

Forschungsbericht FZKA-BWPLUS

Aerosole aus der Nutztierhaltung (Teil A und B)

Gerhard Lammel^{1,3}, Volker Wulfmeyer², Sandip Pal², Alvaro M. Valdebenito B.¹,
Andreas Behrendt², Frank Müller¹, Marcus Radlach²

¹ Max-Planck-Institut für Meteorologie, Bundesstr. 53, D-20146 Hamburg

² Universität Hohenheim, Institut für Physik und Meteorologie, D-70593 Stuttgart

³ Masaryk-Universität, Research Centre for Environmental Chemistry and Ecotoxicology,
Kamenice 3, CZ-62500 Brno

Förderkennzeichen: ZO3K23005 und ZO3K23007

Die Arbeiten des Programms Lebensgrundlage Umwelt und ihre Sicherung werden mit Mitteln des
Landes Baden-Württemberg gefördert

Oktober 2007

Inhalt

Zusammenfassung / Abstract	3
1. Einleitung: Bedeutung dieser Untersuchungen	5
2. Das augensichere, abtastende Lidar-System des IPM	6
2.1 Eigenschaften von Lidar-Messungen	6
2.2 Systemaufbau	7
2.2.1 Transmitter	7
2.2.2 Empfänger	9
2.2.3 Scanner	11
2.2.4 Steuerung	13
2.2.5 Mobile Plattform	16
2.3 Auswertung der Messungen	18
2.3.1 Lidar-Methodik	18
2.3.2 Anwendung der Lidar-Inversion auf Abtastungen	21
3. Modellentwicklung	27
3.1 Atmosphären- und Chemiemodell	27
3.2 Aerosolmodell	27
3.2.1 Nukleation	29
3.2.2 Trockene Deposition, Sedimentation	29
3.2.3 Kondensation von Wasserdampf	30
3.2.4 Partikelgrößenverteilungen	31
3.3 Initialisierung von Simulationen	31
3.3.1 Meteorologie	31
3.3.2 Aerosole	32
3.4 Optische Aerosoleigenschaften	34
3.5 Vorhersagen zur Untersuchung der Lidar-Daten-Inversionsprozedur	39
3.6 Rechenzeitbedarf	40
4. Feldexperiment	40
4.1 Generelle Betrachtungen	40
4.2 Auswahl des Messstandorts und Design des Experiments	41
4.3 Meteorologische Bedingungen während der Messkampagne	43
4.4 Lidar- Betrieb	51
4.4.1 Überblick	51
4.4.2 Kalibrierung der Ausrichtung des Lidar-Scanners	59
4.4.3 RHI-Scans	61
4.4.4 PPI-Scans	64
4.4.5 Detektion der Aerosolemission und Auswertung der Lidar-Messungen	65
4.5 In-situ-Aerosol- und –Spurengasmessungen	66
4.5.1 Impaktor- und Filtermessungen	66
4.5.2 Ammoniak und Salpetersäure	72
4.5.3 Einzelpartikel-Analytik	72
4.5.4 Zusammenfassung Aerosolzusammensetzung der Messtage 16.9.05 und 17.9.05	74
4.6 Resultate der Modellanwendung	75
4.6.1 Quantifizierung des Emissionsflusses	75
4.6.2 Vorhersage des Lidar-Rückstreusignals	75
4.6.3 Sensitivitätsstudie	79
4.7 Vergleich Modell-Lidar-Ergebnisse für ausgewählte Tage	86
5. Synergie und Ausblick	98
Danksagung	101
Veröffentlichungen aus der Projektarbeit	102
Literatur	102

Zusammenfassung

Die Eigenschaften von Aerosolen, die sich im Nahbereich von Quellen rasch verändern, werden mit einem neuartigen Ansatz verfolgt: Dreidimensionale Messungen mit einem abtastenden, hochauflösenden Lidar werden mit numerischen Simulationen optischer Aerosoleigenschaften mit einem hochauflösenden Mikrophysik-Chemie-Transport-Modell kombiniert.

Im Rahmen einer Feldmesskampagne, die in der Nähe eines Schweinemastbetriebs in Mettingen, Westfalen, vom 11.-21.9.2005 durchgeführt wurde, wurden Datensätze für die Demonstration des Ansatzes erhoben. Lidar-Beobachtungen wurden an acht Tagen sowie In-situ-Aerosolmessungen und Atmosphärensondierungen an sechs Tagen durchgeführt. Dabei wurde ein neues, mobiles, augensicheres und 3-dimensional abtastendes Lidar, das im Rahmen dieses Projekts entwickelt und aufgebaut wurde, erstmalig eingesetzt. Die im Experiment untersuchte Aerosolquelle war schwach, d.h. nicht mit bloßem Auge erkennbar; sie bewirkte eine abwindige Aerosol-Anzahlkonzentrationserhöhung von bis zu 5% in den unteren 50 m der Atmosphäre. Die Partikelemission wurde auf 100-500 g/h geschätzt.

Die Messdatenanalyse und die sich damit in Übereinstimmung befindliche Modellvorhersage lokalisierten die Fahne recht niedrig in einer Höhe von weniger als 50 m über dem Boden. Weil die Visualisierung der Lidar-Daten und die Auswertung der In-situ-Daten in Echtzeit vor Ort noch nicht möglich und die In-situ-Aerosolmessungen zudem auf den Boden beschränkt waren, war während der Messkampagne die Position der Fahne nur in der Horizontalen, nicht aber in der Vertikalen bekannt. So wurde an den meisten Messtagen der Elevationswinkel des Lidars höher eingestellt.

Am 20.9.05 konnte unseres Wissens erstmalig eine Abluftfahne aus einer landwirtschaftlichen Quelle mit einer horizontalen Abtastung räumlich und zeitlich vermessen werden sowie der Partikelrückstreukoeffizient der Aerosole bestimmt werden. Die hochaufgelösten Daten dieses Messfalls (0.33 s Mittelungszeit, 30 m Entfernungsauflösung) geben Aufschluss über den Transport der Aerosolemission durch den Wind und die Deformation der Fahne durch die Turbulenz. Die hohe Messauflösung ist wichtig, um Partikelemissionen in komplexem Gelände und bei zeitlich sich sehr schnell ändernden meteorologischen Bedingungen untersuchen zu können. Bei längerer Mittelungszeit erkennt man eine durch die Gaussverteilung bestimmte Struktur der Fahne. Weil von diesem Tag keine In-situ-Aerosolmessungen für die Modellinitialisierung zur Verfügung standen, war kein direkter Vergleich von Messung und Modellierung möglich. Stattdessen wurden Simulationen im Sinne einer unteren und oberen Abschätzung der zu erwartenden Signale durchgeführt. Diese Simulationsergebnisse zeigen, dass die Messergebnisse sowohl bezüglich Signalintensität als auch Geometrie der Fahne im zu erwartenden Bereich liegen.

Inzwischen wurde das Lidar weiterentwickelt. Es ist nun eine Echtzeitvisualisierung der Partikelrückstreusignale, also der Struktur des Aerosolfeldes, möglich, welches damit auch die Detektion von Aerosolquellen in Echtzeit erlaubt. Der Einbau von Rotations-Raman-Kanälen erlaubt nunmehr die direkte unabhängige Messung des Partikelextinktions- und -rückstreukoeffizienten. Ferner ist die simultane Messung wichtiger atmosphärischer Variablen, z.B. der Temperatur, möglich. Diese Messeigenschaften des Lidars sind weltweit einzigartig.

Das im Projekt entwickelte Modell ist in der Lage, Aerosolverteilungen und ihre optischen Eigenschaften vorauszuberechnen. Eine Sensitivitätsanalyse zur Quantifizierung der Unsicherheit der Vorhersage optischer Aerosoleigenschaften in Folge der ungenauen Kenntnis von Zusammensetzung und Massengrößenverteilung von Hintergrund und emittierten Aerosol zeigt, dass der Partikel-Rückstreukoeffizient, gemittelt über mehrere Quadratkilometer auf +50/-70% angegeben werden kann. Diese Unsicherheit kann in zukünftigen Messexperimenten durch verbesserte In-situ- und Lidar-Messungen stark verringert werden. Damit kann

die Vorausberechnung von Lidar-Messsignalen die Ableitung experimenteller Ergebnisse verbessern und Fehlinterpretationen vermeiden.

Der hier verfolgte Ansatz hat unseres Erachtens großes Zukunftspotenzial. Er kann entscheidend dazu beitragen, die Kenntnisse der Emission von Aerosolpartikeln aus verschiedenen Quellen zu verbessern. Dies könnte in großskaligen Atmosphären-Modellen zur verbesserten Beschreibung der Aerosolquellen genutzt werden und ferner dazu dienen, Emissionsquellen hinsichtlich gesundheitsrelevanter Partikelemissionen einzuschätzen und damit Voraussetzungen für Minderungsmaßnahmen zu schaffen.

Abstract

Close to the sources, aerosol properties are undergoing rapid changes. By a novel approach, the physical and chemical aerosol properties are determined by means of spatially and temporally high-resolution lidar measurements in combination with numerical simulations of aerosol optical properties with a high-resolution microphysics-chemistry-transport model.

During a field campaign performed near a pig livestock farm in Mettingen, Westphalia, from 11.09.-21.09.2005 data for this novel approach were collected. Lidar measurements and aerosol in-situ measurements were performed on 8 and 6 days, respectively. In the campaign a new mobile eye-safe 3-dimensional-scanning lidar which was developed within this project was employed for its first time in the field. The investigated aerosol source was weak, i.e., not visible with the eye; it caused an increase of the aerosol number density down-wind of up to 5 % in the lowermost 50 m of the atmosphere. The primary particulate matter emission flux was estimated to be 100-500 g/h.

The measured data as well as the model prediction agree that the aerosol plume is localized quite low in heights below 50 m above ground. Because it was not yet possible to visualize the lidar data in realtime during the campaign nor to analyse the aerosol in-situ data in realtime which – furthermore – were only collected on the ground, the location of the aerosol plume was known only in the horizontal plane but not in the vertical. Thus, most lidar measurements were made at higher elevation.

On September 20, 2005, the aerosol plume was detected with the lidar. the 2-dimensional structure of an aerosol plume of a livestock farm and its temporal variability could be investigated and the particle backscatter coefficient of the aerosols could be measured, to our best knowledge, for the first time. The high-resolution lidar data (0.33 s and 30 m) reveal the aerosol transported by the wind and bending of the plume by turbulence. High resolution is essential, to study aerosol emissions in complex orography and under quickly changing meteorological conditions. Longer averaging shows a Gaussian-shaped aerosol plume. As for this day no in-situ aerosol data are available to initialize the model, the lidar measurements and model results cannot be compared directly. Instead, simulations were made to assess the upper and lower limit of the expected lidar data. The results agree in backscatter coefficient and shape of the plume with the measurements.

In the meantime, the lidar has been further developed. Now, the particale backscatter data are visualized in real-time which allows to see the structure of aerosol plumes and identify their source in realtime during the measurements. The implementation of rotational Raman lidar channels allows now the direct and simultaneous measurement of the particle backscatter and extinction coefficients. Furthermore, other important atmospheric parameters like temperature are measured simultaneously. These characteristics render the new lidar unique worldwide.

The model which has been developed within this project allows calculating the spatial structures of aerosols and their optical properties. A sensitivity analysis to quantify the uncertainties of the model results caused by incomplete knowledge of aerosol contents and mass concentration distribution shows that the particle backscatter coefficient can be assessed here only within +50/-70%. This uncertainty can be reduced in future field experiments by improved in-situ and lidar measurements.

The combination of observations and modelling developed within this project could be used for an improved representation of aerosol sources in large-scale atmospheric modelling. Furthermore, aerosol sources could be assessed with regard to the health hazards they possibly pose, a prerequisite for mitigation measures.

1. Einleitung: Bedeutung dieser Untersuchungen

Aerosole beeinflussen die menschliche Gesundheit, das Klima und biogeochemische Kreisläufe. Die Relevanz einzelner Aerosoltypen in einem jeweiligen Kontext ist nicht nur von ihrer Zusammensetzung und der Quellstärke abhängig, sondern auch von der Partikelgrößenverteilung und dem Mischungsgrad. Deswegen sind Aerosolcharakterisierungen notwendigerweise komplexer als andere stoffbezogene Umweltuntersuchungen.

Das Klima wird von anthropogenen Spurengas- und Partikelemissionen wesentlich beeinflusst – global, aber auch regional. Die Bilanzierung klimarelevanter Emissionen ist offensichtlich eine Voraussetzung für wirksame Klimaschutzmassnahmen. Die wichtigsten direkten anthropogenen Aerosolquellen (sog. Primäraerosolquellen) und Quellen von Gasen, die Partikelvorläufer sind (sog. Sekundäraerosolquellen), so industrielle Schwefeldioxid-Emissionen oder Ruß-Emissionen in Verkehr, Landwirtschaft (Biomassenverbrennung) und Industrie, wurden bereits quantifiziert und in globalen und regionalen Klimamodellen berücksichtigt (z.B. Stier et al., 2006; Memmesheimer et al., 2004). Aerosolemissionen aus der Landwirtschaft, Pflanzen- und Tierproduktion sind jedoch hingegen noch kaum untersucht (z.B. Kjelgaard et al., 2004; Lammel et al., 2004; Hobbs et al. 1999) geschweige denn quantifiziert worden. Sie stellen somit starke Unsicherheitsquellen bei der Klimamodellierung (Hobbs 1993; Kondratyew, 1999; IPCC, 2007) dar.

Ein weiterer wichtiger Aspekt in der Aerosolforschung beschäftigt sich mit der Abschätzung von gesundheitsgefährdenden Wirkungen (Müller und Wieser, 1987; Seedorf et al., 1998; Seedorf, 2004; Takai et al., 1998; Dockery et al., 2001). Vielfältige Anstrengungen galten insbesondere in den letzten zwei Dekaden der Erforschung von Umweltproblemen, welche mit Aerosolemissionen der Nutztierhaltung verbunden sind (siehe z.B. Lange et al., 1999; Jongbloed and Lenis 1998). Die mit Nutztierhaltung verbundenen Emission können insbesondere zu schweren Gesundheitsproblemen der Arbeiter in den Betrieben und von Anwohnern führen (siehe, Praml, 1990; Heederik et al., 1991; Ryalander et al., 1986; Mackiewicz, 1998; sowie Referenzen in diesen Veröffentlichungen). Numerische Studien zur Simulation der Aerosolflüsse von Nutztierbetrieben wurden in diesem Zusammenhang von Bjerg et al. 2004 sowie von Fraigneau et al. 1995 durchgeführt.

Für beide Bezüge – der Klimarelevanz und dem Umweltaspekt – ist es notwendig, neben den chemischen die mikrophysikalischen Eigenschaften von Aerosolpartikeln, die aus der Landwirtschaft emittiert werden, im Nahbereich der Quelle (einige km entsprechend 5-20 Minuten Transportzeit) zu kennen.

Zur Abschätzung dieser Parameter reichen In-Situ-Messungen, also Punktmessungen an einem Ort, nicht aus. Es müssen Messgeräte eingesetzt werden, die die 4-dimensionale Struktur (3 räumliche Dimensionen in Abhängigkeit von der Zeit) optischer Aerosolpartikeleigenschaften erfassen können. Diese müssen mit Modellen kombiniert werden (z.B. Kost, 1997), um ein konsistentes Bild der Verteilung der Aerosolparameter in Abhängigkeit von meteorologischen Bedingungen zu erhalten.

Die Prozesse nahe der Quelle umfassen auch das Kondensieren von bei höheren Temperaturen gasförmigen Substanzen, sowie Agglomerationsprozesse, chemische Reaktionen und das Anlagern der Reaktionsprodukte an vorhandene Partikel. Dadurch werden die Masse in der Partikelphase, die Zusammensetzung, die Partikelgrößenverteilung und der Mischungsgrad beeinflusst. Die messtechnische Erfassung dieses komplexen Prozesses im Nahbereich der Quelle ist ambitioniert, wissenschaftlich lukrativ und anwendungsrelevant. Ihre Abbildung in einem Modell erlaubt die Übertragung auch auf andere Aerosolquellen. Derzeit wird die Nutzung von Lidar-Systemen zur quantitativen Charakterisierung von Aerosolemission vorange-

trieben – gerade auch bezüglich landwirtschaftlicher Quellen (Eichinger et al., 2006; Zavyalov et al., 2006 a, 2006b). Vor einigen Jahren schon wurde über vorläufige Ergebnisse einer offenbar ähnlichen Studie berichtet (Hartung et al., 1998): Über dem zentralen Abluftschacht einer Schweinemast und in einem Abstand von etwa 100 m wurden ein starkes Lidarsignal detektiert. Diese Messungen lagen aber nur in einem Profil vor.

Die hier erstmals für derartige Studien verwendete Lidarwellenlänge von 355 nm erlaubt die Bestimmung des Partikelrückstreukoeffizienten durch Kalibrierung anhand des deutlichen molekularen Rückstreusignals im Ultravioletten. In vorhergehende Studien wurden die von Nutztierbetrieben emittierten Aerosole zwar mittels Lidar detektiert, die verwendeten Wellenlängen im nahen Infrarot gestatten jedoch keine über eine Detektion hinausgehende Bestimmung der optischen Streueigenschaften der Aerosole.

In diesem Projekt wurde eine neuartige Methode, die räumlich und zeitlich hochaufgelöste Messungen und Modellsimulationen verbindet, entwickelt und erprobt. Dies umfasste die Schritte:

1. Modifikation eines existierenden Lidarsystems zu einem augensicheren, abtastenden System mit einer Sendewellenlänge von 355 nm: *hier Abschnitt 2*
2. Weiterentwicklung eines kleinskaligen Atmosphären-Chemie-Modells zu einem für die Anwendung im Projekt geeigneten Mikrophysik-Chemie-Transport-Modell: *hier Abschnitt 3*
3. Feldmessungen nahe einer Schweinemast, Mettingen (Westfalen), September 2005, einschließlich Modellsimulationen der messtechnisch erfassten Situationen und Vergleich zwischen Modellvorhersage und Messung: *hier Abschnitt 4*

2. Das augensichere, abtastende Lidar-System des IPM

2.1 Eigenschaften von Lidar-Messungen

Zur Messungen 2-dimensionaler (2D) oder sogar 3D räumlich aufgelöster Aerosolverteilungen kommt nur die aktive Fernerkundung mit Lasern (Lidar: Light Detection and Ranging) in Frage. Die elektromagnetische Transmission in diesem kurzen Wellenlängenbereich des Lichts verursacht eine starke Wechselwirkung mit den Molekülen und Aerosolpartikeln in der Luft. Dabei bietet es sich an, elektromagnetische Wellen mit möglichst kurzer Wellenlänge (300-400 nm) einzusetzen, da diese von Aerosolpartikeln besonders effizient absorbiert und gestreut werden. Zudem ist das molekulare Rückstreusignal bei Verwendung einer kurzwelligen Sendewellenlänge stark (der Rückstreuquerschnitt folgt einer λ^{-4} Abhängigkeit), so dass dieses zur Kalibrierung genutzt und der Partikelrückstreukoeffizient bestimmt werden kann. Ferner ist es erstrebenswert, augensichere Wellenlängen zu verwenden, damit ohne große Sicherheitsbeschränkungen räumliche Abtastungen vorgenommen werden können. Dieses trifft für Wellenlängen im Bereich von 355 nm zu. Die raum-zeitliche Information über die Verteilung von Aerosolpartikeln, die mit Lidar-Messungen erhalten werden kann, gibt Auskunft über die Emission und den Transport von Aerosolpartikeln.

Die Intensität des Lidar-Signals ist abhängig von den optischen Eigenschaften der Partikel. Deshalb erlauben die Messungen von Rückstreu- und Extinktionskoeffizienten und Rückschlüsse auf deren mikrophysikalischen Eigenschaften. Allerdings ist die eindeutige Zuordnung der Mikrophysik nur durch die Synergie mit In-situ-Sensoren oder durch die simultane Transmission vieler Wellenlängen möglich ist (Althausen et al. 2000, Müller et al. 2000). Ein

anderer Weg, dieser wird hier besprochen, ist die Kombination des Informationsgehalts der Lidar-Messungen mit Simulationen eines Modells.

Bisher gibt es nur vereinzelte Untersuchungen von Aerosolpartikelquellen aus der Landwirtschaft mittels Lidar (Holmén et al. 1998, Hartung et al. 1998, Holmén et al. 2001a, 2001b). Diese Untersuchungen zeigen das große Anwendungspotenzial der Lidar-Technik.

2.2 Systemaufbau

Im Rahmen dieses Projekts wurde ein abtastendes, augensicheres Aerosol-Lidar-System entwickelt (Behrendt 2005). Es wurde am Institut für Physik und Meteorologie (IPM) der Universität Hohenheim (UHOH) im Laufe des Jahres 2005 fertig gestellt und in ein Fahrzeug integriert. Der erste Einsatz fand bei der BWplus Messkampagne im September 2005 in Mettingen, Kreis Steinfurt, statt.

Inzwischen wurde das System in Bezug auf seine Messeigenschaften erweitert und ist in der Lage, simultan 2-3D Temperaturfelder in der atmosphärischen Grenzschicht zu vermessen (Pal et al. 2006, Radlach et al. 2006, Radlach et al. 2007). Ferner wurde das System im Sommer 2006 im Schwarzwald bei einer Messkampagne zur Untersuchung konvektiver Prozesse im Rahmen des virtuellen Instituts COSI^{TRACKS} (s. www-fzk.imk.uni-karlsruhe.de/2256.php) und bei dem Weltwetterforschungsprogramm COPS (Convective and Orographically-induced Precipitation Study, s. www.uni-hohenheim.de/cops und Wulfmeyer et al. 2007) erfolgreich eingesetzt.

2.2.1 Transmitter

Der schematische Aufbau des scannenden Lidarsystems ist in Abb. 2.1 dargestellt. Als Strahlungsquelle wird ein Blitzlampen gepumpter Nd:YAG-Laser der Fa. Spectra-Physics, Modell GCR5-30, verwendet. Der Laser emittiert durch Frequenzverdoppelung und -verdreifachung zusätzlich zu den primären 1064 nm gleichzeitig Laserpulse mit den Wellenlängen 532 nm und 355 nm.

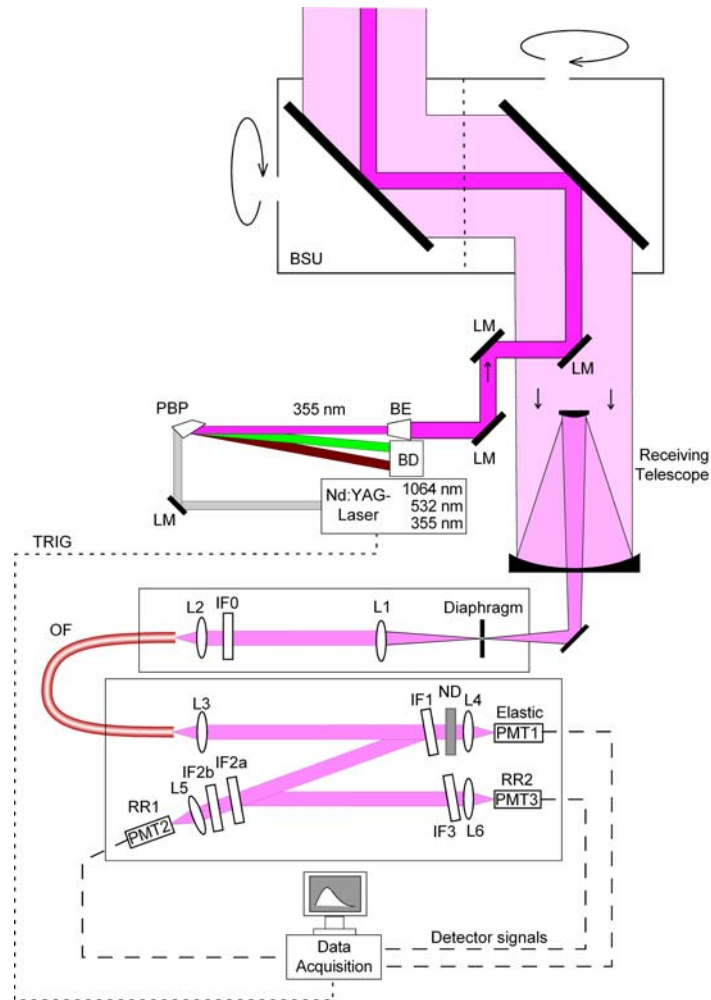
Für einen scannenden Betrieb ist die Augensicherheit von entscheidender Bedeutung, um Schäden auszuschließen. Da das Auge bei 1064 und 532 nm transparent ist, wird Strahlung dieser Wellenlängen auf die Netzhaut fokussiert. Deshalb wäre für einen augensicheren Betrieb eine sehr große Strahlaufweitung notwendig, die kaum technisch realisierbar wäre. Anders verhält es sich bei 355 nm, da Strahlung dieser Wellenlänge bereits in den äußeren Augenhautschichten absorbiert wird. Deshalb ist für diese Strahlung eine Strahlaufweitung auf einen Durchmesser von 15 cm ausreichend, um bei einer Pulsenergie von 400 mJ und einer Pulsdauer von 10 ns Augensicherheit zu erreichen. Aus den genannten Gründen, wird Strahlung mit den Wellenlängen 532 nm und 1064 nm vom UHOH Lidar nicht in die Atmosphäre emittiert, sondern mittels dichroitischer Strahlteiler im Strahlengang umgelenkt und in einer Strahlfalle absorbiert. Nur Strahlung der Wellenlänge 355 nm wird nach einer 4,5-fachen Strahlaufweitung in die Atmosphäre emittiert. Ausgehend vom Strahldurchmesser nach der Aufweitung und der vorhandenen Divergenz erreicht der Laserstrahl einen Durchmesser von 15 cm in einer Entfernung von ca. 270 m und ist ab dieser Entfernung augensicher. Die Spezifikationen des Transmitters sind in Tab. 2.1 zusammengefasst.

Tab. 2.1: *Parameter des Transmitters*

Typ	Blitzlampen gepumpter Nd:YAG, frequenz-verdreifacht
Firma	Spectra-Physics
Modell	GCR5-30
Wellenlängen	355 nm 532 und 1064 nm / durch Strahlenfalle geblockt
Pulsenergie	1300 mJ @1064 nm 600 mJ @532 nm 400 mJ @355 nm
Repetitionsrate	30 Hz
Pulsdauer	< 10ns
Strahldivergenz (voller Winkel, aufgeweitet)	ca. 0,4 mrad
Strahldurchmesser (aufgeweitet)	45 mm

Der Laserstrahl wird koaxial zum Empfangsteleskop transmittiert. Hierzu befindet sich direkt über dem Sekundärspiegel des Teleskops ein Umlenkspiegel, mit dessen Hilfe der Laserstrahl genau in der Mitte des Teleskops auf die Scannerspiegel umgelenkt wird. Damit wird voller Überlapp des Laserstrahls mit dem Gesichtsfeld des Teleskops schon in Nahbereich bei etwa 300 m erreicht.

Abb. 2.1: Aktueller Aufbau des IPM Lidar-Systems. *BD: Strahlfalle, BE: Strahlaufweitung, BSU: Scanner (beam steering unit), IF: Interferenzfilter, L: Linsen, LM: Laserspiegel, PBP: Pellin-Broca Prisma, PMT: Photomultiplier.*



2.2.2 Empfänger

Das aus der Atmosphäre zurück gestreute Licht wird über die Scannerspiegel von einem Teleskop empfangen und mittels Umlenkspiegel und zweier Linsen auf einem Photomultiplier abgebildet. Bei der Messkampagne in Mettingen wurde ein Interferenzfilter mit 8 nm voller Halbwertsbreite der Transmission (FWHM) integriert. Inzwischen wurde dieser Filter durch einen neuen mit einer FWHM von nur 0,5 nm ersetzt, um eine bessere Reduktion des Tageslichtuntergrunds zu erreichen. Diese Maßnahme hat einen positiven Einfluss auf das Signal-Rausch-Verhältnis (SNR) der Rückstreusignale.

Die Signale des Detektors werden mittels eines Transientenrekorders digitalisiert und anschließend auf einem handelsüblichen PC aufgezeichnet. Der Transientenrekorder ermöglicht eine zeitliche und räumliche Auflösung des Lidar-Systems von bis zu 1/30 s und 3 m. Damit handelt es sich hier um eines der höchstauflösendsten Lidar-Systeme. Die technischen Daten können Tab.2.2 entnommen werden.

Tab. 2.2: Technische Daten des Empfängers.

<u>Teleskop</u>	
Firma	Astro Optik
Typ	Ritchey-Chretien
effektive Brennweite	4082 mm
Primärspiegel-Durchmesser	415 mm
Brennweitenverhältnis	f/10
Beschichtung	Aluminium mit Quarz-Schutzschicht

<u>Interferenzfilter</u>	
Firma	Eureca
Wellenlänge	355 nm
FWHM	8 nm
Transmission	50 – 55 %
Sperrung	$< 10^{-5}$
Durchmesser	50 mm

<u>PMT</u>	
Firma	Licel
Detektor Typ	Hamamatsu R7400-U02
Durchmesser der Empfangsfläche	8 mm

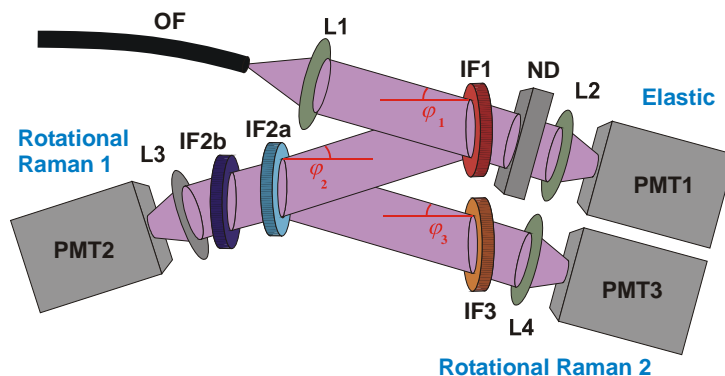
<u>Transientenrekorder</u>	
Firma	Gage
Typ	CompuScope 14100
Auflösung	14 bit
Abtastrate	50 MS/s (2 Kanäle)
Kanäle	max. 2

Eine wichtige Neuerung ist die Erweiterung der meteorologischen Variablen, die mit diesem System erfasst werden können. Es wurde ein kompakter Empfänger implementiert, der mittels der Rotations-Raman-Lidar (RRL)-Methode die simultane Messung von Temperaturprofilen mit hoher zeitlicher und räumlicher Auflösung ermöglicht (Behrendt et al. 2002, Behrendt et al. 2004, Behrendt 2005). Ferner ermöglichen Raman-Lidar-Kanäle eine genauere Eichung der Rückstreusignale. Weiter Informationen über die neuen Messmöglichkeiten kann Radlach et al. 2007 entnommen werden. Der gegenwärtige Aufbau des Empfängers wird auf Abb. 2.2 dargestellt. Besonderes Augenmerk wurde auf einen kompakten, stabilen

und effizienten Aufbau gelegt. Unseres Wissens besitzt dieses System gegenwärtig die höchste Auflösung und Genauigkeit in Bezug auf die Fernerkundung der Temperatur in der Troposphäre.

Durch diese Erweiterungen können weitere Variablen für Vergleiche und Initialisierungen von Modellen genutzt werden (Behrendt und Wulfmeyer 2003). Die zusätzliche Detektion von RRL-Rückstreusignalen ermöglicht die Messungen von Temperaturprofilen, von Aerosol-Extinktionsprofilen und des Lidar-Verhältnisses. Geplant ist eine weitere Reduktion des Tageslichtuntergrunds mittels eines Fabry-Ferot-Interferometers.

Abb. 2.2: Design des Rotations-Raman-Lidar-Polychromators des IPM Lidar-Systems. Der Polychromator ist fasergekoppelt mit dem Empfangsteleskop. OF: Optische Faser; L1 – L4: Linsen; IF1 – IF3: Interferenzfilter, ND: Optionaler Neutralfilter.



2.2.3 Scanner

Ziel des Projektes ist es, die dreidimensionale Aerosolverteilung mit einer hohen zeitlichen Auflösung zu erfassen. Deshalb wurde das am IPM vorhandene Lidar-System mit einem Scanner ausgestattet (s. Abb. 2.3). Die hierzu notwendigen Investitionen sind zum Großteil durch BWplus bewilligt und finanziert worden.

Der Scanner wurde durch die feinmechanischen Werkstätten des NCAR (National Center for Atmospheric Research) in Boulder gefertigt. Die einzelnen Komponenten wurden separat bei verschiedenen amerikanischen Firmen bestellt und durch das NCAR zu einem Scanner integriert. Der Scanner wurde im Frühjahr 2005 an das IPM geliefert.

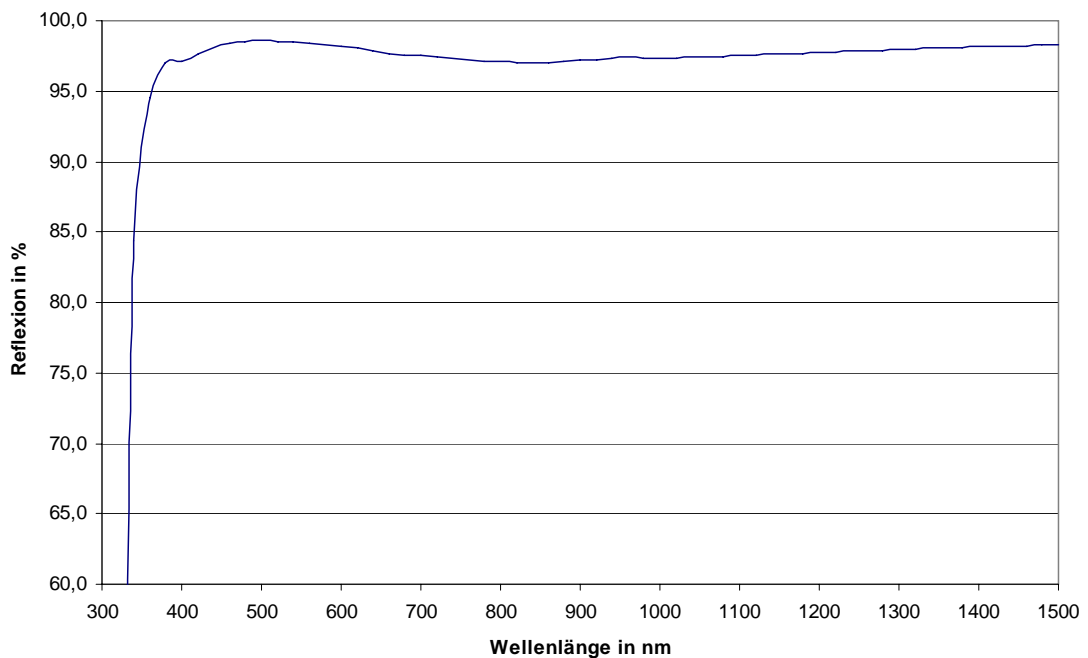
Tab. 2.3: *Komponenten des Scanners*

<u>Spiegel</u>	
Firma	Optical Surface Technologies Albuquerque, NM 87107 USA
Beschichtung	Silber mit Schutzbeschichtung mit verbesserter Reflektivität bei 355 nm / 45° (Reflektivitätskurve s. Abb. 3)
Substrat	Zerodur
Abmessungen	achteckig Hauptachsen: 609.6 mm x 431.8 mm Dicke: 25.4 mm
<u>Motoren</u>	
Firma	Animatics Corporation Santa Clara, CA 95054 USA
Typen	SM2340 mit Planetengetriebe GH23P10 + SM3420 mit Planetengetriebe GH34P10 Motoren jeweils inkl. Encoder mit 4000 Impulsen/Umdrehung

Abb. 2.3: *Scanner des IPM Lidar-Systems während einer Messung*



Abb. 2.4: Reflexionskurve der Scannerspiegelbeschichtungen: Silber mit Schutzbeschichtung, verbessert („enhanced“) bei 355 nm / 45°, für unpolarisiertes Licht.



Die Scangeschwindigkeit ist in einem großen Bereich variierbar, und zwar von $10^\circ/\text{s}$, so dass ein 360° -Scan weniger als eine Minute dauert, bis zu weniger als $0.1^\circ/\text{s}$. Die Winkelauflösung der Decoder beträgt etwa 0.03° . Durch die Verwendung von Schleifkontakten ist ein kontinuierliches Drehen des Scanners in eine Richtung möglich.

Eine Zusammenfassung der einzelnen Komponenten ist in Tab. 2.3 enthalten. Die Reflexionskurve der Spiegel ist in Abb. 2.4 wiedergegeben. Die breitbandige hohe Reflektivität erreicht Werte $> 95\%$ im Bereich 350 – 1500 nm.

2.2.4 Steuerung

Zur Steuerung des Systems wurde am IPM eine Softwarelösung erstellt, die auf dem Paket Labview basiert. Eine Oberfläche erlaubt die Eingabe aller relevanter Parameter zur Durchführung einer Messung und zur Abspeicherung aller Daten, die zur Inversion der Lidar-Signale benötigt werden.

Den gegenwärtigen Stand der Bedienungsoberflächen zeigen die Abb. 2.5 und 2.6. Inzwischen wurden weitere Kanäle für Temperaturmessungen mit der RRL-Methode bereitgestellt. Auf der rechten Seite der Abbildung wird in Echtzeit ein Rückstreuprofil dargestellt. Dabei werden auf der x-Achse der Abstand vom Lidar-System und auf der y-Achse die Signalintensität aufgetragen. Auf der linken Seite sieht man das Signalverhältnis der beiden Rotations-Raman-Kanäle, das schon näherungsweise proportional zum atmosphärischen Temperaturprofil ist. Durch diese Darstellung kann die Qualität der Messungen in Echtzeit kontrolliert werden. Die Datenerfassungssoftware erlaubt die folgenden Einstellungen des Nutzers:

1. Wahl des Sektors zur Abtastung, Abtasttyp, Auflösung der Abtastschritte, Anzahl der Abtastschritte, Zeitauflösung pro Abtastung, Entfernungsauflösung, usw. Natürlich können Standardabtastungen wie PPI- und RHI-Scans umgehend durchgeführt werden.
2. Die Datenerfassung kann über eine GPS-Zeitkarte extern getriggert werden, um eine Synchronisation der Abtastung mit anderen Fernerkundungssystemen am Standort zu erreichen. Diese Koordination wurde erstmalig erfolgreich dieses Jahr bei der Messkampagne COPS durchgeführt.
3. Der Nutzer kann den Abtastmodus durch ein Batchfile starten. Die Abtastung läuft dann kontinuierlich bis sie wieder gestoppt wird.
4. Die GPS-Zeit wird kontinuierlich mit dem Scanner-Elevations- und Azimutwinkel angezeigt und im Datenfile abgespeichert.
5. Komplizierte zeitlich und räumlich koordinierte Abtastungen (z.B. sich ändernde Azimutwinkel entlang oder senkrecht zum Horizontalwind) sind ebenfalls möglich und wurden auch bei COPS in Zusammenarbeit mit dem Forschungszentrum Karlsruhe erprobt.
6. Inzwischen kann der Betrieb des Systems als semi-automatisch und routinemäßig bezeichnet werden.
7. Eine große Anzahl von IDL-Routinen zur Visualisierung von 1D bis 3D-Daten, zur Bestimmung weiterer atmosphärischer Variablen wie z.B. die Grenzschichthöhe und zur statistischen Analyse der Daten wie die Bestimmung von Turbulenz- und Fehlerprofilen wurden ebenfalls entwickelt.

Das Umschalten auf eine andere Oberfläche während der Messung erlaubt die Zeit-Höhen-Darstellung der Rückstreudaten, was sehr wichtig für die Kalibrierung der Orientierung des Scanners ist (s. Abb. 2.6).

Abb. 2.5: Neue Bedienungs Oberfläche für das IPM Lidar-System.

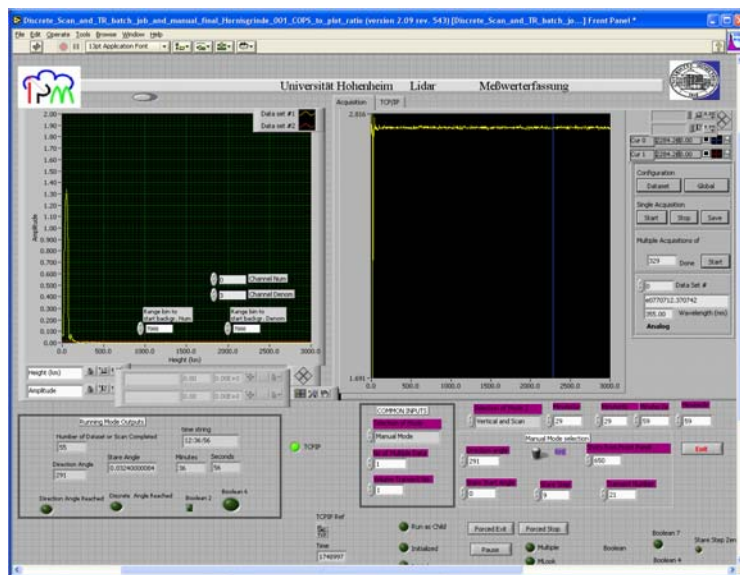
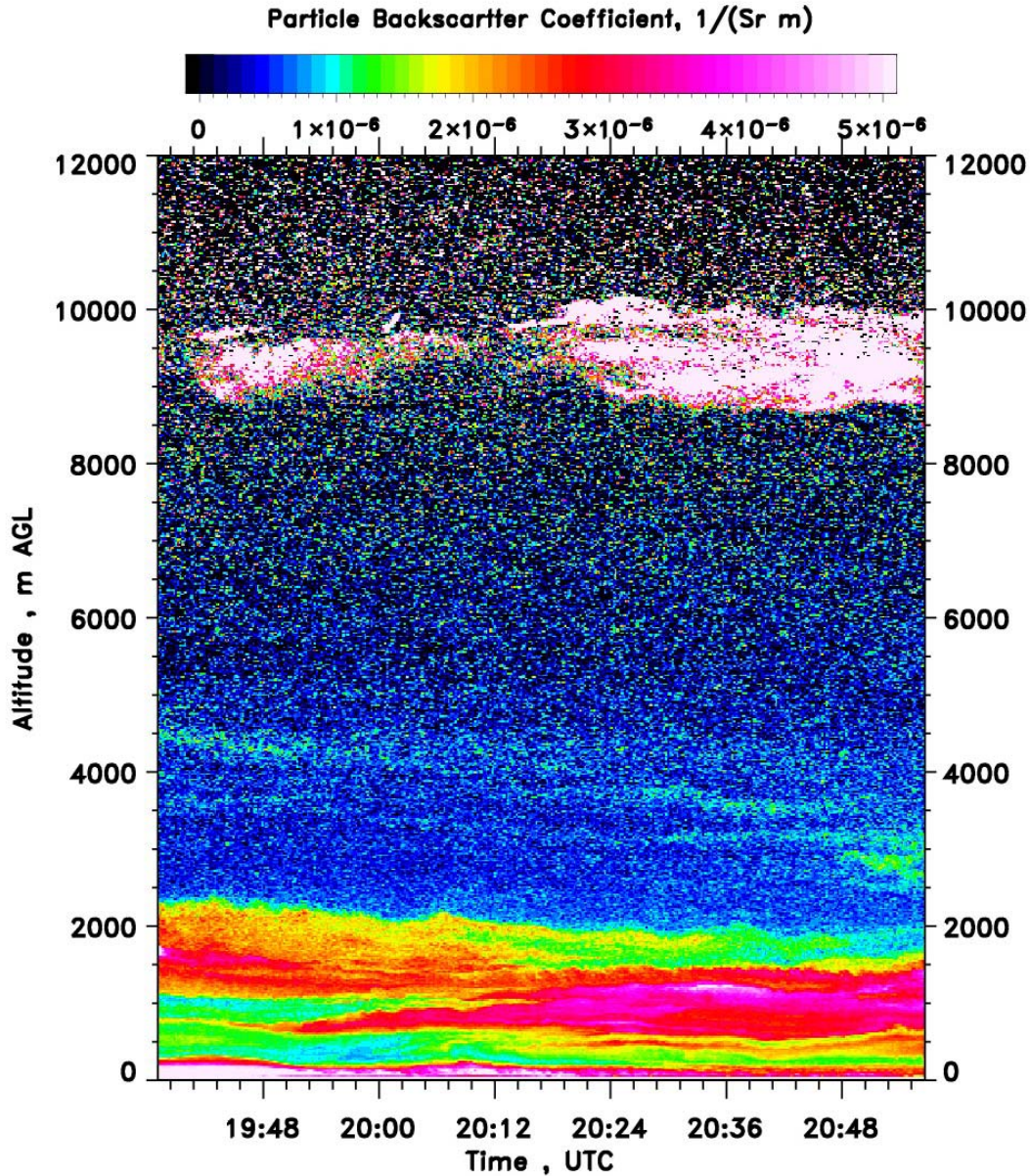
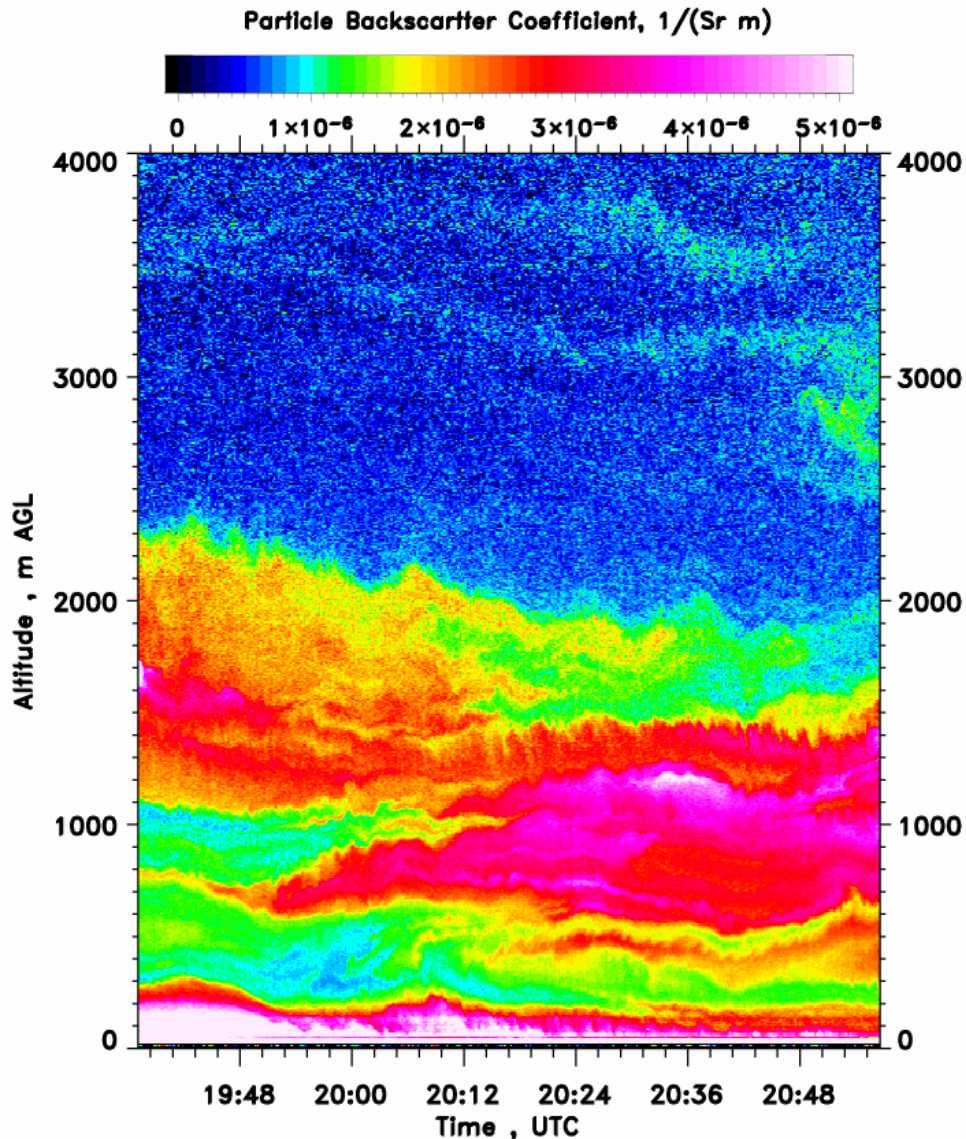


Abb. 2.6: Echtzeitdatenanalyse mit dem IPM Lidar-System. Die Partikelrückstreukoeffizient gemessen mit der Rotations-Raman-Lidarmethode von der Grenzschicht bis zu einer Zirruswolke wurden während COPS am 12.08.2007 mit Auflösungen von 13 s und 3.75 m aufgenommen. Oben: Gesamtaufnahme; unten: Zoom in die Grenzschicht. Durch das sehr gute Signal-Rausch-Verhältnis ist das System in der Lage, die Schichtung in der Atmosphäre, Luftverschmutzungen, Wellenphänomene und Wolkenstrukturen mit hoher Auflösung zu vermessen.





