon (remote sensing measurements) and Geophysica (in situ instrumentation) flights. In situ aerosol measurements were obtained: (1) at the margin of the main cloud body between 14.1 and 15.3 km altitude, (2) in the outermost regions of the outflow cirrus umbrella between 12.9 and 14.1 km, (3) the subvisual cloud layer at 16.9 km above (albeit disconnected from) the Cb system. The size



Figure 7. Composite of FSSP-300 size distribution measurements inside the tropical subvisual tropopause cirrus layer "A" (see Figures 3 and 4) on 24 February 1999. The in situ data of *McFarquhar et al.* [2000] and *Heymsfield and McFarquhar* [1996] from the Marshall Islands are entered for comparison. The horizontal bars in these curves represent the width of the instrument's size bins. The vertical bars in the black, solid curve designate the errors due to counting statistics. The vertical dashed gray bars in the upper *McFarquhar et al.* [2000] data indicate the variability over several measured sampling periods.



Figure 8. Synopsis of MAL and FSSP data for events "Cloud A" and "Cloud B" of the 24 February 1999 flight. (See text for detailed discussion.)

and location of this Cb system, as well as the flight path of Geophysica and the relative positions of the cloud samples can be inferred from the Meteosat image of Figure 2. The areas colored in green correspond to (1), in red/brown to (2), and in yellow to (3).

[19] The vertical profiles from the second half of the Geophysica flight of 24 February 1999 (including the descent) for aerosol number density and particulate volume are shown in Figure 3 as measured by the FSSP-300. Additionally ozone, the ambient temperature, and total water content are displayed, this way identifying the location of the local tropopause near 17-17.5 km pressure altitude. Two distinct cloud layers are discernible: one geometrically thick layer between 12.2 and 14.2 km altitude (labeled as "B," "C," and "D"), and a second one located at 16.8 km (labeled as "A"). The cloud particle size distributions shown in Figure 4 correspond to this upper layer "A," while the size distributions "B," "C," and "D" of Figure 5 are from the layer between 12.2 and 14.2 km. The upper cloud layer "A" had a vertical extent of 100-400 m (being 100-200 m most of the sampled time) and constitutes a subvisual cirrus cloud since its optical depths based on Mie theory calculations are between 0.0004 and 0.0005 for 632 nm wavelength and between 0.0002 and 0.0003 for 11 μ m. These optical thicknesses fall below the

thresholds of 0.05 in the visible and 0.03 in the infrared for distinction of visual from subvisual cirrus clouds as suggested by Schmidt et al. [1993]. The derived optical thickness also satisfies the threshold criteria proposed by Sassen et al. [1989]. Since there is the possibility of the presence of particles larger than the FSSP-300s upper detection limit (of about 23 µm), the optical thicknesses derived for the 24 February 1999, cloud constitute lower limits. However, considering the fact that this cloud was less than 400 m thick and persisted for at least 3 hours, particles much larger than 23 µm would have sedimented out. Particles larger than 20 µm diameter have under the measured atmospheric conditions sedimentation velocities in the range of a few hundred meters per hour [e.g., Knollenberg et al., 1982]. Therefore it is unlikely that large numbers of particles above the upper detection limit of the FSSP-300 are present in the cloud events of 24 February 1999.

[20] While the size distributions of Figure 4 are tropopause subvisual cirrus clouds, those in Figure 5 are from three different parts of a Cb outflow umbrella region. The 1064 nm data from the DLR OLEX lidar in Figure 6 actually show two disjunct layers between 16 and 18 km above the anvil outflow clouds between 12 and 15 km. The lower, thicker cloud near 12–15 km geometric altitude roughly corresponds to the lower layer (labeled as "B," "C," and "D") in Figure 3 and constitutes the cirrus umbrella in the outflow of this mesoscale Cb system. As described by *Santacesaria et al.* [2002] for a similar case of the APE-THESEO flight from 19 February 1999, the upper layer on 24 February 1999, near 16 km was



Figure 9. Measurements of cloud particle size distributions in cloud patches near the margins of the Cb main cloud as well as from the surrounding clear air background aerosol (24 February 1999 flight).



