
Entwicklung, Charakterisierung und Anwendung eines durchstimmbaren Lidartransmitters im ultravioletten Spektralbereich für die Vermessung von Ozon in der Tropopausenregion

Felix Steinebach



München 2012

Entwicklung, Charakterisierung und Anwendung eines durchstimmbaren Lidartransmitters im ultravioletten Spektralbereich für die Vermessung von Ozon in der Tropopausenregion

Felix Steinebach

Dissertation
an der Fakultät für Physik
der Ludwig-Maximilians-Universität
München

vorgelegt von
Felix Steinebach
aus Gießen

Eingereicht am 27. Februar 2012

Erstgutachter: Prof. Dr. Ulrich Schumann
Zweitgutachter: Prof. Dr. Eberhard Riedle
Tag der mündlichen Prüfung: 03. Juli 2012

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	xiii
1 Einleitung	1
2 Die Grundlagen des DIAL-Verfahrens	7
2.1 Das Messprinzip Lidar	7
2.2 Die Grundgleichungen für das DIAL-Verfahren	10
2.3 Mehrwellenlängen-H ₂ O-DIAL (WALES)	15
2.3.1 Transmittereinheit	16
2.3.2 Empfängereinheit	18
2.3.3 Validierung	18
3 Auswahl der Wellenlängen für Ozon im Tropopausenbereich	19
3.1 Simulation der Ozon-DIAL-Messung	20
3.2 Vergleich verschiedener Wellenlängenpaare	25
3.3 Solarer Hintergrund	29
3.4 Aerosolfehler	33
3.5 Marginale Fehlerquellen	36
3.6 Anforderungen an den Lasertransmitter	37
4 Entwicklung eines geeigneten Ozon-DIAL-Transmitters	39
4.1 Bisherige Ozon-DIAL-Transmitter	39
4.2 Optisch parametrische Verstärkung	42
4.3 Optisch parametrische Oszillation	47
4.3.1 Schwelle, Effizienz und Bandbreite	48
4.4 Auswahl des Konversionskonzeptes	49
4.5 Die OPO-Kristalle KTP und KTA	55
4.6 Der SFM-Kristall BBO	58
4.7 Charakterisierung der OPO-Pumpe	60
4.8 Auswahl einer geeigneten Resonatorgeometrie	62
4.9 Experimentelle Untersuchungen mit KTA als OPO-Kristall	64
4.9.1 Gewinkelter Resonator	64
4.9.2 Ringresonator	67
4.9.3 Transmissionsmessungen der OPO-Kristalle	69
4.9.4 Einfluss der Laserimpulsrepetitionsfrequenz	70
4.9.5 Ringresonator mit interner Kompensationslinse	72
4.10 Experimentelle Untersuchungen mit KTP als OPO-Kristall	74
4.11 Realisierung des flugzeugtauglichen Konverters	77
4.11.1 Optikkammer	78

4.11.2	Elektronikkammer	79
4.11.3	Charakterisierung des Frequenzkonverters	80
4.11.4	Wellenlängensteuerung und Langzeitstabilität	84
5	Beschreibung des Aufbaus zur Erprobung des Ozon-DIAL	87
5.1	Empfangeinheit	88
5.2	Aufbau in der Lidarkuppel	89
6	Erprobung und Validierung	95
6.1	Strategie der Validierung	95
6.2	Auswertung der Daten	97
6.3	Messzeiten und -ziele	97
6.3.1	Messung # 1 (18.04.2011)	99
6.3.2	Messung # 2 (20.04.2011)	103
6.3.3	Messung # 3 (04.05.2011)	104
6.3.4	Messung # 4 (29.06.2011)	106
7	Fehlerdiskussion	111
7.1	Systematische Fehler	111
7.1.1	Nichtlinearität der DIAL-Gleichung	111
7.1.2	Spektroskopische Datenbasis	111
7.1.3	Wellenlängengenauigkeit	112
7.1.4	Temperatureinfluss	113
7.1.5	Querempfindlichkeit	113
7.1.6	Einfluss von Aerosolen	114
7.2	Statistischer Fehler	117
8	Schlussfolgerungen und Ausblick	121
	Danksagung	135