2.2.5 Mobile Plattform

Es ist notwendig, dass das Lidarsystem mobil ist, um möglichst flexibel einsetzbar zu sein. Als mobile Plattform zum Einbau des Lidar-Systems dient ein LKW der Marke Mercedes-Benz, Modell 814. Diese Plattform wurde unserem Institut vom GKSS-Forschungszentrum in Geesthacht überlassen, da es dort nicht weiter verwendet werden sollte. In diesem LKW ist bereits früher ein Lidar-System installiert gewesen, so dass einige wesentliche Komponenten der notwendigen Inneneinrichtung bereits vorhanden waren. Für den Einbau des augensicheren Aerosol-Lidars wurden diverse Anpassungen durchgeführt, um eine stabile Justierung des Systems während eines Transports und während der Messungen zu gewährleisten. Das System kann nun routinemäßig bei nationalen und internationalen Messkampagnen eingesetzt werden. Es ist innerhalb eines Tages am Messstandort betriebsbereit.

Abb. 2.7: Messfahrzeug inkl. Scanner in Mettingen



Zum Einbau des IPM-Lidar-Systems in den LKW wurde aus Aluminiumprofilen – überwiegend $120 \times 60 \text{ mm}^2$ – der Fa. Item GmbH ein Gestell konstruiert und aufgebaut. Dieses muss eine große Stabilität und Steifigkeit aufweisen, damit es im Messbetrieb nicht zu Störungen durch mechanische Effekte kommt. Auf dieses Gestell wurden optische Montageplatten der Fa. Newport GmbH befestigt, auf denen die einzelnen optischen Komponenten direkt verschraubt werden können.

Da der freie Durchmesser des neuen Scanners größer ist, wie der ursprünglich vom GKSS montierte, musste die Dachdurchführung erweitert werden. Außerdem wurde ein neuer Adapter konstruiert, auf dem der neue Scanner montiert werden kann. Der Adapter musste dabei stabil genug sein, um ausreichende mechanische Stabilität auch im Scannerbetrieb zu garantieren.

Ein hinreichend stabiler Rahmen in der Wand-/Deckenkonstruktion des LKWs war vorhanden und wurde für den neuen Adapter genutzt. Gleichzeitig musste sichergestellt werden, dass weder durch den Scanner noch durch einen Deckel, der während eines Fahrzeugtransportes montiert wird, Wasser eindringen kann. Dieses wurde durch die Integration eines massiven O-Ringes erreicht. Zum Schutz des Scanners vor atmosphärischen Einflüssen, z.B. Sturm, Hagel, etc., wurde eine separate Abdeckung aus Aluminium hergestellt, die im Messbetrieb abgenommen wird.

Die maximale Höhe eines zugelassenen Fahrzeugs in Deutschland beträgt 4 m. Höhere Fahrzeuge dürfen nur als Sondertransporte bewegt werden, was jeden Transport enorm verteuern würde. Da der LKW zusammen mit dem Scanner höher als 4 m ist, wird der Scanner für einen Transport demontiert. Dazu wird mittels eines auf dem LKW montierbaren Krans (s.

Abb. 2.8) der Scanner vom Dach herunter- bzw. heraufgehoben. Zudem wurden zwei fahrbare Wagen angefertigt, auf denen der Scanner sicher befestigt werden kann, so dass er jederzeit problemlos und ohne externe Hilfe am Boden bewegt werden kann. Der eine Wagen kann direkt in das Innere des LKWs gerollt und dort für den Transport gesichert werden. Die Luftbereifung des Wagens schützt den Scanner vor harten Stößen.

Abb. 2.8: Scanner, Abdeckhaube und demontierbarer Kran



2.3 Auswertung der Messungen

2.3.1 Lidar-Methodik

Die Lidar-Gleichung wurde in den vorherigen Berichten ausführlich diskutiert, so dass hier nur die wichtigsten Aspekte für die Datenanalyse zusammengefasst werden. Die Lidar-Gleichung enthält fundamentale Information über die Verteilung atmosphärischer Variablen. Gegenwärtig ist Lidar die einzige Methode, um optische Eigenschaften von Partikeln dreidimensional messen zu können. Es gilt

$$P_{\lambda}(R) = P_{0,\lambda} \frac{c t_p}{2} K \frac{A}{R^2} O(R) \beta_{\lambda}(R) \exp\left(-2 \int_0^R \alpha_{\lambda}(r) dr\right)$$

Dabei sind:

- P – Empfangene Leistung
- R – Entfernung
- $P_{0,\lambda}$ – Ausgangsspitzenleistung des Laserpulses
- c – Lichtgeschwindigkeit
- t_p – Pulsdauer des Lasers
- K – Effizienz des Detektorsystems
- A – Empfangsfläche des Teleskops
- $O(R)$ – Überlappfunktion
- β_λ – atmosphärischer Rückstreuoeffizient (Partikel und Moleküle)
- α_λ – atmosphärischer Extinktionskoeffizient (Partikel und Moleküle)

mit

$$\beta_\lambda(R) = \beta_{\lambda,mol}(R) + \beta_{\lambda,par}(R)$$

und

$$\beta_{\lambda,par}(R) = \int_0^\infty Q_{bsc,\pi}^{par}(r, m, \lambda) \pi r^2 n(r) dr ,$$

wobei $\beta_{\lambda,mol}(R)$ und $\beta_{\lambda,par}(R)$ die Streukoeffizienten für molekulare Streuung und Partikelstreuung in Rückwärtsrichtung sind. Während die molekularen Rückstreu- und Extinktionskoeffizienten aus der molekularen Teilchenzahldichte direkt aus Temperatur- und Druckprofilen berechenbar sind, hängt $\beta_{\lambda,par}(R)$ in komplexer Weise von den Partikeleigenschaften ab. Dieser Koeffizient enthält wertvolle Information über die mikrophysikalischen Eigenschaften der Partikel, die im Rahmen dieses Projekt extrahiert werden soll. Dabei ist das Überlappintegral zwischen der Mie-Rückstreuereffizienz $Q_\pi(r, m, \lambda)$ und der Größenverteilung der Partikel $n(r)$ zu berechnen. $Q_\pi(r, m, \lambda)$ ist vom Teilchenradius r , dem komplexen Brechungsindex m und der Wellenlänge abhängig. Dabei wird angenommen, dass die Partikel kugelförmig sind. Eine ähnliche Beziehung gilt für den Extinktionskoeffizienten:

$$\alpha_\lambda(R) = \alpha_{\lambda,mol}(R) + \alpha_{\lambda,par}(R)$$

wobei

$$\alpha_{\lambda,par}(R) = \int_0^\infty Q_{ext}^{par}(r, m, \lambda) \pi r^2 n(r) dr .$$

Da die Lidar-Gleichung im Prinzip zwei Unbekannte, den Partikel-Rückstreuoeffizienten und den –Extinktionskoeffizienten enthält, wird das Lidar-Verhältnis

$$S_\lambda(R) = \frac{\alpha_{\lambda,par}(R)}{\beta_{\lambda,par}(R)}$$

eingeführt. Im Folgenden wird der Index λ weggelassen, da alle Messungen bei der gleichen Wellenlänge von 355 nm durchgeführt wurden.

Ist das Lidar-Verhältnis bekannt, kann die Lidar-Gleichung invertiert und eine Beziehung für den Partikel-Rückstreuoeffizienten hergeleitet werden, die lautet (Fernald et al. 1972)

$$\beta_{par}(R) = \frac{A(R)}{S(R)B(R)} - \beta_{mol}(R)$$

Dabei wird die folgende Eichbeziehung in der Entfernung R_{cal} eingeführt:

$$C(R_{cal}) = \frac{S(R_{cal})R_{cal}^2 P(R_{cal})}{S(R_{cal})\beta_{mol}(R_{cal}) + \alpha_{par}(R_{cal})}$$

Die Lösung ist numerisch stabil, wenn der Eichwert im Fernfeld liegt ($R_{cal} > R$). Durch Rückwärtsintegration vom Fernfeld in den Nahbereich kann ein Profil des Partikel-Rückstreuoeffizienten ermittelt werden. In diesem Fall gilt (Sasano und Nakane 1984, Fernald 1984)

$$A(R) = S(R)R^2 P(R) \exp\left(2 \int_R^{R_{cal}} [S(r)\beta_{mol}(r) - \alpha_{mol}(r)] dr\right)$$

und

$$B(R) = C(R_{cal}) + 2 \int_R^{R_{cal}} A(r) dr$$

Die Modellsimulationen zeigen, dass ein Lidar-Verhältnis von $S = 40$ sr eine gute Annahme bei 355 nm unter der gegebenen experimentellen und meteorologischen Bedingungen war und um weniger als 10 % variierte. Damit konnte eine Inversion der Lidar-Gleichung mit konstantem Lidar-Verhältnis durchgeführt werden.

Dazu ist es notwendig, dass ein Fernbereich existiert, in dem die Partikel-Rückstreuung vernachlässigt werden kann. Dieses ist i.A. in der mittleren bis oberen Troposphäre der Fall. Ein geeigneter Bereich muss von Fall zu Fall durch die Analyse der Lidar-Rückstreusignale bestimmt werden. Damit wurde der Koeffizient C bestimmt und die Integration konnte durchgeführt werden..

Bei der Eichung konnten wir ferner von den Abtasteigenschaften des in Rede stehenden Lidar-Systems profitieren. Durch 2D- oder sogar 3D-Messungen war es möglich, hinter Aerosolquellen trotzdem eine Eichung im Fernfeld oder in der freien Troposphäre durchzuführen.

Gegenwärtig stellt sich der Stand der Datenanalyse-Werkzeuge am IPM wie folgt dar:

1. Inversionen von Lidar-Signalen mit dem oben beschriebenen Algorithmus sind in Echtzeit möglich für ein in eine Richtung messendes oder ein abtastendes Lidar.
2. Der Partikel-Rückstreuoeffizient kann inzwischen genauer mit der RRL-Methode durchgeführt werden (Radlach et al. 2007).
3. Die Grenzschichthöhe kann mit einer Reihe von Algorithmen automatisch bestimmt werden (Pal et al. 2007).
4. Höhere, turbulente Momente der Rückstreusignalfuktuationen können bestimmt werden.
5. Bilder und Filme können sehr schnell erzeugt werden.
6. Temperaturprofile können nahezu in Echtzeit bestimmt werden (Radlach et al. 2007).

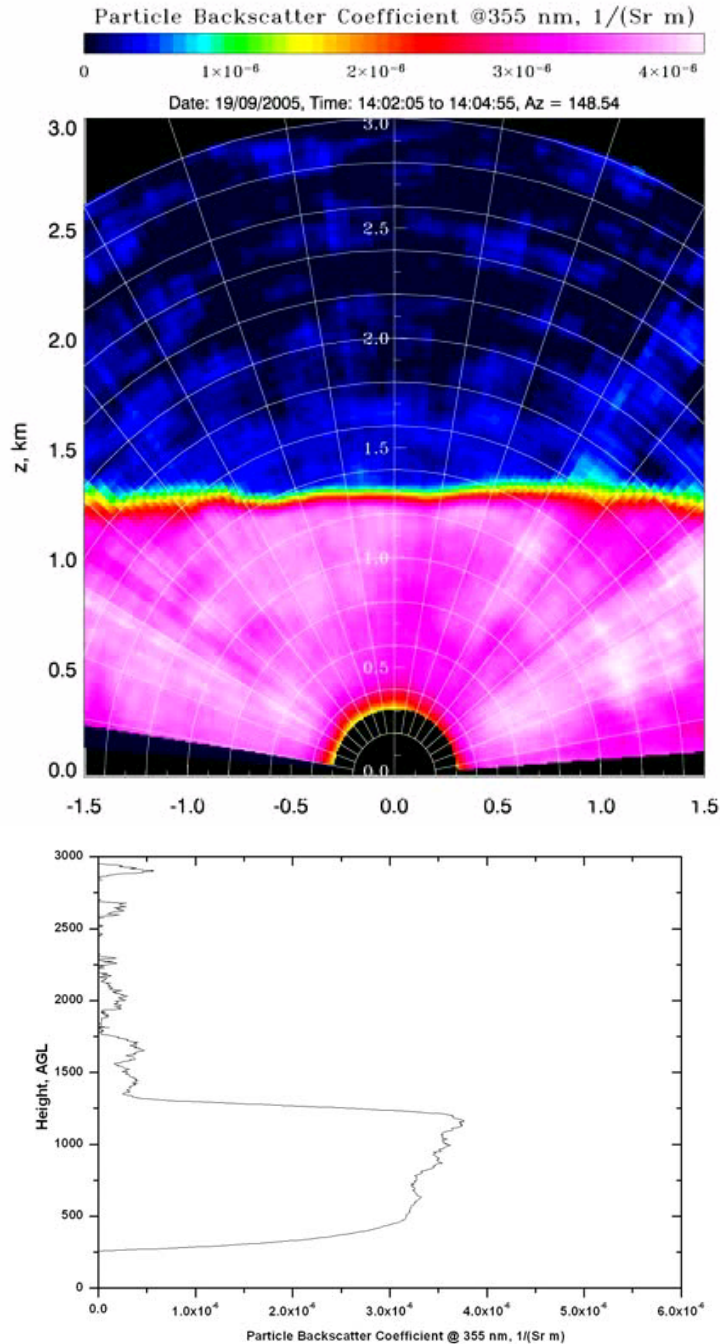
2.3.2 Anwendung der Lidar-Inversion auf Abtastungen

In Rahmen dieses Projekts mussten nicht nur Eichungen von Einzelprofilen sondern von PPI- und RHI-Abtastungen durchgeführt werden. Da die PPI-Abtastungen in der Grenzschicht stattfanden, war die Eichung durch das Fehlen eines konstanten Eichwerts im Fernfeld komplexer. Dabei wurde folgendermaßen vorgegangen:

Zunächst wurden die Daten eines RHI-Scans analysiert und ein Eichwert oberhalb der Grenzschicht vorgenommen. Die Inversion ergab ein Partikel-Rückstreuprofil in der Grenzschicht. Die Abbildung 2.9 (oben) zeigt ein Beispiel einer geeigneten RHI-Abtastung. Es ist deutlich die Grenzschichtoberkante zu erkennen, über der das System geeicht wurde. Es wurde eine aerosolpartikelfreie freie Troposphäre angenommen. Der untere Teil der Abbildung 2.9 zeigt das resultierende Partikel-Rückstreuprofil. Dieses Profil wurde geglättet, zum Boden extrapoliert und als Eichprofil für das Fernfeld bei den PPI-Scans verwendet.

In der Literatur wurden umfangreiche Fehlerbetrachtungen zu dieser Inversionsprozedur durchgeführt. Generell lässt sich sagen, dass der relative Fehler des Partikel-Rückstreukoeffizienten etwa dem Fehler des Eichwerts in % entspricht. Dazu kommt die Annahme, dass das Eichprofil im Fernfeld konstant war. Diese Annahme kann durch die turbulenzbedingte Variabilität und durch die Advektion der Partikel aus verschiedenen Quellen inkorrekt sein. Letzte Effekte können in den Daten beobachtet werden und führen zu einer Variabilität von etwa 20 %. Nimmt man einen Fehler der Eichung von 20 % an, so folgt ein Absolutfehler in der Bestimmung des Partikel-Rückstreukoeffizienten von < 50 %. Dieses stimmt gut mit Literaturwerten überein (Kovalev 1995)

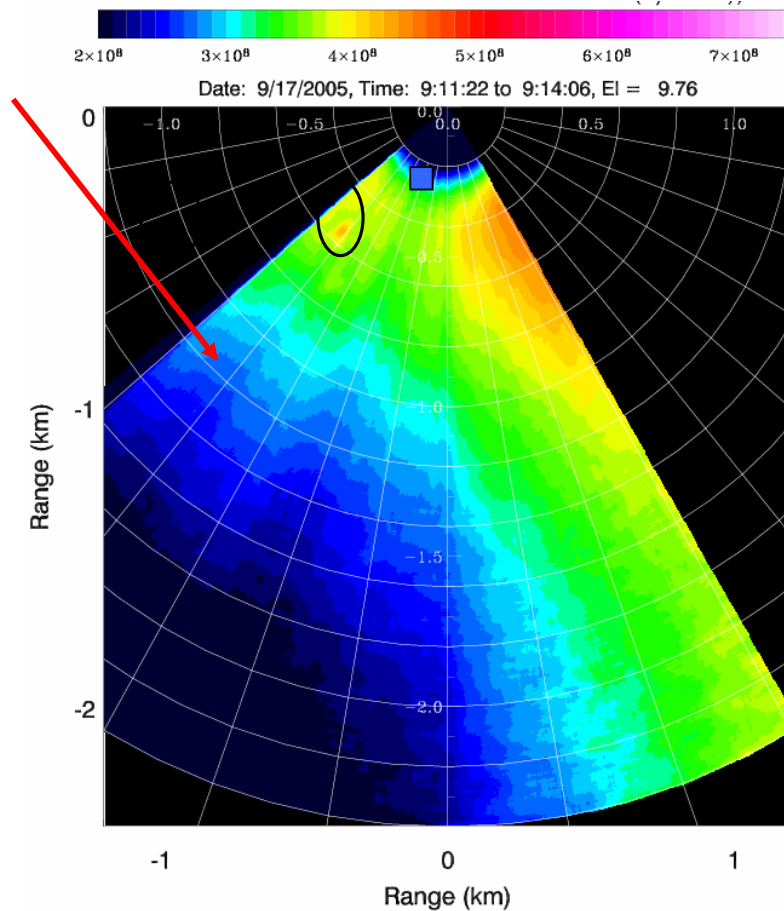
Abb. 2.9: Oben: Entfernungskorrigiertes Rückstreusignal einer RHI-Abtastung. Die Entfernungsringe haben einen Abstand von 200 m. Die Zeitauflösung beträgt 1 s and die Entfernungsauflösung 3 m bei einer Abtastgeschwindigkeit von etwa 1 %. Für die Bestimmung des Aerosolpartikel-Rückstreufeldes wurden die Rückstreuprofile mit einem 30 m-Fenster geglättet. x-Achse: Entfernung vom Lidar in km, z-Achse: Höhe über dem Boden. Unten: Ein Resultat der Inversion. Die Abnahme des Rückstreuprofils im Nahbereich ist ein Artefakt, der durch die bis in eine Höhe von etwa 400 m imkomplette Überlappfunktion verursacht wird. Resultate bis zu dieser Entfernung müssen bei der Analyse der Signale ausgeschlossen werden.



Das Ziel dieser Untersuchungen war aber nicht nur die Analyse der natürlichen Variabilität der Aerosolpartikel sondern deren Abgrenzung von Emissionen aus der Landwirtschaft. Dazu ist es essentiell, dass die Emission der Quellen in den Lidar-Daten sichtbar ist. Offensichtlich ist es nur möglich, anthropogene Quellen zu detektieren, deren Rückstreukoeffizient nicht kleiner als 20 % des gesamten Hintergrundrückstreukoeffizienten ist. Dieses Verhältnis sollte nahezu unabhängig von der verwendeten Wellenlänge sein. Wenn dieser Wert überschritten wird, kann trotz der systematischen, räumlichen Fehler in der Eichung und der turbulenten Fluktuationen des Rückstreukoeffizienten ein Signal durch eine Quelle extrahiert und quantifiziert werden. Während der Messkampagne betrug der Wert des Hintergrund-Partikelrückstreukoeffizienten etwa $2 \cdot 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$.

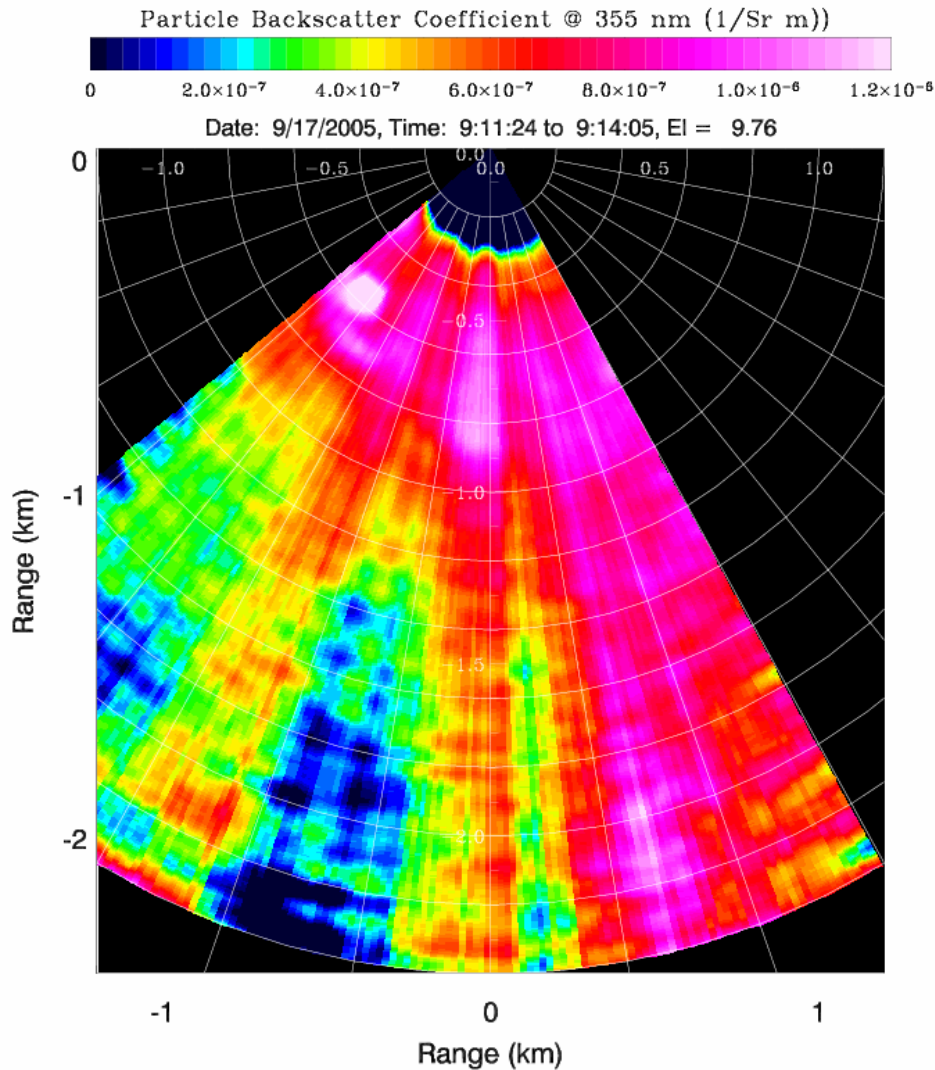
Nach der Eichung der RHI- und der folgenden Eichung der PPI-Abtastungen wurden die Daten auf mögliche Signaturen durch Aerosolpartikelemissionen sehr sorgfältig untersucht. Die Abb. 2.10 zeigt ein Beispiel, in dem eine Aerosolquelle klar detektiert wurde. Es wird aber auch deutlich, dass es sich nicht um den in Rede stehenden Betrieb handelt. Es handelte sich offensichtlich um eine andere landwirtschaftliche Aktivität. Diese Quelle ist auch nach Bestimmung des Partikel-Rückstreufeldes sichtbar (s. Abb. 2.11). Jedoch ist hier keine signifikante Erhöhung des Partikel-Rückstreufeldes im Bereich des Betriebes detektierbar.

Abb. 2.10: Entfernungskorrigiertes Rückstreusignal einer PPI-Abtastung. Der Kreis markiert eine detektierte Aerosolquelle (links) aber auch den Mangel einer Signatur vom Betrieb (markiert durch blauen Kasten). Es ist auch der Horizontal-Windpfeil aus den Radiosondendaten angezeigt. Die Auflösungen betragen 0.1 s und 30 m bei einer Scangeschwindigkeit von 0,5 %.



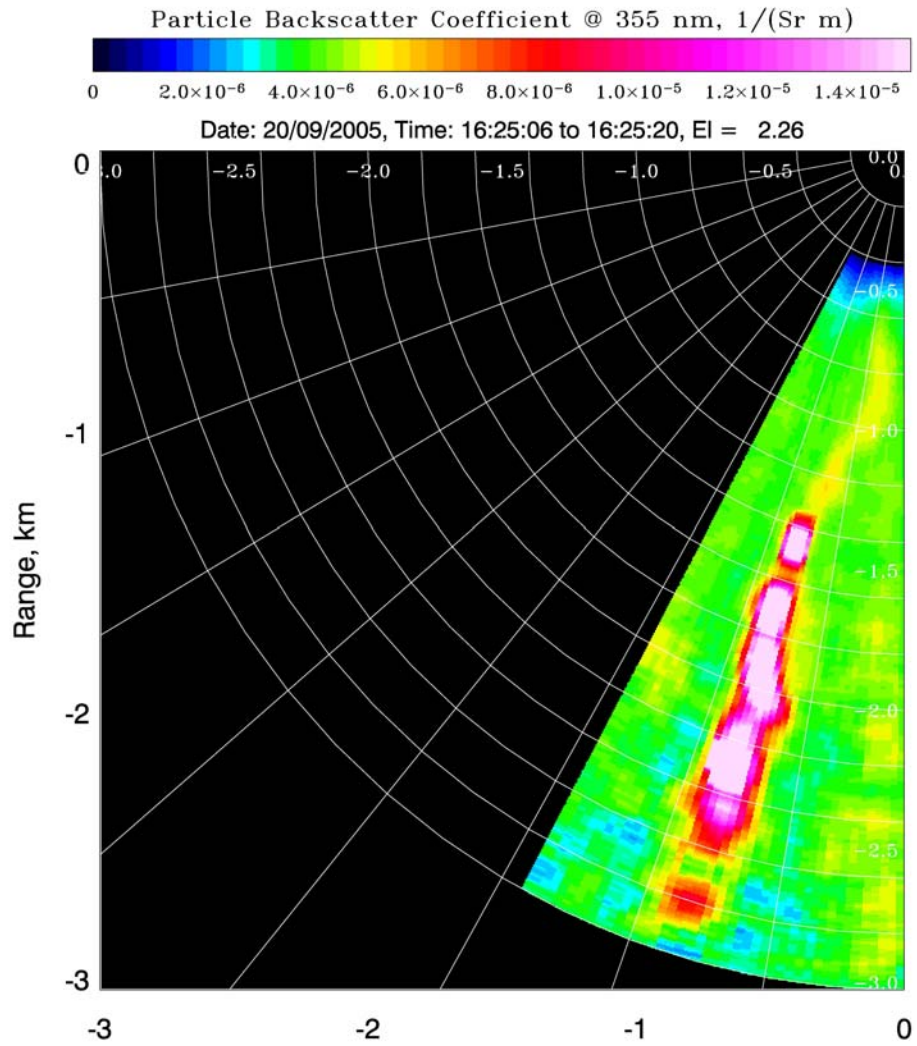
In allen Daten, die mit einem Elevationswinkel von größer gleich 5° aufgezeichnet wurden, war keine klaren Signaturen der Aerosolemission des in Rede stehenden Betriebs zu erkennen. Daraus lässt sich die Schlussfolgerung ziehen, dass die Quellen in diesem Höhenbereich einen Rückstreukoeffizienten von $< 4 \cdot 10^{-7} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ verursachte, der damit unter der Nachweisgrenze lag. Damit lag der Bereich, in dem sich die Aerosolquelle nachweisbar war, in geringerer Höhe. In der Zukunft ist es notwendig, solche Quellen mit niedrigeren Elevationswinkeln abzutasten, was kein prinzipielles Problem darstellt.

Abb. 2.11: Entsprechendes Feld des Partikel-Rückstreukoeffizienten. In diesem Fall ist kein Hinweis auf signifikante Aerosol-Emission aus der landwirtschaftlichen Quelle ist zu erkennen. Sie werden unter anderem durch turbulente Fluktuationen im Rückstreufeld überdeckt.



Eine sorgfältige Durchsicht aller Scanmuster zeigte, dass am 20.09.2005 mit einem niedrigeren Elevationswinkel von etwa 2° abgetastet wurde. Tatsächlich wurde hier die Aerosolquelle detektiert. Dieses verdeutlicht die Abb. 2.12, auf der ein PPI-Scan zu sehen ist. Damit ist es dem IPM gelungen, solch eine Aerosolquelle durch einen landwirtschaftlichen Betrieb zweidimensional und zeitlich aufgelöst zu vermessen. Unseres Wissens ist dieses die erste erfolgreiche Messung dieser Art in Europa. Diese Messung wird im Abschnitt 4 ausführlich analysiert.

Abb. 2.12: Messung des horizontalen 2D-Feldes des Partikel-Rückstreuungskoeffizienten am 20.09.2005. Hier gelang es dem IPM, die Aerosolemission durch den Betrieb klar nachzuweisen. Die Auflösungen bei dieser Messung betragen 0,3 s und 30 m bei einer Abtastgeschwindigkeit von 2 %.



3. Modellentwicklung

3.1 Atmosphären- und Chemiemodell

Das Mikrophysik-Chemie-Transport-Modell wurde auf der Basis eines existierenden Atmosphären-Chemie-Modells entwickelt, einem Grobstrukturmodell mit Chemie-Modul (Chlond & Wolkau, 2000; Müller, 2001). Die erforderliche hohe räumliche Auflösung der atmosphärischen Bewegungen muss die turbulenten Elemente beinhalten. Dies leistet ein Grobstrukturmodell („Large-Eddy Simulation- / LES/Modell“), das die großskaligen und gleichzeitig energiereichsten Elemente des turbulenten Flusses („Eddies“) explizit und die kleinskaligen, d.h. sub-gridskaligen zumindest noch parameterisiert beschreibt. Die vorherrschenden großskaligen Bewegungen werden durch die Berechnung der räumlichen Mittel dynamischer Größen abgedeckt. (Chlond, 1992 und 1998; Chlond & Wolkau, 2000)

Für das Modell wird ein variabler Zeitschritt so eingestellt, dass die Advektion je Zeitschritt, nie mehr als eine Gitterzelle überschreitet (Courant-Levy-Bedingung). Dieser beträgt zwischen 1 und 5 s.

Randbedingungen:

Grundsätzlich sind in jedem Atmosphärenmodell die Randbedingungen vorzugeben. Aufgrund der charakteristischen Zeiten und Längen von turbulenten Elementen wäre in einem Modellgebiet, das nur wenige km lang ist, die turbulente Advektion ausschließlich von den Randbedingungen bestimmt (und damit beliebig) und nur zum Teil abbildbar. Grobstrukturmodelle, wie das hier verwandte, benötigen zyklische Randbedingungen zur Generierung wirklichkeitsnaher Turbulenz: Die Rückführung meteorologischer Modellparameter vom Modellgebietsende zum –anfang (horizontal zyklische Randbedingungen) ermöglicht eine realitätsnahe Simulation der turbulenten Advektion im Modellgebiet.

In das Atmosphärenmodell eingebaut ist ein Aerosol- und Chemiemodell. Die folgenden Prozesse sind in diesem Sub-Modell repräsentiert:

- Turbulente Advektion von Aerosolen unter zyklischen Randbedingungen aus zwei 3D-Feldern je chemischer Aerosolkomponente, den Hintergrund mit und ohne Emission vom Stall repräsentierend.¹
- Turbulente Diffusion (vom Grobstrukturmodell)
- trockene Deposition von Gasmolekülen: Widerstandsmodell (Parameterisierung nach Zufall & Davidson, 1998)
- Nukleation, ternär von H₂SO₄, Ammoniak und Wasserdampf (Napari et al., 2002)
- Atmosphärenchemie (vereinfachte, d.h. „gelumpfte“ Kohlenwasserstoff-Stickoxid-Chemie bestehend aus 34 Photolysen und 61 bi- und 2 ternären Gasphasenreaktionen; Lurmann, 1987; Atkinson, 1990; Carter, 1990; Müller, 1994)

3.2 Aerosolmodell

In das Atmosphärenmodell eingebaut ist ein Aerosolmodell. Die folgenden Prozesse sind in diesem Sub-Modell repräsentiert:

- Nukleation: s. Abschnitt 2.2.1
- Partikel-Emission: s. Abschnitt 2.3.2
- Sedimentation: s. Abschnitt 2.2.2

¹ Zu Kontrollzwecken (Quantifizierung der Aerosolprozesse) kann für alle Komponenten nur ein Feld eingelesen werden, womit die Aerosolprozesse ausgeschaltet werden.

- Kondensation von Wasserdampf: als Gleichgewichtsprozess: s. Abschnitt 2.2.3
- Partikelgrößenverteilungen: s. Abschnitt 2.2.4

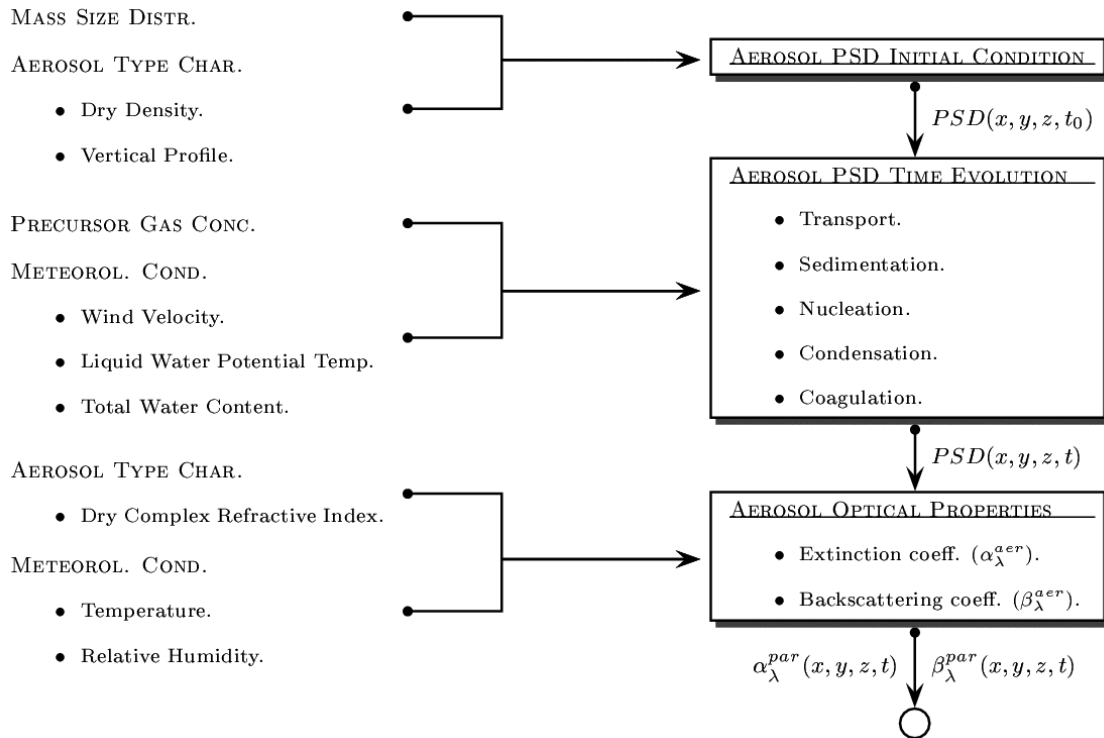
Die folgenden Aerosolprozesse sind im Modell nicht repräsentiert, weil unnötig für Simulationen der Messkampagne, Mettingen 2005:

- Koagulation: weil die Partikelanzahlkonzentrationen so gering sind, dass kaum ein Einfluß der Koagulation auf die Evolution der Partikelverteilung erwartet werden kann
- Nasse Deposition: Der Effekt von Niederschlagsereignissen auf quellnahe Aerosole wird in diesem Stadium ausgeblendet, weil die Interaktion der Modellierung mit der Fernerkundung die Abwesenheit von Wolken und Hydrometeoren voraussetzt.
- Kondensation von Ammoniak als Temperatur- und Feuchte-abhängiges Phasengleichgewicht von Ammoniak und Ammoniumnitrat (nach Stelson et al., 1984; Meng & Seinfeld, 1996): weil N(-III) in der Fahne vollständig in der Gasphase war (s. Tab. 3).

Die im Projekt durchgeführten Entwicklungsarbeiten des Atmosphäre-Mikrophysik-Chemie-Modells haben die Ableitung der optischen Aerosoleigenschaften in Form einer Vorwärtsrechnung und in einer mit den Lidar-Daten vergleichbaren räumlichen und zeitlichen Auflösung zum Ziel. Dies geschieht in drei Schritten, die im Modell als Module codiert sind (*Abb. 3.1*):

1. Initialisierung der Größenverteilung *Initialization of the particle size distribution (PSD)*: Ausgehend von in situ-Daten (z.B. Impaktormessungen) erzeugt dieses Modul eine diskretisierte Größenverteilung auf einem 3-dimensionalen räumlichen Gitter. (s. *Abschnitt 3.3*)
2. Zeitliche Evolution der Größenverteilung *Time Evolution of the PSD*: Zeitliche Simulation der makrophysikalischen (z.B. Advektion) und der mikrophysikalischen Prozesse in 3 Dimensionen (vom Grobstrukturmodell geleistet).
3. Optische Eigenschaften des Aerosols *Aerosol optical properties*: Berechnung des Rückstreu- und Extinktionskoeffizienten je Zeitschritt und Gitterzelle aus der Partikelgrößenverteilung und dem komplexen Brechungsindex, m , für verschiedene Aerosoltypen (s. *Abschnitt 3.4*).

Abb. 3.1: Schema der Ableitung (Vorausberechnung) der optischen Aerosoleigenschaften Rückstreu- und Extinktionskoeffizient im Mikrophysik-Chemie-Transport-Modell. PSD = Partikelgrößenverteilung. Scheme to derive the aerosol optical parameters extinction and backscattering coefficients in forward mode in the atmosphere-microphysics-chemistry model. PSD = particle size distribution



3.2.1 Nukleation

Partikelneubildung geschieht durch homogene ternäre Nukleation aus Wasserdampf, Schwefelsäure und Ammoniak als Funktion der Partialdrücke und der Temperatur.

Die Moleküle unterliegen der molekularen (Brown'schen), die Partikel der Brown'schen und der turbulenten Diffusion.

3.2.2 Trockene Deposition, Sedimentation

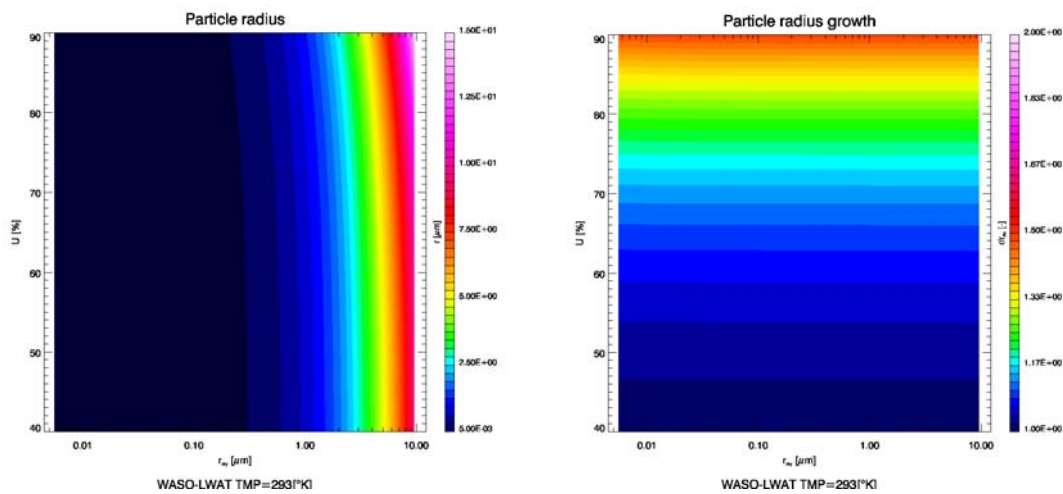
Es wird die partikelgrößenabhängige Falltendenz aufgrund der Gravitation, gebremst durch Reibung in Luft, Sedimentation genannt, beschrieben (Pruppacher & Klett, 1978; Seinfeld & Pandis, 1998). Insofern Widerstände durch die Aerodynamik, die atmosphärische Turbulenz und die Wirkungen des Bestandes bzw. der Bebauung überwunden werden müssen, wird ferner die Partikel-Deposition in einem entsprechenden Widerstandsmodell berücksichtigt (Parameterisierung nach Seinfeld, 1986, und Zufall & Davidson, 1998). In beiden Beschreibungen wird vereinfachend angenommen, dass es sich um feste und sphärische Partikel handelt.

3.2.3 Kondensation von Wasserdampf

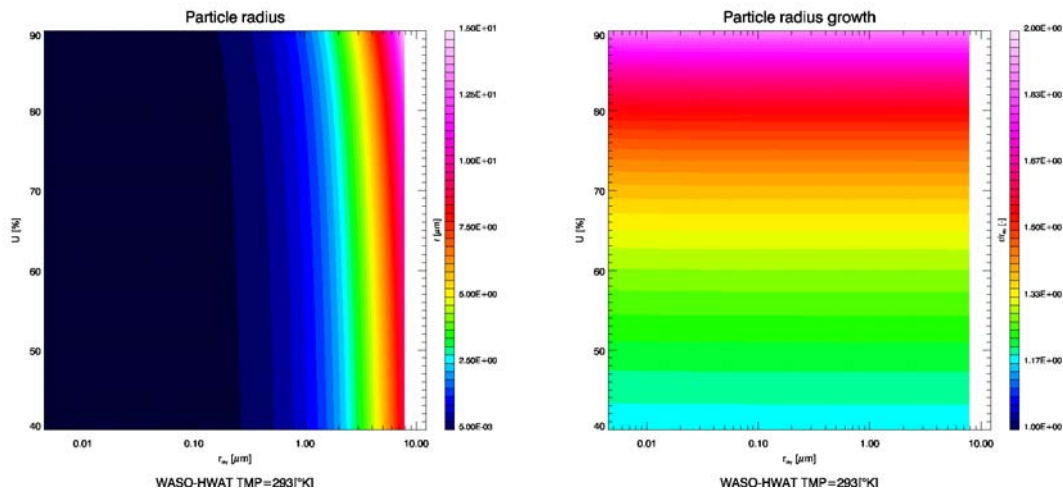
Die Kondensation von Wasserdampf an Partikeln wird als feuchteabhängiger Gleichgewichtsprozess beschrieben, wahlweise als Funktion des löslichen Massenanteils (nach Köhler, Formulierung nach Seinfeld & Pandis, 1998) oder als empirische Flüssigwasseraufnahme-Charakteristik in Abhängigkeit vom Aerosoltyp. Im letzteren Fall werden in der Literatur beschriebene Aerosolhygroskopizitäten, die die Bandbreite von Aerosolen in Mitteleuropa abdecken (z.B. nach Hänel, 1976; Winkler, 1988, oder diesbezügliche Extremannahmen (etwa Gleichsetzung der Partikelzusammensetzung mit NH_4NO_3), in Form von an Beobachtungsdaten angepassten Polynomen zugrundegelegt. Die Beschreibung nach Köhler bedarf osmotischer Koeffizienten als Eingabedaten, die für eine Reihe anorganischer Salze bekannt sind (Robinson & Stokes, 1959; Hänel, 1976), sowie funktionale Abhängigkeiten der Hygroskopizität von der Feuchte. Diese werden durch Polynom-Interpolation von Messdaten verschiedener Aerosoltypen (Winkler, 1988) erhalten.