Figure 10. Profiles of measured temperature, ozone and water vapor mixing ratios, and aerosol properties for the flight of 27 February 1999. The thermal tropopause was at 16.8 km and the ozone started increasing from 70 ppbv toward stratospheric values at 17.0 km. Saturation with respect to ice is indicated within (and below) the cloud regions as in Figure 3.

significantly above the Cb cloud and entirely disconnected. The picture of the DLR OLEX lidar in Figure 6 shows that these ultrathin cirrus layers horizontally extend over more than 250 km. These two layers do not appear on the corresponding, concurrent lidar data at 532 and 354 nm. Only one of them (see the size distribution labeled as "A" in Figure 4) was penetrated by Geophysica. It needs to be noted that the Falcon and Geophysica could not sample entirely identical air masses because Geophysica did not fly exactly along the path traced out by the Falcon's lidar beam. Either the planes were horizontally separated by approximately 20 km or they reached the cloud at nearly the same position albeit separated in time by 45 min. The subvisual cirrus layer directly underneath the tropical tropopause was penetrated three times by Geophysica within 2 hours.

[21] The size distributions of the three individual penetrations in Figure 4 are not significantly different from each other and all three were obtained at different pressure altitudes but at identical potential temperature (i.e., 377 K). However, since the counting statistics of each event is poor, a single, composite, size distribution has been made for Figure 7 from the data of these three crossings. Otherwise the size resolution of the FSSP-300 data would have to be decreased, which would result in size bins wider than those commonly used by *Baumgardner et al.* [1992] or *Borrmann*



Figure 11. OLEX lidar observations in terms of geometrical altitude during the flight of 27 February 1999, near the region where Geophysica obtained in situ data.



Figure 12. Time series of MAS (BSR: backscattering ratio, DR: depolarization ratio at 532 nm), FSSP-300, FISH, and ECOC data for the cloud event of 27 February 1999.

et al. [2000]. The size distribution significantly differs from the background aerosol of the surrounding air as shown in Figure 4 (and labeled there as "BG"), but only for size diameters larger than 1 µm. Although the number densities are as low as 0.011 particles/cm³ (i.e., 11 L^{-1}) for sizes above 1 µm, a distinct peak around 10 µm is present inside this cloud. If all particles detected by the FSSP-300 down to 0.57 µm are taken into account, cloud particle number densities of 0.17 particles/cm³ (i.e., 170 L^{-1}) of air result. Also entered into Figure 7 are data of December 1973 by Heymsfield and Jahnsen [1974, see McFarquhar et al., 2000] and Heymsfield and McFarquhar [1996] from subvisual tropopause cirrus for comparison. These subvisual clouds over the Marshall Islands apparently also contained particles as large as 10 µm although the peak of the size distribution is shifted toward smaller sizes compared with the 24 February 1999, case over the Indian Ocean. The measurements of the upper curve in this figure show much higher number densities over the entire size distribution and the presence of particles larger than 20 µm as well. This cloud was qualified as subvisual by Heymsfield and McFarquhar [1996].

[22] The anvil outflow of the Cb cloud (see Figure 5) was also penetrated three times at different locations and at different stages in the cloud development. The shape of the size distributions with labels "Cloud B," "Cloud C," and "Cloud D" is very similar for these three penetrations, only the absolute number concentrations change in dependency of the thickness of the cirrus veil around the Cb turret. The thickness of "Cloud B" was approximately 1100 m with an optical depth at 632 nm of 0.12 and of 0.082 at 11 μ m. "Cloud C" was of similar geometrical thickness as "Cloud B," but its optical depths were 0.037 for 632 nm and 0.025 at 11 µm. The lowest curve in Figure 5 for "Cloud D" corresponds to a cloud layer of 650 m vertical extent with 0.0008~(632~nm) and $0.0005~(11~\mu m)$ optical depths respectively. Thus for the upper two "Clouds B" and "C" the cloud thickness and optical depths were high enough to qualify as visual cirrus. The lowermost size distributions in Figure 5 labeled "BG" with particles smaller than 2 µm only are background aerosol measurements taken immediately above and below this outflow cloud. The similarity of the three size distributions from the outflow cloud (designated as Cloud "B," "C," and "D") may suggest a cause-effect relationship, however the database is insufficient to verify such a connection since the measurements were not quasi-Lagrangian.

[23] Figure 8 shows the time series of volume depolarization and backscattering ratio as measured by MAL for those parts of the flight of 24 February 1999, where "Cloud B" was within range of this instrument. The volume depolarization itself only can serve as a measure for the particle number



Figure 13. Cloud particle size distributions of the parts "1" to "4" in Figure 12 (see text for details).

density [*Cairo et al*, 1999]. The short periods of enhanced number densities shown in the FSSP-300 data coincide with corresponding small increases of volume depolarization and scattering ratio in the figure. The aerosol depolarization also derived from these MAL measurements mostly were between 25% and 35%. This variable is a measure for the asphericity of the particles and based on the obtained values in this cloud it needs to be assumed that the FSSP-300 was confronted with particles of some asphericity. This justifies the application of the T-matrix method as mentioned above for the conversion of the scattered light intensities to particle sizes. It corresponds to results of *McFarquhar and Heyms-field* [1996] and *Ström et al.* [1997] who found slightly aspherical crystal habits for the smaller sizes.