Abbildungsverzeichnis

1.1	Schema der Austauschprozesse durch die Tropopause	2
1.2	Foto von HALO während der TECHNO-Kampagne	4
2.1	Schematische Darstellung eines Lidarsystems	7
2.2	Die gängigsten Lidartypen und ihre Anwendungsgebiete	8
2.3	Prinzip Differentielles Absorptions-Lidar	11
2.4	Prinzip des Drei-Wellenlängen-Dual-DIAL	14
2.5	H ₂ O-Absorptionsspektrum	16
2.6	Seitenansicht des WALES Systems	17
2.7	Foto von WALES integriert in HALO	17
3.1	Flussdiagramm der Ozon-DIAL-Simulation	20
3.2	Ozonkonzentrationsprofile für polare, mittlere und tropische Breiten	22
3.3	Absorptionsspektrum von O ₃ , SO ₂ und NO ₂	23
3.4	Einfache optische Dicke als Funktion der Höhe für unterschiedliche Wellenlängen	26
3.5	Simulierte statistische Fehler	28
3.6	Transmissionsspektren verschiedener Tageslichtfilter	30
3.7	Gefiltertetes und ungefiltertes solares Spektrum auf dem Photodetektor	31
3.8	Vergleich der statistischen Fehler bei Tag und Nacht	32
3.9	Aerosolbedingte systematische Abweichung unkorrigiert und korrigiert nach Klett	33
3.10	Mit Klettalgorithmus berechnetes Rückstreuverhältnis	34
3.11	Berechnung der Ozondichte mittels Dual-DIAL bei Anwesenheit von Aerosol.	35
3.12	Vergleich der statistischen Fehler zwischen dem DIAL- und dem Dual-DIAL-Verfahren	36
4.1	Darstellung des OPA im Photonenbild	45
4.2	Schematische Darstellung eines planparallelen SRO OPO	47
4.3	Transparenzbereich einiger optischer nichtlinearer Kristallmaterialien	50
4.4	Vergleich der Gütezahlen der beiden mit 532 nm gepumpten OPO-Prozesse	52
4.5	Transmissionsspektrum von KTA und KTP	55
4.6	OPO-Wellenlängen aufgetragen über den Phasenanpassungswinkel	56
4.7	Transmissionsspektrum von BBO	58
4.8	UV-Wellenlängen aufgetragen über den Phasenanpassungswinkel	59
4.9	Leistungs- und Effizienzkurve der Frequenzverdopplung	60
4.10	M ² -Messung der SHG-Pumpe	61
4.11	Strahlprofil der Pumpe vor dem OPO	62
4.12	Skizze linearer Resonator	63
4.13	Skizze linearer gewinkelter Resonator	63
4.14	Skizze Ringresonator	63
4.15	Schematische Darstellung des linear gewinkelten Resonators	65
4.16	M ² -Messung der OPO-Pumpe (532 nm) im Einzel- und Doppeldurchgang	66