Abb. 3.2: Feuchteabhängiges Partikelwachstum (links: Radius, rechts: Wachstumsfaktor) bei 20°C unter verschiedenen Annahmen der Hygroskopizität des Partikelmaterials, nämlich (a.) entsprechend kontinentalem Aerosol (Deuselbach; Winkler, 1988) und (b.) $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ -Salz. Particle growth (left: particle radius, right: growth factor) as a function of humidity, U (%), at 20°C under different hygroscopicity assumptions, i.e. according to (a.) continental aerosol (Winkler, 1988) and (b.) $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ salt.

a.



b.



3.2.4 Partikelgrößenverteilungen

Partikelgrößenverteilungen werden durch Abbildung in ein Bin-Schema erzeugt (s.u., Abb. 3.6). Dessen Partikelgrößenauflösung und der Mischungsgrad sind frei wählbar. Wegen des Partikelwachstums (bzw. Schrumpfens) wird in jedem Zeitschritt die Partikelmasse neuen Bins zugeordnet.

3.3 Initialisierung von Simulationen

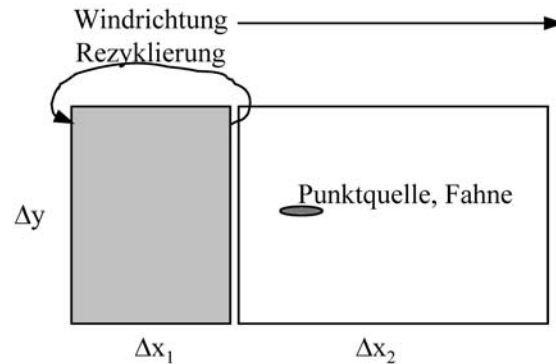
3.3.1 Meteorologie

Aufwindseitig bedarf die Modellwelt („Domain“) vertikal strukturierter und lateral homogener, advehter Wind-, Wärmefluss-, Temperatur-, Feuchte- und Aerosolfelder. Diese werden in Form der zyklischen Randbedingungen (s.o., 2.1) einer zweiten, vorgeschalteten Domain vorgegeben. Die Ausmaße der vorgeschalteten Domain, $\Delta x_1 \times \Delta y$ (Abb. 3.3), werden so groß und die Initialisierungsphase des Modelllaufs wird so lang gewählt, dass sich Wirbel (Eddies) entwickeln können (nämlich Δx_1 etwa doppelt so groß wie die Durchmischungsschicht hoch ist) und einige Stunden. Im eigentlichen Modell-Untersuchungsgebiet, $\Delta x_2 \times \Delta y$ (Abb. 3.3), in das hinein die Emission stattfindet, sind die Randbedingungen nicht zyklisch. Die o.g. dynamischen Größen werden einer Simulation mit einem Wettervorhersagemodell, dem LM (sog. Lokalmmodell des Dt. Wetterdienstes), für Ort und Zeitpunkt der zu simulierenden Situation entnommen („Forcing“). Die Orts- und Zeitaufösungen des LM betragen 6 km bzw. 60 min.

Die Messungen vor Ort (s.u., *Abschnitt 4.1.2, Abb. 4.1-4*) zeigten zum Teil Diskrepanzen gegenüber dem von LM wiedergegebene Windfeld, z.B. für den Nachmittag des 17.9.2005 eine Überschätzung der Drehung des Windes. Diese Fehler waren aber angesichts der kurzen Simulationszeiten (entsprechend < 30 min Verweildauer von Luftpunkten innerhalb des Modellgitters) vernachlässigbar.

Die aufwindigen Aerosole werden mit ihrer Masse, Größenverteilung und chemischen Eigenschaften am Boden entsprechend der Beobachtung (in situ-Aerosolmessungen) abgebildet. Höhenabhängig wird die Massenkonzentration vorgegeben, und zwar entsprechend eines typischen Vertikalprofils (nach Müller, 1994).

Abb. 3.3: Zyklische Randbedingungen, x- und y-Dimensionen in der in luv vorgeschalteten Modell-Domain und eigentliches Untersuchungsgebiet. Cyclic boundary conditions, x and y dimensions in the upwind auxiliary domain and model domain of study.



3.3.2 Aerosole

Initialisierung der Simulationen

- Partikel-Advektion, flächig, an in situ-Punktmessungen am Boden in Luv angepaßt, wahlweise räumlich und/oder auf lognormale Partikelgrößenverteilung extrapoliert, 2D-Verteilung an turbulente Advektion und an Standard-Vertikalprofil (Müller, 1994) angepaßt
- Partikel-Emissionsquelle, punktförmig. Ihre Quellstärke wird so eingestellt, dass die Ergebnisse der In situ-Messungen am Boden in Lee wiedergegeben werden
- Chemische Zusammensetzung Aerosol: Ruß (Klassierung nach Hess et al., 1988: SOOT, wahlweise für Reinluft/verschmutzte Luft), wasserunlöslicher Massenanteil (INSO, $3\mu\text{g m}^{-3}$), wasserlöslicher Massenanteil (WASO, gemäß Impaktormessung)
- Chemische Zusammensetzung Gasphase: irrelevant²

Aerosolemission eines Tierhaltungsbetriebs:

Die Aerosolquelle ist eine in ihrer Stärke (Emissionsfluss) abstimmbare Punktquelle. Die Stärke, F_{ems} , wird so eingestellt, dass das Modell abwindige Partikelanzahlkonzentrationsmessungen am Boden richtig wiedergibt (in situ-Aerosolmessungen in lee). Für einen dispersionbedingten Konzentrationsabfall wird somit inhärent korrigiert. Es wird angenommen, dass die abwindige Messung im Kern der Fahne durchgeführt wurde. Dies konnte während der Messungen auf $\Delta y < 20$ m sichergestellt werden (Geruchsdetektion der Fahne). Da die horizontale Modellauflösung $\Delta y = 50$ m ist, erübrigt sich eine disbezüglich Korrektur.

Die Stallaerosolemissionsstärke wird wie folgt abgeleitet: Für jede Partikelgröße gilt für die Flussdifferenz (F_{net}) zwischen der mittleren Höhe über Boden des untersten Modellniveaus ($z = z_r \approx 10[m]$) und der Höhe der Messung in lee ($z = z_g \approx 2[m]$):

² Aufgrund der kurzen Reaktionszeiten im Modellgebiet ist am Tage kein Einfluß auf die Zielgrößen der Studie zu erwarten. Die Gasphasenchemie einschließlich der Schwefelsäure-Bildung (Nukleation) wird zur Simulation deswegen ausgeschaltet.

$$F_{net} = -\frac{1}{r_g} (n_r - n_g) - v_s n_r$$

mit r_g = Transportwiderstand gegenüber Transport zwischen z_r und z_g , $n_r = n(x_{farm}, y_{farm}, z_r, r_p)$ und $n_g = n(x_{farm}, y_{farm}, z_g, r_p)$ = Partikelanzahlkonzentrationen des Radius r_p gemittelt für das unterste Modellniveau bzw. am Boden; $v_s = v_s(x_{farm}, y_{farm}, z_r, r_p)$ = Sedimentationsgeschwindigkeit für Partikel des Radius r_p .

Weil ausserdem gilt $F_{net} = F_{ems} + F_{dep}$ (mit $F_{dep} = -v_d n_r$ trockener Depositionsfluss, wobei $v_d = v_d(x_{farm}, y_{farm}, z_r, r_p)$ Depositionsgeschwindigkeit), ergibt sich der Emissionsfluss F_{ems} zu:

$$F_{ems} = -\frac{1}{r_g} (n_r - n_g) - (v_s - v_d) n_r$$

Es wird eine externe Mischung einer begrenzten Anzahl von Aerosoltypen angenommen. Die Partikelgrößenverteilungen, eine je Aerosoltyp, werden auf diskreten Intervallen des Größenspektrum, in sog. *bins* repräsentiert (Diskretisierungs- oder Bin-Schema). Alle Partikel eines Bins sind sphärisch und haben identischen Radius. Anders als in einem modalen Schema werden Aerosol-Moden somit nicht notwendig vorgeschrieben, sondern ergeben sich dynamisch. Zunächst werden die Partikelgrößen-Auflösung des Bin-Schemas und weitere Charakteristika, die die Aerosoltypen definieren (Dichte, Vertikalverteilung der Massenkonzentration, komplexer Brechungsindex), festgelegt. Die Wahl verschiedener Auflösungen des Bin-Schemas in verschiedenen Partikelgrößenbereichen ist sinnvoll, um der größeren Sensitivität der Zielparameter bei großen Partikelradien gerecht zu werden (siehe unten, Abb. 3.6b).

Das dreidimensionale Aerosolfeld wird durch eine (oder zwei) Massengrößenverteilung im Bin-Schema initialisiert, die als Ganze die Gesamtpartikelanzahl- und -oberflächen- (oder -Volumen)-Konzentration wiedergibt, horizontal homogen ist und mit der Höhe exponentiell abfällt. Diese Massengrößenverteilung ist als eine Überlagerung log-normaler Größenverteilungen beschrieben

$$dm(r) = \sum_i \frac{M_i}{\sqrt{2\pi} \cdot \log \sigma_i} \exp\left(-\frac{1}{2} \left(\frac{\log r - \log \mu_i}{\log \sigma_i}\right)^2\right) d \log r,$$

wobei M_i , μ_i und σ_i für die gesamte Masse, den mittleren geometrischen Radius und die geometrische Standardabweichung der jeweils i -ten Lognormalverteilung stehen. Für diese Ableitung bedarf es messgerätetechnischer Informationen (z.B. Abscheidecharakteristiken des Impaktors; Winklmayr et al., 1990).

Das Vertikalprofil jeder Partikelanzahlkonzentration ist von der Form

$$n_{t_0}^{aer}(h) = n_{t_0}^{aer}(0) \cdot \exp(-h/h^{aer}),$$

wobei *aer* den Aerosoltyp bezeichnet, $n_{t_0}^{aer}(h)$ die Gesamtpartikelanzahlkonzentration zum Zeitpunkt t_0 in der Höhe h und h^{aer} den den Abfall mit der Höhe bestimmenden Parameter.

Um zu eindeutigen Lösungen kommen zu können, werden zur Initialisierung der Simulation des Mikrophysik-Chemie-Transport-Modells analysierte, d.h. auf Beobachtungsdaten vom

Boden und in der Höhe basierende und mit einem Wettervorhersagemodell im Nachhinein konsistent komplettierte Felder von Feuchte, Temperatur und Wind (bzw. Druck) benötigt. Diese werden durch Anwendung des LM ('Lokalmodell', operationelles Wettervorhersagemodell des Dt. Wetterdienst) erzeugt.

3.4 Optische Aerosoleigenschaften

Die Partikelextinktions- und Rückstreuoeffizienten, α und β , können aus den Größenverteilungen vorhergesagt werden:

$$\alpha_{\lambda} = \sum_{aer} \int_{r \in R_{+}} Q_{ext}^{aer}(r, m, \lambda) \cdot \pi r^2 dn^{aer}(r)$$

$$\beta_{\lambda} = \sum_{aer} \int_{r \in R_{+}} Q_{bsc}^{aer}(r, m, \lambda) \cdot \pi r^2 dn^{aer}(r)$$

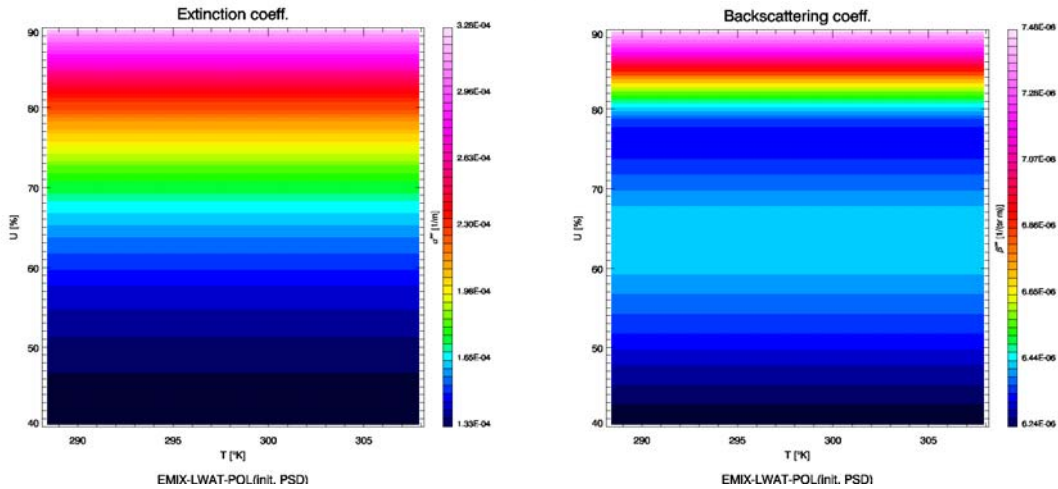
wobei $Q_{ext}^{aer}(r, m, \lambda)$ und $Q_{bsc}^{aer}(r, m, \lambda)$ für die Extinktions- und Rückstreuoeffizienzen stehen und $n^{aer}(r)$ für die Partikelanzahlkonzentration bei Radius r . Q_{ext}^{aer} and Q_{bsc}^{aer} werden unter Nutzung der Mie-Theorie (Bohren & Huffman, 1993) als Funktion des Partikelradius, der genutzten Wellenlänge, des feuchteabhängigen Wasseranteils und des komplexen Brechungsindex des Partikelmaterials berechnet. Letzterer wird wellenlängenspezifisch benötigt und ist für verschiedene wichtige Aerosoltypen (z.B., ‚wasserlösliches Aerosol‘, Mineralstaub; Köpke et al., 1997; Hess et al., 1998; Hänel, 1994) und –komponenten (Wasser, Ruß, Salze: Hale & Querry, 1973; Shettle & Fenn, 1979; Hess et al., 1998) erhältlich (Tab. 3.1, Abb. 3.4). Für in der Literatur nicht verfügbare Wellenlängen werden die Werte durch lineare Interpolation abgeleitet.

Tab. 3.1: Eingabedaten, spezifisches Gewicht, ρ , und komplexe Brechungsindizes, CRI, bei 2 Wellenlängen zur Berechnung optischer Partikeleigenschaften von im Modell berücksichtigten Aerosolkomponenten (Hale & Querry, 1973; OPAC-Datenbank: Hess et al., 1998). Input data, mass density, ρ , and complex refractive indices, CRI, for 2 wave lengths for the derivation of optical particle properties of aerosol components represented in the model (Hale & Querry, 1973; OPAC data base: Hess et al., 1998).

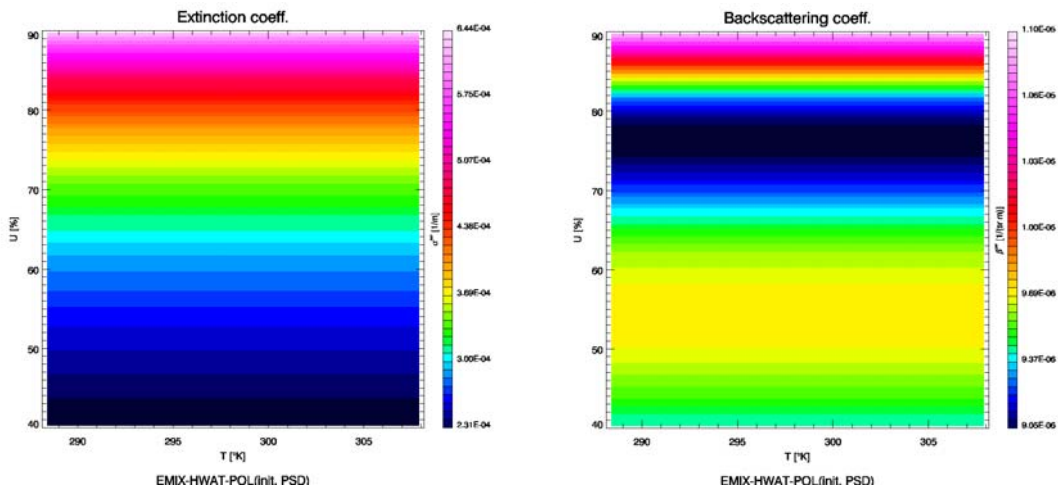
Aerosolkomponente	ρ [g/cm ³]	CRI ($\lambda = 0.355 \mu\text{m}$)		CRI ($\lambda = 1.453 \mu\text{m}$)	
		n[-]	k[-]	n[-]	k[-]
Wasserlösliches Material	1.8	1.530E+00	5.000E-03	1.510E+00	1.911E-02
Wasserunlösliches Material	2.0	1.530E+00	8.000E-03	1.458E+00	8.000E-03
Ruß	1.0	1.750E+00	4.645E-01	1.760E+00	4.503E-01
Seesalz	2.2	1.509E+00	2.946E-07	1.470E+00	3.646E-04
Wasser	1.0	1.345E+00	1.345E+00	1.321E+00	1.321E+00

Abb. 3.4: Feuchte- und Temperaturabhängigkeiten optischer Partikeleigenschaften (links: Extinktionskoeffizient, $\alpha_{\lambda = 355 \text{ nm}}$, rechts: Rückstreukoeffizient, $\beta_{\lambda = 355 \text{ nm}}$) unter verschiedenen Annahmen der Hygroskopizität des Partikelmaterials, nämlich (a.) entsprechend kontinentalem Aerosol (Deuselbach; Winkler, 1988) und (b.) $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ -Salz. Optical particle properties used for model initialisation (left: extinction coefficient, right: aerosol particle backscatter coefficient) under different hygroscopicity assumptions, i.e. according to (a.) continental aerosol (Winkler, 1988) and (b.) pure $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$.

a.

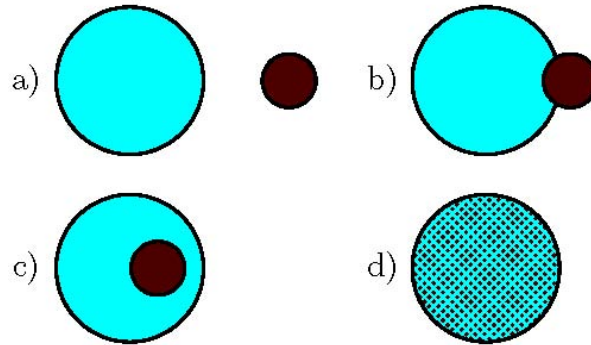


b.



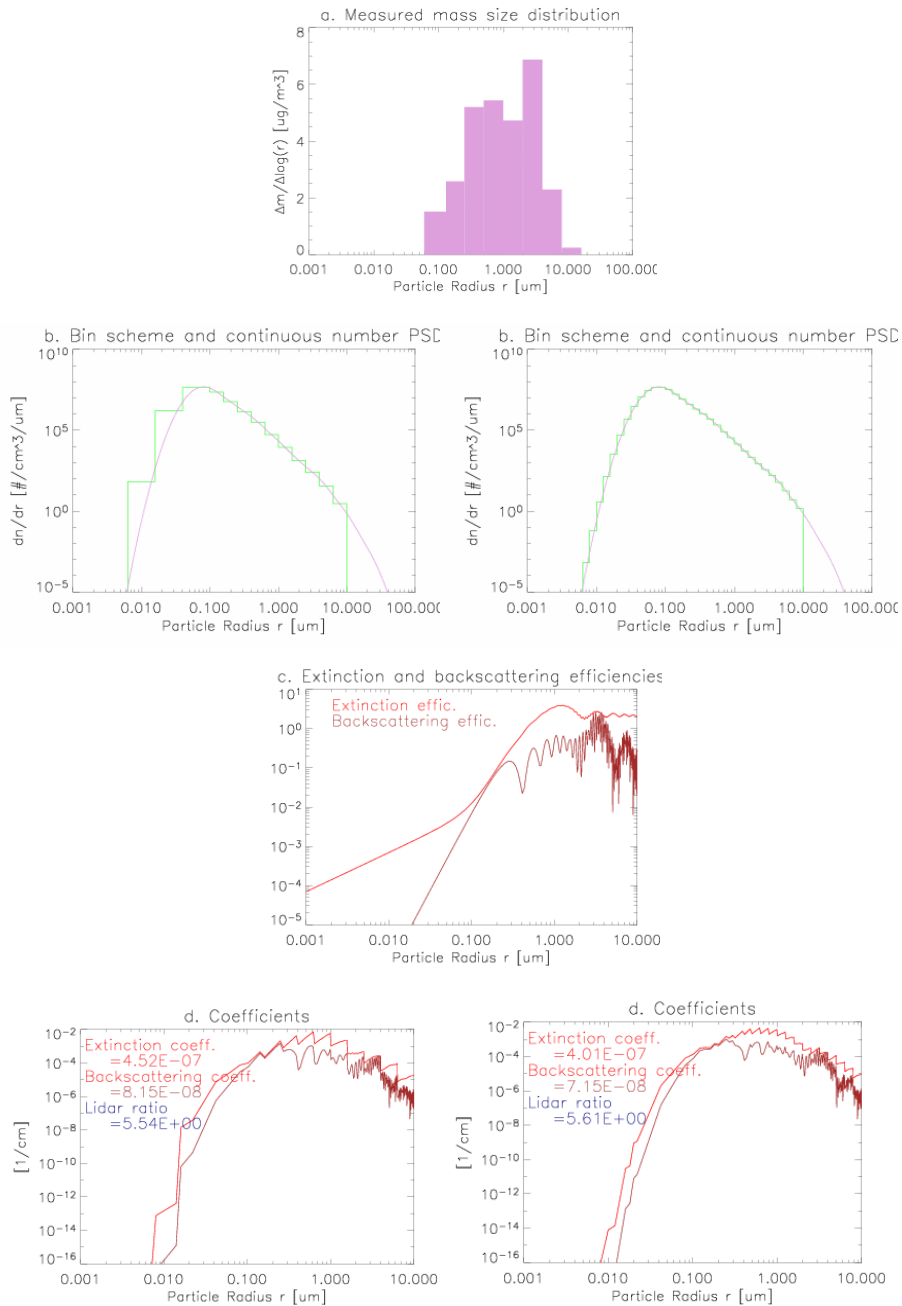
Dabei wird implizit angenommen, dass nur Einfachstreuung auftritt (in der Atmosphäre ausserhalb von Wolken und dichtem Dunst hinreichend erfüllt) und nur sphärische Partikel auftreten. Diese dürfen intern gemischt sein (vgl. Abb. 3.5), dann aber heterogen (Abb. 3.5c) und sphärisch symmetrisch (Schalenstruktur). Ein unlöslicher Kern ist von einem Elektrolyten umgeben. Andere interne Mischungsformen wären numerisch weit aufwändiger (oder unlösbar) und bleiben deswegen unberücksichtigt.

Abb. 3.5: Schematische Darstellung von Mischungstypen: (a) extern, (b) semi-extern, (c) heterogen und (d) homogen intern. Schematic representation of types of particle mixing: (a) external, (b) semi-external (Mishchenko et. al, 2004), (c) heterogeneous and (d) homogeneous internal mixtures.



Für zwei stark verschiedene Partikelgrößenauflösungen des Diskretisierungs-Schemas, nämlich 13 bzw. 32 Bins, ist die Ableitung der partikelgrößenabhängigen Rückstreu- und Extinktionskoeffizienten (sowie des Lidar-Verhältnisses S_λ , s. *Abschnitt 2.5*) für eine Wellenlänge aus einer Impaktormessung (BERLIOZ/LACE-Kampagne 1998; Lammel et al., 2005) in Abb. 3.6 schrittweise illustriert. Die Auflösung des Diskretisierungs-Schemas ändert sich jeweils bei $r = 0.1 \mu\text{m}$ (Abb. 3.6b, d). In dem Beispiel wird angenommen, die Partikelphase bestünde aus einer chemisch homogenen Partikelphase, gemäß Aerosoltyp ‚wasserlöslich‘, bei 80% relativer Feuchte (Hess et al., 1998). Die Gegenüberstellung zeigt, dass das Lidar-Verhältnis S_λ (Abb. 3.6d) nicht sehr sensitiv ist (hier 1.2% verändert) gegenüber Änderungen der Auflösung. Wie wenig optische Eigenschaften von Aerosolen unterschiedlicher Zusammensetzung variieren, illustriert Abb. 3.7 (ohne Feuchtwachstum, Vorausberechnung unter den meteorologischen Bedingungen des 16.9.05 in Mettingen; vgl. *Abschnitt 4.1.2*).

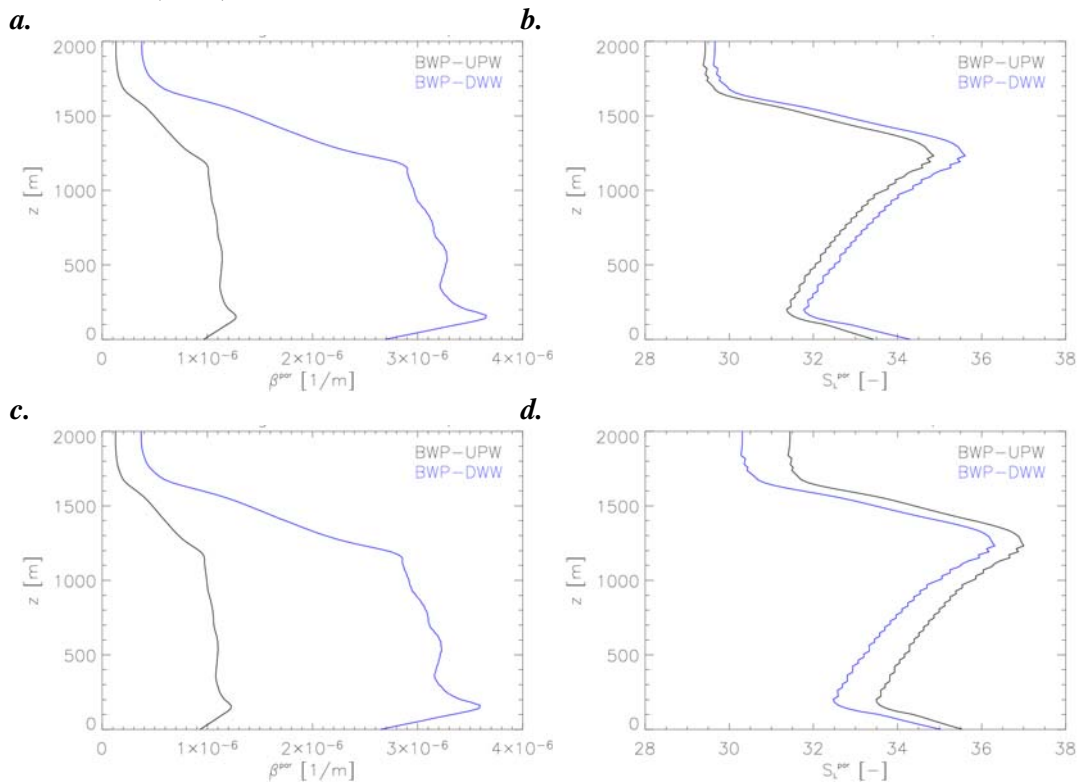
Abb. 3.6: *Ableitung der partikelgrößenabhängigen optischen Eigenschaften einer polydispersen aber chemisch homogenen Partikelphase (Aerosoltyp ‚wasserunlöslich‘ bei 80% relative. Feuchte) für $\lambda = 1453$ nm ausgehend von einer gemessenen Massengrößenverteilung (a., 8 Impaktorstufen) für 2 verschiedene Partikelgrößenauflösungen. Derivation of the particle size dependent optical properties of a polydisperse but chemically homogeneous particle phase (‘water soluble’ at 80% humidity) at $\lambda = 1453$ nm from a measured mass size distribution (a., 8 impactor stages) for 2 size resolutions.*



Die optischen Aerosoleigenschaften sind als Funktion der initialen Partikelmassenverteilung und des Partikeltyps, sowie externer und interner Mischungen davon im dreidimensionalen Gitter vorausberechenbar. Um Rechenzeit zu sparen, werden die optischen Eigenschaften für alle chemischen Mischungsverhältnisse, die in verschiedenen Größenklassen (bins) auftreten, vorweg einmalig berechnet und während der Simulation lediglich aufgerufen.

Die Rußkonzentration ist geschätzt ($0.5 \mu\text{g m}^{-3}$, ein typischer Wert für kontinentales Aerosol; Hess et al., 1998; Lammel et al., 2003). Sie beeinflusst das Rückstreusignal allerdings kaum, wohl aber die Extinktion und damit das Lidar-Verhältnis (Abb. 3.6b, d).

Abb. 3.7: Vorausberechnete Vertikalprofile vom Boden bis 2000 m Höhe des (a., c.) Partikel-Rückstreukoeffizienten β und des (b., d.) Partikel-bezogenen Lidar-Verhältnisses $S_{\lambda=355 \text{ nm}} (= \alpha/\beta, \text{Verhältnis von Partikel-Extinktions- und -Rückstreukoeffizient})$ für das Hintergrundaerosol (UPW, und neben der Fahne) und das emittierte Aerosol (DWW, $\Delta s = 120 \text{ m}$), für meteorologische Bedingungen in Mettingen, 16.9.05 nachmittags für 2 Zusammensetzungen der trockenen Partikelphase (a., b.) 88% wasserlöslich, Rußgehalt 0% und (c., d.) 83% wasserlöslich, Rußgehalt 4.4% für $\lambda = 355 \text{ nm}$. Predicted vertical profiles for the lower 2000 m of the (a., c.) aerosol particle backscattering coefficient β and the (b., d.) particulate lidar ratio $S_{\lambda=355 \text{ nm}} (= \alpha/\beta, \text{ratio of particle extinction and backscattering coefficients})$ for the background aerosol (UPW, and aside of the plume) and the emitted aerosol (DWW, $\Delta s = 120 \text{ m}$) for meteorological conditions in Mettingen, afternoon of 16.9.05, assuming a dry particulate composition of (a., c.) 88% water soluble without black carbon and (b., d.) 83% water soluble, 4.4% soot.



3.5 Vorhersagen zur Untersuchung der Lidar-Daten-Inversionsprozedur

Bei schwachen Streusignalen können die aufzuspürenden Strukturen der Streuer (Aerosolpartikel, Moleküle) einerseits und die natürliche, turbulenzbedingte Variabilität andererseits jedoch kaum unterschieden werden. Das abtastende Lidar misst die Rückstreuintensität, $\beta(x, y, z)$, an jedem Ort (Ortsauflösung 3 m) auf distinkten Ebenen im Messvolumen für die Dauer von Millisekunden (33 ms; s. u. Abschnitte 4.2.3, 4.2.4) und dies alle wenige, z.B. 2, Minuten repetierend. Diese Daten werden räumlich und zeitlich gemittelt, z.B. 10 aufeinander folgende Laserpulse und 10 Entfernungen.

Im Rahmen der Lidar-Daten-Inversionsprozedur wird das Lidar-Verhältnis, $S_\lambda = \alpha/\beta$, das unbekannt ist, räumlich und zeitlich invariant angenommen wird, z.B. $\alpha/\beta = 40$ (s. ob., Abschnitt 2.3). Danach werden zur Gewinnung der Flächenmittel die Daten geglättet, wofür verschiedene Verfahren zur Verfügung stehen (z.B. gleitende Mittel).

Die Inversionsprozedur kann zum einen dadurch verbessert werden, dass ein modellbasiertes, räumlich und zeitlich variables Lidar-Verhältnis eingesetzt wird. Es werden Werte $S_\lambda = 42 \pm 5$ vorhergesagt (Abb. 3.8). Zum anderen kann die natürliche, turbulenzbedingte Variabilität vom Modell vorhergesagt werden und die Glättung entsprechend angepasst werden. Die zeitliche Variabilität des Rückstreusignals, ausgedrückt als relative Standardabweichung des Rückstreukoeffizienten auf der Basis von 1s-Mittel, σ_β/μ_β , erreicht in der Mischungsschicht etwa 3 % (Abb. 3.9).

Abb. 3.8: Vorausberechnete vertikale Profile des Partikel-bezogenen Lidar-Verhältnisses $S_\lambda = 355 \text{ nm}$ ($=\alpha/\beta$, Verhältnis von Partikel-Extinktions- und Rückstreukoeffizient) in Mettingen 17.9.05 09:00-13:00 h. Predicted vertical profiles of the particulate lidar ratio $S_\lambda = 355 \text{ nm}$ in Mettingen 17.9.05 09:00-13:00 h.

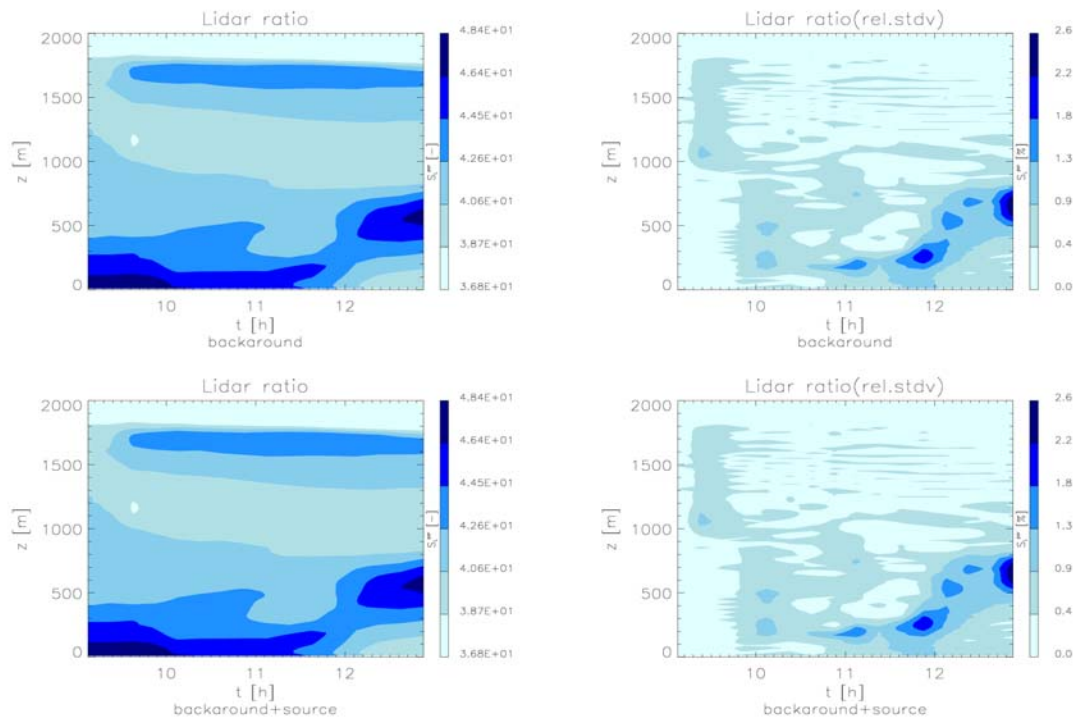
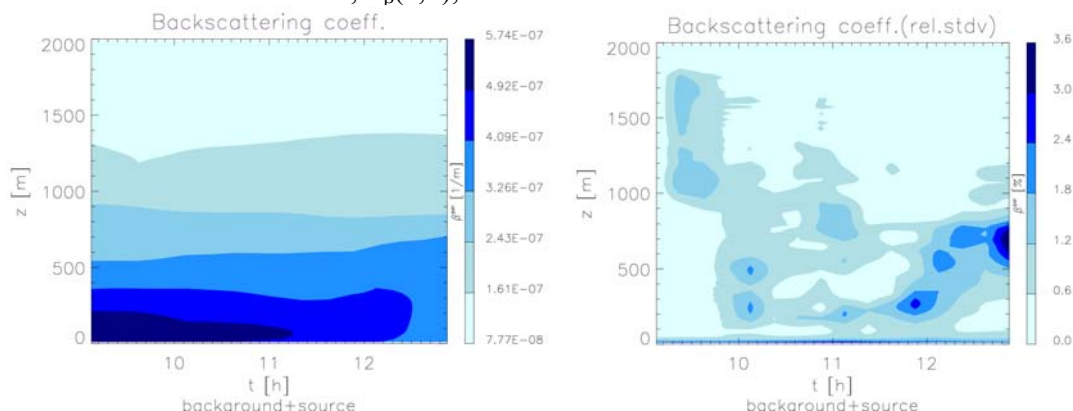


Abb. 3.9: Vorausberechnete Rückstreuoeffizienten $\beta_\lambda = 355 \text{ nm}$, Vertikalprofile als Funktion der Zeit einschließlich räumliche relative Standardabweichung $\sigma_\beta(z,t)$ für den 17.9.2005. Predicted backscatter coefficient, $\beta_\lambda = 355 \text{ nm}$, temporal evolution of vertical profiles with spatial relative standard deviation, $\sigma_\beta(z, t)$, 17.9.05.



3.6 Rechenzeitbedarf

In der vorliegenden Version benötigt das Mikrophysik-Chemie-Transport-Modell entsprechend der hohen Auflösungsanforderungen Rechenressourcen in großem Umfang, nämlich bei der räumlichen Auflösung $20 \text{ m} \times 20 \text{ m} \times 20 \text{ m}$ und einem Zeitschritt von 5 s 200 CPUh pro simulierte Stunde. Eine Mikrostrukturmodellsimulation benötigt ein einstündiges Einschwingen (spin-up). Daraus resultiert ein Gesamtbedarf von 1800 CPUh pro simulierten Tag (8 simulierte Stunden pro Tag). Mit einer Simulation können 2 unterschiedliche Initialisierungen parallel und jeweils 4 (also insgesamt 8) Aerosoltypen untersucht werden. Der Code ist effizient parallelisiert. Am Hochleistungsrechenzentrum des Dt. Klimarechenzentrums wird die benötigte Rechenleistung auf 16 CPUs verteilt, womit die Simulation eines Tages einen Zeitbedarf von 4-5 Tagen bedeutet.

4. Feldexperiment

4.1 Generelle Betrachtungen

Vor der Durchführung der Kampagne wurden einige Betrachtungen durchgeführt, um den Einsatz der Sensor-Synergie und dessen Kombination mit dem Modell zu optimieren. Dabei ermöglichte das Lidar eine zeitlich-räumliche Auflösung der Transportprozesse, die durch die In-situ-Messungen gestützt werden sollten. Bei der Durchführung der Messungen war ferner zu beachten, dass die zu untersuchenden Aerosoltransport- und Konversionsprozesse nahe der Quelle verschiedenen Prozessen in der Atmosphäre überlagern sein würden. Dazu gehören die Advektion, die Turbulenz und die chemische Konversion. Die Advektion verschiedener Luftmassen sorgt für eine Vermischung der Aerosolpartikel der Quellen mit der Umgebung. Dieser Effekt beeinflusst die räumlich-zeitliche Verteilung des Aerosolfeldes und dessen physikalisch-chemischen Eigenschaften.

Es gibt nahezu keine meteorologischen Bedingungen, bei denen Advektion vernachlässigt werden kann. Selbst bei einer Hochdruckwetterlage mit geringer Windstärke können schwache thermische Winde für Advektion sorgen. Für das erste Experiment in Mettingen wurden Wetterlagen mit geringer Advektion gewählt, so weit dieses möglich war. Die Turbulenz selbst sorgt für eine Verteilung der Quelle in der Umgebung. Sie ist durch mechanische Prozesse, also durch die Orographie, oder durch thermische Prozesse, z. B. eine räumlich unter-

schiedliche Erwärmung des Bodens, bestimmt. Um diese Einflüsse gut modellieren zu können, wurden das Experiment in einem möglichst homogenen Gelände durchgeführt.

Schließlich können sich die physikalisch-chemischen Eigenschaften der emittierten Aerosolpartikel entlang der Transportwege durch chemische Reaktionen unter Einfluss der Umgebungsbedingungen ändern. Deshalb sind zwei- oder sogar dreidimensionale Messungen von Aerosolverteilungen essentiell, um diese Prozesse analysieren und Modelle validieren zu können. In der Zukunft kann die Infrastruktur aus kombinierten Modellierung und Messungen eingesetzt werden, um die Modelle besser initialisieren und die Genauigkeiten der Modellvorhersagen optimieren zu können. Die Demonstration dieses Potenzials war eines der Kernziele dieses Projekts.

4.2 Auswahl des Messstandorts und Design des Experiments

Aufgrund dieser Betrachtungen wurde ein logistisch und für das Experiment geeigneter Schweinemastbetrieb in Mettingen/Westfalen ($52^{\circ}19.44'N/7^{\circ}48.80'O$, 55 m über NN, Karte Abb. 4.1) ausgewählt, für den die folgenden Bedingungen gelten:

- großer Bestand,
- gute Zugangsmöglichkeiten am Betriebsgelände,
- Erfahrung des Betriebes in Kooperation mit Forschungs- oder Überwachungsvorhaben,
- keine ähnlich großen Tierhaltungen oder mutmaßlich andere wichtige Aerosolquellen in der näheren Umgebung,
- konstante und gut abgegrenzte Ventilation des Stalles,
- Einsehbarkeit von vielen Seiten und
- flaches Terrain im weiteren Umkreis.

Diese Bedingungen finden sich für keinen Betrieb in Baden-Württemberg.

Das flache Terrain und eine weitgehend trockene, sonnige Periode wurden gewählt, weil dies für die Simulation der Experimente mit dem Mikrophysik-Chemie-Transport-Modell erforderlich ist: Die Auswirkungen komplexen Terrains auf die Strömungsverhältnisse könnten nicht berücksichtigt werden und bei Verhältnissen geringer Durchmischung, wie sie bei vollständiger Bedeckung (und auch nachts) vorherrschen, könnte die spezifische Stärke des Modells, die Simulierung der Turbulenz in Form der Grobstruktur („large Eddy“), nicht angewandt werden.

Die Stallung beherbergte 1800 Tiere, also ca. 200 GVE mit ca. 120 t Lebendgewicht, unter einem Dach (ca. 25 m x 60 m, s. Abb. 12). Das Gebäude wurde aktiv belüftet, mit Ausstoß von $9 \pm 2 \text{ m}^3/\text{s}$ aus 2, ca. 30 m voneinander entfernten Kaminen. Damit ist eine Aerosolemissionsflussstärke in der Größenordnung von 100 g h^{-1} zu erwarten (bezogen auf PM_{10} ; IIASA, 2001).

Der Geruch in unmittelbarer Nähe und windabwärts war zumeist eher schwach, aber immer merklich. Unmittelbar östlich an das Stallgebäude angrenzend befindet sich ein oben offenes Güllelager, ca. 15 m im Durchmesser, das von unten beschickt wird. Aufgrund von Krustenbildung war es während der Messungen nahezu geruchslos.

Abb. 4.1: Mettingen, Westfalen, ist in der nord-deutschen Tiefebene, ca. 15 km nördlich des Kammes des Teutoburger Waldes gelegen (im roten Kreis)

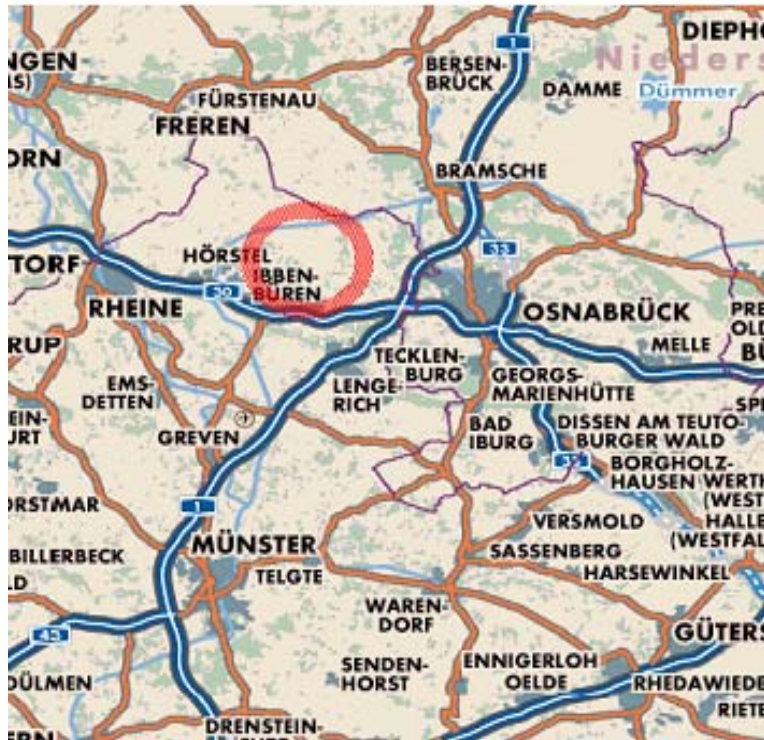


Abb. 4.2: Betriebsgelände mit (a.) Scanner des Lidar-Systems (Blickrichtung Süd, Entfernung 500 m) bzw. (b.) Probenahmegeräten für in-situ-Aerosolmessungen (Impaktor auf Stativ montiert, kombiniertes Filter- und Denudersammelgerät am Boden betrieben) im Vordergrund (Blickrichtung Nordost, Entfernung 150 m) bei Mettingen, Westfalen. In (b.) ist der Stall rechts im Bild.

a.