[24] There are seven prominent features of the subvisual clouds encountered on 24 February 1999:

1. They are horizontally extending over several hundred kilometers.

2. The cloud lifetimes are at least 3 hours. This is the time interval when the planes were actually present in or under the cloud, and it can be speculated that the cloud persisted for a much longer period of time.

3. These cloud layers have geometrical thicknesses of 100-400 m, mostly even below 200 m. The optical depths are near 0.0004 at 632 nm.

4. The clouds occurred at ambient temperatures below 190 K.

5. These subvisual clouds exhibit a mode in the size distribution around 10 μm particle diameter.

6. and particles smaller than 1 μ m have number densities of values near the background above and below the cloud.

7. The observed subvisual clouds more strikingly appear in the data of particulate surface area and volume than in the number densities.

The fifth item is consistent with the assumption by *Boehm et* al. [1999] who concluded based on radiative transfer model calculations and dynamical considerations, that the particles of such persistent tropical cirrus clouds should be smaller than 20 µm diameter and it is also consistent with other experimental findings mentioned in the Introduction. For example measurements with the FSSP-300 by McFarquhar and Heymsfield [1996] inside tropical cirrus clouds at altitudes between 7 and 14 km over the tropical Pacific also show a small mode between 10 and 20 µm. Similarly Knollenberg et al. [1993] report a small maximum between 10 and 20 µm for a Cb anvil penetration over Arizona, USA, while their measurements over Darwin, Australia, only exhibit a shoulder in the size distribution and not such a distinctive modal peak. Also in situ measurements by Hevmsfield and Jahnsen [1974] inside tropical subvisual cirrus showed the enhanced presence of particles in the 3-17 μm size range.

[25] Although the similarity of the size distributions from clouds "A" (Figure 4) and "D" (Figure 5) seems indicative of a cause–effect relationship here too, again one can not necessarily conclude, that they have the same origin. Based on the wind speed and direction data measured by Geophysica as well as analyses of the meteorological data fields it becomes clear that the encountered cloud events are not from the same air mass like for a quasi-Lagrangian experiment.

[26] During the APE-THESEO flight of Geophysica on 24 February 1999, size distribution measurements also were obtained at the outermost margins of the Cb turret between



PHYSICAL CLOUD THICKNESS, \$\Delta Z(km)

Figure 14. Optical thickness of visible and subvisual cirrus clouds from lidar measurements [*Sassen and Cho*, 1992]. In addition, the in situ data for the tropical regions of the Marshall Islands from 1973 [*McFarquhar et al.*, 2000] as well the Indian Ocean (Geophysica flights from APE-THESEO 1999) have been entered into this figure.



Figure 15. Flight cross section of the aerosol data along the 56th meridian from 6 March 1999. The flight segments labeled "a" to "d" are discussed in the text.

14.1 and 15.3 km altitude, the results of which are shown in Figure 9. In this part of the flight path Geophysica performed a slow descent. A large spatial inhomogeneity characterized by mostly clear air parcels with occasional interspersed patches of cloudy air was encountered in this area. Most likely this was a region of entrainment or detrainment. Since Geophysica could not penetrate deeper into the turret, only these cloudy patches could be sampled for periods of less than 60 s. Because of the inhomogeneity the particle concentrations vary over one order of magnitude in the size range between 0.5 and 10 μ m. Although the shoulder at 10 µm particle diameter is a dominant feature in the measurements of Figure 9, it should be noted that the lack of an instrument detecting larger particles limits the capability of obtaining results concerning the entire cloud patch.

4. Below Tropopause Cirrus Clouds of 27 February 1999

[27] During the ascent from Mahé (Seychelles) of Geophysica on the flight of 27 February 1999, an extended, contiguous cirrus cloud was crossed between 15,200 and 15,700 m pressure altitude, where the cold-point tropopause was located at 16.8 km. The vertical profile of the aerosol related data, ozone, and temperature is shown in Figure 10. The corresponding OLEX lidar profile is shown in Figure 11 where the lidar measurements were obtained approximately 40 min before Geophysica reached this cloud. A detailed view of MAS and FSSP-300 data is given together with in situ total water measurements and ozone in the time series of Figure 12. The data of the entire cloud event (starting at 12460 and ending 13070 s UTC) were subdivided into four parts (labeled as part "1," "2," "3," and "4") because the measured parameters of



Figure 16. Vertical profiles of ozone, water vapor, N_2O mixing ratios, and aerosol concentrations from the entire flight of 6 March 1999. The tropopause region is indicated by the gray shadowed line.