4.17	Skizze einer „walk-off“-kompensierten Anordnung	67
4.18	KTA-Ringresonator mit zwei OPO-Kristallen und Pumpstrahlwiederverwertung	67
4.19	Strahlprofil der Pumpe hinter dem OPO	68
4.20	Gemessenes Transmissionspektrum von KTP und KTA	70
4.21	Einfluss der Repetitionsfrequenz auf die Effizienz des OPO-Prozesses	71
4.22	Maximal generierte UV-Leistung in Abhängigkeit von der Repetitionsfrequenz	71
4.23	Gegenüberstellung der Strahlradien der Signalstrahlung und der UV-Strahlung	72
4.24	Schematische Darstellung des KTA-Ring-OPO-Konzeptes mit zwei OPO-Kristallen und integrierter Kompensationslinse	73
4.25	Maximale UV-Impulsenergie als Funktion der UV-Wellenlänge für verschieden brennweitige Linsen und Auskoppelgrade	74
4.26	Effizienzen der nichtlinearen Prozesse für das Konzept mit der Kompensationslinse $f_{Komp} = -1000$ mm und maximaler Güte	74
4.27	Schematische Darstellung des Ringresonators mit zwei KTP-Kristallen und Auftrennen der OPO- und SFM-Pumpe vor dem OPO	75
4.28	Vergleich verschiedener KTP-OPO-Varianten	76
4.29	Ansicht der Optikkammer aus der Vogelperspektive	78
4.30	Schematische Darstellung der Strahlengänge des finalen OPO	79
4.31	Ansicht der Elektronikammer aus der Vogelperspektive	80
4.32	Ausgangsleistung des finalen OPO	81
4.33	Schwelle des finalen OPO	81
4.34	Effizienz des finalen OPO	81
4.35	Konversionseffizienz des finalen OPO	81
4.36	Mischpumpabbau des finalen OPO	82
4.37	Effizienzen des finalen OPO	82
4.38	Strahlprofil im Fernfeld der 305-nm-Strahlung	83
4.39	M^2 -Messung der 305-nm-Strahlung	83
4.40	Strahlprofil im Fernfeld der 315-nm-Strahlung	83
4.41	M^2 -Messung der 315-nm-Strahlung	83
4.42	Intensitätsspektrum der Signalstrahlung bei 718,9 nm	84
4.43	Intensitätsspektrum der Signalstrahlung bei 770,5 nm	84
4.44	Darstellung des Spektrometers	85
4.45	Langzeitstabilität der Zentralwellenlängen	85
5.1	Schematische Darstellung des Strahlengangs innerhalb der TropOlex-Detektorbox	88
5.2	Reflexionskurven des Filtersystems in logarithmischer Darstellung	88
5.3	Reflexionskurven des Filtersystems in linearer Darstellung	88
5.4	Schematische Darstellung des Strahlengangs in der TropOlex-Empfangseinheit	89
5.5	Monostatische koaxiale Anordnung	90
5.6	Monostatische biaxiale Anordnung	90
5.7	Rückseite des Instituts für Physik der Atmosphäre	91
5.8	Lidarkuppel auf dem Dach des Instituts	91
5.9	Vorderansicht des Ozonlidars	91
5.10	Seitenansicht des Ozonlidars	91
6.1	Rückstreusignale der DIAL-Strahlungen (18.04.2011)	100
6.2	Zweidimensionales Ozonmischungsverhältnis (18.04.2011)	101
6.3	Vergleich der gemessenen Anzahldichte der drei Messinstrumente (18.04.2011)	101
6.4	Abweichung des WALES UV DIAL zu Vergleichsinstrumenten (18.04.2011)	101
6.5	Tropopausenhöhe, bestimmt mit 2-PVU-Schwellenwert (18.04.2011)	102

6.6	Tropopausenhöhe, bestimmt mit 2-PVU-Schwellenwert (18.04.2011)	102
6.7	Satellitenbild, IR-Kanal (18.04.2011)	102
6.8	Satellitenbild, IR-Kanal (18.04.2011)	102
6.9	Zweidimensionales Ozonmischungsverhältnis (20.04.2011)	103
6.10	Vergleich der gemessenen Anzahldichte der drei Messinstrumente (20.04.2011)	104
6.11	Abweichung des WALES UV DIAL zu den Vergleichsinstrumenten (20.04.2011)	104
6.12	Zweidimensionales Ozonmischungsverhältnis (04.05.2011)	105
6.13	Darstellung der Ozonprofile verschiedener Zeiten (04.05.2011)	105
6.14	Tropopausenhöhe bestimmt mit 2-PVU-Schwellwert (04.05.2011)	106
6.15	Tropopausenhöhe bestimmt mit 2-PVU-Schwellwert (04.05.2011)	106
6.16	Satellitenbild, IR-Kanal (04.05.2011)	106
6.17	Satellitenbild, IR-Kanal (04.05.2011)	106
6.18	Verteilung des Wüstenstaubs über Europa (29.06.2011)	107
6.19	Zweidimensionales Ozonmischungsverhältnis (29.06.2011)	108
6.20	Vergleich der gemessenen Anzahldichte der Messinstrumente (29.06.2011)	109
6.21	Abweichung des WALES-UV-DIAL- und des WALES-UV-Dual-DIAL-Ozonprofils zu dem Profil der Ozonsonde (29.06.2011)	109
7.1	Klettkorrektur (20.04.2011)	115
7.2	Ozon-DIAL-Messung mit fünf Wellenlängen (06.05.2011)	117
7.3	Erwartete und tatsächliche statistische Fehlerprofile der Messungen vom 18. und 20.04.2011.	118
7.4	Erwartete und tatsächliche statistische Fehlerprofile der Messungen vom 29.06.2011.	119
8.1	Mischungsverhältnis komplementärer Tracer (O_3 und H_2O)	123
8.2	Darstellung der Mischungsverhältnisse im Tracer-Tracer-Raum	123