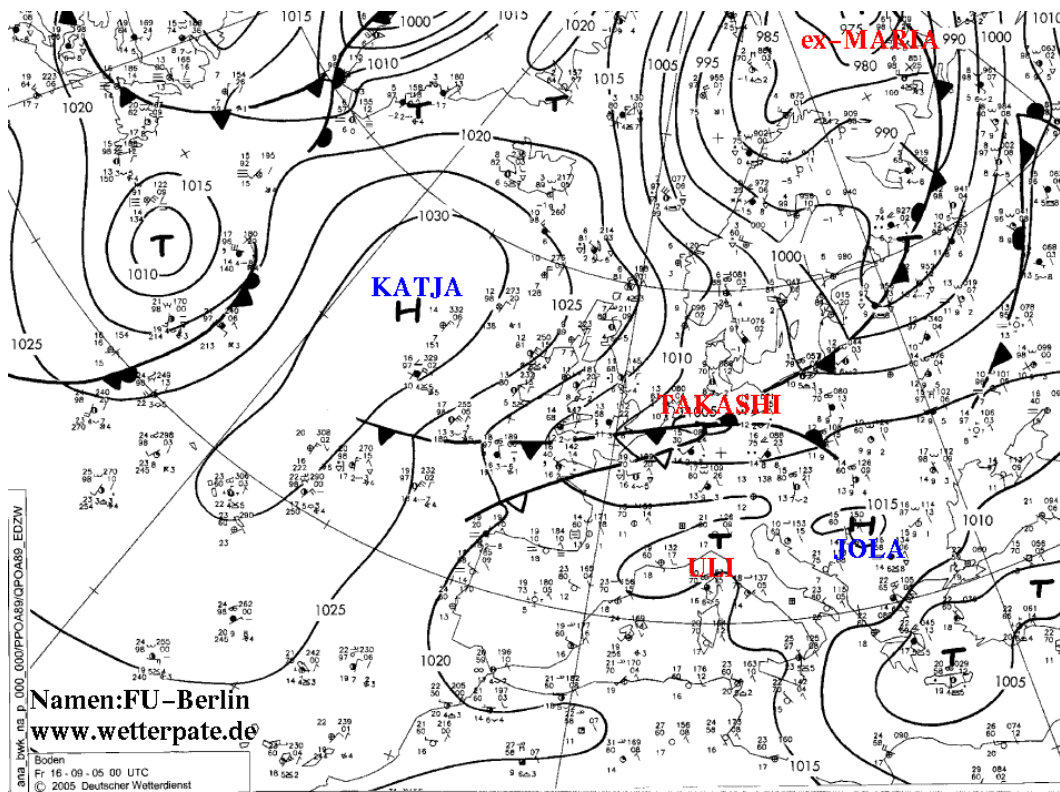
b.



4.3 Meteorologische Bedingungen während der Messkampagne

Die Messungen wurden in zwei unterschiedlichen Luftmassen durchgeführt: im Zeitraum 12.09.-15.09.05 vorbelastete Luft in westlicher Anströmung, feucht und bewölkt, unter Tiefdruck-Einfluss (Tief ‚Takashi‘, vgl. Abb. 4.3) und im Zeitraum 16.09.-20.09.05 maritime Hintergrundluft in nördlicher Anströmung, trocken und sonnig, unter Hochdruck-Einfluss (Hoch ‚Katja‘, vgl. Abb. 4.3). Radiosondenaufstiege zeigten klar die drastischen Unterschiede in der Feuchte und Anströmung der beiden Luftmassen (siehe weiter unten, Tab. 4.1, Abb. 4.6).

Abb. 4.3: Großräumige Wetterlage in der Nacht vom 15.9. auf den 16.9.05: Wechsel von Tief- nach Hochdruckeinfluss (‚Takashi‘ bzw. ‚Katja‘).



Da während der zweiten Messphase Lidar-Messungen zum Vergleich mit dem Modell vorlagen, konzentrieren wir uns in der meteorologischen Analyse auf den Zeitraum 16.09.-20.09.05. Hier verlief eine kräftige Höhenströmung mit Windgeschwindigkeiten über 25 m/s über Europa (s. Abb. 4.4 und 4.5). In diesem Bereich verlief der Haupttemperaturgegensatz zwischen der Luft arktischen Ursprungs im Norden und subtropischer Luft im Süden. Am südlichen Rand des Höhentropes hatten sich Höhenwirbel gebildet, die jedoch das Wetter in Mitteleuropa nicht beeinflussten. In den folgenden Tagen stieg der Luftdruck in der mittleren Troposphäre über dem östlichen Atlantik. Damit verlagerten sich die starke westliche Höhenströmung und damit auch die Zugbahnen nachfolgender Tiefdruckgebiete deutlich nach Norden. Über dem Mittelmeerraum schnürte sich ein Höhentief ab, dessen Frontensysteme in Italien, Griechenland und der Türkei zu kräftigen Niederschlägen führten.

Mit der Höhenströmung wanderte das Tief ‚Takashi‘ rasch ostwärts. Es überquerte mit seinem Zentrum Deutschland und zog weiter nach Russland. Entlang der dazu gehörigen Bo-

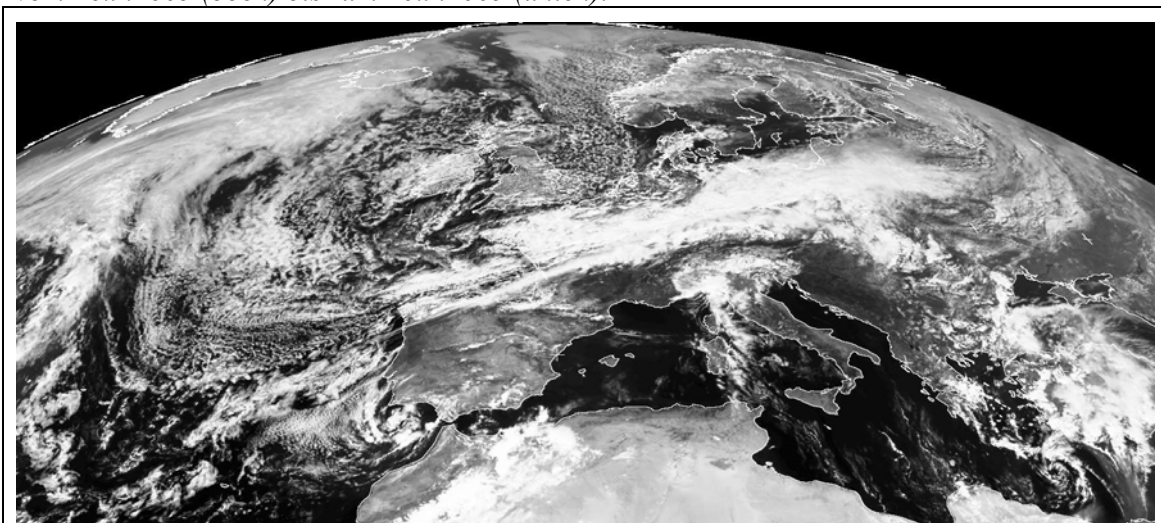
denfront, die im Tagesverlauf Deutschland von Norden nach Süden überquerte, traten z.T. kräftige Niederschläge auf. Während vor der Front noch einmal Temperaturen von deutlich über 20°C erreicht wurden, war es hinter der Front mit 10-15°C recht kühl. Die Kaltfront erreicht im Verlauf des 17.9. die Alpen.

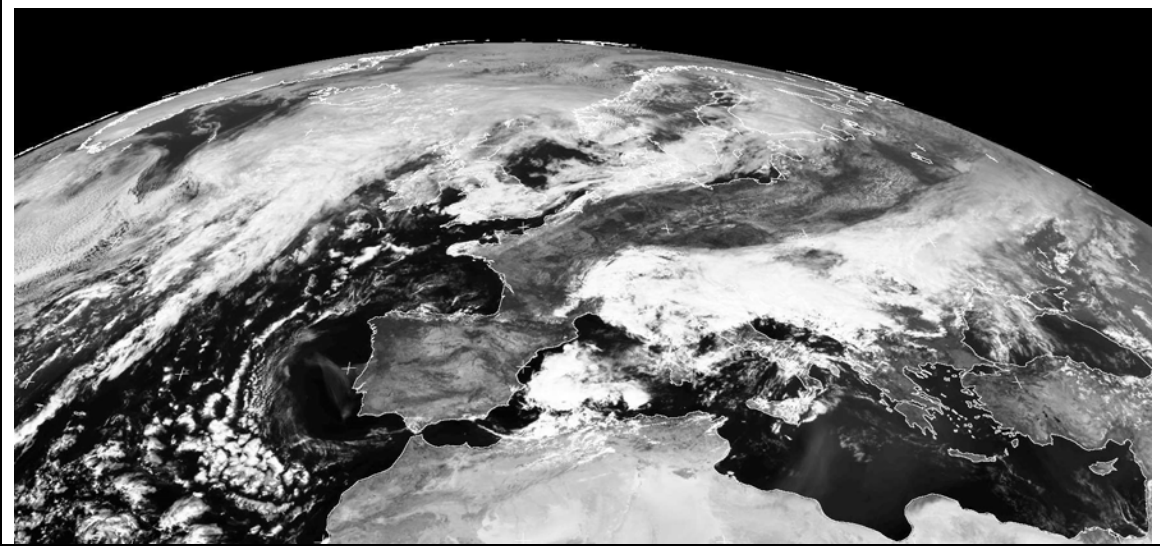
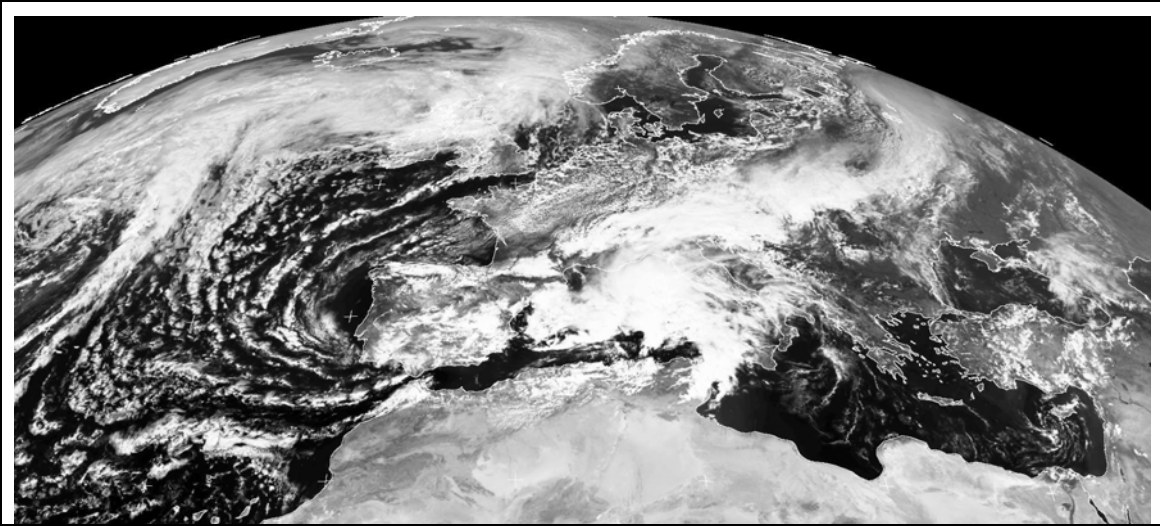
Im weiteren Verlauf setzte sich in ganz Deutschland kühlere, unter Hochdruckeinfluss geratende Luft durch. Bei fortschreitendem Luftdruckanstieg baute sich dabei über Mitteleuropa eine Hochdruckzone auf, in der in den nächsten Tagen weitgehend trockenes, nachts schon recht kaltes, am Tag aber angenehm warmes Herbstwetter herrschte. Der äußerste Norden Deutschlands wurde noch von den Wolkenfeldern nachfolgender Tiefdruckgebiete gestreift. In Nordwestdeutschland wurde die eingeflossene Meereskaltluft bei anhaltendem Sonnenschein am 17.9. auf 15-16°C erwärmt. In der Nacht wurde es aber mit Tiefstwerten knapp über dem Gefrierpunkt und mancherorts Bodenfrost schon empfindlich kalt. In der Nacht zum 18.9. blieb es im Bereich der Hochdruckzone wieder vielerorts klar, und bei nur schwacher Luftbewegung gab es im Norddeutschen Tiefland und den Mittelgebirgen den ersten Frost.

Während das Hoch ‚Katja‘ mit einem Kerndruck von 1030 hPa das Baltikum erreichte, bildete sich über Südwestengland eine weitere Hochdruckzelle, ‚Lilo‘, aus. Im Kernbereich dieser langgestreckten Hochdruckzone war es auch in der Nacht zum 19.9. meist klar. Allerdings kühlte es nicht mehr so stark ab wie in den vergangenen Nächten, da von der Nordsee kommende milde und feuchte Luft die vorhandene Luft polaren Ursprungs mehr und mehr verdrängte.

In die stabile Hochdruckzone sickerte über die Ostsee hinweg recht feuchte Luft mit einer geschlossenen Stratusschicht ins norddeutsche Binnenland ein. Das führte zu großen Temperaturgegensätzen zwischen den bewölkten und nicht bewölkten Gebieten tagsüber und auch nachts. Die Großwetterlage änderte sich aber auch in den nächsten Tagen nicht wesentlich, so dass in Mitteleuropa die antizyklonale Witterung andauerte. Der Schwerpunkt des hohen Luftdruckes verlagerte sich aber nach Osteuropa.

Abb. 4.4: Europaausschnitt des sichtbaren Kanals von Meteosat 8 für jeweils 12:00 h UTC vom 16.9.2005 (oben) bis zum 20.9.2005 (unten).





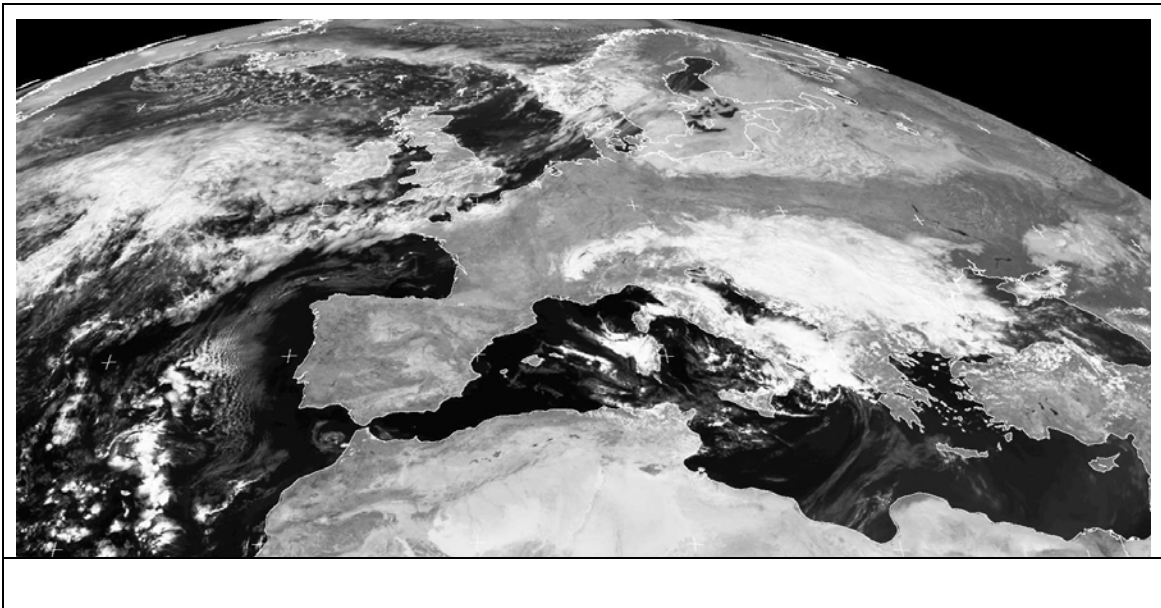
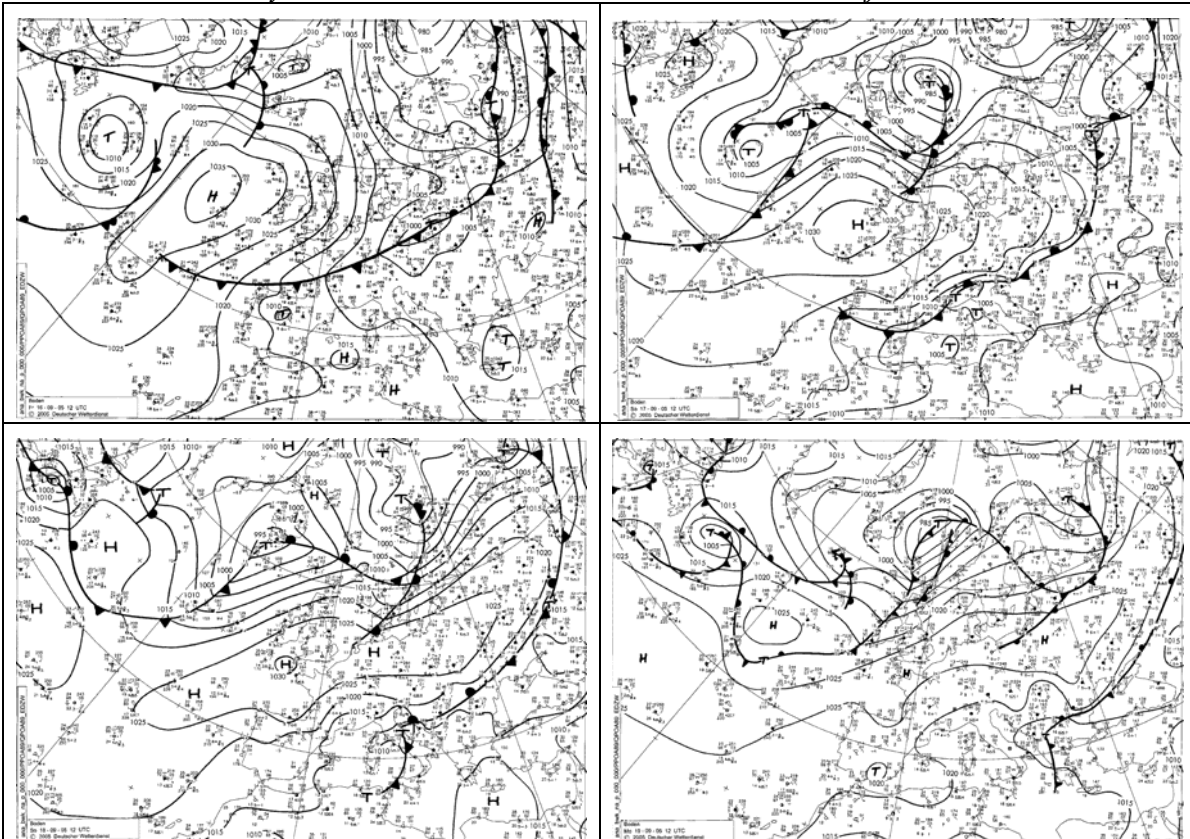
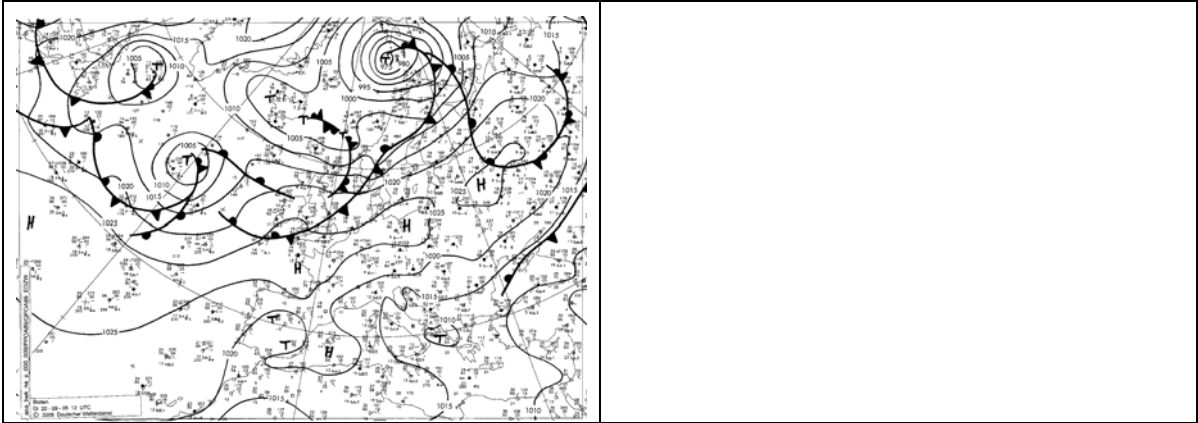


Abb. 4.5: Bodenanalysen des DWD vom 16.9.2005 bis zum 20.9.2005 jeweils um 12:00 h UTC.





Tab. 4.1: Messergebnisse und Beobachtungen während der Radiosondenaufstiege (a.) während der Intensivmesstage, 15.-17.9.05, in Mettingen in Bodennähe (60 m Höhe) und (b.) in 1000 m Höhe. UTC = MESZ – 2h. Results and observations during radio sonde launches during the intensive measurement period, 15.-17.9.05, in Mettingen (a.) near the ground (60 m height) and (b.) in 1000 m above ground. UTC = MESZ – 2h.

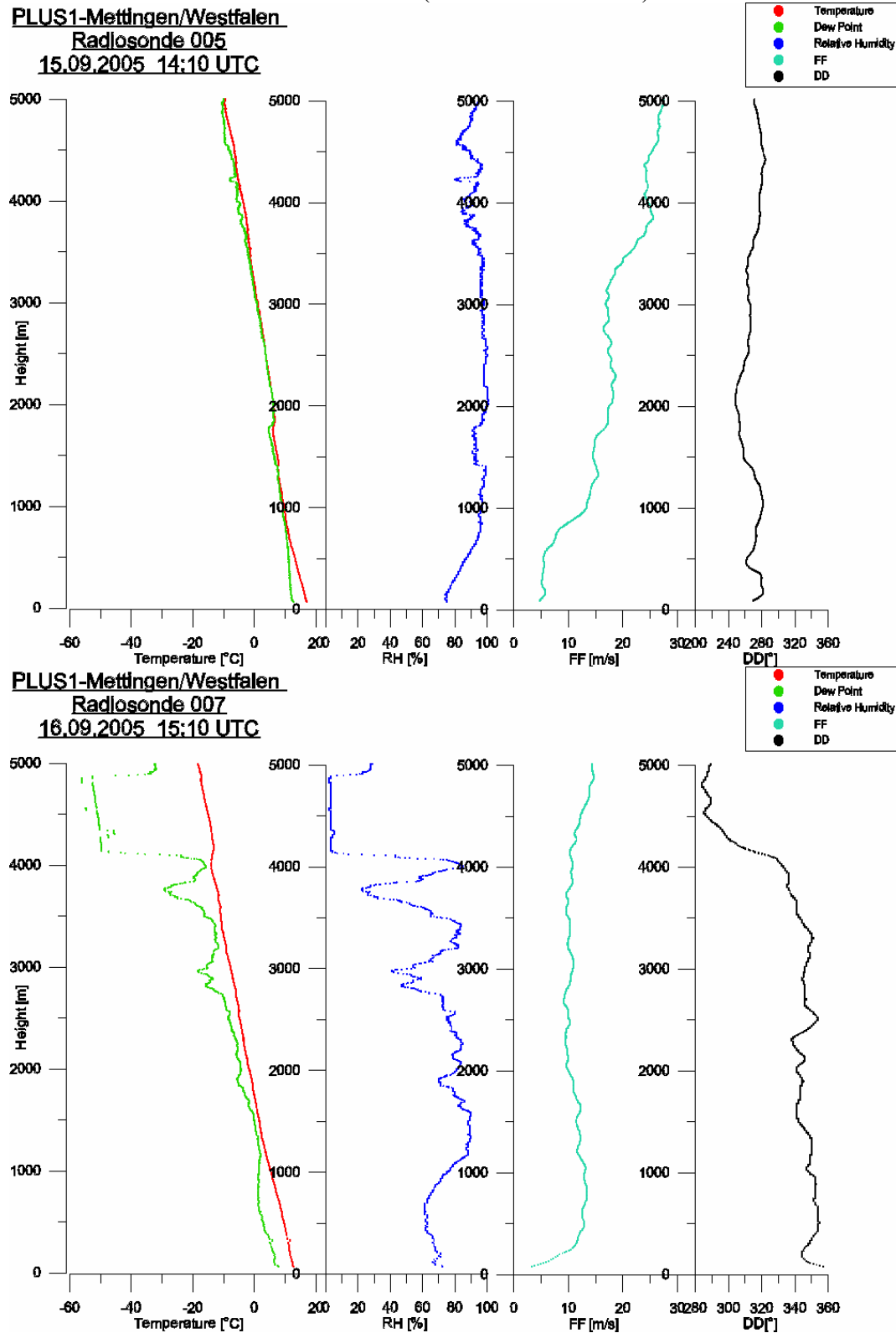
a.

Startzeit (UTC)	Bewöl- kungs- grad	Druck (hPa)	Tempe- ratur (°C)	relative Feuchte (%)	Wind- richtung (°)	Windge- schwindigkeit (m/s)
15.9.05 09:06	8/8	1010.0	18.5	73	186	0.6
15.9.05 11:50	7/8	1008.5	18.0	72	290	2.3
15.9.05 14:12	8/8	1006.3	17.0	76	260	1.1
16.9.05 11:43	4/8	1002.4	14.5	61	290	2.9
16.9.05 15:10	1/8	1003.4	12.9	72	360	2.7
17.9.05 07:29	0/8	1013.2	9.8	75	260	1.4
17.9.05 11:41	2/8	1014.5	14.4	50	320	2.3
17.9.05 14:54	3/8	1015.0	13.3	63	290	2.0

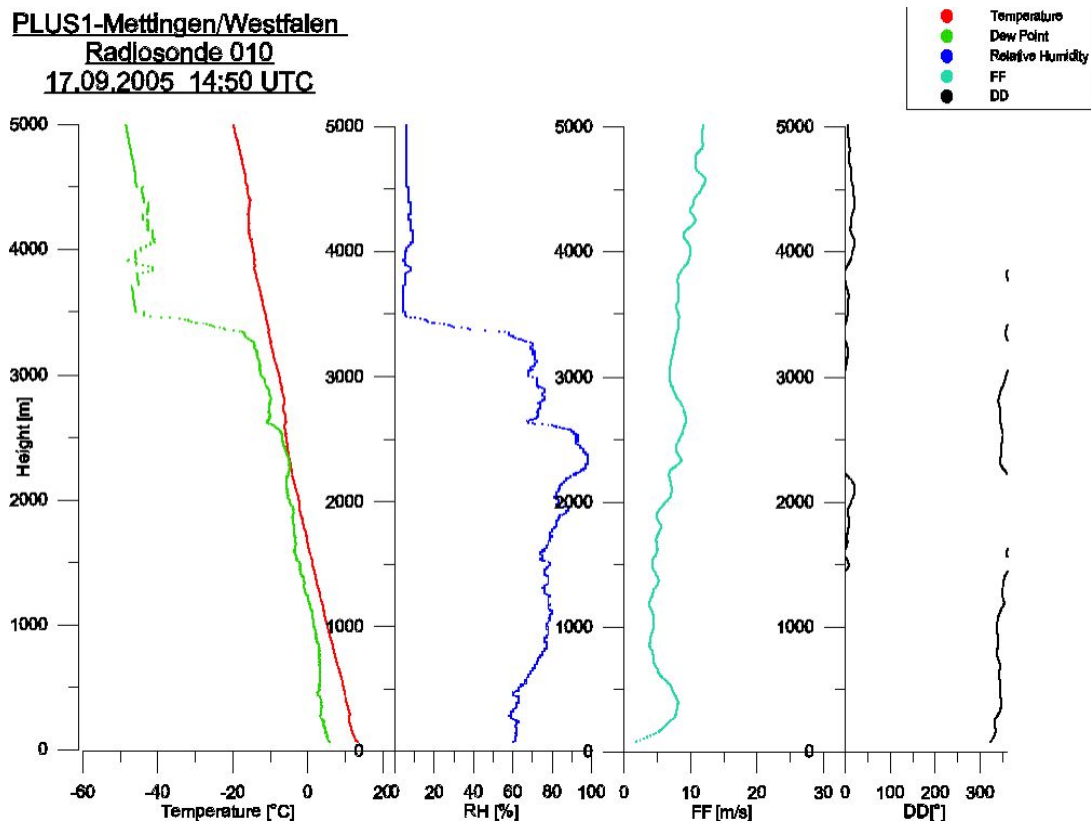
b.

Startzeit (UTC)	Druck (hPa)	Tempe- ratur (°C)	relative Feuchte (%)	Wind- richtung (°)	Windge- schwindigkeit (m/s)
15.9.05 09:06	895.9	8.9	96	272	14.7
15.9.05 11:50	895.0	10.1	84	269	13.6
15.9.05 14:12	892.9	9.2	97	281	13.6
16.9.05 11:43	888.1	4.6	73	344	10.7
16.9.05 15:10	888.7	4.7	79	349	12.9
17.9.05 07:29	896.6	3.0	75	344	7.0
17.9.05 11:41	898.5	3.8	89	327	4.6
17.9.05 14:54	899.3	4.6	79	340	4.4

Abb. 4.6: Vertikalprofile von Temperatur, Taupunkt, Luftfeuchte, Windgeschwindigkeit und -richtung in Mettingen von Boden bis 5000 m Höhe am Nachmittag des 15.9., 16.9. und 17.9.05 (Radiosondenaufstiege). UTC = MESZ – 2h. Vertical profiles of temperature, dew point, humidity, wind velocity and wind direction in Mettingen from ground to 5000 m on 15.9.05 afternoon and 16.9.05 afternoon (radio sonde launches). UTC = local time – 2h.



PLUS1-Mettingen/Westfalen
Radiosonde 010
17.09.2005 14:50 UTC



Die Luftmassen waren durch eher geringe Aerosolanzahl- und -massenkonzentrationen gekennzeichnet: Die aufwindige Partikelmassenkonzentration fiel von 120-220 $\mu\text{g m}^{-3}$ auf 25-40 $\mu\text{g m}^{-3}$ (PM_{10}), der Seesalzgehalt stieg stark an während der sekundärer Aerosole (Ammoniumnitrat und -sulfat) drastisch abfiel (vgl. Tab. 4.3, Abb. 4.16c-d gegenüber Abb. 4.16a-b weiter unten in *Abschnitt 4.5.1*). Die Partikelanzahlkonzentration fiel von 160 auf 4-5 ($0.3\text{-}1 \mu\text{m}$), bzw. von 1.4 auf 0.4 cm^{-3} ($> 1 \mu\text{m}$) (Tab. 4.3a in *Abschnitt 4.5.1*). Die Hintergrundluft war zwar deutlich weniger belastet (z.B. $< 10 \text{ ng m}^{-3}$ Pb statt $10\text{-}25 \text{ ng m}^{-3}$, siehe auch Abb. 12). Erhöhte Salpetersäurekonzentrationen, nämlich 4.5 ppbv ($13.1 \mu\text{g m}^{-3}$, Tab. 6) am Nachmittag des 16.9., deuten jedoch auf eine zumindest zeitweise Vorbelastung an NO_x auch dieser Luftmasse.

Entsprechend der Windverhältnisse vor Ort wurden während der zweiten Messphase die in Abb. 4.7 bezeichneten Messanordnungen verwirklicht.

Abb. 4.7: Windrichtung (Pfeile) und Experimentanordnung mit Position der Schweinemast (großer Kreis), des Lidarsystems und der aufwindigen (gelb) und abwindigen (orange, rot) Probenahme- und Messpunkte während der Intensivmesstage, 15.-17.9.05, bei Mettingen, Westfalen. Die schwarzen Strahlen geben ein Beispiel für PPI-Scans (plane position indicator) des Lidarsystems. Zweistellige Zahlen bezeichnen Höhe üNN (m). Wind directions (arrows) and field experiment configuration with locations of the pig house (large circle), the lidar system and the upwind (yellow) and downwind (orange, red) sampling and measuring sites during the intensive measurement period, 15.-17.9.05, close to Mettingen. The black radii denote a PPI (plane position indicator) scan of the lidar system. Two-digit numbers depict height above sea level (m).



4.4 Lidar-Betrieb

4.4.1 Überblick

Während der Dauer der Messkampagne (11. – 21.09.2005) wurde das Lidarsystem intensiv betrieben. Eine Übersicht der Messzeiten und Betriebsart ist in Tab. 4.2 zusammen gefasst.

Tab. 4.2: Übersicht der Messzeiten und Betriebsart des Lidar-Systems in Mettingen. Hierbei sind:

PPI Scan Der Azimutwinkel (= Winkel zwischen horizontaler Auslenkung und Nullpunkt des Scanners) wird kontinuierlich variiert, währenddessen der Elevationswinkel (= Winkel zwischen vertikaler Auslenkung und Horizont) konstant gehalten wird (vgl. Abb. 18).

RHI Scan Der Elevationswinkel wird kontinuierlich variiert, währenddessen der Azimutwinkel konstant gehalten wird (vgl. Abb. 19).

PPI Volumenscan PPI Scan, wobei der Elevationswinkel in Stufen verändert wird.

RHI Volumenscan RHI Scan, wobei der Azimutwinkel in Stufen verändert wird.

Mit Hilfe eines Eichrückstreuers (s. Abschnitt 4.4,2) wurden die Azimut- und Elevationswinkel in Bezug auf die Nordrichtung und die Horizontale bestimmt. Es ergab sich, dass die Nordrichtung einem Azimutwinkel von 148.54° und die Horizontale einem Elevationswinkel von 0.24° entsprach. Die Position des Betriebs entsprach einem Azimutwinkel von $193,5^\circ$. Die Entfernung des Betriebs vom Lidar-System betrug 480 m.

Datum	Zeit (UTC)	Details und Typ des Scans	Auflösung der Daten	Anmerkung
12.09.2005	16:00 – 18:00	Testmessungen		
13.09.2005	17:00 – 18:00	(i) PPI Scan Scangeschwindigkeit: $0,1^\circ/\text{s}$	Zeitlich: 0,33 s Räumlich: 3 m	Hardtarget Messungen zur Kalibrierung des Azimutwinkels
	18:00 – 19:00	(ii) PPI Volumenscan Azimutwinkel Start: 73° Azimutwinkel Ende: 78° Elevationswinkel Start: $1,5^\circ$ Elevationswinkel Ende: $3,0^\circ$ Scangeschwindigkeit: $0,1^\circ/\text{s}$	s. oben	

15.09.2005	08:30 – 09:00	(i) RHI Scan Elevationswinkel Start: 5,5° Elevationswinkel Ende: 20,0° Azimutwinkel: 60,0° Scangeschwindigkeit: 0,5°/s (ii) RHI Scan Elevationswinkel Start: 5,5° Elevationswinkel Ende: 20,0° Azimutwinkel: 20,0° Scangeschwindigkeit: 0,5°/s (iii) RHI Scan Elevationswinkel Start: 5,5° Elevationswinkel Ende: 20,0° Azimutwinkel: 60,0° Scangeschwindigkeit: 5°/s	Zeitlich: 0,033 s Räumlich: 3 m	
	09:00 – 09:32	(iv)s. oben	s. oben	Messung des Hintergrundrauschens
	09:45 – 10:15	(i) RHI Volumenscan Elevationswinkel Start: 5° Elevationswinkel Ende: 20° Azimutwinkel Start: 60° Azimutwinkel Ende: 20° Scangeschwindigkeit: 1°/s	s. oben	
	10:30 – 11:00	(ii) RHI scan Elevationswinkel Start: 5,0° Elevationswinkel Ende: 20,0° Azimutwinkel: 60,0°	s. oben	
	ab 11:00		NA	keine Messungen mehr möglich
16.09.2005	12:20 – 13:45	(i) RHI Volumenscan Elevationswinkel Start: 2° Elevationswinkel Ende: 30° Azimutwinkel Start: 0° Azimutwinkel Ende: 70° Scangeschwindigkeit: 1°/s	Zeitlich: 0,033 s Räumlich: 3 m	

	13:55 – 14:20	(ii) PPI Scan Azimutwinkel Start: 0° Azimutwinkel Ende: 85° Elevationswinkel: 10° Scangeschwindigkeit: 1°/s	s. oben	
	15:14 – 15:30	(iii) PPI Scan Azimutwinkel Start: -50° Azimutwinkel Ende: 85° Elevationswinkel: 10° Scangeschwindigkeit: 1°/s	s. oben	
	16:40 – 16:50	(iv) PPI Scan Azimutwinkel Start: -40° Azimutwinkel Ende: 40° Elevationswinkel: 5° Scangeschwindigkeit: 1°/s	s. oben	
17.09.2005	09:40 – 10:40	(i) PPI Volumenscan Azimutwinkel Start: 0° Azimutwinkel Ende: 85° Elevationswinkel Start: 5° Elevationswinkel Ende: 20° Scangeschwindigkeit: 0,5°/s	Zeitlich: 0,033 s Räumlich: 3 m	
	11:00 – 11:30	(ii) PPI Volumenscan Azimutwinkel Start: 73° Azimutwinkel Ende: 78° Elevationswinkel Start: 2° Elevationswinkel Ende: 3,5° Scangeschwindigkeit: 0,1°/s	s. oben	Hardtarget Mes- sungen
	11:43 – 12:40	(iii) PPI Volumenscan Azimutwinkel Start: 0° Azimutwinkel Ende: 85° Elevationswinkel Start: 5° Elevationswinkel Ende: 30° Scangeschwindigkeit: 0,5°/s	s. oben	

	15:45 – 16:15	(iv) PPI Volumenscan Azimutwinkel Start: 0° Azimutwinkel Ende: 80° Elevationswinkel Start: 5° Elevationswinkel Ende: 20° Scangeschwindigkeit: 0,5°/s	s. oben	
	17:00 – 18:00	(v) PPI Volumenscan Azimutwinkel Start: -30° Azimutwinkel Ende: 80° Elevationswinkel Start: 5° Elevationswinkel Ende: 15° Scangeschwindigkeit: 1°/s	s. oben	
18.09.2005	08:30 – 09:30	(i) PPI Volumenscan Azimutwinkel Start: -30° Azimutwinkel Ende: 85° Elevationswinkel Start: 5° Elevationswinkel Ende: 20° Scangeschwindigkeit: 5°/s	Zeitlich: 0,033 s Räumlich: 3 m	
	09:35 – 10:15	(ii) PPI Volumenscan Azimutwinkel Start: -10° Azimutwinkel Ende: 80° Elevationswinkel Start: 5° Elevationswinkel Ende: 20° Scangeschwindigkeit: 5°/s	s. oben	
	10:16 – 10:45	(iii) PPI Volumenscan Azimutwinkel Start: -10° Azimutwinkel Ende: 80° Elevationswinkel Start: 5° Elevationswinkel Ende: 25° Scangeschwindigkeit: 1°/s	s. oben	
	10:45 – 12:15	(iv) PPI Volumenscan Azimutwinkel Start: -10° Azimutwinkel Ende: 80° Elevationswinkel Start: 5° Elevationswinkel Ende: 20° Scangeschwindigkeit: 0,5°/s	Zeitlich: 0,33 s Räumlich: 3 m	Rauchfahne

	12:50 – 14:00	(v) RHI Volumenscan Elevationswinkel Start: 5° Elevationswinkel Ende: 25° Azimutwinkel Start: -10° Azimutwinkel Ende: 85° Scangeschwindigkeit: 1°/s	s. oben	
19.09.2005	08:55 – 09:55	(i) PPI Volumenscan Azimutwinkel Start: -10° Azimutwinkel Ende: 80° Elevationswinkel Start: 5° Elevationswinkel Ende: 20° Scangeschwindigkeit: 1°/s	Zeitlich: 0,033 s Räumlich: 3 m	
	10:50 – 12:30	(ii) PPI Scan Start azimuth angle: -50° End azimuth angle: 85° Fixed elevation angle: 5° Scan rate: : 1°/sec	s. oben	
	12:40 – 13:40	(iii) PPI Volumenscan Azimutwinkel Start: -30° Azimutwinkel Ende: 60° Elevationswinkel Start: 5° Elevationswinkel Ende: 20° Scangeschwindigkeit: 0,5°/s	s. oben	
	13:45 – 14:30	(iv) Spherischer RHI Scan Elevationswinkel Start: 5° Elevationswinkel Ende: 175° Azimutwinkel: 0°	s. oben	
	16:30 – 17:40	(v) PPI Volumenscan Azimutwinkel Start: -10° Azimutwinkel Ende: 80° Elevationswinkel Start: 5° Elevationswinkel Ende: 25° Scangeschwindigkeit: 1°/s	s. oben	

	17:40 – 17:50	(vi) RHI Scan Elevationswinkel Start: 2° Elevationswinkel Ende: 20° Azimutwinkel: 170° Scangeschwindigkeit: 0,5°/s	s. oben	
20.09.2005	08:15 – 08:30	(i) PPI Scan Azimutwinkel Start: -30° Azimutwinkel Ende: 85° Elevationswinkel: 10° Scangeschwindigkeit: 0,5°/s	Zeitlich: 0,033 s Räumlich: 3 m	
	08:45 – 09:45	(ii) PPI Scan Azimutwinkel Start: -10° Azimutwinkel Ende: 85° Elevationswinkel: 5° Scangeschwindigkeit: 1°/s	s. oben	
	09:50 – 11:00	(iii) PPI Scan Azimutwinkel Start: -10° Azimutwinkel Ende: 85° Elevationswinkel: 15° Scangeschwindigkeit: 1°/s	s. oben	
	11:05 – 12:05	(iv) PPI Scan Azimutwinkel Start: -10° Azimutwinkel Ende: 85° Elevationswinkel: 5° Scangeschwindigkeit: 1°/s	Zeitlich: 0,033 s Räumlich: 3 m	
	12:35 – 13:30	(v) PPI Scan Azimutwinkel Start: -10° Azimutwinkel Ende: 85° Elevationswinkel: 20° Scangeschwindigkeit: 1°/s	s. oben	
	13:30 – 14:00	(vi) Spherischer RHI Scan Elevationswinkel Start: 5° Elevationswinkel Ende: 175° Azimutwinkel Start: 40° Scangeschwindigkeit: 0,5°/s	s. oben	

	16:15 – 16:30	(vii) PPI Scan Azimutwinkel Start: 30° Azimutwinkel Ende: 60° Elevationswinkel: 2,5° Scangeschwindigkeit: 2°/s	s. oben	
	16:31 – 16:45	(viii) PPI Scan Azimutwinkel Start: 40° Azimutwinkel Ende: 50° Elevationswinkel: 2,5° Scangeschwindigkeit: 1°/s	Zeitlich: 0,33 s Räumlich: 3 m	
	16:55 – 17:05	(ix) PPI Scan Azimutwinkel Start: 30° Azimutwinkel Ende: 350° Elevationswinkel: 5° Scangeschwindigkeit: 1°/s	s. oben	Rauchfahne
	18:00 – 18:20	(x) s. oben	s. oben	Messung des Hintergrundrauschens
21.09.2005	10:00 – 10:15	(i) s. oben	s. oben	Messung des Hintergrundrauschens für verschiedene Teleskop-Gesichtsfelder
	10:20 – 11:20	(ii) PPI Volumenscan Azimutwinkel Start: -30° Azimutwinkel Ende: 80° Elevationswinkel Start: 5° Elevationswinkel Ende: 20° Scangeschwindigkeit: 0,5°/s	s. oben	
	12:15 – 13:15	(iii) s. oben	s. oben	

Abb. 4.7: Beispiel für einen PPI Scan.