Figure 17. Particle size distributions of the background aerosol measured during the meridional cross section flight of 6 March 1999. The labeled curves correspond to the flight segments in Figure 15. The error bars designate the error due to counting statistics.

these parts significantly differ from each other. The four measured cloud particle size distributions are shown in Figure 13.

[28] In part "2" and especially in part "3" both of the MAS signals (also shown in Figure 12) are high compared to those obtained during part "4." The lower particle number densities at sizes near 10 μ m in the particle size distribution of part "4" (see Figure 13) coincides with the decreased MAS signal, and the higher number density of part "3" is correlated with higher MAS BSR and DR. For parts "1" and "2" the ozone is lower while the total water

is higher than for parts "3" and "4." The shapes of the size distributions (see Figure 13) are not very similar and these distributions differ most prominently in the absolute values of the particle number concentrations for sizes near 10 μ m. Part "4" with the highest ozone levels and the lowest total water content exhibits greatly reduced number densities for these larger particles indicating increasing evaporation when approaching the tropopause.

[29] Utilizing the Lidar measurements for obtaining the geometrical thickness and using the in situ size distribution data, the optical thickness of the cloud parts can be roughly estimated. The highest value for the optical thickness resulting from such estimations for the entire cloud is 0.024 (0.015) for 632 nm (11 μ m). This is near the threshold differentiating between visible and subvisible cirrus. Considering also that larger particles most likely present in this cloud further enhanced the optical thickness, the cloud probably qualifies as visible cirrus.

[30] The optical cloud thickness of the various cloud encounters during the APE-THESEO campaign from the 24 and 27 February 1999 flights are shown in Figure 14 and placed into the context of previous [*Sassen and Cho*, 1992] lidar derived optical thicknesses for visible and subvisual cirrus. Also the data of *McFarquhar et al.* [2000] are entered into the figure. This comparison between in situ measurements and lidar data demonstrates that the subvisual clouds penetrated on 24 February 1999 are at the lowest level of previously measured optical and geometrical depths. The Geophysica measurements of the anvil outflow region from 24 February are near or just above the threshold value discriminating visual from subvisual and lie within the range of the other observations.

5. The Background Aerosol Between 5°S and 19°S Latitude in the Tropical Tropopause Region

[31] On 6 March 1999, a flight from Mahé at $5^{\circ}-19^{\circ}$ S was conducted due south along the 56° E longitude meridian. During this flight background conditions for aerosol were encountered in the upper troposphere and the lower stratosphere. The meridional cross section of the measured particle number density and surface area is shown in Figure 15. As can be seen from the pressure altitude data in this figure a "step ladder" profile across the tropopause

Table 1. Summary of the Observed Properties From the Encountered Clouds

Cloud type	Date	Pressure altitude [km]	Particle number density [number/cm ³] $0.7 \ \mu m < d < 25 \ \mu m$	IWC [mg/m ³] ^a	Geometrical thickness [m]	Optical depth τ_C 632 nm ^a
Tropopause subvisual ci	24 February 1999	16.5 - 17.0	0.05	0.0033	300	0.0004
Cb outflow ci						
Subvisual	24 February 1999	13.2 - 13.9	0.04	0.0031	500	0.0007
Visible	24 February 1999	12.9 - 14.1	0.29/0.87	0.11/0.38	1100	0.04 - 0.12
Patches of						
Cb turret		14.1 - 15.3				
Minimum	24 February 1999		0.06	0.017	_ ^b	_
Maximum	24 February 1999		0.75	0.074	_ ^b	_
Cirrus	27 February 1999	15.3 - 15.8	≈ 0.25	≈ 0.035	1200 ^c	0.024

^aNote: These IWCs and the optical depth are obtained for particles with sizes between 0.7 and 25 μ m (i.e., the detection limits of the FSSP-300). The total ice water content as well as the optical depth of the cloud maybe much higher if larger particles are present. ^bFor these clouds, the geometrical thickness and also optical depth could not be estimated.

^c The geometrical thicknesses of these clouds were estimated based upon the OLEX lidar measurements at 1064 nm (see Figure 11).