Tabellenverzeichnis

3.1	Grenzanforderungen an die Ozonmessung in der UTLS	19
3.2	Übersicht über die wichtigsten Simulations- bzw. Systemparameter	21
3.3	Gegenüberstellung der möglichen Tageslichtfilter	31
4.1	Zusammenstellung häufig verwendeter Ozon-DIAL-Transmittersysteme	40
4.2	Potentielle nichtlineare Prozesse zur Generierung der Ozon-DIAL-Wellenlängen . . .	51
4.3	Kristallparameter der möglichen Kristalle des OPO-Prozesses	53
4.4	Kristallparameter der möglichen Kristalle für den Mischprozess	54
4.5	Gegenüberstellung des theoretischen Durchstimmbereiches mit KTP und KTA . . .	56
4.6	Akzeptanzbandbreiten von KTA und KTP	57
4.7	Akzeptanzbandbreiten von BBO	59
4.8	Beschichtungen der Resonatorspiegel	63
4.9	Zusammenfassung der Ergebnisse der KTA-basierten OPO-Konfigurationen	69
4.10	Brennweite der thermischen Linse	72
4.11	Strahldivergenz der generierten UV-Strahlung	84
5.1	Wichtigste Transmitterparameter des Ozon-DIAL	92
5.2	Wichtigste Empfangsparameter des Ozon-DIAL	93
6.1	Ozon-DIAL-Messzeiten	98
6.2	Zusammenstellung der synoptischen Situation, Messziele und Ergebnisse	98
6.3	Messwellenlängen und entsprechende Ozon-Absorptionsquerschnitte der einzelnen Messungen	99
7.1	Abschätzung der Querempfindlichkeit zu SO ₂ und NO ₂	114
7.2	Zusammenfassung der maximalen systematischen Fehler	114
7.3	Vergleich zwischen den theoretischen und experimentellen statistischen Fehlern . . .	120

Kurzfassung

Eine wichtige Frage in der aktuellen Wetter- und Klimaforschung ist die quantitative Erfassung des Luftmassenaustauschs durch die Tropopause. Dabei hat insbesondere der Fluss an Ozon und Wasserdampf durch die Tropopause einen großen Einfluss auf die Chemie und die Strahlungsbilanz der Atmosphäre und spielt damit eine wichtige Rolle für das Verständnis und die Vorhersage des globalen Klimawandels. Mit modernen meteorologischen Messinstrumenten sind die Beobachtungsfehler allerdings teilweise noch vergleichsweise groß und manche Größen lassen sich nur indirekt bestimmen. Es besteht daher großer Bedarf an zusätzlichen und genaueren Beobachtungsmethoden, mit möglichst hoher räumlicher und zeitlicher Auflösung und hoher Genauigkeit.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde das Messinstrument AMALFI (**A**malgamated **L**idars for the Measurement of Trace Gas **F**luxes in the Atmosphere), zur Tracer-basierten Vermessung von Austauschprozessen durch die Tropopause, fertiggestellt. Es wurde ein leistungsstarkes Ozonlidar entwickelt, das die Möglichkeiten des am DLR bestehenden Wasserdampflidar WALES (**W**Ater Vapor **L**idar **E**xperiment in **S**pace) dahingehend erweitert, dass Ozon und Wasserdampf gleichzeitig mit einem Instrument gemessen werden können. Dazu wurde ein OPO-basierter Frequenzkonverter entwickelt, welcher aus dem Licht der Wellenlänge 1064 nm die erforderlichen UV-Wellenlängen durchstimbar im Bereich um 305 nm mit einer mittleren Ausgangsleistung von über 1 Watt erzeugt. Dabei lag aufgrund der limitierten Zerstörschwellen der Optiken die größte Herausforderung in der Steigerung der mittleren Ausgangsleistung um eine Größenordnung im Vergleich zum bereits am DLR bestehenden Ozonlidar-Transmitter. Der hier entwickelte flugzeugtaugliche Konverter ist optisch sowie mechanisch und elektrisch mit den 100-Hz Nd:YAG-Pumpmodulen von WALES kompatibel, sodass eine unkomplizierte und schnelle Modifikation von dem Vier-Wasserdampf-Wellenlängen-Lidar WALES auf das Zwei-Wasserdampf- und Zwei-Ozon-Wellenlängen-Lidar ermöglicht wird. Mit AMALFI besteht weltweit erstmals die Möglichkeit, mittels aktiver Fernerkundung gleichzeitig Ozon und Wasserdampf in der Tropopausenregion von dem Flugzeug HALO aus zu vermessen.