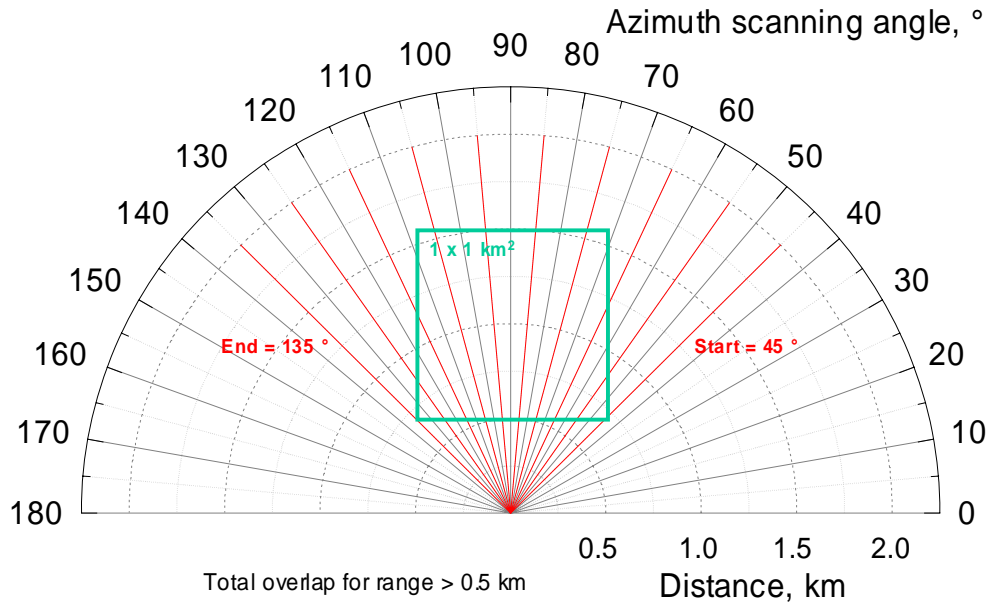
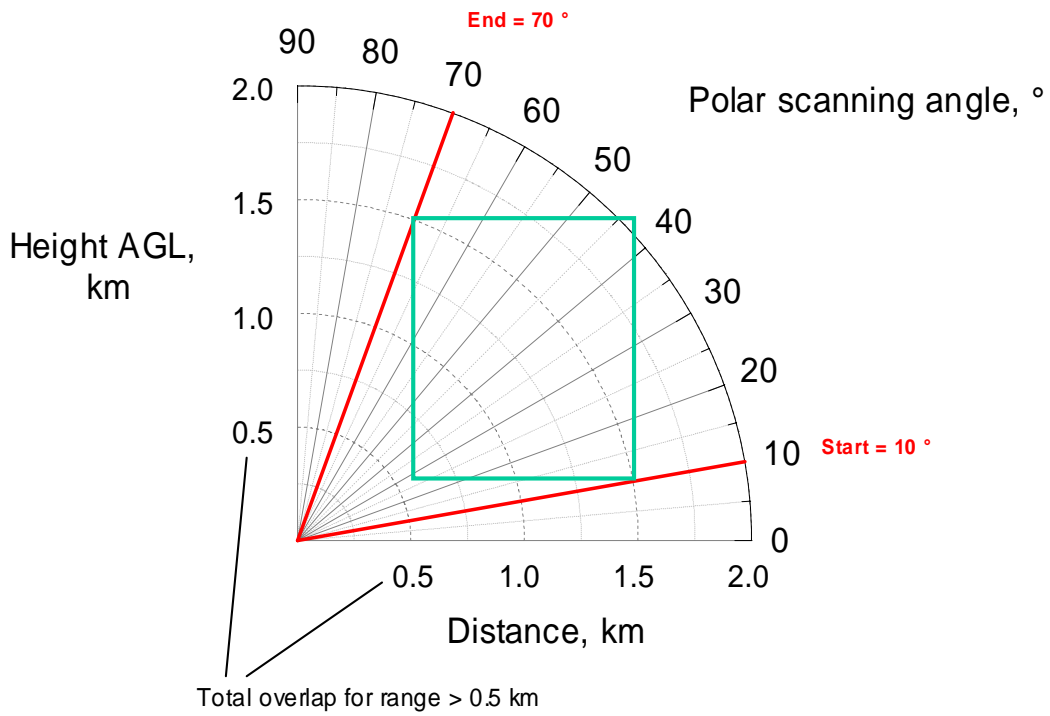


Abb. 4.8: Beispiel für einen RHI Scan.



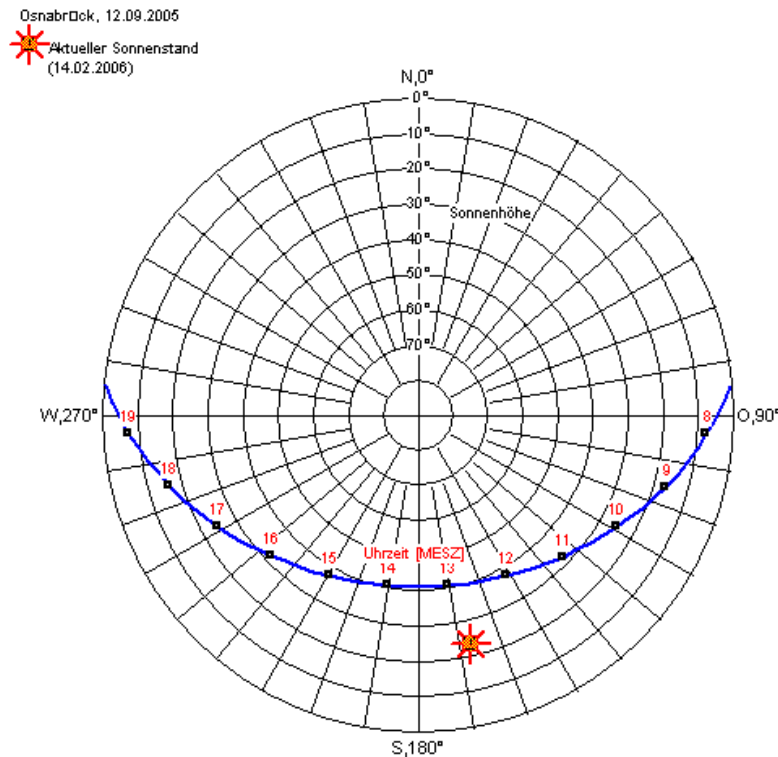
Während der Messkampagne gab es Randbedingungen, die Lidarmessungen verhinderten:

- a) Regen
- b) Kondensation auf der Lidar-Optik durch hohe Luftfeuchtigkeit, insbesondere abends und nachts

Außerdem war ein Abtasten bestimmter Himmelsrichtungen in Abhängigkeit von der Uhrzeit bisher nicht möglich, da der empfindliche Detektor keinesfalls einer direkten Sonnenbestrahlung ausgesetzt werden darf (vgl. Abb. 4.9). Diese Positionen wurden während des Messbetriebs kontinuierlich beachtet.

Abb. 4.9: Sonnenstand in Abhängigkeit von der lokalen Uhrzeit für Osnabrück (ca. 20 km östlich von Mettingen) für den 12.09.2005.

Position of the Sun



4.4.2 Kalibrierung der Ausrichtung des Lidar-Scanners

Um die Ausrichtung des UHOH-Lidars während der Messkampagne in Mettingen möglichst genau zu bestimmen, um also die Azimutwinkel der Lidar-Scans zu kalibrieren, wurden so genannte „Hard Target“-Messungen ("hard target", engl., etwa "festes Ziel") durchgeführt. Bei diesen Messungen wurde nicht allein das atmosphärische Rückstreuensignal aufgelöst detektiert, sondern das Abtastmuster des Scanners so gewählt, dass der vom Lidar ausgesendete Laserstrahl auf einen Kühlturm und einen Kraftwerkschornstein traf. Hard Targets streuen das Licht mit deutlich größerem Rückstreuoeffizienten als typische atmosphäri-

sche Bestandteile. Die genauen Positionen dieser zwei Schornsteine sind bekannt (s. Abb. 4.10), so dass durch Vergleich der mit dem Lidar gemessenen Position bei bekannten Winkeln zwischen Scannerposition und den Schornsteinen die Ausrichtung des Lidar-Systems bestimmt werden konnte. Ein Messergebnis ist beispielhaft in Abb. 4.11 wiedergegeben. Die Messungen (Teil eines PPI-Volumenscans, siehe unten, am 17.09.2005, Uhrzeit: 11:00 – 11:15 UTC), die mit einer Abtastgeschwindigkeit von $0.1^\circ/\text{s}$ insgesamt über einen Azimutwinkelbereich von 6° durchgeführt wurden, überdeckten Elevationswinkel von 2 bis $3,5^\circ$ in Schritten von $0,1^\circ$ (Tab. 4.2). Diese Kalibrierungsmessungen wurden mit maximaler Auflösung des Lidars durchgeführt: Die zeitliche Auflösung der Messungen betrug 0.033 s (Aufnahme der Rückstreusignale jedes einzelnen Laserpulses bei 30 Hz Laserrepetitionsrate). Die Entfernungsauflösung ist 3 m (Länge jedes einzelnen Abtastintervalls). An diesem Messbeispiel wird die außerordentlich hohe Leistungsfähigkeit des IPM-Lidars, d.h. die große Reichweite bei hoher räumlicher Auflösung, und die hohe Winkelgenauigkeit des hier erstmals eingesetzten neuen Scanners deutlich. Wie unter Abb. 4.7 bereits erwähnt, ergaben sich darauf Eichwinkel von $148,54^\circ$ für den Nordazimutwinkel und $0,24^\circ$ für den horizontalen Elevationswinkel.

Abb. 4.10: Lage des Kühlturms und eines daneben stehenden Kraftwerkschornsteins relativ zum UHOH Lidar. Die Entfernungsringe haben einen Abstand von 1000 m .

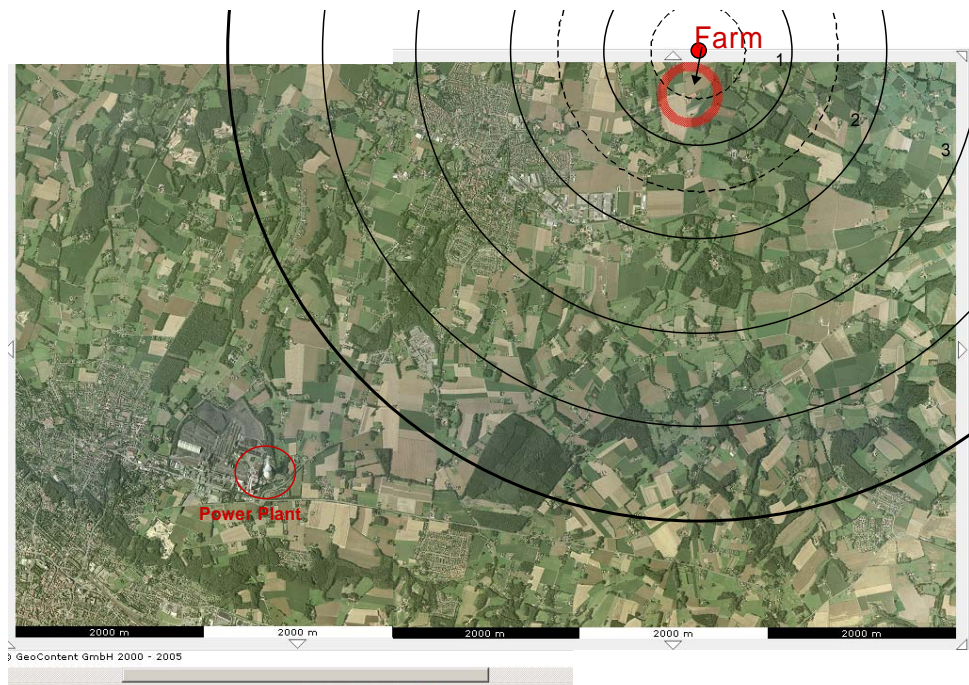
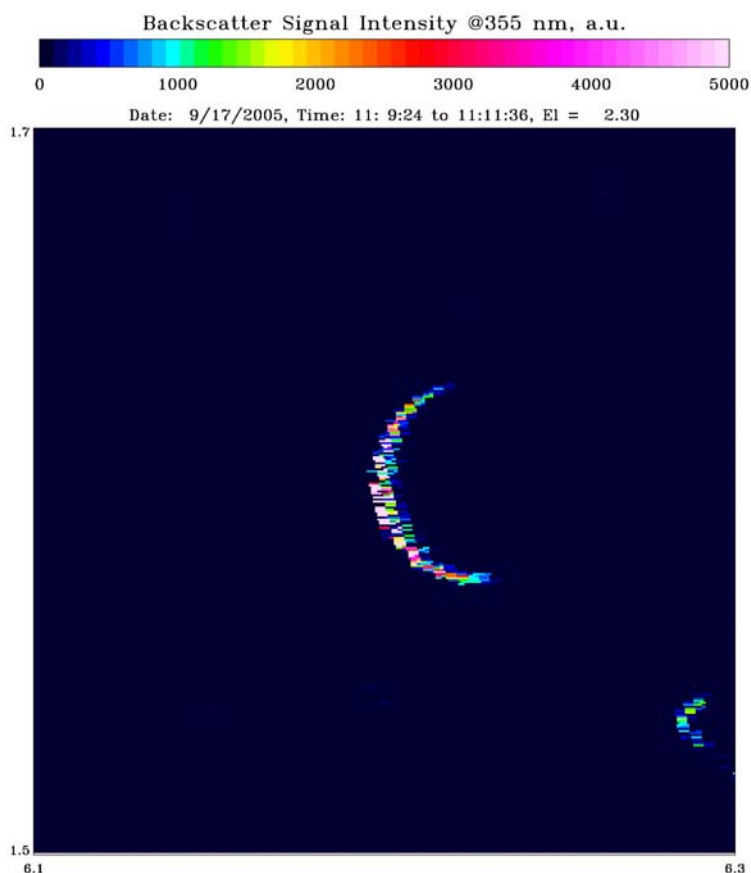


Abb. 4.11: *Abtastung eines Kühlturms und eines daneben stehenden Kraftwerkschornsteins mit dem IPM-Lidar zur Kalibrierung der Scannerausrichtung während der Messkampagne in Mettingen (Details siehe Text). Die Abbildung zeigt einen quadratischen Ausschnitt der Messungen mit 200 m Kantenlänge bei einem niedrigen Elevationswinkel von $2,3^\circ$ über dem Horizont. Die Entfernung der Schonsteine zum Lidar betrug ca. 6.4 km, die Abtastung geschah also in ca. 260 m Höhe über dem Standort des Lidars. Bei einer Abtastgeschwindigkeit von $0,1^\circ/s$ betragen die Auflösungen $0,033$ s und 3 m.*



4.4.3 RHI-Scans

Ein Range-Height-Indicator (RHI) bezeichnet ein fächerartiges Abtastmuster, bei dem während einer Abtastung Entfernungsprofile unter konstantem Polarwinkel mit kontinuierlich variiertem Elevationswinkel aufgenommen werden. Die Abbildung 4.12 zeigt Messbeispiele für RHI-Scans, die mit dem Lidar während der im Rahmen dieses Projekts durchgeführten Messkampagne in Mettingen aufgenommen wurden. RHI-Volumenscans sind eine Erweiterung von RHI-Scans bei der zwischen zwei aufeinander folgenden RHI-Scans der Polarwinkel schrittweise (in konstanten Schritten) verändert wird.

Die Abb. 4.13 zeigt einen RHI-Scan bei einem Elevationswinkelbereich von 180 Grad mit einer Scangeschwindigkeit von 1 Grad/s und Auflösungen von 1 s und 3 m. Deutlich erkennbar ist die Oberkante der planetaren Grenzschicht in etwa 1200 m Höhe, die sich durch stärkere Partikel-Rückstreusignale abzeichnet.

Abb. 4.12: Beispiele von RHI-Scans in Entfernungs-Höhen-Darstellung: Vertikalschnitte einer Aerosolstruktur, die durch Verbrennung pflanzlichen Abfalls entstanden ist. Entfernungskorrigierte Rückstreusignale sind gegen Entfernung und Höhe über dem Lidar-System aufgetragen. Die Bilder zeigen einen konstanten Ausschnitt der durchgeführten Messungen mit Höhen von 10 bis 40 m und einer Entfernung von 350 bis 500 m. Der Azimutwinkel ist konstant ($318,4^\circ$ bezüglich Nord). Die Scans wurden im Abstand von ca. 45 s aufgenommen bei einer Abtastgeschwindigkeit von $0,5^\circ/s$ und Auflösungen von $0,033$ s

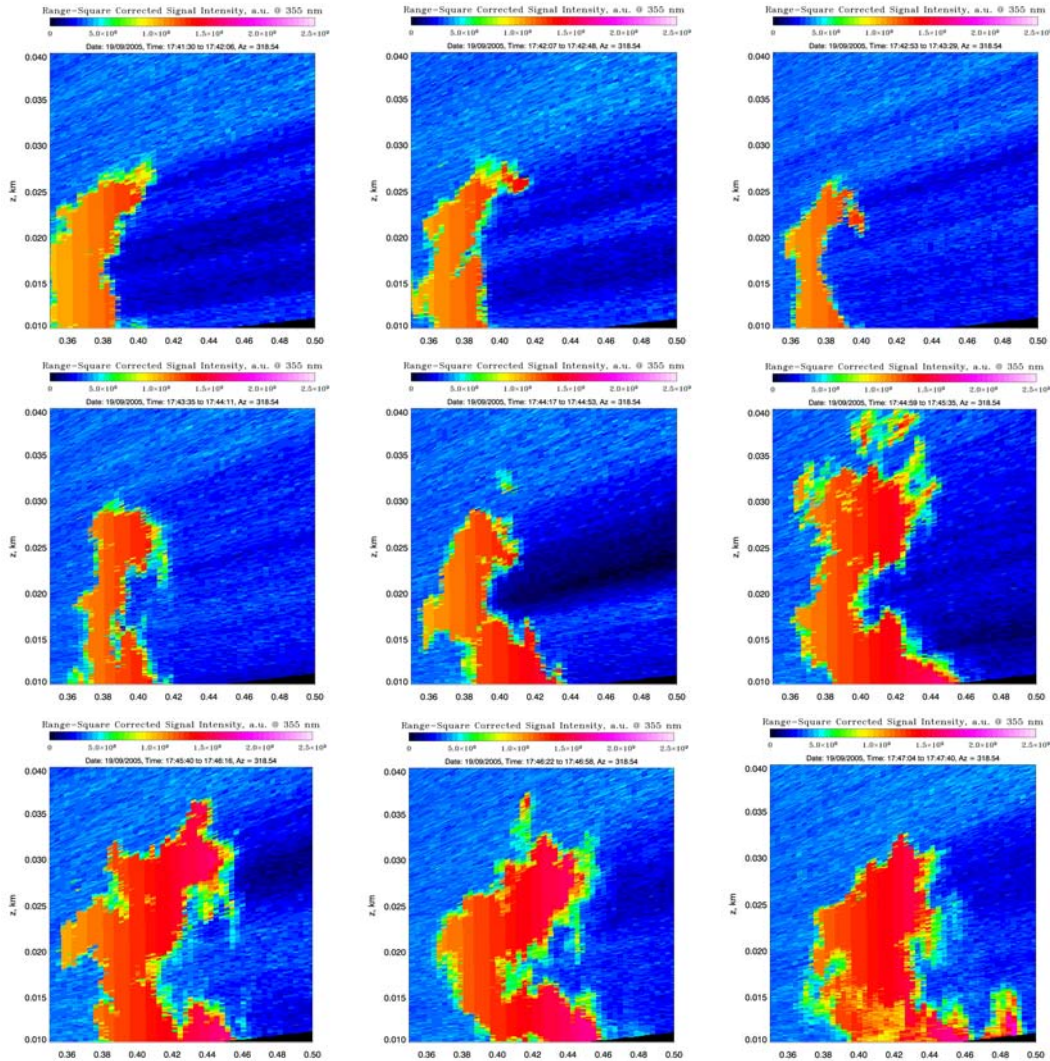
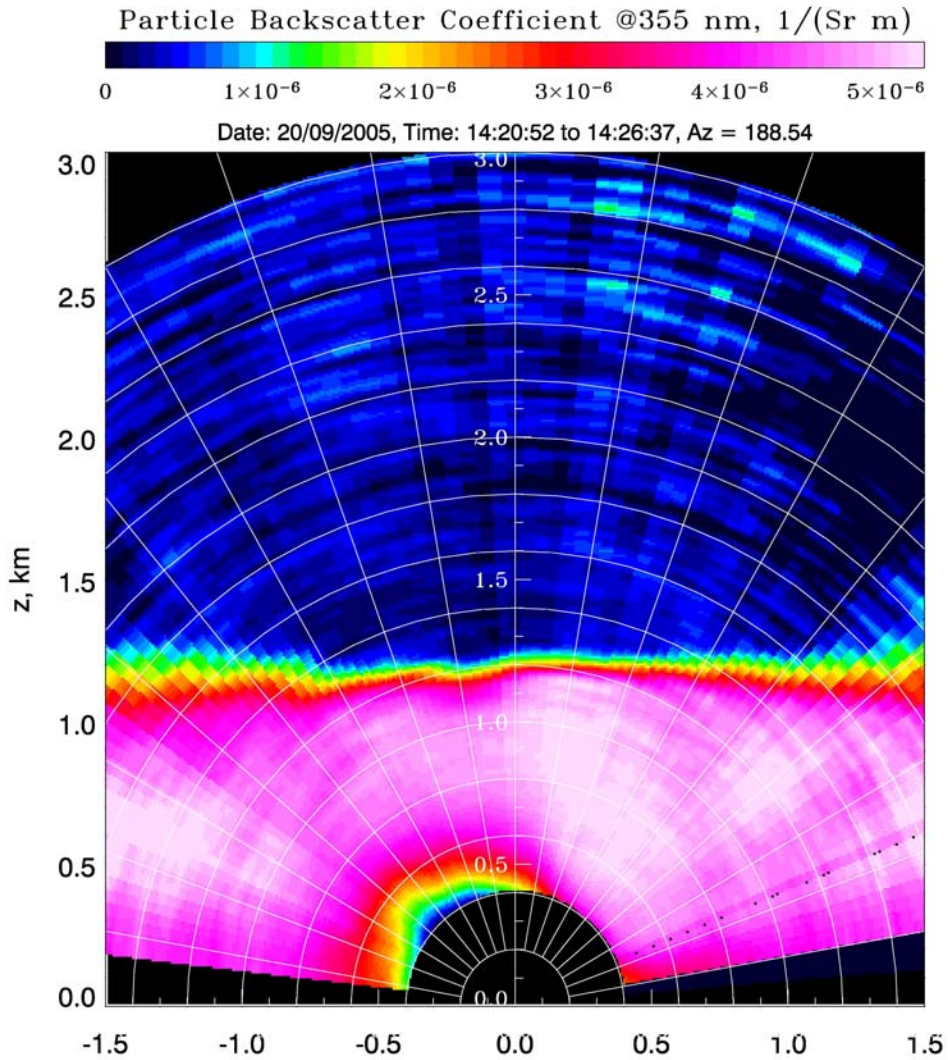


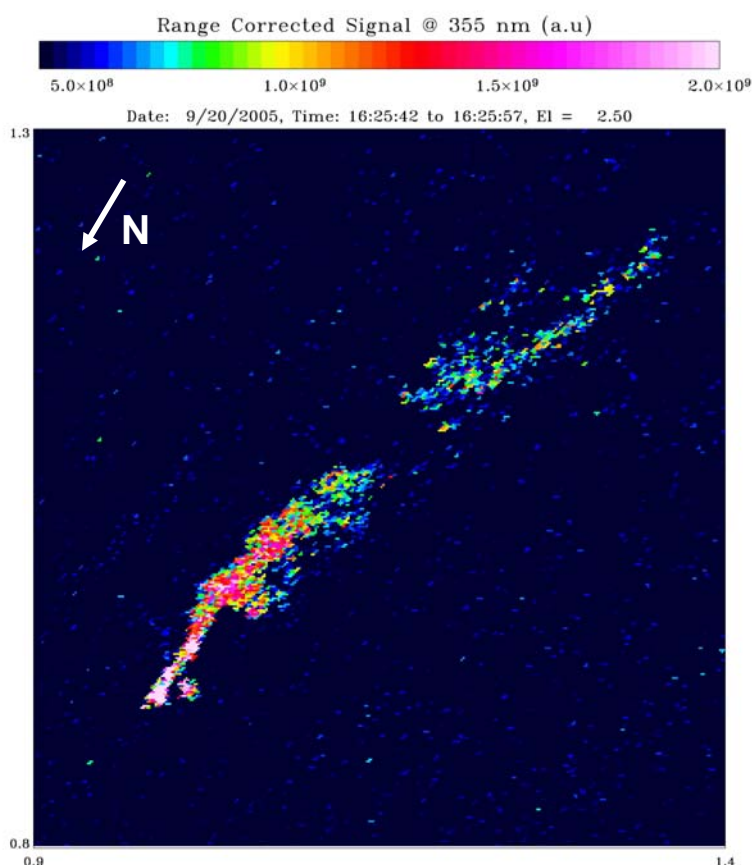
Abb. 4.13: RHI-Scan zur Eichung des Lidar-Systems, zur Untersuchung durch vertikalen Durchmischung mit Aerosolpartikeln und zur Detektion der Grenzschichthöhe. Die Grenzschicht ist gut durchmischt und hat eine Höhe von etwa 1200 m über dem Bodenniveau. Die Abtastgeschwindigkeit betrug 0,5%/s. Das Feld des Partikelrückstreukoeffizienten wurde mit Auflösungen von 1 s und 30 m bestimmt.



4.4.4 PPI-Scans

Ein Plane-Polar-Indicator (PPI) bezeichnet ein konisches Abtastmuster, bei dem während eines Scans Entfernungsprofile unter konstantem Elevationswinkel mit kontinuierlich variiertem Polarwinkel aufgenommen werden. Die Abbildung 4.14 zeigt ein Messbeispiel für ein PPI-Scan wie sie mit dem IPM-Lidar während der im Rahmen dieses Projekts durchgeführten Messkampagne in Mettingen aufgenommen wurden. PPI-Volumenscans sind eine Erweiterung von PPI-Scans bei der zwischen zwei aufeinanderfolgenden PPI-Scans der Elevationswinkel schrittweise (in konstanten Schritten) verändert wird.

Abb. 4.14: Beispiel für eine PPI-Abtastung eines Aerosolsignals in Polar-Darstellung (in km; rechteckiger Ausschnitt von 0,5 km * 0,5 km Kantentlänge). Der Elevationswinkel betrug 2,5°. Die Quelle der Aerosole (Verbrennung pflanzlicher Abfälle, s. auch Abb. 4.12) ist unter dem Bereich der stärksten Rückstreusignale lokalisiert (in ca. 1,2 km Abstand vom Lidar). Die turbulente Verdriftung und Verbreiterung des Aerosolfeldes durch den Wind ist deutlich erkennbar.



Die in Abb. 4.14 gezeigten Messdaten wurden am 20.09.2005 während eines PPI-Volumenscans mit einem Elevationswinkel von 2,5° aufgezeichnet. Gescannt wurde in einem Bereich von 30° bis 60° relativ zum Nullpunkt des Scanners für den Azimutwinkel, mit einer Scangeschwindigkeit von 2°/s, so dass ein Scan ca. 15 s gedauert hat. Die Daten wurden mit einer

Repetitionsrate von 30 Hz aufgezeichnet, was einer zeitlichen Auflösung von 0.033 s entspricht. Die Entfernungsauflösung beträgt 3 m. Deutlich zu erkennen ist eine Rauchfahne mit einer Quelle in einem Abstand von 1.2 km zum Lidar, die turbulent verdriftet wird. Bei dem eingestellten Elevationswinkel von 2.5° beträgt die Höhe des Laserstrahls über dem Lidar Standpunkt in einem Abstand von 2 km etwa 175 m.

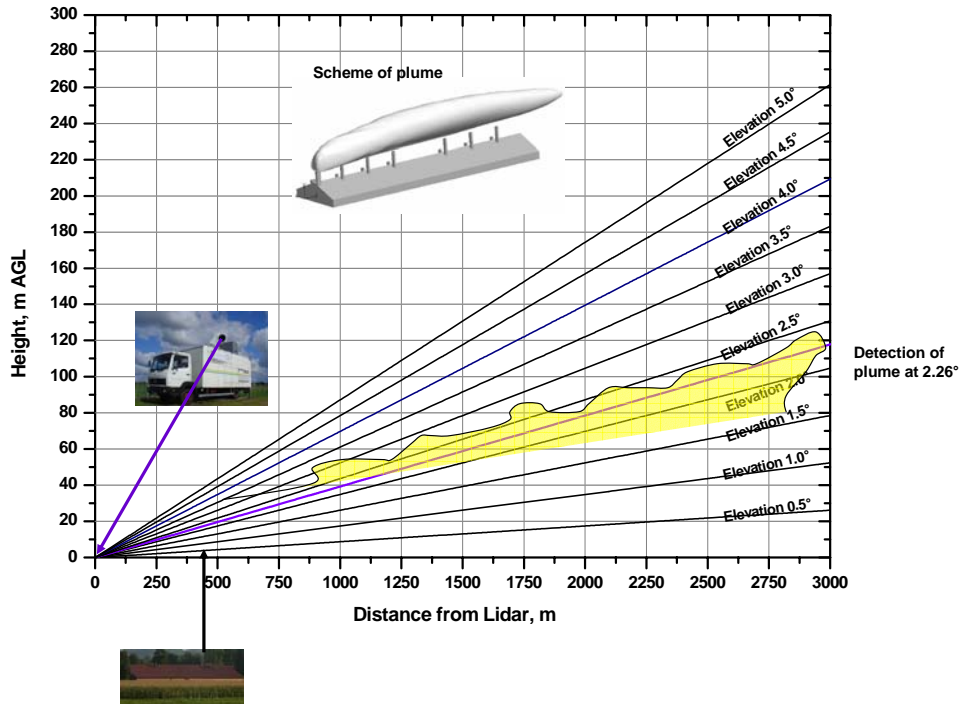
4.4.5 Detektion der Aerosolemission und Auswertung der Lidar-Messungen

Am 20.09.2007 gelang es durch die Wahl eines sehr niedrigen Elevationswinkels, die Aerosolemission der landwirtschaftlichen Quelle zu detektieren. Die Detektion der Quelle war zum Zeitpunkt des Experiments dadurch erschwert, dass es noch keine Echtzeitdarstellung der Rückstreusignale gab, bei denen die molekulare Extinktion korrigiert war. Durch die Maskierung der Quelle durch diesen Effekt war die Wahl der richtigen Elevationswinkel schwierig. Damit liegen nur für einen Tag detaillierte Messungen vor, jedoch ist zu bedenken, dass dieses der erstmalige Einsatz des Lidar-Systems war und die Kampagne nur auf eine Woche angesetzt war.

Die Eichung des Lidar-Signals wurde durch einen RHI-Scan durchgeführt, der für den gleichen Tag vorlag. Die Abbildung 4.13 zeigte schon das resultierende 2D-Feld des Partikel-Rückstreukoeffizienten in der atmosphärischen Grenzschicht mit einer vertikalen Erstreckung von 1200m. Darüber befand sich wesentlich sauberere Luft, so dass hier gut eine Eichung durchgeführt werden konnte. In der Grenzschicht selbst sind Variationen des Rückstreukoeffizienten zu erkennen. Diese kommen durch die Turbulenz zustande und stellen eine weitere Informationsquelle zur Untersuchung von Grobstrukturmodellen dar. Dieses soll hier aber nicht weiter verfolgt werden, sondern wir konzentrieren uns auf die landwirtschaftliche Aerosolquelle.

Die Abbildung 4.15 zeigt die resultierende Geometrie der Abluftfahne, die wir aufgrund der mit dem Lidar durchgeführten Messungen aufzeigen können. In der Zukunft ist es wesentlich einfacher, solche Quellen direkt zu detektieren, da die Rückstreudaten inzwischen in Echtzeit analysiert werden können. Es ist empfehlenswert, vor der Wahl der Elevationswinkel eine schnelle Volumenabtastung durchzuführen, um den optimalen Bereich der Azimut- und Elevationswinkel festzulegen.

Abb. 4.15: Visualisierung der räumlichen Struktur der Abluftfahne basierend auf den Lidar-Messungen vom 20.09.2005. Die Fahne kann nur in einem sehr geringen Elevationswinkelbereich detektiert werden. Sie liegt innerhalb 3 km insgesamt nicht höher als 120m über dem Dach des Stalls.



Diese Ergebnisse werden in *Abschnitt 4.7* gemeinsam mit den Modellvorhersagen beschrieben und diskutiert.

4.5 In-situ-Aerosol- und –Spurengasmessungen

4.5.1 Impaktor- und Filtermessungen

Die Partikelanzahl-Konzentration war in Lee in Abständen von mehreren hundert Metern zur Quelle im Akkumulations-Mode (hier 0.3-1 μm aerodynamische Partikeldurchmesser) zu- meist signifikant erhöht und fiel entsprechend der Dispersion mit dem Abstand ab. Sie war aber nicht erhöht für kurze Abstände ($\Delta s = 120\text{ m}$, zeitweise sogar signifikant niedriger) und nicht für Partikel größer als 1 μm (nie signifikant; Tab. 1).

Dies ist ein wichtiges Ergebnis. Es unterstreicht die Bedeutung der Mehrphasenprozesse in Abluftfahnen, die reaktive Spurengase (hier Ammoniak) mitführen, demonstriert ihre Effizienz (Partikelbildung binnen weniger als 5 min) und ihre starke Selektivität bzgl. der Aerosolmoden. Die größte Sensitivität gegenüber Mehrphasenprozessen hat der Akkumulationsmode, weil er die größte Partikeloberfläche bietet. Dass bei kurzen Abständen zur Quelle der Akkumulationsmode erhöht oder erniedrigt sein kann gegenüber weiter windabwärts gelegenen Messpunkten, kann durch das Zusammenspiel von Partikelbildung und Phasengleichgewicht erklärt werden: Falls die Lufttemperatur in der Abluftfahne gegenüber der Umgebung erhöht ist und/oder die Luftfeuchte erniedrigt, können sich erst nach Angleichung an die Umgebungsbedingungen Partikel bilden, weil das Phasengleichgewicht der beteiligten Ammoniumsalze stark temperatur- und feuchteabhängig ist mit hoher Partikelbildungsneigung bei niedriger Temperatur und/oder hoher Feuchte. Dieser Effekt war auch in einem

Vorläuferexperiment (BMBF-Projekt zu Aerosolquellen und -variabilitäten; Lammel et al., 2004) beobachtet worden.

Die Partikelmasse im Größenbereich $< 2 \mu\text{m}$ (Feinpartikelbereich) war am Nachmittag des 16.9. in Lee in kurzem Abstand zur Quelle ($\Delta s = 120 \text{ m}$) deutlich, etwa 2.5-fach erhöht (37.2 gegenüber $15.3 \mu\text{g m}^{-3}$, Tab. 4.3). Wegen der fehlenden Übereinstimmung der Sammelzeiten – Lee-Messung deckt nur 5 von 18 h der Luv-Messung ab – ist dies aber kein untrüglicher Beweis eines Massenzuwachses in Bodennähe. Am Nachmittag des 17.9., bei größerem Abstand zur Quelle ($\Delta s = 700 \text{ m}$) war keine höhere Massenkonzentration in Lee als in Luv zu verzeichnen. Möglicherweise war die Fahne nicht am Boden, sondern in diesem Abstand in der Höhe. Eine baumbestandene Bodenerhebung mit einem geringen Niveauunterschied (64 m über NN, vgl. Abb. 4.7) zwischen der Aerosolquelle und diesem abwindigen Messpunkt mag eine zusätzliche Rolle gespielt haben. Auch die Ammoniak- (Tab. 4.4) und Partikelanzahlkonzentrationen (Tab. 4.3), die am Nachmittag des 16.9. gegenüber luv um nur etwa 10%, also nicht signifikant erhöht waren, sind im Einklang mit dieser Erklärung. Auch hier wurde jedoch nicht gleichzeitig gemessen. Höhere Konzentrationswerte während der Nacht können durch Advektion, geringere Durchmischung erklärt sein.

Tab. 4.3: (a.) Partikelanzahl- und (b.) –massenkonzentrationen (bezogen auf $rh = 50\%$) (5-10-min-Mittelwerte) verschiedener Partikelgrößenklassen in Luv und Lee der Aerosolquelle ($\Delta s = \text{Abstand}$), Mettingen, 15.-17.9.05. Messanordnung: siehe Abb. 4.5. (a.) Particle number and (b.) mass (at $rh = 50\%$) concentrations (5-10 min means) of various size classes upwind and downwind the aerosol source (distance Δs), Mettingen, 15.-17.9.05. Sampling site locations: see Fig. 4.5.

a.

Startzeit (UTC) / Start time (UTC)	Luv / upwind		Lee / downwind		
	$> 0.3 \mu\text{m}$ (cm^{-3})	$> 1.0 \mu\text{m}$ (cm^{-3})	Δs (m)	$> 0.3 \mu\text{m}$ (cm^{-3})	$> 1.0 \mu\text{m}$ (cm^{-3})
15.9. 08:40			750-900	241	1.5
15.9. 09:30	223	1.61			
15.9. 11:10	164	1.39	750-900	195	1.60
15.9. 12:00	198	1.51			
15.9. 14:30	165	1.30	600	192	1.20
16.9. 13:00	9.7	1.07	120	8.5	0.80
16.9. 15:30	5.6	0.44	120	5.0	0.45
17.9. 08:40	17	0.71	700	40	0.98
17.9. 09:00			120	15	0.84
17.9. 09:40	9.1	0.72			
17.9. 11:00			750	6.9	0.57
17.9. 12:30			700	5.4	0.47
17.9. 14:00	5.1	0.42	120	6.1	0.40
17.9. 14:20	4.7	0.39			
17.9. 16:00			700	6.1	0.29
17.9. 17:20	12	0.51			
18.9. 09:30	46	0.78			

b.

Sammelzeit (UTC) / Sampling time (UTC)	Luv / upwind			Lee / downwind	
	< 2.5 µm (µg m ⁻³)	< 10 µm (µg m ⁻³)	< 16 µm (µg m ⁻³)	Δs (m)	< 2.5 µm (µg m ⁻³)
13.9. 19:00- 14.9. 06:00	248	225			
13.9. 19:00- 14.9. 18:00	69 ^(1,2)	105 ^(1,3)	108 ⁽¹⁾		
14.9. 08:00- 14.9. 18:00	86.2	119			
14.9. 18:30- 15.9. 17:30	68 ^(1,2)	105 ^(1,3)	114 ⁽¹⁾		
14.9. 19:00- 15.9. 06:00	124	126			
15.9. 07:00- 15.9. 14:20	69.3	156			
15.9. 19:00- 16.9. 10:00	59.2				
16.9. 10:40- 16.9. 16:00				120	37.2
16.9. 11:00- 17.9. 17:00	15.3 ^(1,2)	24.4 ^(1,3)	25.3 ⁽¹⁾		
16.9. 16:40- 17.9. 08:00	39.2				
17.9. 12:25- 17.9. 16:25				700-750	24.9
17.9. 17:00- 18.9. 09:00	36.4	30.3			
	24.1 ⁽²⁾	30.2 ⁽³⁾	30.2		

⁽¹⁾durch Extrapolation von Massenkonzentrationen der Inhaltsstoffe einzelner Impaktorstufen komplettierte Gesamtmasse (9-stufiger Berner-Impaktor)

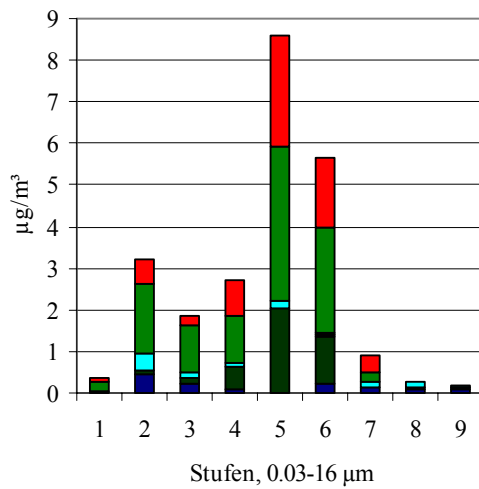
⁽²⁾ < 2 µm gemäß Impaktormessung (6 Stufen)

⁽³⁾ < 8 µm gemäß Impaktormessung (8 Stufen)

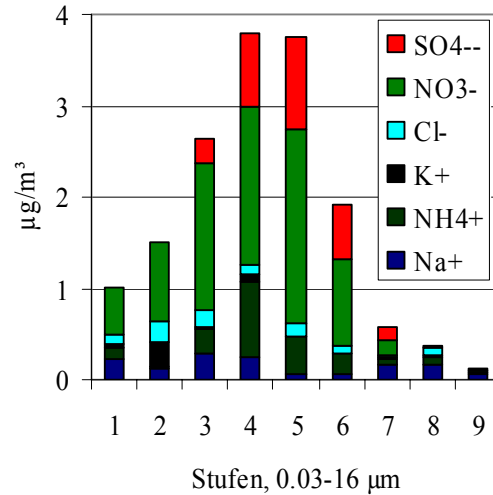
Abb. 4.16: Massengrößenverteilungen anorganischer Ionen im Partikelgrößenbereich 0.03-16 μm in unterschiedlichen Luftmassen in Mettingen: westliche Anströmung, feucht, Tiefdruck-Einfluss 14.-15.9. (a., b.) bzw. nördliche Anströmung, trocken, Hochdruck-Einfluss 16.-18.9.05 (c., d.). Aufeinander folgende Messungen in Luv. Untere Abscheidegrößen der Stufen 1-9 (μm aerodynamischer Partikeldurchmesser): 0.03, 0.06, 0.13, 0.25, 0.5, 1.0, 2.0, 4.0, 8.0.

Mass size distributions of inorganic ions in the particle size range 0.03-16 μm in various air masses sampled in Mettingen: westerly advection, humid, cyclonic (a., b.) 14.-15.9. and northerly advection, dry, anti-cyclonic (c., d.) 16.-18.9.05, respectively. Subsequent upwind measurements. Lower cutoffs of stages 1-9 (μm aerodynamic particle diameter): 0.03, 0.06, 0.13, 0.25, 0.5, 1.0, 2.0, 4.0, 8.0.

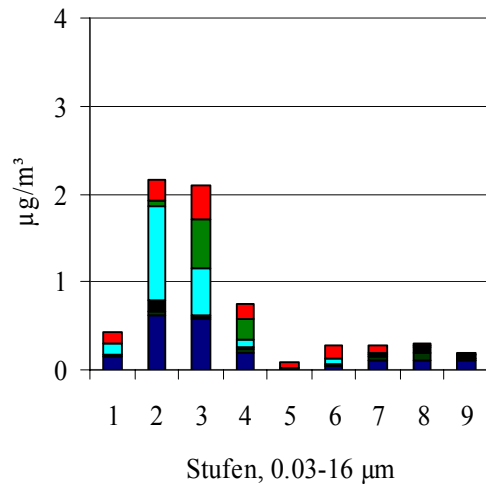
a.



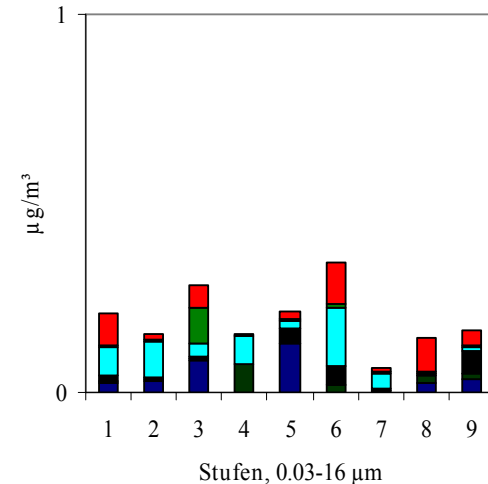
b.



c.



d.



Für die Partikelinhaltsstoffe können die Massendifferenzen nicht exakt angegeben werden, weil keine baugleichen Probenahmegeräte in luv und lee zeitgleich eingesetzt werden konnten und aufgrund von Probemengenlimitierungen unterschiedlich lange gesammelt wurde. Der Parallelbetrieb von Filter und Impaktor (zeit- und ortsgleich) lieferte zwar eine exzellente Übereinstimmung hinsichtlich der Partikelmassenkonzentration ($< 0.5\%$ Abweichung zwischen PM_{10} und PM_{16}), dennoch ist mit einer probenahmeerätsbedingten zusätzlichen Unsicherheit von etwa 20% zu rechnen (vgl. z.B. LFUG, 2005).

Die Feinpartikel-Gehalte an S (nur am 16.9.), Cl, Ca, K (nur am 16.9. erfasst), Fe (nur am 17.9. erfasst) und Ni waren signifikant angereichert: Die Anreicherungen (Mischungsgrad in der Partikelphase, $\mu\text{g/g}$) betragen Ca (um den Faktor 13), K (2), Cl (7) am 16.9.05 bzw. K (65), Cl (29), Fe (67) am 17.9.05 (s. Abb. 4.17b). Offenbar wurden von der Stallung Primärpartikel emittiert, die diese Elemente enthielten. Dabei ist die Anreicherung von Ni zunächst unplausibel, weil unerwartet als Emission einer Schweinemast. Die Abweichungen bei den Ionengehalten zwischen lee und luv waren dagegen geringer, maximal Faktor 3, was angesichts der aufwindseitigen zeitlichen Variabilität der Aerosolzusammensetzung nicht als signifikant, also als An- oder Abreicherung gewertet werden kann. Die Massenkonzentration im Grobpartikelbereich ($> 2 \mu\text{m}$) war an keinem der beiden Tage signifikant erhöht oder erniedrigt.

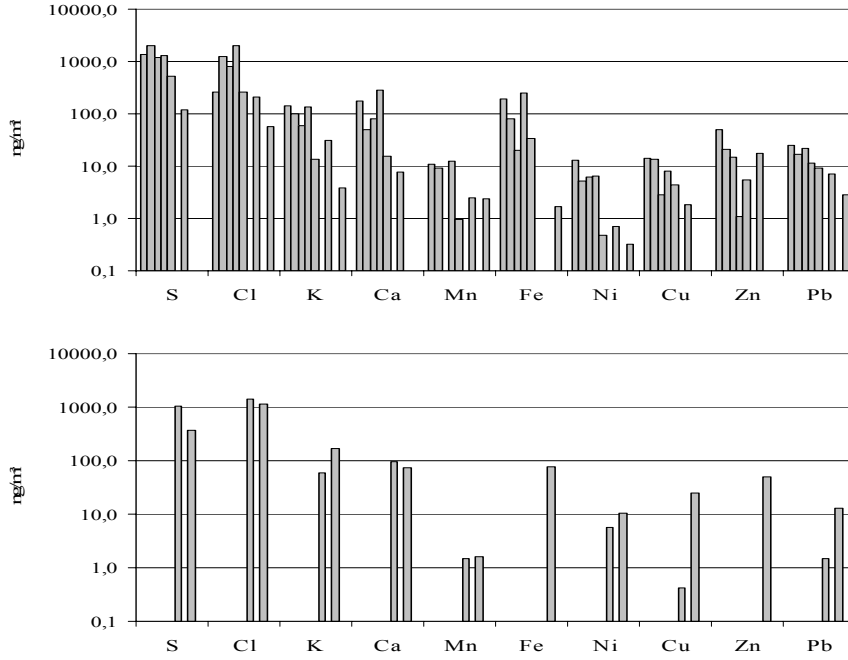
Tab. 4.4: Konzentrationen der Spurengase Ammoniak und Salpetersäure und der korrespondierenden Ionen in der Partikelphase in Luv und Lee der Aerosolquelle (Δs = Abstand), sowie Temperatur und Feuchte, Mettingen, 15.-17.9.05. Messanordnung: siehe Abb. 4.1-5. Gaseous ammonia and nitric acid and corresponding particulate matter ions concentrations upwind and downwind of the aerosol source (distance Δs), and temperature and humidity, Mettingen, 15.-17.9.05. Sampling site locations: cf. Fig. 4.1-5. n.d. = no data.