(near 17 km) into the lowermost stratosphere was executed during the outbound flight leg. The airplane was in the lower stratosphere during this leg from 11°S to 18°S. Then Geophysica performed a dip (i.e., an intermediate descent into and subsequent reascent from the troposphere) during which it turned around for its inbound flight. The return flight was along the same meridian at higher altitudes as can be seen in the right hand side of Figure 15. Figure 16 gives the vertical profiles of total water, ozone, N2O, ambient temperature and particle number density of the entire flight. Between 17 and 21 km, above the tropopause, the particle number density increases. This is the lower part of the stratospheric Junge aerosol layer, the maximum of which may lie at higher altitudes, i.e., beyond the cruising altitude of Geophysica. The particle number concentrations measured during takeoff and landing at 5°S (Mahé) are similar to those encountered during the "dip" at $18^{\circ}-19^{\circ}$ S, if one considers the stratospheric data only in Figure 16. Thus these measurements do not indicate much of a geographic variation of the lower part of the Junge layer in this latitude band. This is supported by the particle size distributions shown in Figure 17. The size distributions are data averages over the flight segments labeled as "a," "b," "c," and "d" in Figure 15. For the data reduction of the background aerosol measurements a refractive index of 1.44 was used in conjunction with Mie theory calculations, assuming these particles to be sulfuric acid droplets. Taking into account the statistical errors, these size distributions do not significantly differ in shape, but only in the absolute number densities. These considerations of the Junge layer aerosol have to be viewed with caution because only particles larger than 0.41 are detected by the FSSP-300 whereas the background layer contains smaller particles in larger numbers.

6. Conclusions

[32] Upper tropospheric clouds have been observed above the tropical Indian Ocean on 24 and 27 February 1999 during the APE-THESEO field campaign where the Russian high-altitude research aircraft "Geophysica" was used as measurement platform. These were ultrathin layers of subvisual cirrus at the tropopause, cloud patches near the Cb turret, and cirrus clouds in Cb anvil outflow regions. For the in situ aerosol size distribution measurements in the size range from approximately 0.5 to 23 μ m a modified optical particle counter of the FSSP-300 type was utilized. Depolarization measurements by a microjoule lidar (MAL) resulted in values of 25–35% volume depolarization in visible clouds, ~4% in subvisual indicating that the cloud particles were slightly aspherical.

[33] The concurrent in situ total water measurements showed saturation with respect to ice directly above and below and supersaturation inside the analyzed clouds. Consequently for the data reduction of the FSSP-300 measurements the refractive index for ice was adopted.

[34] Table 1 provides a summary of the observed properties from the encountered clouds.

[35] The subvisual clouds at the tropopause with an air temperature of \sim 190 K occurred as ultrathin cloud layers with an horizontal extent of several 100 km. The geometrical thickness derived from lidar measurements was

in the range from below 100 m up to 400 m. The optical thickness was 0.0004-0.0005 for 632 nm wavelength, clearly within the range of values for subvisual clouds, while the particle concentration was 0.1-0.3 particles/cm² (i.e., $100-300 \text{ L}^{-1}$) and 0.015 particles/cm³ (i.e., 15 L⁻¹) for sizes above 1 µm for these clouds. Based on the measured optical depths and geometrical thicknesses these cloud sheets belong to the geometrically and optically thinnest so far reported in the literature. In both cases, at the tropopause and in 13 km altitude, the size distribution of the subvisual clouds differs from the background aerosol only for particle sizes above 1 µm. For these larger particles the maximum in the size distribution is around 10 μ m, which is in the range of earlier measurements and model calculations. In visible cirrus clouds the concentration of particles below 1 µm was significantly above the concentration of the background aerosol.

[36] On a flight with background aerosol conditions very little latitudinal variation of the aerosol concentration of the lower part of the Junge layer was observed in the lower stratosphere between 17 and 21 km in the latitude band from 5° S (Mahé) to 18° S.

[37] Acknowledgments. The authors would like to thank the pilots of Russian Geophysica and the German DLR Falcon for their enthusiasm and precision in the execution of the flights. We also thank Stefano Balestri (APE Srl., Italy), Thomas Peter (ETHZ, Switzerland), Ken Carslaw (University of Leeds, UK), and the whole "Geophysica community" including ground crews of both aircraft. The participation of the Forschungszentrum Jülich GmbH was supported by Gean national funding from BMBF under grant 01 LA 9829/3. The participation of the Observatory of Neuchâtel was supported by Swiss national funding OFES 97.0436 and FN R'Equip 21-53301-98. This research was financed by the Environment and Climate Program of the EU through contracts EV5V-CT93-0352 and ENV4-CT95-0143. Significant support was also provided by the Italian National Antarctic Research Program (PNRA), the University of Mainz, the Max-Planck Institute for Chemistry in Mainz, and the Forschungszentrum Jülich GmbH.