Aufgrund der mit HALO verbundenen Terminverzögerungen konnten keine gemeinsamen Ozon- und Wasserdampf-Messungen vorgenommen werden. Alternativ wurde der entwickelte Ozon-Lidar-Transmitter vom Boden aus getestet und mit zwei unterschiedlichen Ozonmessverfahren des DWD-Observatoriums vom Hohenpeißenberg validiert. Im Rahmen der Messgenauigkeiten konnte eine Übereinstimmung der drei Instrumente nachgewiesen werden. Weiter kann aus der Übereinstimmung zwischen den experimentellen Messungen und den numerischen Simulationen gefolgert werden, dass mit dem Ozonlidar im Flugzeugbetrieb die gestellten Anforderungen zur Vermessung von Ozon im Tropopausenbereich in Bezug auf Auflösung und Genauigkeit tatsächlich erfüllt werden. Damit konnte dessen Eignung im Rahmen der gegebenen Möglichkeiten bewiesen werden.

Mit dem hier komplettierten System AMALFI können künftig unter der Verwendung von Wasserdampf und Ozon als sogenannte Tracer gezielt Stratosphären-Troposphären-Austauschprozesse¹ analysiert werden. Somit steht mit AMALFI in der STE-Forschung ein neuartiges Messinstrument mit einer noch nie dagewesenen Messabdeckung von der regionalen bis zur kontinentalen Skala mit der dafür notwendigen hohen räumlichen Auflösung und Genauigkeit zur Verfügung.

¹eng.: stratosphere-troposphere-exchange, kurz: STE

Kapitel 1

Einleitung

Schon in den dreißiger Jahren des 20. Jahrhunderts wurde dem Licht ein großes Potential in der Fernerkundung atmosphärischer Parameter zugeschrieben. So wurden erste Anstrengungen unternommen, Luftdichteprofile der oberen Atmosphäre zu vermessen (Synge, 1930), (Tuve et al., 1935), (Hulburt, 1937), (Johnson et al., 1939). Zunächst konnten Höheninformationen nur durch Triangulation erhalten werden. Dies änderte sich jedoch grundlegend durch die Entwicklung von Lichtpulsen. Mit diesen können über Laufzeitmessungen höhenaufgelöste Parameterprofile gewonnen werden, ohne dass Transmitter und Detektor örtlich voneinander getrennt sein müssen. Für ein solches System wurde von Middleton und Spilhaus (1953) erstmals das Acronym Lidar (eng.: **L**ight **d**etection **a**nd **r**anging) verwendet. Aber erst mit der Erfindung des Lasers durch Maiman (1960) und von Riesenimpuls- oder gütegeschalteten Lasern (McClung und Hellwarth, 1962) hat sich die Lidartechnik zu einem dynamischen Forschungsgebiet entwickelt, und binnen einer Dekade existierten bereits alle wesentlichen Lidarprinzipien, die heute noch verwendet werden.