Sammelzeit / Sampling time (UTC)	T / rh (°C) / (%)	Luv / upwind		Lee / downwind		
		NH ₃ / NH ₄ ⁺ ($\mu\text{g m}^{-3}$)	HNO ₃ / NO ₃ ⁻ ($\mu\text{g m}^{-3}$)	Δs (m)	NH ₃ / NH ₄ ⁺ ($\mu\text{g m}^{-3}$)	HNO ₃ / NO ₃ ⁻ ($\mu\text{g m}^{-3}$)
15.9. 07:00- 15.9. 14:20	17-19 / 72-76	3.85 / n.d.	0.49 / n.d.			
16.9. 10:40- 16.9. 16:00	13-15 / 61-72			120	37.7 / 0.17	13.1 / 1.12
16.9. 16:40- 17.9. 08:00	9-13 / 46- > 75	4.30 / 0.26	0.14 / 0.27			
17.9. 12:25- 17.9. 16:25	13-15 / 50-63			700- 750	4.73 / 0.04	1.32 / < 0.04

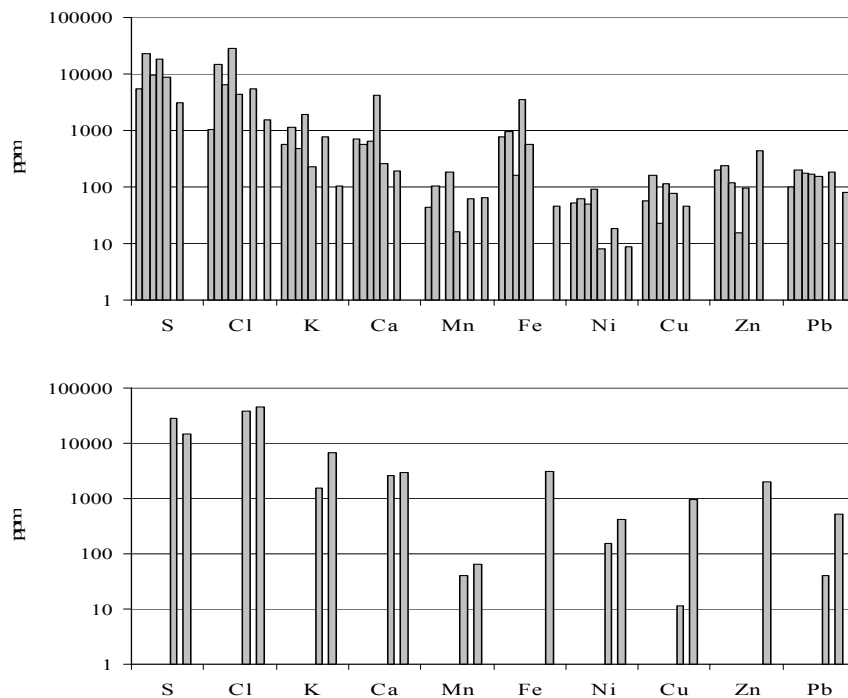
Während der Messkampagne fand am untersuchten Stall eine Langzeitmessung der Ammoniak-Konzentration in Luft und des Depositionsflusses durch das Landesamt für Umwelt statt. Die Passivmethode, die zur Konzentrationsmessung verwendet wird, misst vermutlich etwas partikuläres Ammonium mit, was aber im relevanten Kontext einen vernachlässigbaren Fehler bedeutet. Die Gegenüberstellung liefert plausible Ergebnisse: Während die Langzeitmessung in etwa 20 m Entfernung vom Abluftauslass des Gebäudes $55.6 \mu\text{g m}^{-3}$ erfasste, wurden $37.7 \mu\text{g m}^{-3}$ während eines Nachmittages in diesem Zeitraum gemessen. Als Depositionsfluß wurde (in unmittelbarer Nähe des Stallgebäudes und des Güllelagers) $58.1 \text{ mg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ als 14-Tages-Mittel mit einer Immissionsratenmessapparatur (nach Irmscher) bestimmt.

Abb. 4.17: Elementgehalte des Feinstaubes ($PM_{2.5}$) als (a.) Konzentration pro Volumen Luft und (b.) Massenmischungsverhältnis in aufeinanderfolgenden Probenahmen in Luv (jeweils oben) und Lee (unten), Mettingen, 15.-18.9.05. Elemental composition of fine particulate matter ($PM_{2.5}$) as (a.) concentration per volume of air and (b.) mass mixing ratio in subsequent upwind samples (upper) and downwind samples (lower), Mettingen, 15.-18.9.05

a.



b.



4.5.2 Ammoniak und Salpetersäure

Die Kontrolle von Ammoniak ist wegen seines Phasenverhaltens im Aerosol (Kondensationsneigung) und der damit verbundenen potenziellen Beeinflussung der hygroskopischen Partikeleigenschaften für das Experiment essentiell. Der Einsatz des Partisol 2300 Sammlers erlaubte die eindeutige Bestimmung von Ammoniak in beiden Phasen (zusammengefasst als N(-III)), wie auch von Salpetersäure in beiden Phasen (zusammengefasst als N(V)). Die beiden Gase bilden mit NH_4NO_3 ein rasches und stark temperatur- und feuchteabhängiges Gleichgewicht, das gerade in der Nähe von Ammoniakquellen für die Aerosolbilanz bedeutsam werden kann (Lammel et al., 2004).

Ammoniak war erwarteterweise stark erhöht in der Fahne: $37.7 \mu\text{g m}^{-3}$ oder ca. 50 ppbv 120 m windab am Nachmittag des 16.9. und $4.7 \mu\text{g m}^{-3}$ oder ca. 6 ppbv 700 m windab am Nachmittag des 17.9. während die Konzentration in luv an beiden Tagen ca. $4 \mu\text{g m}^{-3}$ oder ca. 5 ppbv war (s. Tab. 4.4). N(-III) und N(V) waren stark vorwiegend in der Gasphase, zu einem nur geringen Teil in der Partikelphase. N(V) war zwar mit 9% am 16.9. bzw. 8% am 17.9. in der Fahne weit geringer konzentriert als N(-III). Salpetersäure war damit aber deutlich erhöht, um ca. 4 bzw. 0.6 ppbv gegenüber dem Hintergrund. (s. Tab. 4.5). Während des kurzen Transports bis zur Messung in Lee kann atmosphären-chemisch kein HNO_3 gebildet worden sein. Offensichtlich wurde Partikel-Nitrat emittiert.

4.5.3 Einzelpartikel-Analytik

Die Einzelpartikel-Analytik dient der Identifizierung von Aerosoltypen auf der Einzelpartikel-Ebene, des Mischungsgrades und liefert qualitative Informationen zu einer bezüglich der chemischen Aerosoleigenschaften verbesserten Initialisierung der Modellrechnungen.

Die wichtigsten, bislang vorliegenden Ergebnisse sind in Tab. 4.5 und Abb. 4.18 zusammengefasst.

Tab. 4.5: Massenspektrometrische Fragmente (positive und negative, Ladungen nicht wiedergegeben) in partikelgrößen aufgelösten Einzelpartikelanalysen in Luv und Lee der Aerosolquelle (Δs = Abstand), Mettingen, 16.-17.9.05. Selten vorgefundene sind in Klammern, nur in Lee gefundene sind **fettgedruckt**. Zahlen bedeuten nicht identifizierte Fragmente (Masse in Da). Sub- μm = 0.18-0.35 μm , super- μm = 1.2-3.5 μm . Mass spectrometric fragments (positive and negative, charges not given) in size segregated single particle analyses upwind and downwind of the aerosol source (distance Δs), Mettingen, 16.-17.9.05. Those found rarely in brackets, found only downwind in **bold**. Numbers denote not identified fragments (mass in Da). Sub- μm = 0.18-0.35 μm , super- μm = 1.2-3.5 μm .

Sammelzeit / Sampling time (UTC)	Luv / upwind		Δs (m)	Lee / downwind	
	Super- μm	Sub- μm		Super- μm	Sub- μm
16.9. 15:20- 16.9. 15:25			120		Na Mg K NaO NO CaO OH CN/C ₂ H ₂ Cl CNO C ₃ N SiO ₂ (76)
16.9. 15:35- 16.9. 15:40	Na (Al) K Fe NaO NO CaO (81-83) C _{4_8} CN/C ₂ H ₂ Cl PO ₂ (87f) CNO C ₃ N C _x O				
17.9. 09:00-	Na Al K (Fe) (63) C _{4_8} CN/C ₂ H ₂ Cl	Na Mg K NaO NO CaO OH CN/C ₂ H ₂	120	Na K (Ca) CN/C ₂ H ₂ C _{4_5}	(Al) Na K (Ca Fe CaSO ₄ , 154 ⁽²⁾)

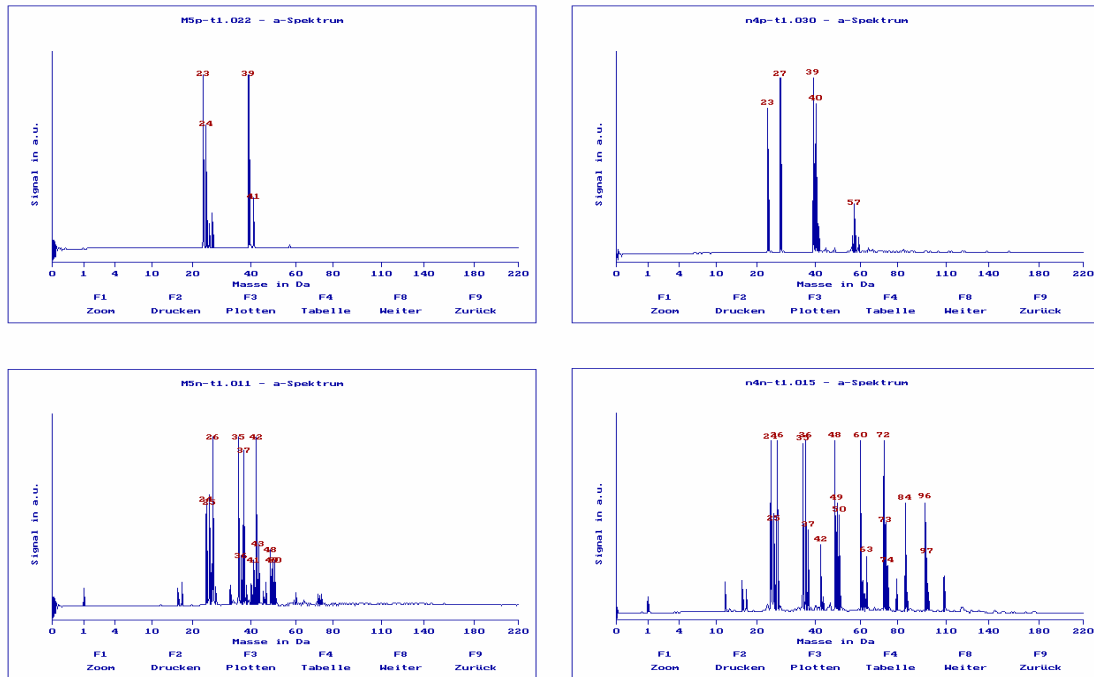
17.9. 09:48	CNO C ₃ N C ₅ O	Cl CNO C ₃ N (NO _x , SO _x) (93-95)		(HSO ₄)	CN/C ₂ H ₂ NaCl CNO C _{4,6} H _{2,4} , C ₂ 10
17.9. 10:55- 17.9. 11:01			700		Na Mg K Fe CaO ₂ H (CaSO ₄ 154 ⁽²⁾) OH CN/C ₂ H ₂ NaCl CNO NaCl ₂ SO ₃
17.9. 12:25- 17.9. 12:35			750	Al Fe (K Ca) (CaSO ₄ 154 ⁽²⁾) C _{4,8} CN/C ₂ H ₂ Cl CNO C ₃ N C ₅ O	⁽¹⁾ Na Mg K Ca (Cu) CaO CaOH Ca ₂ O C _{4,8} CN/C ₂ H ₂ Cl CNO C ₃ N C _{4,5} O

(1) 0.35-0.65 µm

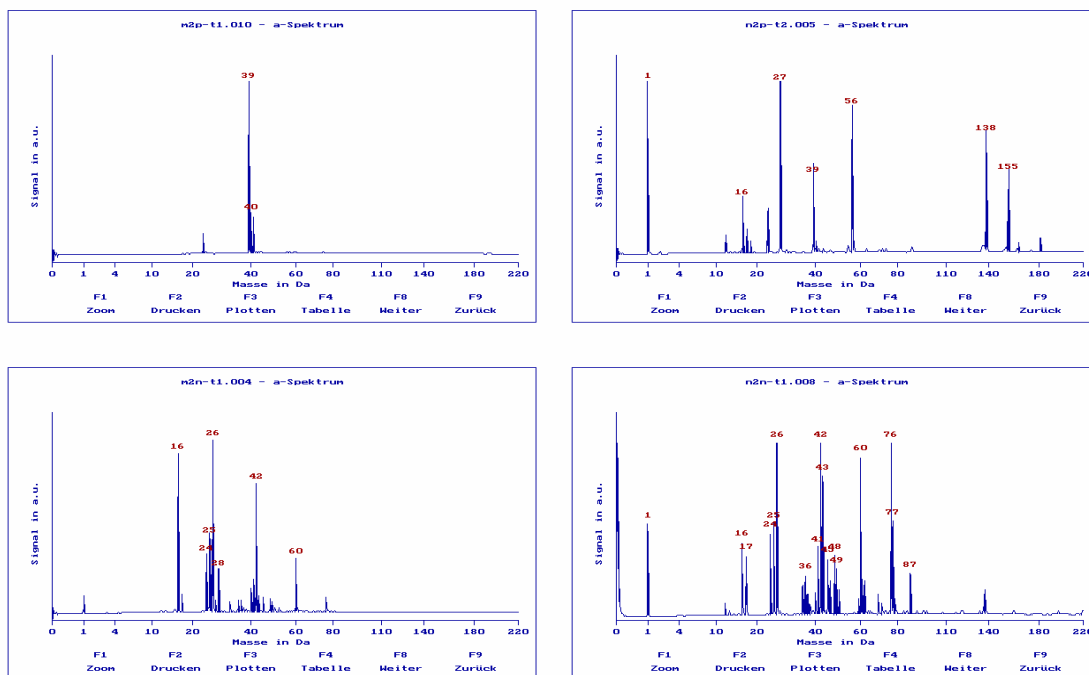
(2) möglicherweise CaSO₅, FeSO₄

Abb. 4.18: Gegenüberstellung typischer positiver (oben) und negativer (unten) Massenspektren von a) sub-µm ($D = 0.18-0.35 \mu\text{m}$) und b) super-µm ($D = 1.2-3.5 \mu\text{m}$) Partikeln in Luv (links) und Lee (rechts) der Aerosolquelle, Mettingen, 17.9.05 ($\Delta s = 750 \text{ m}$). Comparison of typical positive (above) and negative (below) mass spectra of a) sub-µm ($D = 0.18-0.35 \mu\text{m}$) and b) super-µm ($D = 1.2-3.5 \mu\text{m}$) particles upwind (left) and downwind (right) of the aerosol source, Mettingen, 17.9.05 ($\Delta s = 750 \text{ m}$).

a)



b)



Das Hintergrundaerosol bestand demnach vorwiegend aus Chloriden, möglicherweise Oxiden von Na, K, Mg und Ca, sowie organisch gebundenem Kohlenstoff (OC). Verschiedene Partikeltypen trugen zu den Größenklassen bei (zumindest teilweise extern gemischt). Hochkondensierte Kohlenstoffverbindungen, insbesondere Russpartikel, wurden nicht gefunden. Dies stimmt mit den Erwartungen und den Feinpartikel-bulk-Gehaltsanalysen (*s. Abschnitt 4.5.1*) überein und bestätigt, dass der Betrieb an einem von Verkehrs- und generell Verbrennungsprozessen weitgehend unbeeinflussten Ort gelegen ist. Sekundäre anorganische Aerosole (Ammoniumnitrat und -sulfate) spielten eine untergeordnete Rolle. Ebenso in lee. N(-III) war also in der Fahne der Schweinemast noch vorwiegend gasförmig. Dies wird durch die $\text{NH}_3/\text{NH}_4^+$ -Analysen (Tab. 4.4) bestätigt. In lee werden zusätzlich zur Zusammensetzung des Hintergrundaerosols Ca, OC und Fe (fraglich) in der Partikelphase identifiziert (17.9.). Am 17.9. waren insbesondere sub-mikrone kohlenstoffhaltige Partikel (Abb. 4.18a) und super-mikrone Ca-, CaO- und CaSO_4 -Partikeln (Abb. 4.18b) in der Fahne angereichert. Dies stimmt mit den Feinpartikel-bulk-Gehaltsanalysen (*s. Abschnitt 4.5.1*) überein. Überraschenderweise war die Zusammensetzung sub- und super-mikroner Partikel in Lee recht ähnlich.

4.5.4 Zusammenfassung Aerosolzusammensetzung der Messtage 16.9.05 und 17.9.05

An beiden Intensivmesstagen war die Hintergrund-Aerosolkonzentration gering, bestimmt von Seesalz, K- und Ca-Oxide, kaum Sekundäraerosol und praktisch keine Russpartikel. Die Werte waren am 17.9.05 noch deutlich geringer als am 16.9.05. Die Messungen in der Fahne am Boden ergaben Anreicherungen von organischem Partikelmaterial, Ca, K, Cl und Fe. Ammoniak befand sich in der Fahne in der Gasphase. Am 16.9.05 wurde eine deutlich höhere NH_3 -Konzentration registriert als am 17.9.05, 38 gegenüber $4.7 \mu\text{g m}^{-3}$

4.6 Resultate der Modellanwendungen für ausgewählte Tage

4.6.1 Quantifizierung des Emissionsflusses

Die Emission der Aerosolquelle (Primäraerosolemissionsfluss), F_{em} , ist aus den Partikelmassenkonzentrationsverteilungen zugänglich:

$$F_{prim} = (\sum \Delta c_x u) A$$

mit: u = Windgeschwindigkeit, Δc_x = Beitrag der Quelle zur Massenkonzentration im Abstand x zur Quelle, A = Fläche der Gitterpunktsebene. Summiert wird über alle Gitterpunkte in der zur Windrichtung normal orientierten Gitterpunktsebene.

Weil die feuchteabhängige Wasseraufnahme instantan beschrieben ist und die Massenverluste durch chemische Umwandlungen und Sedimentation vernachlässigbar gering sind, gibt der bei $x = 0$ bestimmte Fluss die gesamte Partikelmasse, also primäre und sekundäre wieder.

Für den 17.9.05 wird so $F_{em} = 490 \text{ g h}^{-1}$ vorhergesagt. Der Sekundäraerosolemissionsfluss wird zeitlich geringfügig veränderlich gefunden, obwohl das Modell keine emissionsseitige zeitliche Variabilität berücksichtigt (d.h. es wird eine konstante Emission des Stalls angenommen), weil die Umgebungsbedingungen, die die Sekundäraerosolbildung beeinflussen (Feuchte, Temperatur, u.a.), variieren.

Die grobe Abschätzung auf der Basis bestehender Emissionsfaktoren - Größenordnung 100 g h^{-1} - (IIASA, 2001; siehe Abschnitt 4.2) lag also für diesen Stall richtig. Die Unsicherheit dieser Flussbestimmung, dominiert von den Fehlern der gravimetrischen Massenverteilung muss mit $F_{em} = 100\text{-}500 \text{ g h}^{-1}$ angegeben werden. Der obere Wert dieser Marge liegt deutlich näher als der untere Wert an der besten Abschätzung, 490 g h^{-1} . Der Grund dafür ist, dass eine untere Abschätzung für die Hintergrundaerosolkonzentration viel niedriger liegt, als der aus Extrapolation einzelner Partikelgrößen (Impaktorstufen) abgeleitete Wert (vgl. Tab. 4.3b).

4.6.2 Vorhersage des Lidar-Rückstreusignals

Für 3 Messtage, 16.9., 17.9. und 20.9.05, wurden Vorausrechnungen des Rückstreusignals durchgeführt. Weil für den 20.9.05 keine In situ-Aerosolmessdaten zur Modellinitialisierung zur Verfügung standen, wurden diese Rechnungen im Rahmen einer Sensitivitätsstudie durchgeführt.

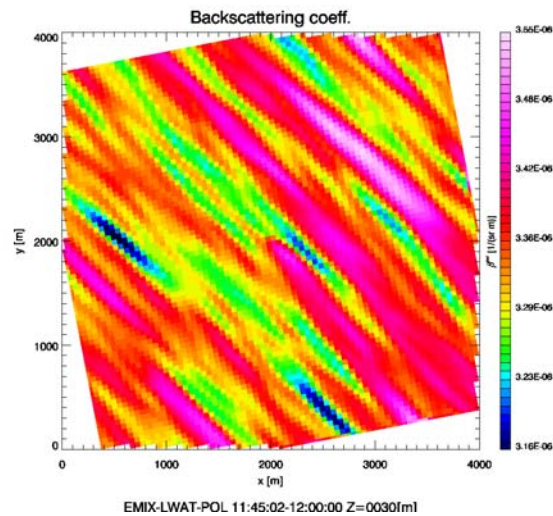
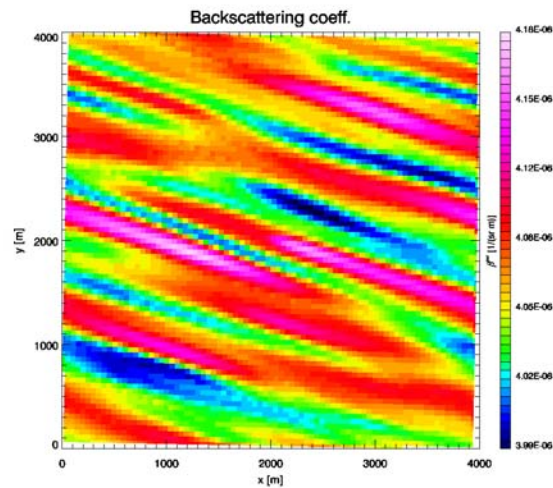
Die Ergebnisse für den Nachmittag des 16.9.05 lassen erwarten, dass im Lee der Quelle ($\Delta s = 120 \text{ m}$) die beobachtete Zunahme der Massenkonzentration im Feinstaub (s. *Abschnitt 4.5.1*, Tab. 4.3) in der Fahne in den unteren $\approx 1000 \text{ m}$ einen nur geringen Signalzuwachs, $\Delta\beta \approx 2 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$, gegenüber Messungen außerhalb der Fahne bewirkte. Dieser Unterschied liegt zwar im detektierbaren Bereich (vgl. *Abschnitt 2.3*). Die turbulenten Fluktuationen rufen jedoch ebenso starke Schwankungen des Hintergrundsignals hervor, sodass eine Identifizierung der Quelle mit Messung nicht möglich gewesen wäre.

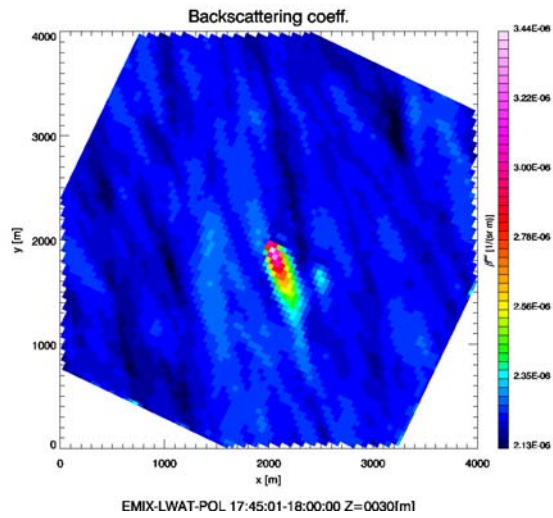
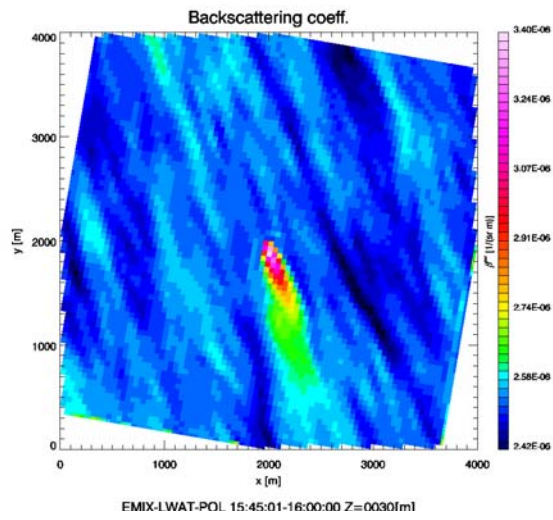
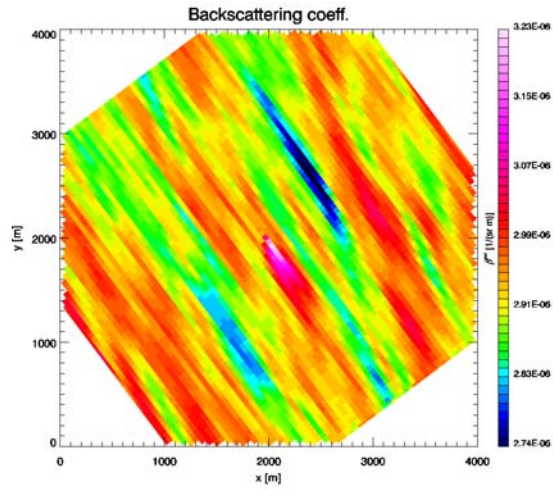
Am 17.9.05 bewirkte die Emissionsquelle in Mettingen lediglich eine abwändige Partikelanzahlkonzentrationserhöhung von bis zu 5% in 10 m über Boden und bis zu 1.5% in 30 m entsprechend einem maximalen Signal von $\Delta\beta \approx 0.6\text{-}1.2 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ bei einem Hintergrundsignal in Höhe von $3\text{-}6 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ in den Mittagsstunden bzw. $0.6\text{-}2.8 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ bei einem Hintergrundsignal in Höhe von $2\text{-}4 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ am Nachmittag (Abb. 4.19, gelistet in *Abschnitt 4.7*, Tab. 4.7). Die Struktur der Fahne wird in der Differenz-Darstellung (Abb. 4.19) sichtbar. Bei Mittelungszeiten im Sekundenbereich erscheint ihre Gauss-Form turbulenzbedingt gekrümmt, was bei längerer Mittelung nicht mehr sichtbar ist. Die Krümmung

wird auch in den Messdaten (des 20.9.05; *s. ob.*, *Abschnitt 4.4.4*) gefunden, weil diesen dieselbe Zeitaufösung zugrunde liegt. Solch geringe Kontraste sind der Lidar-Messung allerdings nicht mehr zugänglich. Die Richtung der Fahne ist veränderlich entsprechend der tatsächlichen Drehung des Windfeldes in Mettingen am 17.9.05 (vgl. Tab. 4.1, *Abschnitt 4.3*). Die Form der Fahne erscheint nicht gekrümmt als Folge der zeitlichen Mittelung über 15 min.

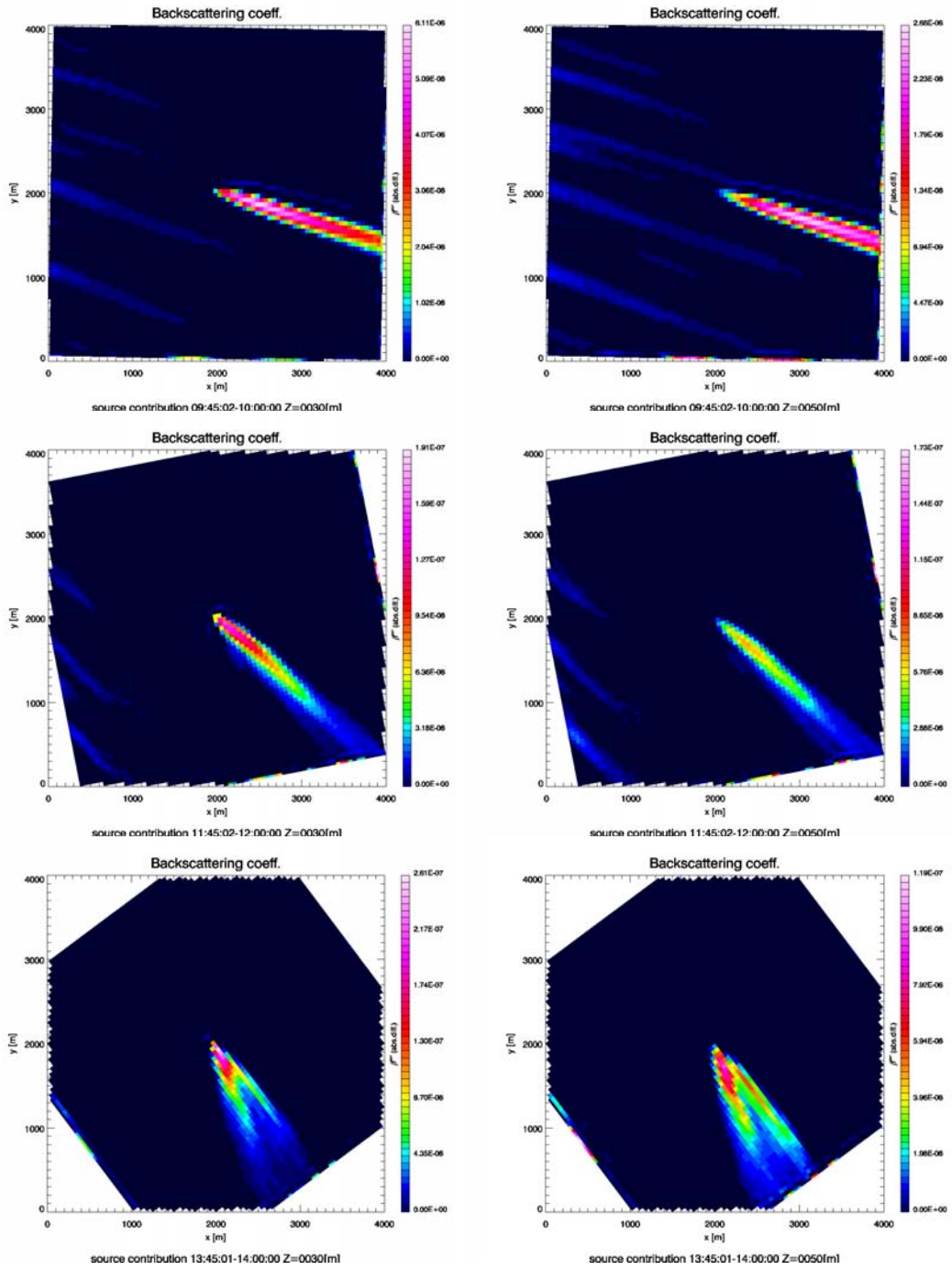
Abb. 4.19: *Vorausberechnete horizontale Verteilungen des (a.) Partikel-Rückstreukoeffizienten $\beta_{\lambda = 355 \text{ nm}}$ in der Umgebung des Stalls in 30 m Höhe und (b.) Beitrag der Quelle, $\Delta\beta$, in 30 m Höhe (links), bzw. 50 m Höhe (rechts) über Boden für Mettingen, 17.9.05, 10:00 h, 12:00 h, 14:00 h, 16:00 h, 18:00 h UTC (jeweils von oben nach unten, 15 min-Mittel). Predicted horizontal distributions of the aerosol particle (a.) backscatter coefficient $\beta_{\lambda = 355 \text{ nm}}$ in the surroundings of the farm in 30 m above ground and (b.) source contribution, $\Delta\beta$, in 30 m (left) and 30 m (right) above ground, respectively, 15 min-means for 17.9.05 10:00, 12:00, 14:00, 16:00 and 18:00 h UTC in Mettingen (from top to bottom each).*

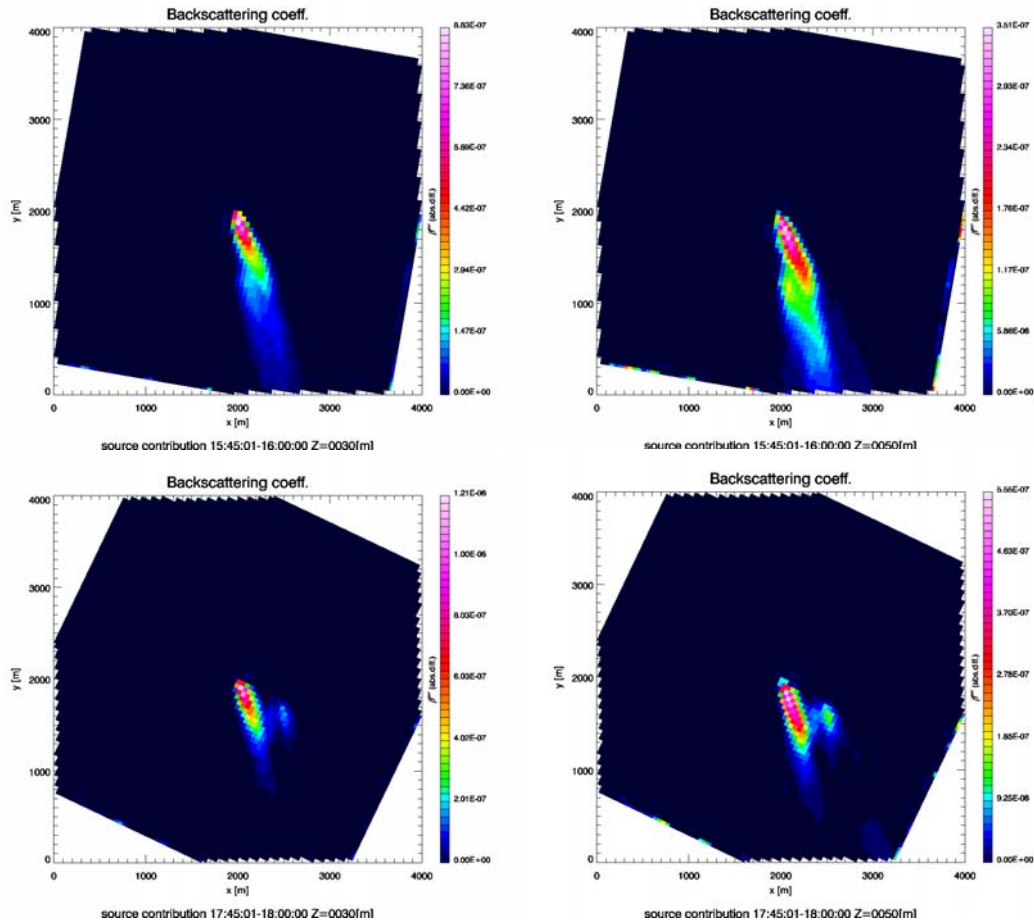
a.





b.





4.6.3 Sensitivitätsstudie

Es wurde eine Sensitivitätsstudie zur Quantifizierung der Unsicherheiten bei der Modellvorhersage der optischen Eigenschaften des Hintergrund- und emittierten Aerosols durchgeführt. Die Unsicherheitsquellen sind:

- Optische Eigenschaften der nicht identifizierten Masse aufgrund unvollständiger Analyse des größten Teils des unlöslichen Partikelmaterials und von Ruß. Dies betrifft sowohl den jeweiligen Massenanteil als auch die Massengrößenverteilungen dieser Komponenten.
- Fehler der gravimetrischen Massenverteilung. Dieser beträgt $< 5\%$ für die Filtermessung ($PM_{2.5}$, PM_{10}) und $< 30\%$ für die Impaktormessung (Al-Folie). Der Massenfehler für die Impaktormessung wird tatsächlich höher, $< 50\%$ geschätzt, weil keine vollständige Gravimetrie möglich war: Nur die Folien von 2-4 der masseträchtigsten Stufen wurden gewogen, während die anderen 5-7 (darunter insbesondere die kaum belegten Stufen entsprechend $< 0.13 \mu m$ und $> 4 \mu m$) aus chemischen Analysedaten (Ionenzusammensetzung, die für alle Stufen ermittelt wurde) linear extrapoliert wurden (d.h., es wurde angenommen, dass die Ionengrößenverteilung repräsentativ für die Massengrößenverteilung war).
- Extrapolation der Massenverteilung im Modell aus Meßdaten (von 8 bzw. 2 Stufen auf 32 Bins)

- Die Kalibration der Quellstärke (Emissionsfluss) beruht auf der Annahme, dass die Lee-Messung im Zentrum der Fahne war (woraus eine Untergrenze eines ohnehin schwachen Kontrastes resultiert)

Es kann gezeigt werden, dass aus der letztgenannten Einschränkung eine vernachlässigbare Unsicherheit resultiert. Durch Quantifizierung der anderen vorgenannten Unsicherheiten und damit konsistenter Variation von Hygroskopizität, Massenkonzentration des löslichen Bestandteils und Massengrößenverteilung wurden 3 Aerosolszenarien konstruiert, die ein best guess-Szenario, eine untere und eine obere Abschätzung (ODM, ODL, bzw. ODH; Tab. 4.6) für die optischen Eigenschaften Partikel-Extinktions- und -rückstreukoeffizient bedeuten. Dabei unterscheidet die Hygroskopizität ODL und ODM von ODH, während die Massenkonzentration und -größenverteilung ODL von ODM und ODH abhebt. Die Massengrößenverteilung, die über 14 Bins beschrieben wurde, ist in Tab. 4.6 verkürzt für nur zwei Größenbereiche wiedergegeben. ODM, stellt ein ‚best guess‘-Szenario dar, weil die Sensitivität der optischen Aerosoleigenschaften höher ist gegenüber der Hygroskopizität als gegenüber der Aerosolmassenkonzentration. Hierfür wurden Daten der in situ-Messungen vom 17.9.05 herangezogen, insbesondere wurde der für den 17.9. bestimmte Emissionsfluss (s. Abschnitt 4.6.1) zugrundegelegt.

Unter diesen drei Szenarien wurden die beiden Tage 17.9.05 und 20.9.05 simuliert.

Tab. 4.6: Eingabedaten zur Initialisierung von Simulationen unter verschiedenen Szenarien optischer Partikeleigenschaften, ODL, ODM und UDH, im Rahmen der Sensitivitätsstudie. Input data for model initialisation under various scenarios of aerosol optical properties, ODL, ODM and ODH.

Szenario		ODL: <i>Niedrige optische Dichte</i> Optical density low	ODM: <i>Mittlere optische Dichte</i> Optical density medium, best guess	ODH: <i>Hohe optische Dichte</i> Optical density high
<i>Hintergrundaerosol</i> Background aerosol	<i>Zusammensetzung chemical composition</i>	<i>Niedrige Hygroskopizität (entsprechend kontinentalem Aerosol¹)</i> Low hygroscopicity (continental aerosol ¹)		<i>Hohe Hygroskopizität (entsprechend (NH₄)₂SO₄)</i> High hygroscopicity (ammonium sulfate)
	<i>Massengrößenverteilung in den Bereichen D < 2 µm / D > 2 µm</i> mass size distribution for D < 2 µm / D > 2 µm	4.9 / 3.1 µg/m ³	12.6 / 14.1 µg/m ³	12.8 / 14.4 µg/m ³
	<i>Zusammensetzung⁽²⁾ chemical composition⁽²⁾ D < 2 µm</i>	2.5/0.56/0.01 µg/m ³	12.1/0.56/0.01 µg/m ³	11.7/0.56/0.01 µg/m ³
	<i>D > 2 µm</i>	2.22/0.0/2.72 µg/m ³	11.4/0.0/2.72 µg/m ³	12.2/0.0/2.72 µg/m ³
<i>Emittierte Partikel</i> emitted aerosol	<i>Massenfluss flux</i>	102 g/h	492 g/h	504 g/h
	<i>Verhältnis abwindiger (Δs = 700 m) zu aufwindiger Partikelmasse in den Größenbereichen D < 2 µm / D > 2 µm⁽³⁾</i> Downwind over background aerosol mass concentration ratios for D < 2 µm / D > 2 µm ⁽³⁾	3.9 / 3.9	5.3 / 4.0	5.3 / 4.1

¹ Deuselbach (Winkler, 1988)

² Wasserlöslich/Ruß/wasserunlösliche Anteile

³ Zuwachs ausschließlich in der wasserlöslichen Komponente

Am 20.9.2005 war es etwas wärmer (Tagesmaximum 18°C), trockener und weniger windig (2m-Windgeschwindigkeit 1-2 m/s) als am 17.9.2005. Die Simulationen wurden mit den analysierten Wetterdaten (LM-Modell des DWD) angetrieben. Dabei wurden Modelldaten für 0-2000 m Höhe entnommen.

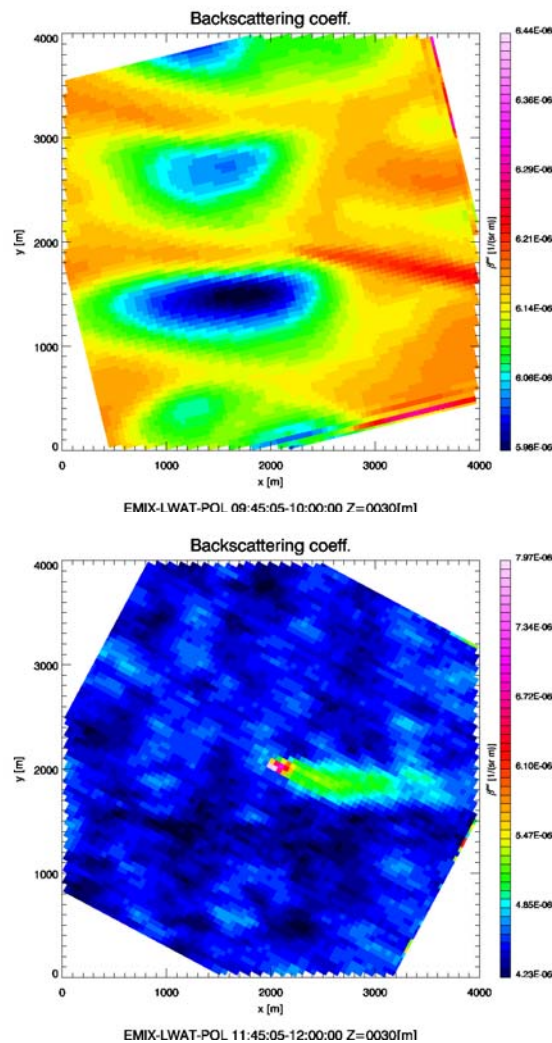
Die Ergebnisse dieser Studie erlauben es, zumindest Bereiche optischer Aerosoleigenschaften am 20.9.2005 vorherzusagen, einem Tag, an dem keine in situ-Messungen der Aerosolzusammensetzung durchgeführt wurden.

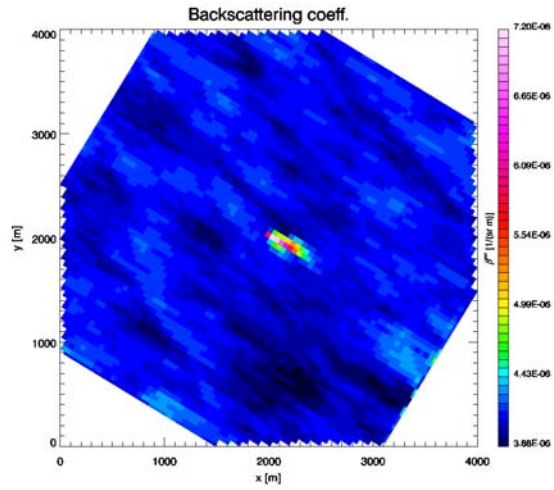
Weitere Unsicherheitsquellen sind durch diese Sensitivitätsstudie nicht abgedeckt, weil das Modell vereinfachende Annahmen macht:

- Mischungsannahme: nur extern gemischte Aerosole interne Mischungen von sphärisch homogenen Partikeln (Schalenstrukturen) können berücksichtigt werden.

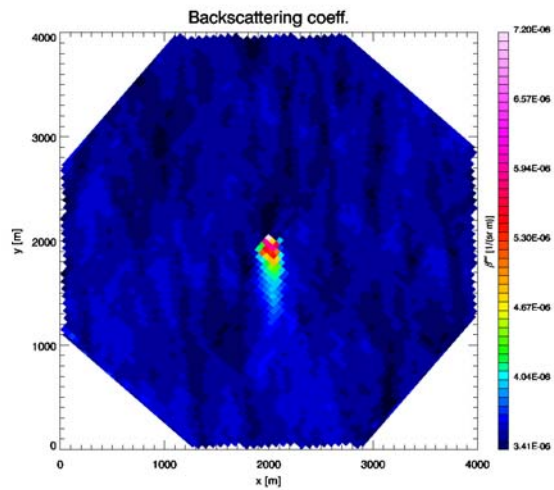
Abb. 4.20: *Vorausberechnete horizontale Verteilungen des (a.) Partikel-Rückstreuoeffizienten $\beta_{\lambda=355\text{ nm}}$ in der Umgebung des Stalls in 30 m Höhe und (b.) Beitrag der Quelle, $\Delta\beta$, in 30 m Höhe (links), bzw. 50 m Höhe (rechts) über Boden unter dem Szenario ODM (s. Tab. 6) für Mettingen, 20.9.05, 10:00 h, 12:00 h, 14:00 h, 16:00 h, 18:00 h UTC (jeweils von oben nach unten, 15 min-Mittel). Predicted horizontal distributions of the (a.) aerosol particle backscatter coefficient $\beta_{\lambda=355\text{ nm}}$ in the surroundings of the farm in 30 m above ground and (b.) source contribution, $\Delta\beta$, in 30 m (left) and 30 m (right) above ground, respectively, under the ODM scenario of aerosol properties (cf. Table 6) for Mettingen, 15 min-means for 20.9.05 10:00, 12:00, 14:00, 16:00 and 18:00 h UTC (from top to down each).*

a.