References

- Adriani, A., F. Cairo, M. Viterbini, S. Mandolini, L. Pulvirenti, and G. Di Donfrancesco, Multiwavelength aerosol scatterometer for airborne experiments to study the stratospheric particle optical properties, *J. Atmos. Oceanic Technol.*, 16, 1329–1336, 1999.
- Barnes, A. A., Observations of ice particles in clean air, J. Rech. Atmos., 14, 311–315, 1980.
- Baumgardner, D., J. E. Dye, B. W. Gandrud, and R. G. Knollenberg, Interpretation of measurements made by the Forward Scattering Spectrometer Probe (FSSP-300) during the Airborne Arctic Stratospheric Expedition, J. Geophys. Res., 97, 8035–8046, 1992.
- Boehm, M. T., J. Verlinde, and T. P. Ackerman, On the maintenance of high tropical cirrus, J. Geophys. Res., 104, 24,423–24,433, 1999.
- Borrmann, S., S. Solomon, J. E. Dye, and B. Luo, The potential of cirrus clouds for heterogeneous chlorine activation, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 2133–3136, 1996.
- Borrmann, S., B. Luo, and M. Mishchenko, The application of the T-matrix method to the measurement of aspherical ellipsoidal particles with forward scattering optical particle counters, *J. Aerosol Sci.*, 31, 789–799, 2000.
- Bregman, B., P.-H. Wang, and J. Lelieveld, Chemical ozone loss in the tropopause region on subvisible clouds, calculated with a chemistry-transport model, *J. Geophys. Res.*, 107(D3), doi:10.1029/2001JD000761, 2002.
- Cairo, F., G. Di Donfrancesco, A. Adriani, L. Pulvirenti, and F. Fierli, Comparison of various linear depolarization parameters measured by lidar, *Appl. Opt.*, 38, 4425–4432, 1999.
- Fahey, D. W., et al., In situ measurements constraining the role of sulphate aerosols in mid-latitude ozone depletion, *Nature*, 363, 509–514, 1993.
- Hamill, P., and G. Fiocco, Nitric acid aerosols at the tropical tropopause, *Geophys. Res. Lett.*, 15, 1189–1192, 1988.

- Heymsfield, A. J., Ice particles observed in a cirriform cloud at -83°C and implications for polar stratospheric clouds, J. Atmos. Sci., 43, 851-855, 1986.
- Heymsfield, A. J., and L. J. Jahnsen, Microstructure of tropopause cirrus layers, in *Proc. Sixth Conf. on Aerospace and Aeronautical Meteorology*, pp. 43–48, Am. Meteorol. Soc., Boston, Mass., 1974.
- Heymsfield, A. J., and G. M. McFarquhar, High albedos of cirrus in the tropical Pacific warm pool: Microphysical interpretations from CEPEX and from Kwajalein, Marshall Island, *J. Atmos. Sci.*, 53, 2424–2451, 1996.
- Jensen, E. J., O. B. Toon, H. B. Selkirk, J. D. Spinhirne, and M. R. Schoeberl, On the formation and persistence of subvisible cirrus clouds near the tropical tropopause, *J. Geophys. Res.*, 101, 21,361–21,375, 1996a.
- Jensen, E. J., O. B. Toon, L. Pfister, and H. B. Selkirk, Dehydration of the upper troposphere and lower stratosphere by subvisible cirrus clouds near the tropical tropopause, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 825–828, 1996b.
- Jensen, E. J., W. G. Read, J. Mergenthaler, B. J. Sandor, L. Pfister, and A. Tabazadeh, High humidities and subvisible cirrus near the tropical tropopause, *Geophys. Res. Lett.*, 26, 2347–2350, 1999.
- Keim, E. R., et al., Observations of large reductions in the NO/NO_y ratio near the mid-latitude tropopause and the role of heterogeneous chemistry, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 3223–3226, 1996.
- Knollenberg, R. G., A. J. Dascher, and D. Huffmann, Measurement of the aerosol and ice crystal populations in tropical stratospheric cumulonimbus anvils, *Geophys. Res. Lett.*, 9, 613–616, 1982.
- Knollenberg, R. G., K. Kelly, and J. C. Wilson, Measurements of high number densities of ice crystals in the tops of tropical cumulonimbus, *J. Geophys. Res.*, 98, 8639–8664, 1993.
- Kyrö, E., et al., Ozone measurements during the Airborne Polar Experiment: Aircraft instrument validation, isentropic trends, and hemispheric fields prior to the 1997 Arctic ozone depletion, J. Geophys. Res., 105, 14,599–14,611, 2000.
- Lynch, D. K., Subvisual cirrus: What it is and where you find it, Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng., 1934, 264–274, 1993.
- Matthey, R., V. Mitev, G. Mileti, V. Makarov, A. Turin, M. Morandi, and V. Santacesaria, Miniature aerosol lidar for automated airborne application, in *Laser Radar Technology and Application V*, edited by G. Kamerman, *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, 4035, 44–53, 2000.
- McFarquhar, G. M., and A. J. Heymsfield, Microphysical characteristics of three anvils sampled during the Central Equatorial Pacific Experiment, J. Atmos. Sci., 53, 2401–2423, 1996.
- McFarquhar, G. M., A. J. Heymsfield, J. Spinhirne, and B. Hart, Thin and subvisual tropopause tropical cirrus: Observations and radiative impacts, *J. Atmos. Sci.*, 57, 1841–1853, 2000.
- Omar, A. H., and C. S. Gardner, Observations by the Lidar In-Space Technology Experiment (LITE) of high-altitude cirrus clouds over the equator in regions exhibiting extremely cold temperatures, J. Geophys. Res., 106, 1227–1236, 2001.
- Prabhakara, C., R. S. Fraser, G. Dalu, M.-L. C. Wu, R. J. Curran, and T. Styles, Thin cirrus clouds: Seasonal distribution over oceans deduced from Nimbus-4 IRIS, J. Appl. Meteorol., 27, 379–399, 1988.
- Riediger, O., U. Schmidt, M. Strunk, and C. M. Volk, HAGAR: A new in-situ instrument for stratospheric balloons and high altitude aircraft, in *Stratospheric Ozone 1999*, *Proceedings of the Fifth European Symposium, Air Pollut. Res. Rep.*, vol. 73, edited by N. R. P. Harris et al., pp. 727–729, Eur. Comm., Brussels, 2000.
- Rosenfield, J. E., D. B. Considine, M. R. Schoeberl, and E. V. Browell, The impact of subvisible cirrus near the tropical tropopause on stratospheric water vapor, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 1883–1886, 1998.