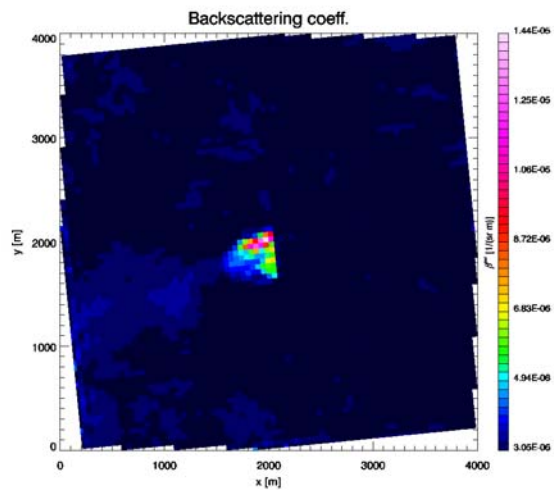




EMIX-LWAT-POL 13:45:05-14:00:00 Z=0030fml

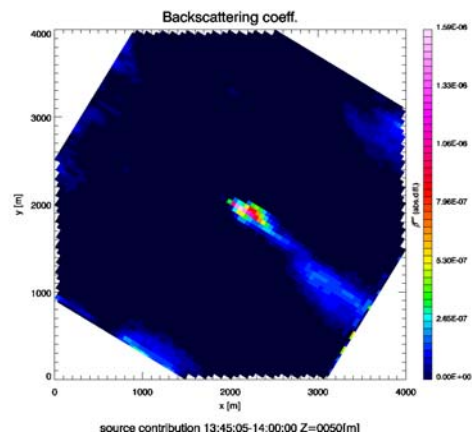
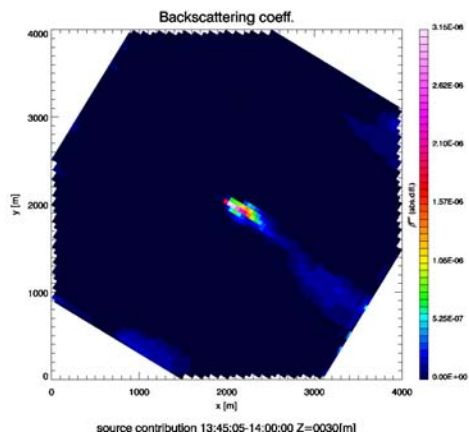
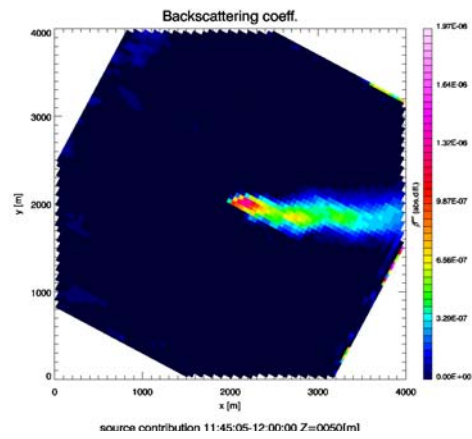
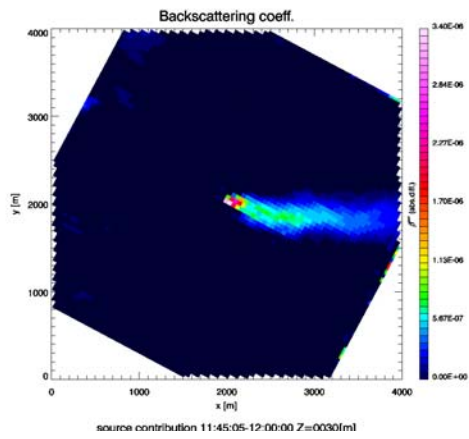
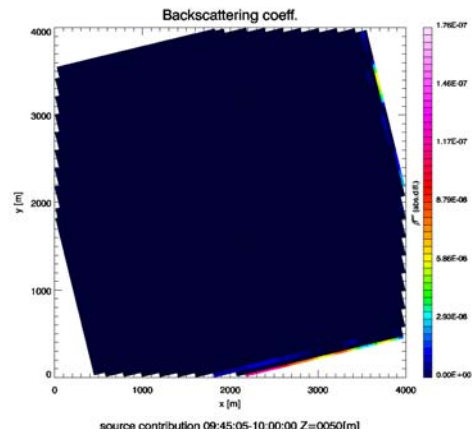
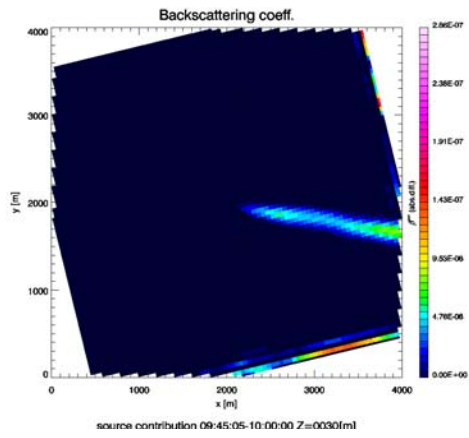


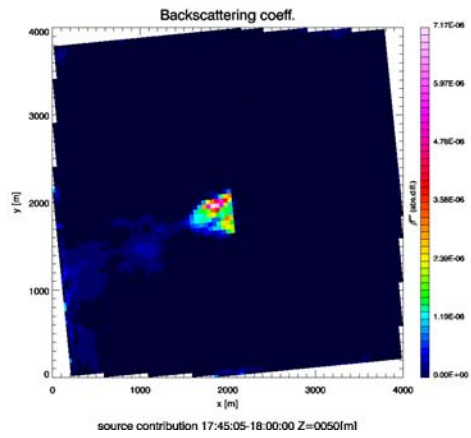
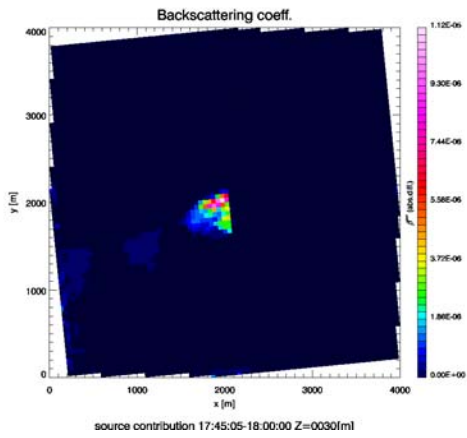
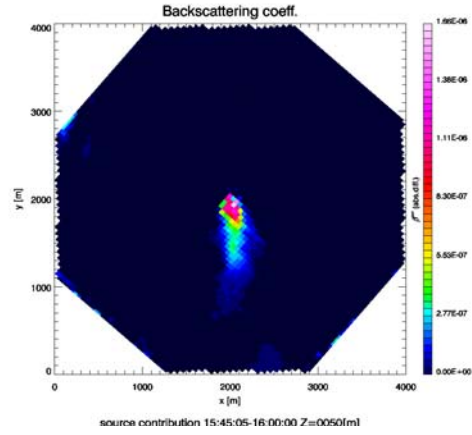
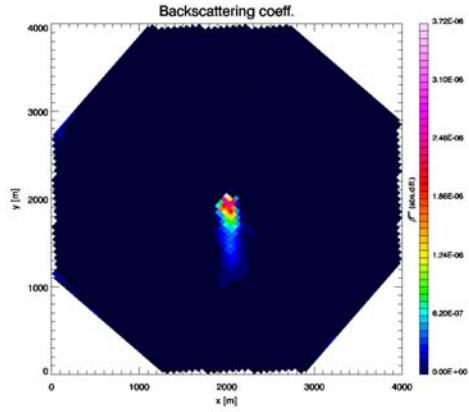
EMIX-LWAT-POL 15:45:05-16:00:00 Z=0030fml



EMIX-LWAT-POL 17:45:05-18:00:00 Z=0030fml

b.



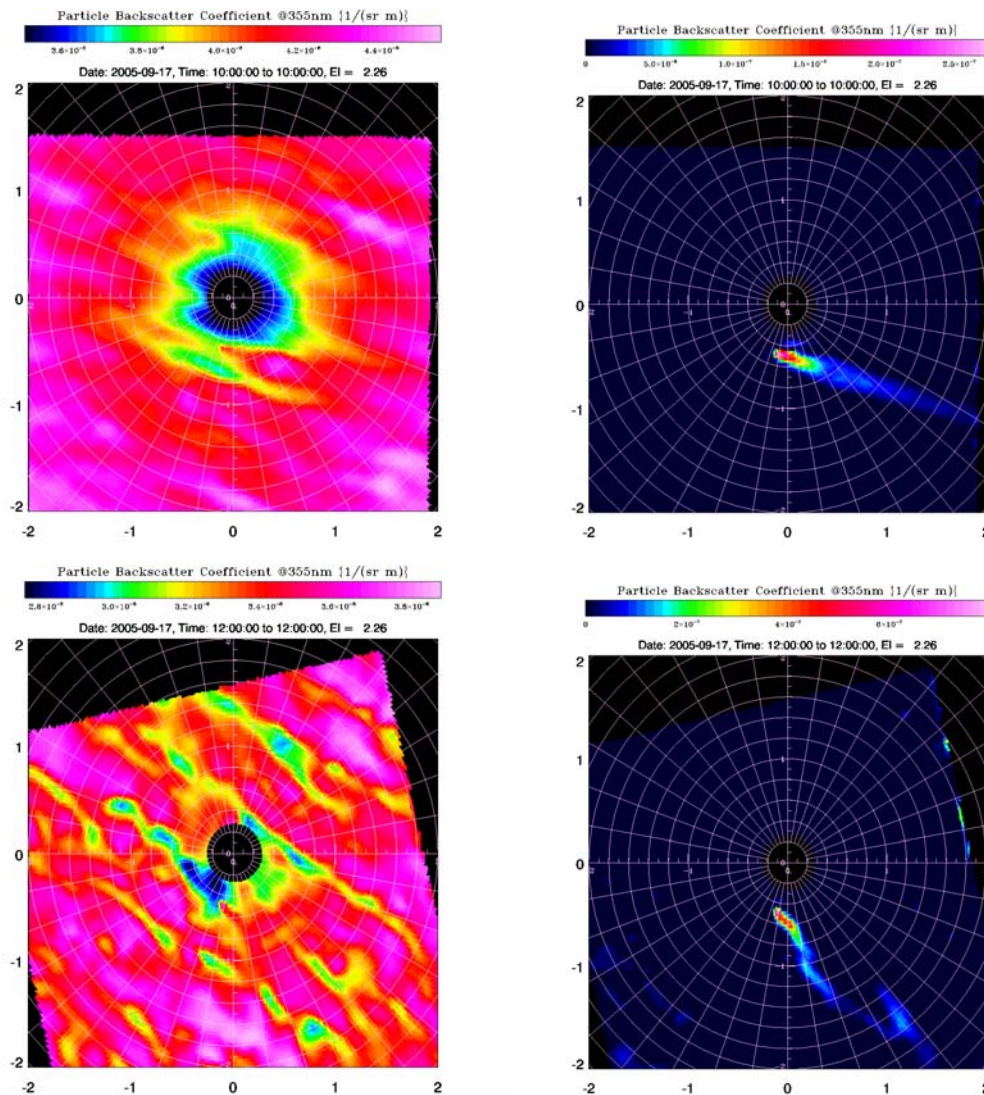


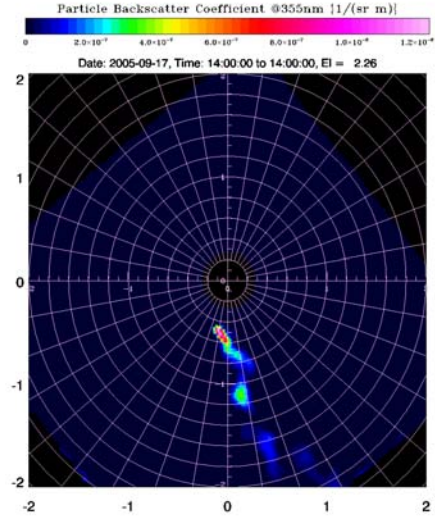
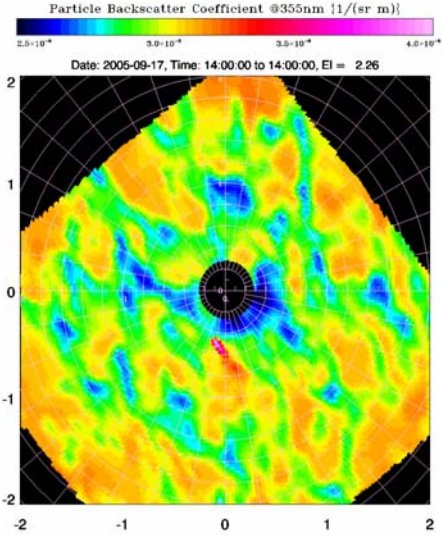
4.7 Vergleich Modell-Lidar-Ergebnisse für ausgewählte Tage

Im Folgenden werden Modellergebnisse des Partikel-Rückstreukoeffizienten in der Geometrie und Zeitauflösung der Lidarmessungen, nämlich als Projektion eines konischen PPI-Schwenks dargestellt (Abb. 4.21 und 4.25), den Messergebnissen gegenübergestellt (Tab. 4.7 und 4.8) und diskutiert.

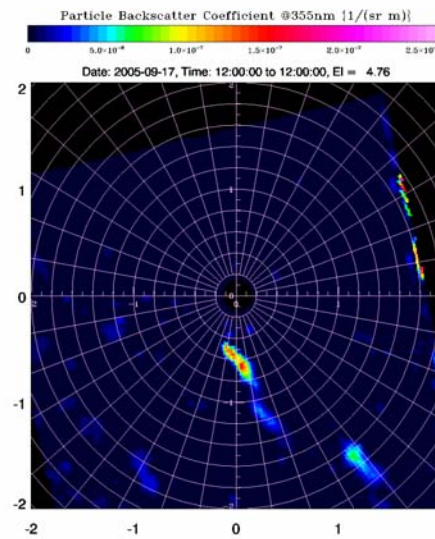
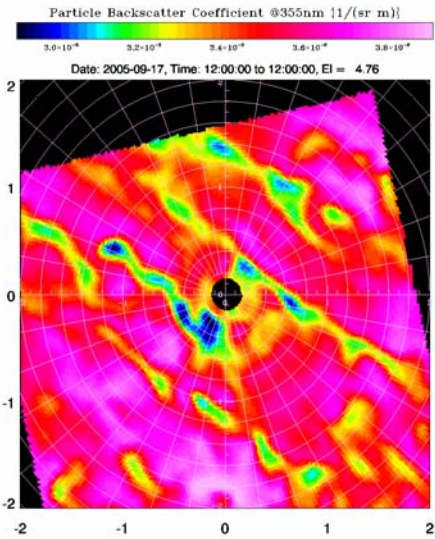
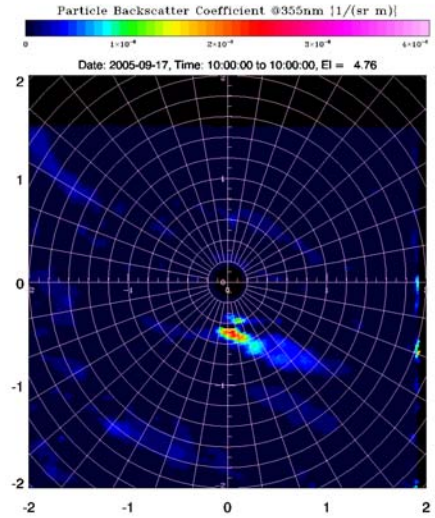
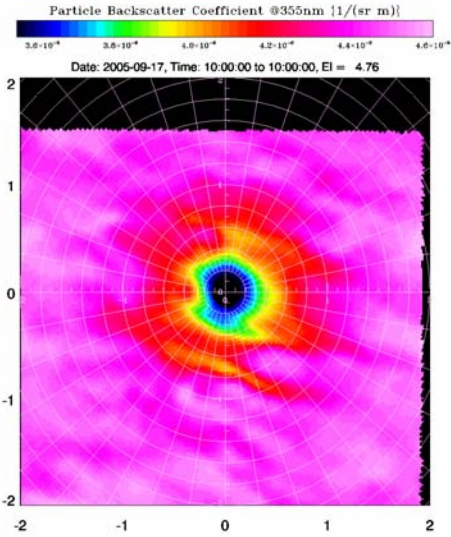
Abb. 4.21: *Vorausberechnete Verteilungen des Partikel-Rückstreukoeffizienten (Particle backscatter Coefficient) $\beta_{\lambda = 355 \text{ nm}}$ in der Geometrie und Zeitauflösung der Lidarmessung (PPI-Scans, Kegelschnitte), (a.) 2.26° bzw. (b.) 4.76° gegen Horizontale geneigt) in der Umgebung des Lidars (links) und Beitrag der Quelle, $\Delta\beta$ (Stall, rechts), hygroskopisches Aerosol, für Mettingen, 17.9.05, 10:00, 12:00 und 14:00 h UTC (von oben nach unten) jeweils 1 s-Mittel. Predicted distributions of the aerosol particle backscatter coefficient $\beta_{\lambda = 355 \text{ nm}}$ projected as measured (PPI-Scan), tilted (a.) 2.26° and (b.) 4.76° off ground, respectively, of the aerosol in the vicinity of the lidar (left) and source contribution, $\Delta\beta$ (farm, right), hygroscopic aerosol, for Mettingen, 1 s-means for 17.9.05, 10:00, 12:00 and 14:00 h UTC (from top to bottom).*

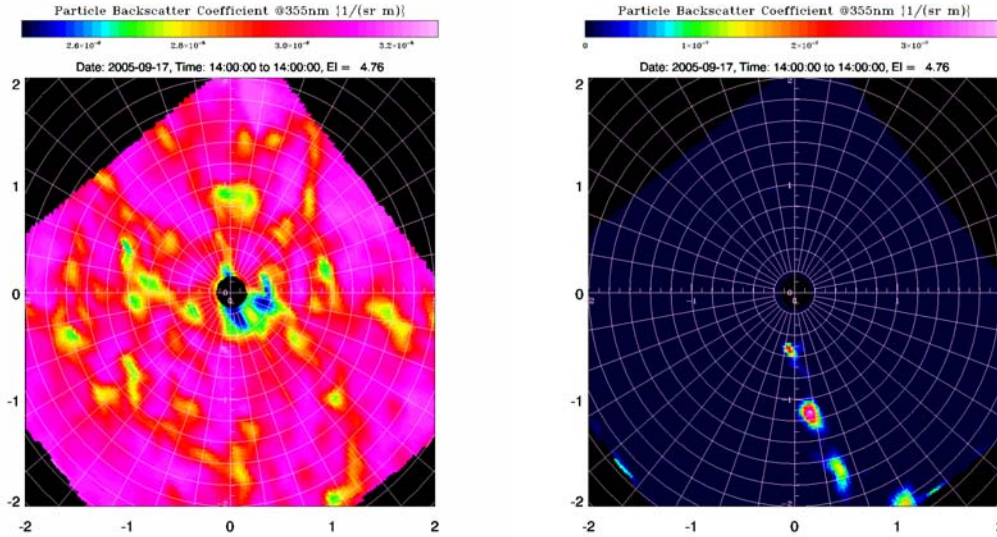
a.





b.





Die Modellrechnungen zeigen klar (Abb. 4.21), dass die Strukturen des Hintergrundaerosols ein hohes Rauschen verursachen, sodass die Detektion der Fahne schwierig war. Dies hätte bei einem Elevationswinkel von $2,26^\circ$ zumindest nach 14:00 h UTC möglich sein sollen: Für diese Zeit sagt das Modell ein hinreichend hohes Signal, $\Delta\beta = 1-3 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$, voraus (Tab. 4.7). Jedoch wurde an diesem Tag ein größerer Elevationswinkel von etwa $4,76^\circ$ gewählt. In dieser Höhe war die Erhöhung der Signalintensität so gering, so dass die Fahne im Lidar-Signal nicht mehr detektierbar war. Für diesen Elevationswinkel sagt das Modell mit $\Delta\beta \leq 0,02-0,08 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ unzureichende Signalthöhen im Zeitraum bis 15:00 h UTC und etwas höhere, $0,39-0,55 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ für die Zeit ab 16:00 h UTC voraus (Tab. 4.7). Das vorhergesagte Signal der Fahne für 17:00 h UTC, $\Delta\beta = 0,39 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ hätte angesichts des gemessenen Hintergrunds von $\beta = 1,0 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ zwar messbar sein können. Möglicherweise überschätzt das Modell hier das Signal.

Für die Messungen am 17.9.05 wären also wegen der niedrigen Lage der Fahne geringere Elevationswinkel des Lasers notwendig gewesen um Signale, die sich vom Rauschen unterscheiden, detektieren zu können.

Der mittlere Partikel-Rückstreukoeffizient für die Geometrie der (PPI-)Scans wird vom Modell mit $\beta = 2,3-4,1 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ etwa um den Faktor 2 höher erwartet als im Lauf des Tages gemessen, $1,0-2,0 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ (Tab. 4.7, Elevationswinkel $4,76^\circ$). Die Sensitivitätsstudie belegt jedoch, dass diese Diskrepanzen durch die Unsicherheiten bei der Initialisierung der Modellsimulationen erklärt werden können: Die gemessenen Werte liegen zwar unter der best guess-Simulation, aber über der unteren Abschätzung (Szenario ODL, vgl. Tab. 4.6), die $\beta = 0,4-0,8 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ vorhersagt (Daten nicht gelistet). Die obere Abschätzung (Szenario ODH) liefert Werte zwischen $3,5$ und $6,3 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$. Die Unsicherheit der Modellvorhersage des Partikel-Rückstreukoeffizienten, gemittelt über mehrere Quadratkilometer kann somit zu $+50/-70\%$ beziffert werden.

Tab. 4.7: Gegenüberstellung vorausberechneter (Modell, 1s-Mittel) und gemessener (Lidar) Bereiche des Partikel-Rückstreukoeffizienten $\beta_{\lambda = 355 \text{ nm}}$ ($10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$) in der Aerosolfahne ($\Delta\beta$, Maximum, gemittelt über 15 min) und im Hintergrund (β , Mittelwert \pm Standardabweichung, 1s-Mittel) für Mettingen, 17.9.05, 10:00-18:00 h konische (plane position indicator, PPI) Abtastungen. n.d. = nicht detektiert. Comparison of predicted and measured (lidar) ranges of the aerosol particle backscatter coefficient $\beta_{\lambda = 355 \text{ nm}}$ ($10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$) in the plume ($\Delta\beta$, maximum value, 15 min mean) and in the background (β , mean \pm standard deviation, 1 s mean) for Mettingen, 17.9.05 10:00-18:00 h conical (PPI) scans. n.d. = not detected.

Zeitpunkt, La- serelevations- winkel Time (UTC), tilt of PPI scan	Gemessen Measured		Vorhergesagt Predicted	
	$\Delta\beta$	β bckgrd	$\Delta\beta$	β bckgrd
10:00 h (2.26°)			0.30	4.08±0.24
10:00 h (4.76°)	<0.22	2.0±0.11	0.02	4.28±0.25
11:00 h (2.26°)			0.81	3.37±0.22
11:00 h (4.76°)			0.05	3.62±0.30
12:00 h (2.26°)			0.64	3.38±0.21
12:00 h (4.76°)	<0.62	1.25±0.31	0.07	3.48±0.18
13:00 h (2.26°)			0.68	3.15±0.17
13:00 h (4.76°)	<0.54	1.2±0.27	0.10	3.22±0.16
14:00 h (2.26°)			1.05	2.94±0.15
14:00 h (4.76°)			0.09	2.99±0.13
15:00 h (2.26°)			1.16	2.73±0.10
15:00 h (4.76°)	<0.26	1.8±0.13	0.08	2.78±0.09
16:00 h (2.26°)			2.66	2.55±0.12
16:00 h (4.76°)			0.39	2.58±0.07
17:00 h (2.26°)			3.23	2.39±0.15
17:00 h (4.76°)	<0.20	1.0±0.1	0.39	2.42±0.08
18:00 h (2.26°)			3.29	2.25±0.10
18:00 h (4.76°)			0.55	2.27±0.07

Geringere Elevationswinkel wurden am 20.9.05 verwendet und deutliche Signale einer Aerosolfahne detektiert. Dazu zeigt die Abb. 4.22 eine Serie von Rückstreuprofilen durch die Aerosolemission. Die Erhöhung der Rückstreuung durch die Fahne ist deutlich zu erkennen. Durch die Advektion wird eine Verdriftung der Emission in Abhängigkeit von der Entfernung verursacht. Ferner erzeugt die Turbulenz in der Grenzschicht eine vertikale Oszillation der Abluftfahne.

Die wahre Leistungsfähigkeit der Lidar-Messungen wird erst deutlich, wenn einzelne PPI-Scans visualisiert werden. Die Abb. 4.23 zeigt eine Serie von 2D-Partikel-Rückstreufeldern im Zeitraum von 16:19-16:23 UTC.

Abb. 4.22: Eine Serie von Profilen des Partikel-Rückstreukoeffizienten berechnet durch die analytische Inversion des Lidar-Signals inklusive der Korrektur molekularer Effekte.

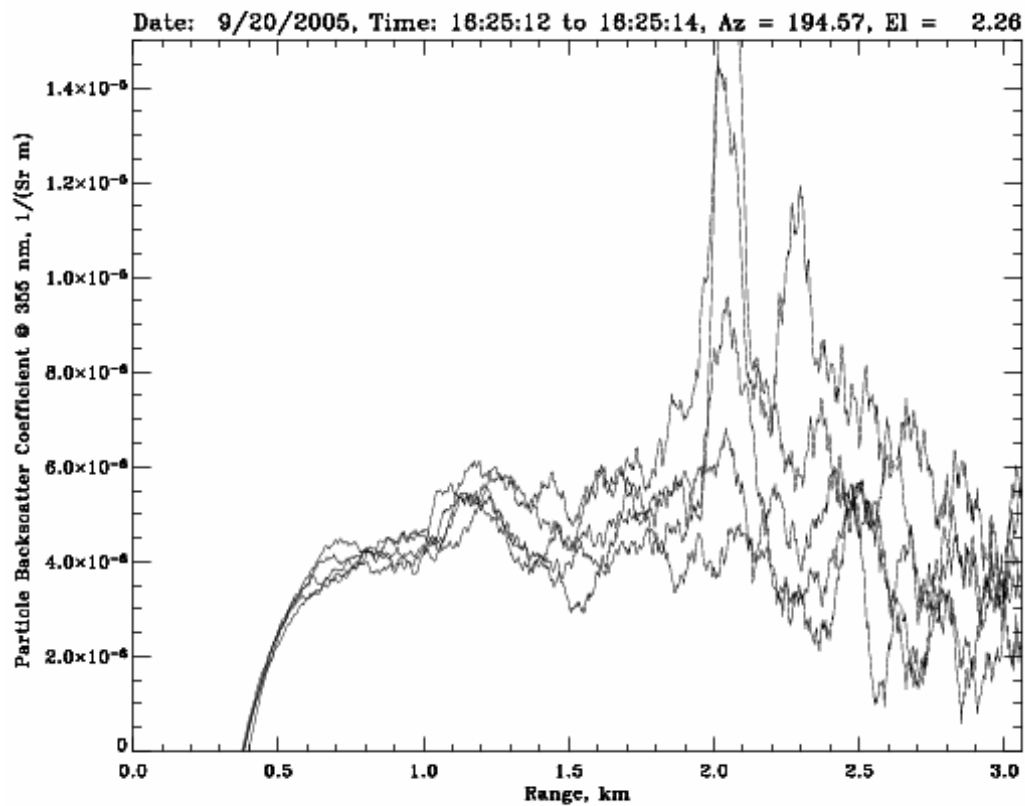
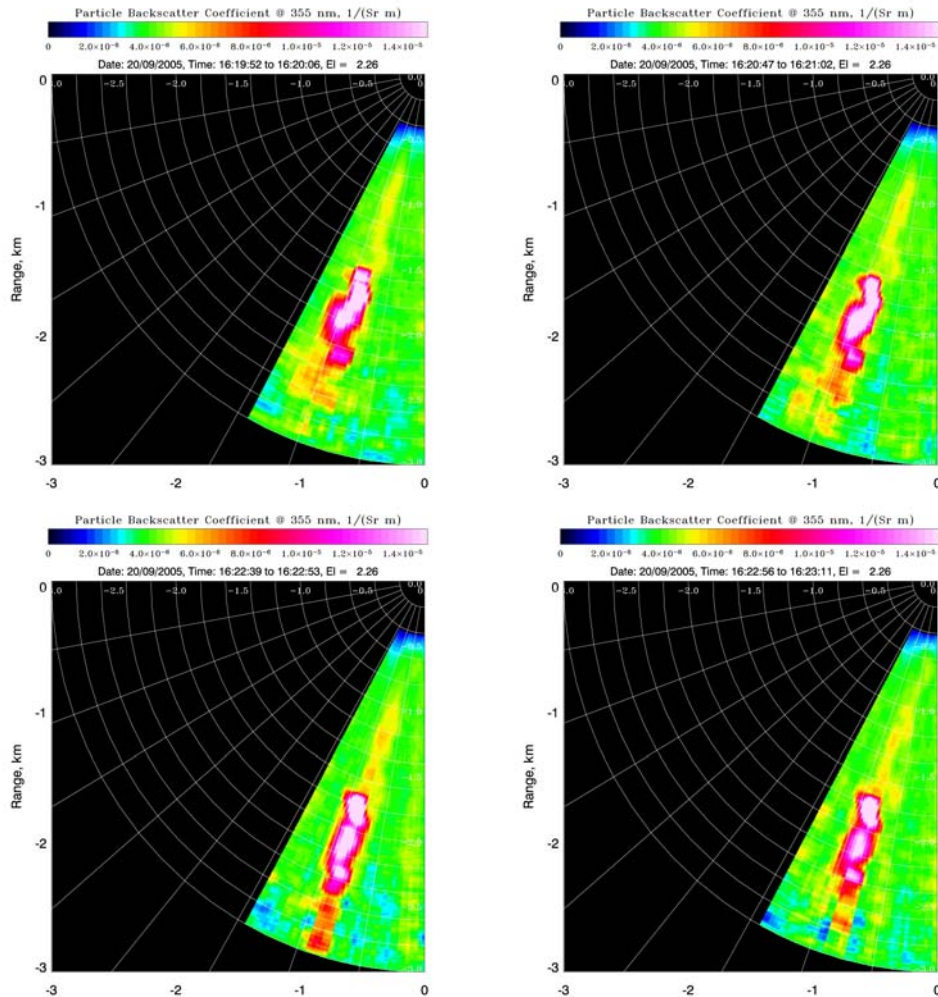


Abb. 4.23: Serie von vier 2D-Feldern des Partikel-Rückstreukoeffizienten (Particle Backscatter Coefficient). Die Dynamik der Emission kann dadurch sichtbar gemacht werden. Die Auflösung beträgt 0,3 s mit einem gleitenden Mittel von 30m. Als Abtastgeschwindigkeit wurde 2°/s gewählt.

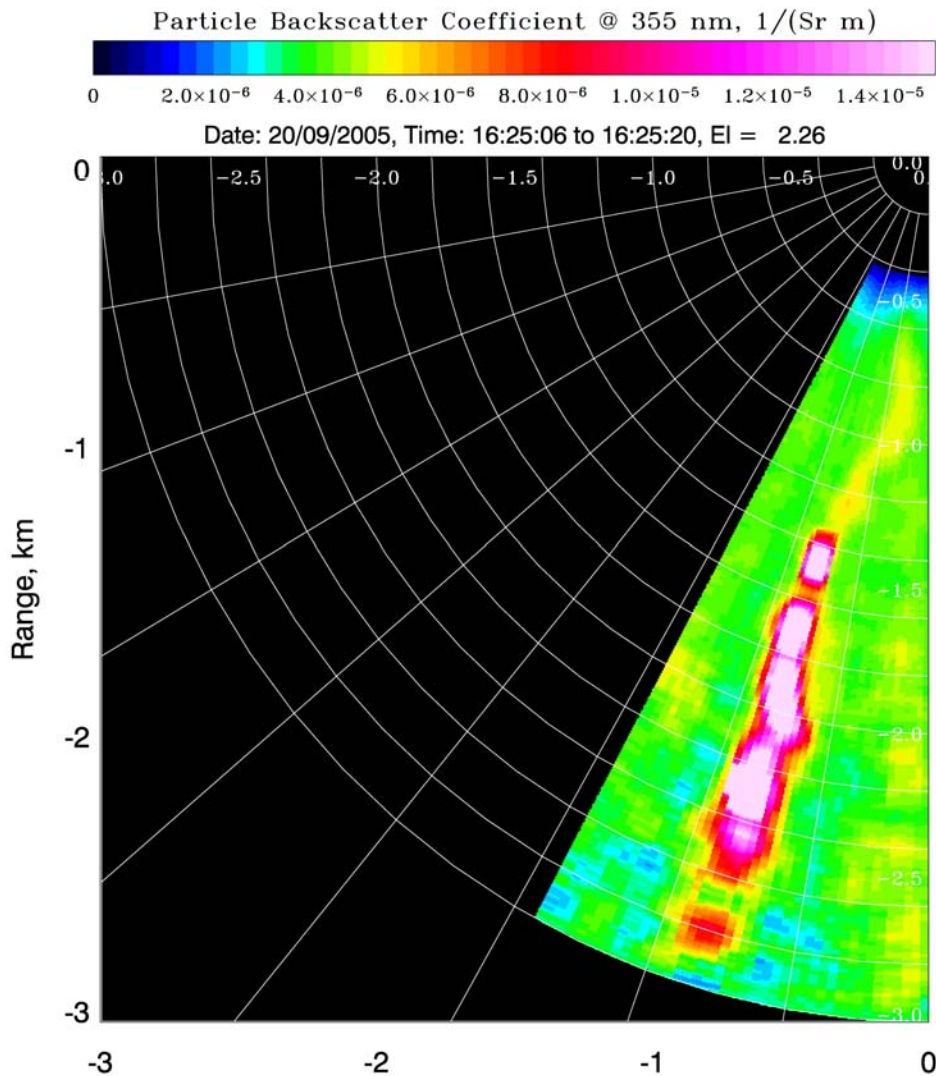


Die Abbildung 4.22 zeigt eine komplexe Struktur der Emission auf. Im Nahbereich war der Rückstreukoeffizient in der Beobachtungsebene kleiner, da hier nicht der zentrale Teil der Fahne geschnitten wurde. Die Fahne ist aber immer noch sichtbar. Der zentrale Teil wäre durch die Wahl eines noch geringeren Elevationswinkels messbar gewesen. Im Nahbereich ist während einiger Scans eine Bogenform der Fahne sichtbar, was vermutlich durch turbulente Prozesse zustande kam (s. Abb. 4.24).

In einer Entfernung von etwa 1100 m nahm die Rückstreuung stark zu. Dieses kann einerseits dadurch zustande kommen, dass nun der zentrale Teil der Fahne geschnitten wurde. Es ist auch möglich, dass Aerosolumwandlungen, insbesondere Kondensation eine Rolle spielten. Interessant ist die komplexe Rückstreustruktur, die durch vertikale Oszillationen der Fahne verursacht wurden. Nur ein Lidar ist in der Lage, dieses sichtbar zu machen. Um dieses zu verdeutlichen, wurde diesem Bericht ein Film beigelegt, der die zeitliche Entwicklung der Fahne zeigt.

Die Zunahme des Rückstreukoeffizienten durch die Quellen über dem Hintergrundaerosol betrug etwa $5 \cdot 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$. Die Fahne nahm einen Azimutwinkelbereich von etwa 5° ein. Damit betrug die horizontale Breite der Fahne beträgt etwa 120 m bei 1400 m und 190 m bei 2200 m. Die Fahne konnte bis in eine Entfernung von etwa 3000 m beobachtet werden.

Abb. 4.24: *Nahaufnahme eines 2D-Feldes des Partikel-Rückstreukoeffizienten. Im Nahbereich ist eine bogenförmige Deformation der Fahne zu erkennen.*



Für den 20.9.2005 (und PPI-Scans) sagt das Modell mittlere Rückstreukoeffizienten im Bereich $0,6-1,1 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$, $3,3-5,9 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ und $5,0-8,6 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ unter den Szenarien ODL, ODM, bzw. ODH voraus, wobei höchste Werte am Vormittag erreicht wurden, die im Laufe des Tages stetig abnahmen. Diese Ergebnisse sind in Abb. 4.25 in der Geometrie und Zeitauflösung der Lidarmessungen, nämlich als Projektion eines konischen PPI-Schwenks dargestellt und in Tab. 4.8 gelistet. Die Fahne lag wiederum flach, wenn auch etwas höher als am 17.9.05, so dass höchste Signale in niedrigen Laser-Elevationswinkeln zu erwarten waren: stärker bei $2,26^\circ$ als bei $4,76^\circ$. Im zeitlichen Verlauf nahm das Signal nach

10:00 h UTC ab, stieg dann unter leichter Variation bis 16:00 h auf $11,1 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ ($2,26^\circ$, unter ODM), bzw. $16,6 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ ($4,76^\circ$, unter ODM) an, um dann zunächst wieder abzufallen und den höchsten Wert um 18:00 h UTC zu erreichen (Tab. 4.8a). Analoges wird für den 17.9.05 vorhergesagt (Tab. 4.6). Dass für die Messung in PPI-Geometrie in zwei niedrigen Laser-Elevationswinkeln parallel ansteigende bzw. abnehmende Signal, $\Delta\beta$, vorhergesagt werden, obwohl Konstanz des Emissionsflusses selbst angenommen wird, resultiert aus der veränderlichen Orientierung der Fahne relativ zur Geometrie des PPI-Scans. Ein ähnlicher Verlauf wird für die Partikel-Rückstreuung in der Geometrie des RHI-Scans vorhergesagt (Tab. 4.8b).

Mögliche Beiträge ergeben sich aus der Höhe der Fahne und der Geometrie der Menge der rückstreuenden Elemente der Fahne. Der Kern der Fahne erhob sich am 20.9.05 bis 11:00 h UTC auf etwa 5° gegen den Boden und näherte sich dann wieder dem Boden, ab etwa 15:00 h UTC jedoch unter Ausbildung von (vertikalen) Mäandern. Die Fahnenhöhe scheidet damit als Erklärung für den parallelen Verlauf von $\Delta\beta(t)$ für die beiden Elevationswinkel $2,5^\circ$ und 5° aus. Bei unveränderter Fahnenhöhe veränderte sich aber die Geometrie der Menge der rückstreuenden Elemente der Fahne in Folge der Winddrehung (vgl. Abb. 4.22 und 4.25). Dasselbe gilt für den 17.9.05, an dem der Wind deutlich schneller drehte (vgl. Abb. 4.19 und 4.21) und dadurch ein anderes raumzeitliches Muster des Fahnenchnitts durch die Messung erzeugte. Dieser Effekt ist generell für alle Messungen zu erwarten, bei denen der Ort des Lasers und der der Emissionsquelle nicht identisch sind. Ein noch ausstehendes Modellexperiment mit künstlich festgehaltener Windrichtung soll diese Erklärungshypothese prüfen. Aus diesen Überlegungen wird deutlich, dass ein schneller Volumenscan eines Lidars durchgeführt werden sollte, um die Dynamik der Aerosolkonzentration, z.B. in einer Fahne korrekt wiederzugeben, nicht aber eine Serie von PPI- oder RHI-Scans deren Elevations- bzw. Azimutwinkel zur Komplettierung eines Volumenscans nicht rasch genug (relativ zur Windrichtungsänderung) durchgetastet werden. Dieses ist inzwischen durch die Verbesserung des Signal-Zu-Rausch-Verhältnisses des Lidar-Systems möglich und konnte mittlerweile in weiteren Experimenten demonstriert werden.

Diese vorhergesagten optischen Aerosoleigenschaften sind in Tab. 4.8 gemessenen gegenübergestellt: Gemessen wurden maximale Signale der Fahne in Höhe von $\Delta\beta \approx 5,0 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ um 16:20 h (bei einem Elevationswinkel von $2,5^\circ$), bzw. unter der Nachweisgrenze, d.h. $< 1,0 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ während der anderen Messzeiten dieses Tages (bei einem Elevationswinkel von $4,76^\circ$). Der Partikel-Rückstreukoeffizient nahm bei diesen PPI-Scans Mittelwerte zwischen $\beta = 1,5$ und $3,4 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ an (Tab. 4.8a).

Die gemessenen Signale bzw. Obergrenzen für die Fahne liegen zumeist im Bereich der vom Modell unter dem Szenario ODL vorhergesagten Werten, nämlich $\Delta\beta = 0,16\text{-}0,62 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ vor 18:00 h UTC (und damit unmessbar niedrig) und $1,1 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ um 18:00 h UTC (und damit oberhalb der Detektionsschwelle) für Elevationswinkel von $4,76^\circ$. Für die positive Messung beim Elevationswinkel $2,26^\circ$ um 16:00 h wird $1,7 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ unter ODL und $11 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ unter ODM vorhergesagt. Zwei Stunden später, um 18:00 h UTC, wurde unter dem selben Elevationswinkel $\Delta\beta < 0,3 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ gemessen, aber $\Delta\beta = 7,2 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ unter ODL vorhergesagt. Die Szenarien ODM und ODH sagen zumeist zu hohe Werte für $\Delta\beta$ vorher. Der mittlere Partikel-Rückstreukoeffizient für die Geometrie der PPI-Scans wird unter ODL etwas zu niedrig und unter ODM zunächst um den Faktor 2 zu hoch erwartet, nimmt im Lauf des Tages aber ab und nähert sich um 18:00 h UTC mit $3,3 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ dem gemessenen Wert von $\beta = 3,1 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ (Tab. 4.8a). Parallele Verläufe für β , bei entsprechend niedrigerem bzw. höherem Niveau werden unter den Szenarien ODL bzw. ODH vorhergesagt. Der unter diesem Szenario, ODM, für die Geometrie der RHI-Scans vorhergesagte mittlere Partikel-Rückstreukoeffizient liegt mit $3,1 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ sehr nahe dem einzigen, am frühen Nachmittag gemessenen Wert von $2,6 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ (Tab. 4.8b, wegen nur sporadi-

scher Messung Modellergebnisse lückenhaft gelistet). Für den an diesem Tag eingestellten Azimut-Winkel, $188,5^\circ$, wird mit $\Delta\beta = 1,3-2,1 \times 10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ (ODL) ein höheres Signal als gemessen vorhergesagt.

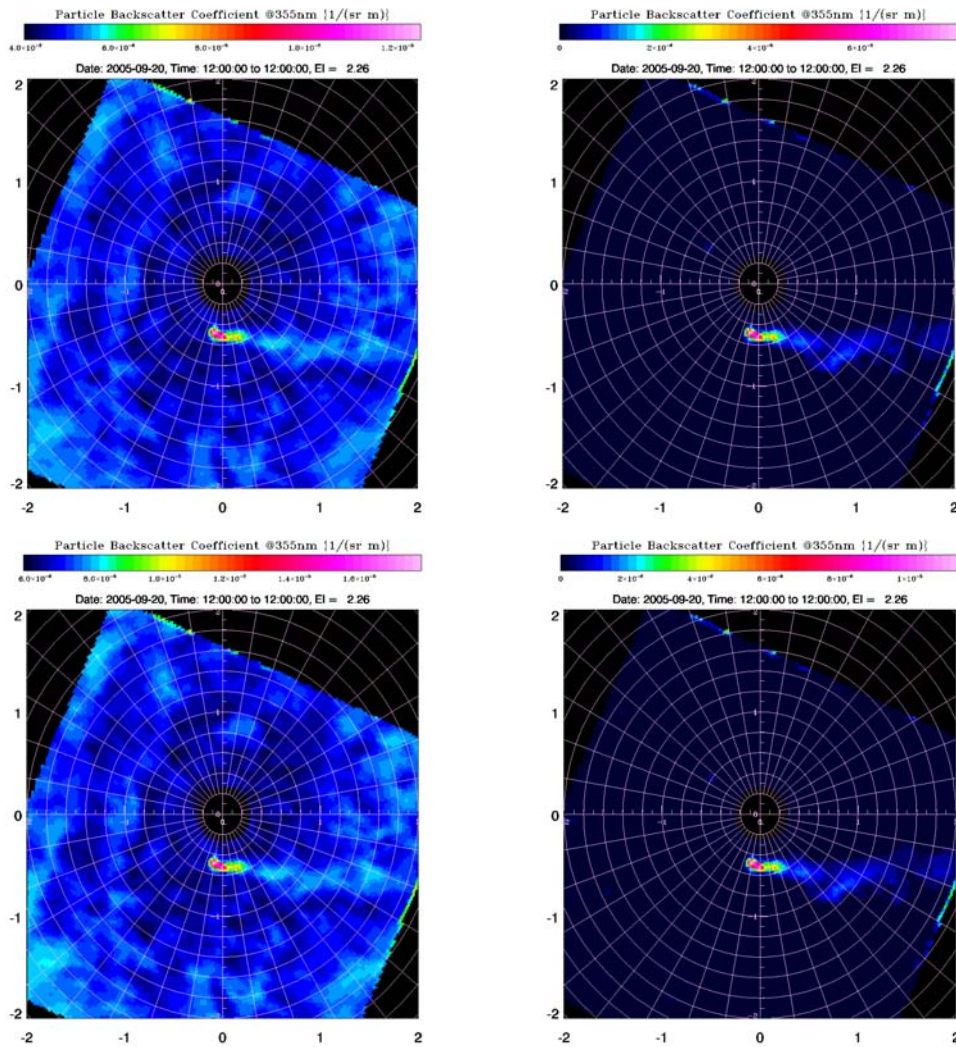
Interessant ist ein Vergleich der räumlichen Struktur des Rückstreukoeffizienten. Sowohl in der Simulation als auch in der Messung werden Oszillationen im Signal in Abhängigkeit von der Entfernung dargestellt. Dieses liegt an der vertikalen, turbulenten Oszillation der Fahne, die sowohl in den Messungen detektiert als auch simuliert wird. Hier muss bedacht werden, dass ein direkter Vergleich dieser Oszillationen aufgrund der stochastischen Natur dieser Fluktuationen unmöglich ist. Nur über einen längeren Zeitraum gemittelte Simulationen und Messungen können direkt verglichen werden.

Interessant ist die von der Messung abweichende Simulation der Intensitätsverteilung des Rückstreusignals in Abhängigkeit von der Entfernung. Bei den Modellsimulationen ist generell das maximale Signal sehr nah an der Quelle zu finden und die Signalintensität nimmt mit der Entfernung ab. Dagegen ist in der Messung das Signal im Nahbereich kleiner und nimmt ein Maximum in größerer Entfernung an. Wir vermuten, dass in der Realität die Fahne nur an der Oberkante vom Lidar geschnitten und erst im Fernbereich voll getroffen wurde. Diese Abweichungen könnten durch eine Überschätzung der Vertikalbewegung der Fahne in der Simulation zustande kommen.

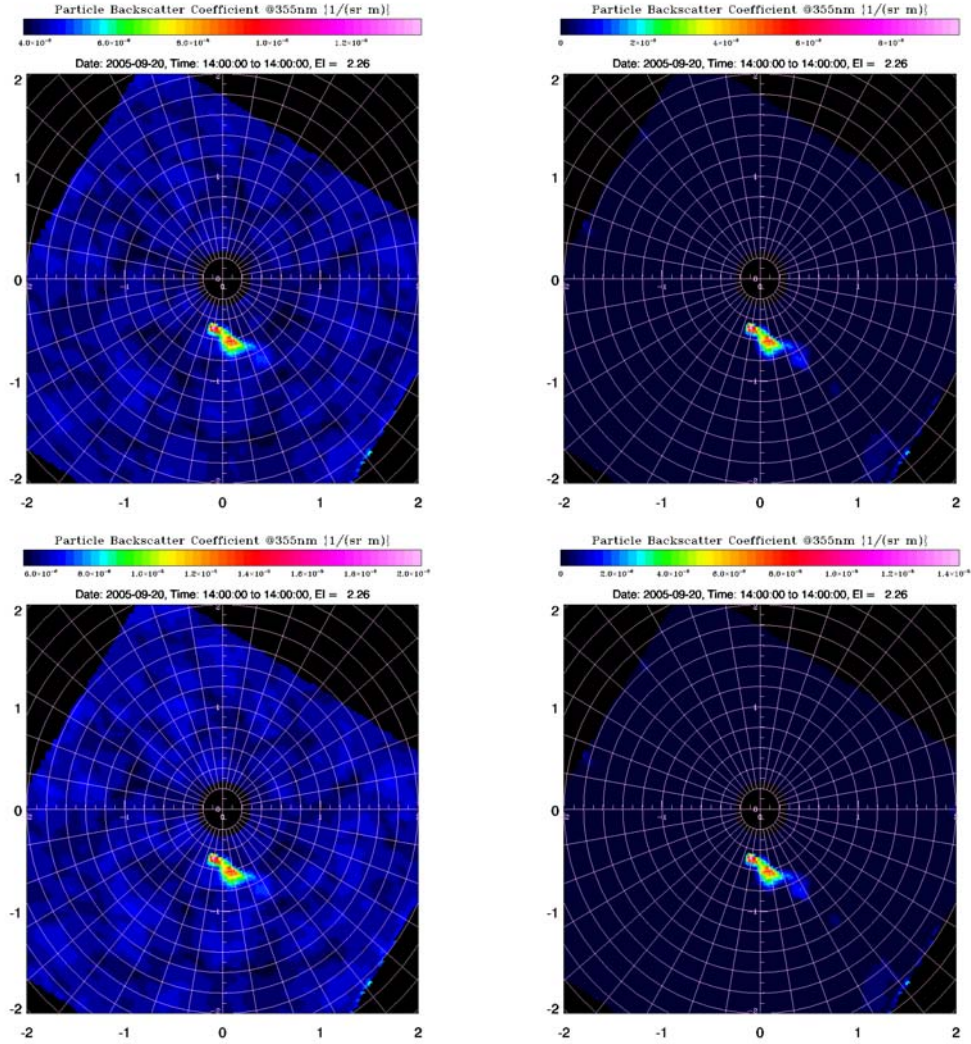
Ansonsten kann im Ergebnis für den 20.9.05 festgehalten werden, dass die Form und Lage der Fahne vom Modell gut wiedergegeben wird und die absoluten Rückstreusignale Eigenschaften des emittierten Aerosols sehr ähnlich denen des 17.9.05 nahe legen, während die Eigenschaften des Hintergrundaerosols zunächst höhere Konzentrationen (oder auch relativ mehr kleine Partikel oder einen größeren Anteil hygroskopischer Partikel) nahe legen, die dann im Laufe des Nachmittags sich den Eigenschaften des Hintergrundaerosols vom 17.9.05 annäherten.

Abb. 4.25: Vorausberechnete Verteilungen des Partikel-Rückstreukoeffizienten $\beta_{\lambda = 355 \text{ nm}}$ in der Geometrie und Zeitauflösung der Lidarmessung (PPI-Scans, Kegelschnitte, 2.26° gegen Horizontale geneigt) in der Umgebung des Lidars (links) und Beitrag der Quelle (Stall, rechts) unter 2 Szenarien, ODM (obere Reihe) und ODH (untere Reihe) für Mettingen, 20.9.05, (a.) 12:00 h und (b.) 14:00 h jeweils 1 s-Mittel. Predicted distributions of the aerosol particle backscatter coefficient $\beta_{\lambda = 355 \text{ nm}}$ projected as measured (PPI-Scan, tilted 2.26° off ground) of the aerosol in the vicinity of the lidar (left) and source contribution (farm, right) under 2 scenarios of aerosol properties, ODM (upper row) and ODH (lower row; cf. Table 6) for Mettingen, 1 s-means for 20.9.05 (a.) 12:00 h and (b.) 14:00 h.

a.



b.



Tab. 4.8: Gegenüberstellung vorausberechneter (Modell, unter 3 Szenarien, ODL, ODM und ODH - s. Tab. 6, 1-s-Mittel) und gemessener (Lidar) Bereiche des Partikel-Rückstreuoeffizienten $\beta_{\lambda=355\text{ nm}} (10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1})$ in der Aerosolfahne ($\Delta\beta$, Maximum, gemittelt über 15 min) und im Hintergrund (β , Mittelwert \pm Standardabweichung, 1-s-Mittel) für Mettingen, 17.9.05, 10:00-18:00 h (a.) konische (plane position indicator, PPI) und (b.) planare Abtastungen (range-height indicator, RHI scan). n.d. = nicht detektiert. Comparison of predicted (model, under 3 scenarios of aerosol properties, ODL, ODM and ODH - cf. Table 4.7, 1s-means) and measured (lidar) ranges of the aerosol particle backscatter coefficient $\beta_{\lambda=355\text{ nm}} (10^{-6} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1})$ in the plume ($\Delta\beta$, maximum value, 15 min mean) and in the background (β , mean \pm standard deviation, 1 s mean) for Mettingen, 20.9.05 10:00-18:00 h (a.) conical (PPI) scans and (b.) planar (range-height indicator, RHI) scans. n.d. = not detected

a.

Zeitpunkt, La- serelevation- swinkel Time (UTC), tilt of PPI scan	Gemessen Measured		Vorhergesagt Predicted					
			ODL		ODM		ODH	
	$\Delta\beta$	β bckgrd	$\Delta\beta$	β bckgrd	$\Delta\beta$	β bckgrd	$\Delta\beta$	β bckgrd
10:00 h (2.26°)			0.60	1.10±0.05	3.68	5.95±0.16	5.26	8.60±0.24
10:00 h (4.76°)	<0.25	2.5±0.12	0.16	1.07±0.05	0.93	5.70±0.29	1.42	8.31±0.37
11:00 h (2.26°)			0.27	1.02±0.05	1.38	5.65±0.12	2.00	8.13±0.23
11:00 h (4.76°)	<0.42	3.5±0.21	0.18	1.03±0.05	1.01	5.58±0.23	1.54	8.11±0.29
12:00 h (2.26°)			1.43	0.85±0.09	8.51	4.73±0.43	12.3	6.75±0.64
12:00 h (4.76°)	<1.0	1.5±0.51	0.33	0.93±0.09	1.94	5.02±0.37	2.80	7.27±0.61
13:00 h (2.26°)			1.67	0.80±0.06	10.1	4.36±0.31	14.6	6.25±0.46
13:00 h (4.76°)			0.59	0.83±0.06	3.58	4.48±0.30	5.19	6.46±0.49
14:00 h (2.26°)			1.17	0.79±0.06	7.26	4.19±0.34	10.6	6.14±0.50
14:00 h (4.76°)	<0.62	1.8±0.31	0.31	0.79±0.03	1.95	4.19±0.16	2.83	6.12±0.26
15:00 h (2.26°)			1.79	0.75±0.06	10.9	3.90±0.38	16.5	5.81±0.57
15:00 h (4.76°)	<0.22	1.8±0.11	0.31	0.75±0.02	1.89	3.90±0.13	2.85	5.79±0.20
16:00 h (2.26°)	6.0±3	2.9±0.21	1.68	0.70±0.06	11.1	3.61±0.40	16.6	5.43±0.59
16:00 h (4.76°)			0.35	0.70±0.03	2.30	3.63±0.23	3.43	5.43±0.34
17:00 h (2.26°)			1.61	0.66±0.07	10.3	3.42±0.44	15.8	5.18±0.68
17:00 h (4.76°)	<0.38	2.5±0.19	0.51	0.66±0.03	3.23	3.44±0.19	4.94	5.18±0.28
18:00 h (2.26°)	<0.32	2.2±0.16	7.19	0.65±0.29	46.3	3.39±1.88	68.8	5.14±2.75
18:00 h (4.76°)	<0.31	3.1	1.12	0.64±0.13	7.18	3.34±0.81	10.6	5.04±1.19

b.

Zeitpunkt, La- serelevation- swinkel Time (UTC), tilt of PPI scan	Gemessen Mea- sured		Vorhergesagt Predicted					
			ODL		ODM		ODH	
	$\Delta\beta$	β bckgrd	$\Delta\beta$	β bckgrd	$\Delta\beta$	β bckgrd	$\Delta\beta$	β bckgrd
12:00 h (188.5°)			0.99	0.61±0.25	6.01	3.19±1.37	8.65	4.77±1.97
12:00 h (193.5°)			1.67	0.61±0.25	10.0	3.19±1.37	14.4	4.77±1.97
12:00 h (203.5°)			0.05	0.61±0.25	0.27	3.19±1.37	0.42	4.77±1.96
13:00 h (188.5°)	0.38	2.6±0.19	1.31	0.59±0.22	7.91	3.08±1.22	11.5	4.60±1.75
13:00 h (193.5°)			1.95	0.59±0.22	11.8	3.08±1.22	17.1	4.60±1.75
13:00 h (203.5°)			0.02	0.59±0.22	0.13	3.08±1.22	0.21	4.61±1.74
14:00 h (188.5°)			0.93	0.57±0.20	5.78	2.98±1.09	8.40	4.46±1.57
14:00 h (193.5°)			1.38	0.57±0.20	8.57	2.98±1.10	12.5	4.46±1.57
14:00 h (203.5°)			0.08	0.57±0.20	0.50	2.98±1.08	0.76	4.45±1.55
16:00 h (188.5°)			0.79	0.54±0.16	5.23	2.79±0.90	7.80	4.18±1.29
16:00 h (193.5°)			2.07	0.54±0.17	13.7	2.79±0.96	20.5	4.18±1.40
16:00 h (203.5°)			0.08	0.53±0.16	0.50	2.76±0.85	0.78	4.15±1.23

5. Synergie und Ausblick

Im Rahmen dieses Projekt konnte unseres Wissens erstmalig am 20.9.05 eine Abluftfahne aus einer landwirtschaftlichen Quelle mit einer horizontalen Abtastung räumlich und zeitlich vermessen werden sowie der Partikelrückstreukoeffizient der Aerosole bestimmt werden. Die Messungen geben Aufschluss über den Transport der Aerosolemission durch den Wind und die Deformation der Fahne durch die Turbulenz. Die optischen Aerosoleigenschaften wurden mit einem hochauflösenden Mikrophysik-Chemie-Transport-Modell vorhergesagt und die Modellergebnisse mit den Messungen kombiniert. Zur Bestimmung der Modellsensitivität wurden unterschiedliche Emissionsquellstärken und Aerosol-Zusammensetzungen studiert. Aus den Übereinstimmungen bzw. den Diskrepanzen zwischen den beobachteten Lidar-Daten und der Vorhersage (Modellergebnisse) wurde der Phasenraum des Modells eingeschränkt, seine Resultate verbessert und Schlussfolgerungen bezüglich der Aerosoldynamik nahe der Quelle Nutztierhaltung gezogen.

Die Abbildung aerosolmikrophysikalischer Prozesse in einem turbulenzauflösendem Modell erlaubt jedoch auch die Übertragung auf andere Aerosolquellen. Im Hinblick auf eine mögliche Weiterentwicklung der chemischen Modellkomponenten wäre insbesondere die Anwendung auf die Aerosollinienquelle Straße interessant: Die Aerosol- und Chemodynamik nahe diese Quelle könnte turbulenzauflöst studiert werden. Dies ist bedeutsam hinsichtlich der Einhaltung von kombinierten Aerosol- (Feinstaub) und Spurengas- (NO_2) –Grenzwerten etwa nahe Wohngebieten. Modelle, die die Aerosol- und Chemodynamik auf lokaler Skala beschreiben, wurden jüngst bereitgestellt (sog. mikroskalige Windfeldmodelle mit gekoppelter Chemie; Schlünzen et al., 2003), jedoch noch nicht unter Turbulenzauflösung. Untersuchungen der Einflüsse der Turbulenz auf die homogene Gasphasenchemie (Vilà-Guerau de Arellano & Duynkerke, 1993) zeigen aber, dass erhebliche Effekte zu erwarten sind und nur ein turbulenzauflösendes Aerosol-Chemie-Modell verspricht, die Gesamtheit relevanter Prozesse für solcherart Anwendungen beschreiben zu können.

Weil die in situ-Messungen während des Feldexperimentes unvollständig waren, konnten die optischen Aerosoleigenschaften nur mit einer erheblichen Unsicherheit, +50/-70% für den Partikel-Rückstreukoeffizienten, vorhergesagt werden. Die Erfahrungen lassen erwarten, dass die Vorhersagegüte des Modells durch Modifikation der in situ-Messstrategie deutlich verbessert werden könnte: Die Zeitauflösung und der Fehler der Massenbestimmung der partikelgrößenauflösten Messung des Hintergrundaerosols könnte durch Einsatz eines Impaktors mit etwa vierfach höherem Durchfluss (100 statt 25 l min^{-1}) deutlich verbessert werden. Der Einsatz eines Kondensationskernzählers würde Unsicherheiten bei der Modell-Initialisierung durch Extrapolation der Massenverteilung aus in situ-Messungen deutlich verringern.

Das in der Feldmesskampagne dieses Projekts erstmals eingesetzte Lidarsystem wurde mittlerweile weiterentwickelt. Für zukünftige Experimente ist das Lidar-System in folgenden Bereichen verbessert und ermöglicht damit genauere Messungen und eine erhöhte Auflösung:

- Höhere Leistung des Lasertransmitters
- Bessere Unterdrückung des Tageslichtuntergrundes
- Einbau von Rotations-Raman-Signalen
- Simultane Messung anderer atmosphärischer Variablen wie der Temperatur

Der Einbau von Rotations-Raman-Signalen erlaubt nunmehr die unabhängige Messung des Partikelrückstreukoeffizienten ohne Annahmen zum Partikelextinktionskoeffizienten (siehe Abb. 2.6 und 5.1). Außerdem steht die Temperatur als zusätzlicher Messparameter zur Ver-

fügung (Abb. 5.2). Echtzeitvisualisierungen der Messungen erlauben eine Anpassung der Scanstrategie je nach meteorologischen Bedingungen. Das IPM strebt an, mit dem verbesserten Lidar-System ähnliche Messungen wie die im Rahmen dieses Projektes durchgeführten an einem anderen Betrieb und/oder anderen Quellen zu wiederholen. Hier sind auch Emissionen aus dem Straßenverkehr interessant.

Spätere Anwendungen der in diesem Projekt eingesetzten Methode der Kombination von scannenden Lidarmessungen mit Ergebnissen eines hochauflösenden Mikrophysik-Chemie-Transport-Modells würden die Untersuchung von Aerosolemissionen bei unterschiedlichen Stallformen und/oder Tierarten umfassen, die Bewertung der Relevanz der Aerosolquelle Nutztierhaltung im Verbund mit anderen Aerosolquellen (Verkehr, Energieumwandlung, etc.) für die menschliche Gesundheit und das Klima erlauben und Rückschlüsse auf Emissionsminderungspotenziale erwarten lassen. Diese könnten dann integrierend, d.h. unter Einbeziehung ökologischer und ökonomischer Kriterien untersucht und bewertet werden.

Abb. 5.1 Hochauflösende scannende Messung des Partikelrückstreuungskoeffizienten mit der Rotations-Raman-Lidarmethode mit dem IPM-Lidar während der COPS-Kampagne (15:57:56 – 16:02:44 UTC am 25 August 2007; auf der Hornisgrinde, dem höchsten Berg im Nordschwarzwald). Die Messauflösung beträgt 13 s pro Richtung mit einer Entfernungsauflösung von 3.75 m. AGL: above ground level; über Boden.

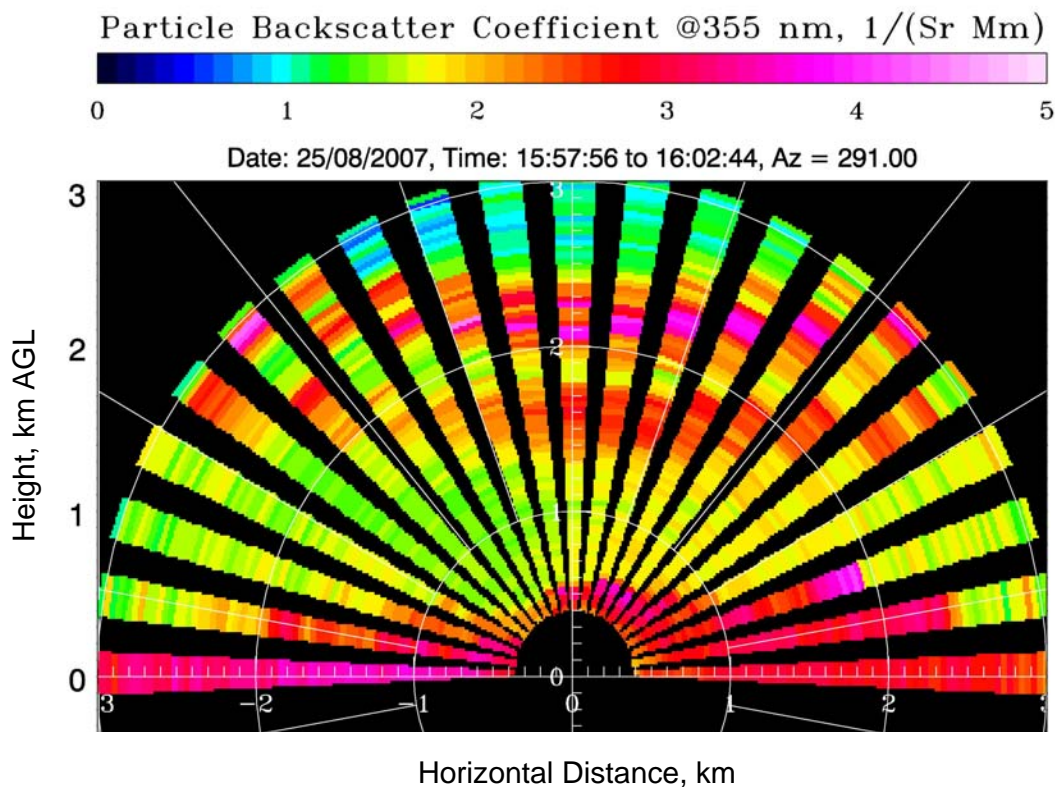
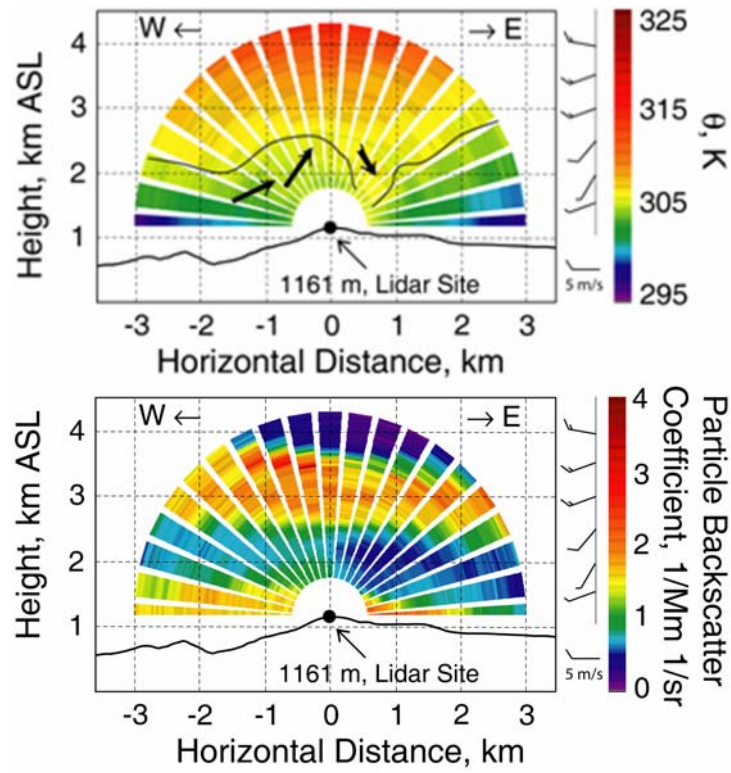


Abb. 5.2 Simultane Messungen der potentiellen Temperatur und des Partikelrückstreuverhältnisses mit dem IPM-Lidar (15:58 - 17:05 UTC, ebenfalls am 25 August 2007 auf der Hornisgrinde). ASL: Above sea level, über NN.



Danksagung

Wir danken sehr herzlich

- Prof. Dr. Burghard Brümmer und Michael Offermann (Meteorologisches Institut, Universität Hamburg) für die unentgeltliche Überlassung einer Radiosondenanlage
- den Grundstücksbesitzern in Mettingen und dabei ganz besonders Herrn Paul Overmeyer, Landwirt in Mettingen, für die freundliche Erlaubnis, Messungen auf den Liegenschaften durchführen zu dürfen, sowie für die großzügige Aufnahme und Hilfestellungen während der Messkampagne,
- Prof. Dr. Wolfgang Schwack und Gerd Ganzlin (Institut für Lebensmittelchemie, Universität Hohenheim) für die Anfertigung von Analysen,
- der Deutschen Flugsicherung, Bremen, für große Flexibilität bei der Genehmigung von Sondernaufstiegen,
- Dr. Vadim Cercasov, (Institut für Physik und Meteorologie, Universität Hohenheim) für die Anfertigung von Analysen bzw. Hilfe bei der Nutzung von Modelldaten des DWD,
- Dr. Barbara Köllner (Landesamt für Umwelt Nordrhein-Westfalen, Essen) für Zurverfügungstellung von Daten und Interesse,
- Prof. Roland Wurster und Dr. Hans-Stefan Bauer (Institut für Physik und Meteorologie, Universität Hohenheim) für die Anfertigung von Analysen bzw. Hilfe bei der Nutzung von Modelldaten des DWD. Herrn Olaf Tapfer (Institut für Physik und Meteorologie, Universität Hohenheim) für Hilfe bei der Erstellung der LabView-Programme zur Datenerfassung und Steuerung des Lidarscanners.
- Prof. Dr. Heinrich Hühnerfuß (Institut für Organische Chemie, Universität Hamburg) für die unentgeltliche Überlassung und Nutzung von Laborgerätschaften,
- Dr. Hans Feichter (MPI für Meteorologie, Hamburg) für die Präsentation eines Posters auf einer internationalen Konferenz, deren Besuch im Projekt nicht finanziert werden konnte.
- Dr. Thorsten Schaberl für seine Unterstützung der Lidarmessungen bei der Feldmesskampagne
- Dr. Christoph Senff (NCAR, USA) für die Zurverfügungstellung von IDL-Programmen und Hilfe bei der IDL-Programmierung zur Auswertung der Lidarmessungen
- GKSS Forschungszentrum Geesthacht für die Überlassung des Lastwagens, welcher das Lidarsystem beherbergt
- NCAR, Boulder, USA, für den Aufbau des Lidarscanners
- Institut für Troposphärenforschung Leipzig für die Leihgabe des Lidartransmitters

Ohne diese Hilfestellungen hätte die Projektarbeit nicht in diesem Umfang durchgeführt werden können.

Veröffentlichungen aus der Projektarbeit

- Behrendt, A.; G. Wagner, A. Petrova, M. Shiler, S. Pal, T. Schaberl, V. Wulfmeyer (2005): Modular lidar systems for high-resolution 4-dimensional measurements of water vapor, temperature, and aerosols. In: U. N. Singh and Kohei Mizutani (Eds.), Lidar Remote Sensing for Industry and Environment Monitoring V (Proceedings of SPIE 5653), 8-12 November 2004, Honolulu, Hawaii, USA, p. 220-227.
- Pal S., A. Behrendt, V. Wulfmeyer, T. Schaberl, M. Radlach (2006): Eyesafe scanning aerosol lidar at 355 nm. International Laser Radar Conference (ILRC), Nara, Japan
- Pal S., A. Behrendt, M. Radlach, V. Wulfmeyer (2007): Aerosol measurements with a scanning rotational Raman lidar at Hornisgrinde during COPS. (ID-NR: DACH2007-A-00420) DACH, 10-14 Sept, 2007, Hamburg, Germany.
- Pal, S., Behrendt A., Wulfmeyer V. (2007): Characterisation of atmospheric boundary layer structures and investigation of related statistics with an ultra-high-resolution elastic-backscatter lidar. *Bound. Lay. Meteorol.*(under review).
- Radlach M, A. Behrendt, V. Wulfmeyer, T. Schaberl, S. Pal (2006): 3D Measurements of tropospheric temperature fields with a scanning rotational Raman lidar. International Laser Radar Conference (ILRC), Nara, Japan
- Radlach M., A. Behrendt, V. Wulfmeyer (2007): Scanning rotational Raman lidar at 355 nm for the measurement of tropospheric temperature fields. *Atmos. Chem. Phys.*, in press
- Valdebenito A.M., Pal S., Lammel G., Wulfmeyer V., Behrendt A., Müller F., Petrova A., Schaberl T., Feichter H. (2006): Close to source dynamics and evolution of aerosols emitted from a livestock farm, Proceedings of the EC RTD-FP6 CoE ACCENT Symposium "The changing chemical climate of the atmosphere", Urbino, Italien, 12.-16.9.2005, 4 S.
- Valdebenito A.M., Lammel G., Müller F. (2006): Close to source aerosol dynamics and evolution of optical aerosol properties of aerosols from a livestock farm, Posterbeitrag, Conference on Visibility, Aerosols, and Atmospheric Optics, Wien, 3.-6.9.2006

Literatur

- Althausen D., Müller D., Ansmann A., Wandinger U., Hube H., Clauer E., Zorner S. (2000): Scanning six-wavelength eleven channel aerosol lidar. *J. Atmos. Ocean. Technol.* 17, 1469-1482
- Atkinson R. (1990): Gas-phase tropospheric chemistry of organic compounds: A review. *Atmos. Environ.* 24A,1-41
- Behrendt A., Nakamura T., Onishi M., Baumgart R., Tsuda T. (2002): Combined Raman lidar for the measurement of atmospheric temperature, water vapor, particle extinction coefficient, and particle backscatter coefficient. *Appl. Opt.* 41, 7657-7666
- Behrendt A., Wulfmeyer V. (2003): Combining water vapor DIAL and rotational Raman temperature lidar for humidity, temperature, and particle measurements with high resolution and accuracy. In: Lidar Remote Sensing for Industry and Environment Monitoring IV (Singh U.N., Hrsg.), 3.-8.8.2003, San Diego, USA, *Proceedings of SPIE* 5154, 61 - 64
- Behrendt A., Nakamura T., Tsuda T. (2004): Combined temperature lidar for measurements in the troposphere, stratosphere, and mesosphere. *Appl. Opt.* 43, 2930-2939

- Behrendt A. (2005): Temperature Measurements with Lidar. In: Lidar: Range-Resolved Optical Remote Sensing of the Atmosphere (Weitkamp C., Hrsg.), *Springer Series in Optical Sciences* Vol. 102, New York (Springer), S. 273-305
- Bjerg B., Kai P., Morsing S., and Takai H. (2004): CFD analysis to predict close range spreading of ventilation air from livestock buildings. *Agricultural Engineering International: the CGIR Journal of Scientific Research and Development*. Manuscript BC 03014. Vol. VI. August, 2004.
- Bohren, C.F., Huffman, D.R. (1993): Absorption and scattering of light by small particles, New York (Wiley)
- Carter W.P.L. (1990): A detailed mechanism for the gas-phase atmospheric reactions of organic compounds. *Atmos. Environ.* 24, 481-518
- Chlond A. (1992): Three-dimensional simulation of cloud street development during a cold air outbreak. *Bound. Layer Meteor.* 58, 161-200
- Chlond A. (1998): Grobstruktursimulation - eine Methode zur Berechnung turbulenter atmosphärischer Strömungen, Habilitationsschrift, Max Planck Institut for Meteorologie, Examensarbeit Nr. 66, Hamburg
- Chlond A., Wolkau A. (2000): Large-eddy simulation of a nocturnal stratocumulus-topped marine boundary layer. *Bound. Layer Meteor.* 95, 31-55
- Dockery D.W. (2001): Epidemiologic evidence of cardiovascular effects of particulate air pollution. *Env. Health Persp.* 109, 483-486
- Eichinger W.E., Cooper D.I., Hatfield J., Hippias L., Nichols J.J., Pfeiffer R., Prueger J.H. (2006): Use of elastic lidar to examine the dynamics of plume dispersion from an agricultural facility. *Proceedings of Workshop on Agricultural Air Quality - State of the Science* (Aneja V.P., Schlesinger W.H., Knighton R., Jennings G., Niyogi D., Gilliam W., Duke C.S., Hrsg.), Potomac, USA, 5.-8.6.2006, S. 215-226, Internet: <http://www.ncsu.edu/airworkshop/>
- Fernald F.G. (1984): Analysis of the atmospheric lidar observations: some comments. *Appl. Opt.* 23, 652-653
- Fraigneau Y., Gonzalez M., and Coppalle A. (1996): The influence of turbulence upon the chemical reaction of nitric oxide released from a ground source into ambient ozone. *Atmos. Env.* 30 (9), 1467-1480
- Hale G.M., Querry M.R. (1973): Optical constants of water in the 200-nm to 200- μ m wavelength region. *Appl. Optics* 12, 555-563
- Hänel G. (1976): The properties of atmospheric particles as function of the relative humidity at thermodynamic equilibrium with surrounding moist air. *Adv. Geophys.* 19, 73-118
- Hänel G. (1994): Optical properties of atmospheric particles: complete parameter sets obtained through polar photometry and an improved inversion technique. *Appl. Optics* 33, 7187-7199
- Hartung J., Seedorf J., Trickl T., Gronauer H. (1998): Freisetzung partikelförmiger Stoffe aus einem Schweinestall mit zentraler Abluftführung in die Stallumgebung. *Dtsch. Tierärztl. Wschr.* 105, 244-245
- Heederik D., Brouwer R., Biersteker K., and Boleij S.M. (1991): Relationship of airborne endotoxin and bacteria levels in pig farms with the lung function and respiratory symptoms of farmers. *Int. Arch. Occup. Environ. Health*, 62, 595-601

- Hess M., Koepke P., Schult I. (1998): Optical properties of aerosols and clouds: The software package OPAC. *Bull. Am. Meteor. Soc.* 79, 831-844
- Hobbs P.V. (1993): *Aerosol-Cloud-Climate Interactions*, San Diego (Academic Press)
- Hobbs P.J., Misselbrook T.H., Cumby T.R. (1999): Production and emission of odours and gases from aging pig waste. *J. Agric. Eng. Res.* 72, 291–298
- Holmén B.A., W.E. Eichinger, R.G. Flocchini (1998): Applications of elastic lidar to PM₁₀ emissions from agricultural nonpoint sources. *Environ. Sci. Technol.* 32, 3068-3076
- Holmén B.A., T.A. James, L.L. Ashbaugh, R.G. Flocchini (2001a): Lidar-assisted measurements of PM₁₀ emissions from agricultural tilling in California's San Joaquin Valley – Part I: Lidar. *Atmos. Environ.* 35, 3251-3264
- Holmén B.A., T.A. James, L.L. Ashbaugh, R.G. Flocchini (2001b): Lidar-assisted measurements of PM₁₀ emissions from agricultural tilling in California's San Joaquin Valley – Part II: Emission factors. *Atmos. Environ.* 35, 3265-3277
- IIASA (2001) - International Institute for Applied Systems Analyses: Rains PM Modul, II-ASA, Laxenburg, Österreich, Internet: <http://www.iiasa.ac.at/~rains/PM/pm-home.html> (letzter Zugriff 4.9.07)
- IPCC (2007) - Intergovernmental Panel of Climate Change: Understanding and attributing climate change, In: *Climate Change 2007: The physical science basis. Contribution of Working Group I to the 4th Assessment Report of the IPCC* (Solomon S. et al., eds.), Cambridge (Cambridge University Press), UK, S. 663-746
- Jongbloed A.W. and Lenis N.P. (1998): Environmental concerns about animal manure. *J. Anim. Sci.* 76, 2641-2648
- Kjelgaard J., Sharratt B., Sundram I., Lamb B., Claiborn C., Saxton K., Chandler D. (2004): PM₁₀ emission from agricultural soils on the Columbia Plateau: comparison of dynamic and time-integrated field-scale measurements and entrainment mechanisms. *Agric. Forest Meteorol.* 125, 259-277
- Kondratyew K.Y. (1999): *Climatic effects of aerosols and clouds*, London (Springer)
- Köpke P., Hess M., Schult I., Shettle E. (1997): Global aerosol data set. *Report Max-Planck-Institut für Meteorologie* Nr. 243, Hamburg, 44 S.
- Kost W.J. (1997): Ausbreitungsrechnung genehmigungsbedürftiger Anlagen. In: *Von der Emission zur Immission, Beiträge aus Meßtechnik und Modellierung* (Kommission Reinhaltung der Luft im VDI und DIN, Hrsg.) 27, 126-142
- Kovalev, V.A. (1995): Sensitivity of the lidar solution to errors of the aerosol backscatter-to-extinction ratio: influence of a monotonic change in the aerosol extinction coefficient. *Appl. Opt.* 34, 3457- 3462
- Lammel G., Brüggemann E., Gnauk T., Müller K., Neusüß C., Röhl A. (2003): A new method to study aerosol source contributions along the tracts of air parcels and its application to the near-ground level aerosol chemical composition in central Europe. *J. Aerosol Sci.* 34, 1-25
- Lammel G., Schneider F., Brüggemann E., Gnauk T., Röhl A., Wieser P. (2004): Aerosols emitted from a livestock farm in southern Germany. *Water Air Soil Poll.* 154, 313-330
- Lammel G., Engelhardt T., Leip A., Neusüß C., Röhl A., Wehner B., Wiedensohler A., Wieser P. (2005): Transformation of aerosol chemical properties due to transport over a city. *J. Atmos. Chem.* 51, 95-117

- Lange K. de., Nyachoti M., and Birkett S. (1999): Manipulation of diets to minimize the contribution to environmental pollution. *Advances in Pork Production*, 10, 173-186
- Lurmann F.W., Carter W.P.L., Coyner L.A. (1987): A surrogate species chemical reaction mechanism for urban-scale air quality simulation models. Technical Report No. EPA/600/3-87/014, U.S. Environmental Protection Agency, Research Triangle Park, USA
- Mackiewicz B. (1998): Study on exposure of pig farm workers to bio aerosols, immunologic reactivity and health effects. *Ann. Agric. Environ. Med.* 5, 169-175
- Memmesheimer M., Friese E., Ebel A., Jakobs H.J., Feldmann H., Kessler C., Piekorz G. (2004): Long-term simulations of particulate matter in Europe on different scales using sequential nesting of a regional model. *Intl. J. Environ. Poll.* 22, 108-132
- Meng Z., Seinfeld J.H. (1996): Time scales to achieve atmospheric gas-aerosol equilibria for volatile species, *Atmos. Environ.* 30, 2889-2900
- Mishchenko M.I., Liu L., Travis L.D., Lasis A.A. (2004): Scattering and radiative properties of semi-external versus external mixtures of different aerosol types. *J. Quant. Spectroscopy Rad. Transfer* 88, 139-147
- Müller D., Wagner F., Wandinger U., Ansmann A., Wendisch M., Althausen D., Hoyningen-Huene W.V. (2000): Microphysical particle parameters from extinction and backscatter lidar data by inversion with regularization: Experiment. *Appl. Opt.* 39, 1879-1892
- Müller F. (1994): Zur spektralen Modellierung der Wechselwirkung wolkenchemischer und mikrophysikalischer Prozesse, Fraunhofer–Institut für Atmosphärische Umweltforschung, Bd. 30–94, Garmisch–Partenkirchen, 209 S.
- Müller F. (2001): Splitting error estimation for micro-physical - multi-phase chemical systems in meso-scale air quality models. *Atmos. Environ.* 35, 5749-5764
- Müller W., Wieser P. (1987): Dust and Microbial Emissions from Animal Production. In: Strauch D. (Hrsg.): *World Animal Sciences* B6, 47-90, Amsterdam (Elsevier)
- Napari I., Noppel M., Vehkamäki M., Kulmala M. (2002): Parametrization of ternary nucleation rates for H₂SO₄-NH₃-H₂O vapors, *J. Geophys. Res.* 107, 4381, doi:10.1029/2002JD002132
- Pal S., Behrendt A., Radlach M., Schaberl T., Wulfmeyer V. (2006): Eyesafe scanning aerosol lidar at 355 nm. *International Laser Radar Conference*, Nara, Japan
- Pal, S., Behrendt A., Wulfmeyer V. (2007): Characterisation of atmospheric boundary layer structures and investigation of related statistics with an ultra-high-resolution elastic-backscatter lidar, *Bound. Lay. Meteorol.* (under review)
- Praml G.J., Zeitler-Feicht M.H., Hartmann A.L., Riedel H. (1990): Dust exposure of man and animal in swine confinement buildings: Benefits of full shift continuous registration. *J. Aerosol. Sci.* 21, 751-754
- Pruppacher H.R., and Klett J.I. (1978): *Microphysics of Clouds*. D. Riedel, 714 pp.
- Radlach M., Behrendt A., Pal S., Schaberl T., Wulfmeyer V. (2006): 3D Measurements of tropospheric temperature fields with a scanning rotational Raman lidar. *International Laser Radar Conference*, Nara, Japan
- Radlach M., Behrendt A., Wulfmeyer V. (2007): Scanning rotational Raman lidar at 355 nm for the measurement of tropospheric temperature fields. *Atmos. Chem. Phys.*, in press

- Robinson R.A., R.H. Stokes R.H. (1959): Electrolyte Solutions: The Measurement and Interpretation of Conductance, Chemical Potential and Diffusion in Solutions of Simple Electrolytes, London (Butterworth), 2. Aufl., 571 S.
- Rylander R., Donham K. J., Peterson Y. (eds.) (1986): Health effects of organic dust in the farm environment. In: *Proceedings of an International Workshop*, Skokloster, Sweden, April 23-25, 1985. *Am. J. Ind. Med.* 10, 193-340
- Schlünzen K.H., Hinneburg D., Knoth O., Lambrecht M., Leidl B., Lüpkes C., Pankus H., Renner E., Schatzmann M., Schoenemeyer T., Trepte S., Wolke R. (2003): Flow and transport in the obstacle layer – First results of the microscale model MITRAS. *J. Atmos. Chem.* 44, 113-130
- Sasano, Y., and H. Nakane (1984): Significance of the extinction / backscatter ratio and the boundary value term in the solution of the two-component lidar equation. *Appl. Opt.* 23, 11-13.
- Seedorf J., Hartung J., Schroder M., Linkert K.H., Phillips V.R., Holden M.R., Sneath R.W., Short J.L., White R.P., Pedersen S., Takai H., Johnsen J.O., Metz J.H.M., Koerkamp P.W.G.G., Uenk G.H., Wathes C.M., (1998): Concentrations and emissions of airborne endotoxins and microorganisms in livestock buildings in Northern Europe. *J. Agric. Eng. Res.* 70, 97-109
- Seedorf J. (2004): An emission inventory of livestock-related bioaerosols for Lower Saxony, Germany. *Atmos. Environ.* 38, 6565-6581
- Seinfeld J.H. (1986): Atmospheric chemistry and physics of air pollution, New York (Wiley), 738 S.
- Seinfeld J.H., Pandis S.N. (1998): Atmospheric chemistry and physics – from air pollution to climate change, Wiley, New York, 1320 S.
- Shettle E.P., Fenn R.W. (1979): Models for the aerosols of the lower atmosphere and the effects of humidity variations on their optical properties. Technical Report No. AFGLTR-79-0214, U.S. Air Force Geophysics Lab, Hanscom Air Force Base, USA
- Stelson A.W., Bassett M.E., Seinfeld J.H. (1984): Thermodynamic equilibrium properties of aqueous solutions of nitrate, sulfate and ammonium. In: Chemistry of particles, fog and rain (Durham J.L., Hrsg.), Boston (Butterworth), S. 1-52
- Stier P., Feichter J., Roeckner E., Kloster S., Esch M. (2006): The evolution of the global aerosol system in a transient climate simulation from 1860 to 2100. *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3059-3076
- Takai H., Pedersen S., Johnsen J.O., Metz J.H.M., Groot Koerkamp P.W.G., Uenk G.H., Phillips V.R., Holden M.R., Sneath R.W., Short J.L., White R.P., Hartung J., Seedorf J., Schröder M., Linkert K.H., Wathes C.M. (1998): Concentrations and emissions of airborne dust in livestock buildings in northern Europe. *J. Agric. Eng. Res.* 70, 59-77
- Valdebenito A.M., Pal S., Lammel G., Wulfmeyer V., Behrendt A., Müller F., Petrova A., Schaberl T., Feichter H. (2006): Close to source dynamics and evolution of aerosols emitted from a livestock farm, *Proceedings of the EC RTD-FP6 CoE ACCENT Symposium "The changing chemical climate of the atmosphere"*, Urbino, Italien, 12.-16.9.2005, 4 S.
- Vilà-Guerau de Arellano J., Duynkerke P.G. (1993): Second-order closure study of the covariance between chemical reactive species in the surface layer. *J. Atmos. Chem.* 16, 145-155
- Winkler P. (1988): The growth of atmospheric aerosol particles with relative humidity. *Physica Scripta* 37, 223-230

- Winklmayr W., Wang H.C., John W. (1990): Adaptation of the Twomey algorithm to the inversion of cascade impactor data. *Aerosol Sci. Technol.* 13, 322-331
- Wulfmeyer V., Behrendt A., Bauer H.S., Kottmeier C., Corsmeier U., Adrian G., Blyth A., Craig G., Schumann U., Hagen M., Crewell S., Di Girolamo P., Flamant C., Miller M., Mobbs S., Richard E., Rotach M., Arpagaus M., Russchenberg H., Schlusser P., Koenig M., Gartner M., Steinacker R., Dorninger M., Turner D.D., Weckwerth T., Hense A., and Simmer C. (2007): The convective and orographically-induced precipitation study: A research and development project of the World Weather Research Program for improving quantitative precipitation forecasting in low-mountain regions. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, submitted.
- Zavalyov V.V., Marchant C., Bingham G.E., Wilkerson T.D., Swasey J., Rogers C., Ahlstrom D., Timothy P. (2006): Retrieval of physical properties of particulate emission from animal feeding operations using three-wavelength elastic lidar measurements, in: Remote sensing of aerosol and chemical gases, model simulation/assimilation, and applications to air quality (Chu A., Szykman J., Kondragunta S., Hrsg.). *SPIE-The International Society for Optical Engineering* 62990S, 11 S.
- Zavalyov V. V., Bingham G. E., Wilkerson T. D., Swasey J., Marchant C., Rogers C., Martin R., Silva P., and Doshi V. (2006b): Characterization of particulate emission from animal feeding operations with three-wavelength lidar using simultaneous in-situ point measurements as calibration reference sources. *In: Workshop on Agricultural Air Quality*, June 5-8, 2006, Maryland, USA.
- Zufall M., Davidson C. (1998): Atmospheric particles, *IUPAC Series on Analytical and Physical Chemistry of Environmental Systems* Vol. 5, Chichester (Wiley), S. 425-473