- Santacesaria, V., et al., Clouds at the tropical tropopause: A case study during the APE-THESEO campaign over the western Indian Ocean, J. Geophys. Res., doi:10.1029/2002JD002166, in press, 2002.
- Sassen, K., and B. S. Cho, Subvisual-thin cirrus lidar dataset for satellite verification and climatological research, *J. Appl. Meteorol.*, *31*, 1275–1285, 1992.
- Sassen, K., M. K. Griffin, and G. C. Dodd, Optical scattering and microphysical properties of subvisual cirrus clouds and climatic implications, *J. Appl. Meteorol.*, 28, 91–98, 1989.
- Schmidt, E. O., and D. K. Lynch, Subvisual cirrus: Associations to the dynamic atmosphere and radiative effects, *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, 2578, 68–75, 1995.
- Schmidt, E. O., J. M. Alvarez, M. A. Vaughan, and D. P. Wylie, A review of subvisual cirrus morphology, *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.*, 1934, 230– 239, 1993.
- Solomon, S., S. Borrmann, R. R. Garcia, R. Portmann, L. Thomason, L. R. Poole, D. Winker, and M. P. McCormick, Heterogeneous chlorine chemistry in the tropopause region, *J. Geophys. Res.*, 102, 21,411–21,429, 1997.
- Stefanutti, L., L. Šokolov, S. Balestri, A. R. MacKenzie, and V. Khattatov, The M-55 Geophysica as platform for the Airborne Polar Experiment, J. Atmos. Oceanic Technol., 16, 1303–1312, 1999.
- Ström, J., B. Strauss, T. Anderson, F. Schröder, J. Heintzenberg, and P. Wendling, In situ observations of the microphysical properties of young cirrus clouds, *J. Atmos. Sci.*, 54, 2542–2553, 1997.
- Uthe, E. E. and P. B. Russell, Lidar observations of tropical high altitude cirrus clouds, in *Proceedings of the IAMAP Symposium on Radiation in the Atmosphere, Garmisch-Partenkirchen, Germany, 19–28 August 1976*, edited by H. J. Bolle, pp. 242–244, Science, Enfield, N.H., 1977.
- Wang, P.-H., P. Minnis, M. P. McCormick, G. S. Kent, and K. M. Skeens, A 6-year climatology of cloud occurrence frequency from Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II observations (1985–1990), *J. Geophys. Res.*, 101, 29,407–29,429, 1996.
- Winker, D. M., and C. R. Trepte, Laminar cirrus observed near the tropical tropopause by LITE, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 3351–3354, 1998.
- Wirth, M., and W. Renger, Evidence of large scale ozone depletion within the arctic polar vortex 94/95 based on airborne LIDAR measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 23, 813–816, 1996.
- Zöger, M., et al., FISH: A novel family of balloonborne and airborne Lyman-a photofragment fluorescence hygrometers, *J. Geophys. Res.*, 104, 1807–1816, 1999.
- J. Beuermann, Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre (ICG-1), Forschungszentrum Jülich GmbH, Jülich, Germany.
- S. Borrmann and A. Thomas, Institut für Physik der Atmosphäre, Universität Mainz, Mainz, Germany. (borrmann@uni-mainz.de) F. Cairo, Istituto di Scienze dell'Atmosfera e del Clima, CNR, Rome,
- F. Cairo, Istituto di Scienze dell'Atmosfera e del Clima, CNR, Rome, Italy.
- C. Kiemle, Institut für Physik der Atmosphäre, DLR, Oberpfaffenhofen, Germany.
- B. Lepuchov, Myasishchev Design Bureau, Moscow, Russia.
- A. R. MacKenzie, Environmental Science Department, Lancaster University, Lancaster, UK.

R. Matthey, Observatoire Cantonal, Neuchâtel, Switzerland.

V. Rudakov and V. Yushkov, Central Aerological Observatory, Moscow, Russia.

V. Santacesaria and L. Stefanutti, Istituto di Ricerca sulle Onde Elettromagnetiche, CNR, Florence, Italy.

M. Volk, Institut für Meteorologie und Geophysik, Universität Frankfurt, Frankfurt, Germany.

Danksagung

Die vorliegende Dissertation entstand am Institut für Physik der Atmosphäre der Johannes Gutenberg-Universität in Mainz unter der wissenschaftlichen Leitung von Prof. Dr. S. Borrmann. Finanziell wurde sie gefördert durch das "Environment and Climate Program" der EU mit den Projekten EV5V-CT93-0352, ENV4-CT95-0143, ENV4-CT95-0163 und ENV4-CT97-0533, durch das deutsche BMBF mit Projekt 01L09310 sowie durch interne Mittel des italienischen PNRA, des Forschungszentrums Jülich GmbH und der Universität Mainz.

Ich danke Herrn Prof. Dr. R. Jaenicke für die freundliche Aufnahme in das Institut und seine Arbeitsgruppe vor der Berufung von Prof. Dr. S. Borrmann.

Mein ganz besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. S. Borrmann für die freundschaftliche Betreuung und stete Förderung dieser Arbeit. In der Arbeitsgruppe herrschte stets ein sehr positives Arbeitsklima, gerade auch während der zahlreichen Meßkampagnen, wofür ich sehr dankbar bin.

Die Messungen zu dieser Arbeit wären ohne die Hilfe zahlreicher Personen nicht möglich gewesen, zu viele, als daß sie hier einzeln namentlich erwähnt werden könnten. Bei allen möchte ich mich aber doch an dieser Stelle bedanken. Es sind insbesondere

- die Kolleginnen und Kollegen des Instituts für Physik der Atmosphäre, Uni Mainz,
- die Kolleginnen und Kollegen der Werkstätten des Instituts,
- die Kolleginnen und Kollegen der ENEA in Casaccia (Italien),
- die Organisatoren sowie die Kolleginnen und Kollegen der anderen experimentellen und der theoretischen Arbeitsgruppen bei den Meßkampagnen mit der Geophysika,
- Piloten und Bodenpersonal der Geophysika,
- die Organisatoren sowie die Kolleginnen und Kollegen der anderen Arbeitsgruppen bei den beiden POLSTAR-Meßkampagnen,
- Piloten und Bodenpersonal der Falcon,
- Piloten und Bodenpersonal des Learjet,
- die Kollegen der enviscope GmbH,
- die Organisatoren sowie die Kolleginnen und Kollegen der anderen Arbeitsgruppen bei der ACE-2 Meßkampagne,
- Piloten und Bodenpersonal der Cessna Citation,
- die Kolleginnen und Kollegen des Max Planck-Institutes für Chemie, Mainz.

Vor allem danke ich auch allen Kolleginnen und Kollegen für die stete Bereitschaft zur wissenschaftlichen Diskussion während der Ausarbeitung dieser Dissertation.

Ganz herzlich möchte ich mich bei meiner Familie und allen Freunden bedanken, die mir in der Zeit dieser Arbeit den nötigen Rückhalt und Unterstützung gegeben haben.

Ich versichere, die Arbeit selbständig und nur unter Verwendung der angegebenen Quellen angefertigt zu haben.

Mainz, den 26. März 2003

SIT FINIS LIBRI, NON FINIS QUAERENDI

Thomas Merton