Zur erfolgreichen Ermittlung atmosphärischer Parameter werden in Lidarsystemen hohe Anforderungen an die Laserstrahlquellen in Bezug auf Strahlparameter wie Leistung, Wellenlänge, Schmalbandigkeit, Repetitionsfrequenz, Impulsdauer und Divergenz gestellt. Je nach zu messendem atmosphärischen Parameter und der damit verbundenen Lidarmethode liegt die Priorität auf unterschiedlichen Strahlparametern, sodass die verwendete Strahlenquelle dementsprechend optimiert sein sollte. Jedoch sind kommerziell verfügbare Lasersysteme für diese spezielle Anwendungen nicht notwendigerweise ausgelegt und können diese Anforderungen in der Regel nicht erfüllen. Daher ist die Weiterentwicklung bestehender und die Entwicklung neuer Strahlenquellen für die Lidartechnik von elementarer Wichtigkeit. So basiert beispielsweise die im Rahmen dieser Arbeit verwendete DIAL (eng.: **D**ifferential **A**bsorption **L**idar)-Methode zur Vermessung der Ozondichte auf der Wahl geeigneter, von kommerziell verfügbaren Lasern nicht abgedeckten, ultravioletten (UV) Wellenlängen mit hoher Impulsenergie. Durch die Umwandlung der Wellenlängen des Lichtes bestehender Lasersysteme durch sogenannte Frequenzkonverter können die für die DIAL-Methode notwendigen UV-Wellenlängen erzeugt werden. Das hier geeignete und verwendete Konversionsprinzip ist die OPO (**o**ptisch **p**arametrische **O**szillation), welche beispielsweise von Fix et al. (2002) schon erfolgreich in einem Ozonlidarsystem verwendet wurde.

Analog zu diesem Beispiel haben sich die Systeme der verschiedenen Lidarmethoden im Laufe der Zeit weiterentwickelt, sodass sich heutzutage mit dem Lidar diverse atmosphärische Parameter wie beispielsweise Wind, Temperatur, Druck, wichtige Klima- bzw. Treibhausgase, Aerosole etc. sowohl vom Boden als auch vom Flugzeug und in Zukunft auch vom Satelliten aus mit hoher Genauigkeit und hoher Auflösung vermessen lassen. Insbesondere ermöglichen flugzeuggestützte Lidarmessungen hochgenaue zweidimensionale Beobachtungen auf der Skala von ganzen Kontinenten. Gemeinsam mit Wetter- und Klimamodellen können so hochinteressante und mit alternativen Messmethoden schwer zugängliche Wetterereignisse genauestens analysiert werden. Obwohl sich das Messprinzip

eines bodengestützten zunächst nicht von dem eines flugzeuggetragenen Lidarsystems unterscheidet, verlangen die praktischen Realisierungen im Flugzeug wesentlich mehr Erfahrung und Entwicklungsaufwand als die bodengestützte Variante. Zum Beispiel müssen Flugzeuginbauten selbst bei einer hohen Beschleunigungskraft noch intakt bleiben, um den Anforderungen bezüglich der Flugzeugzulassungen zu genügen. Vorallem aber liegt die Schwierigkeit flugzeuggetragener Lidarsysteme darin, bei kleinen mechanischen Abmessungen bzw. geringem Gesamtgewicht hohe Laserleistungen erzeugen zu können. Die Entwicklung hin zu leistungsstärkeren, effizienteren, kompakteren, leichteren, robusteren, zuverlässigeren, kostengünstigeren und weniger wartungsintensiven Systemen ist daher für Flugzeuganwendungen besonders wichtig.

Atmosphärische Prozessanalysen werden umso aussagekräftiger, je größer die Anzahl an betrachteten empfindlichen Parametern ist. Mit den meisten flugzeuggetragenen Lidarsystemen kann jedoch in der Regel nur ein einziger Parameter beobachtet werden. Daher bietet es sich an, unterschiedliche Lidarsysteme sinnvoll in einem Forschungsflugzeug zu vereinen. Beispielsweise ermöglichte die Fusion eines Wind- und Wasserdampflidars die Vermessung von Wasserdampftransport (Schäfler et al., 2010) oder latenten Wärmeflüssen (Kiemle et al., 2007). Auch die Kombination zweier Spurenstofflidars kann die Analyse von Austauschprozessen zwischen verschiedenen Teilbereichen der Atmosphäre verbessern. Die Kenntnis über solche Austauschprozesse und die sie steuernden Prozesse ist von zentraler Bedeutung sowohl für die Wettervorhersage als auch für die Bewertung des gegenwärtigen Klimazustandes und dessen künftiger Entwicklung. So ist eines der am häufigsten diskutierten und bis heute nicht völlig geklärten Probleme die Größe der Luftmassen- und insbesondere Ozon- und Wasserdampf Flüsse durch die Tropopause. Dabei übt dieser Fluss einen großen Einfluss auf die Chemie und die Strahlungsbilanz der Atmosphäre aus und spielt damit eine wichtige Rolle für das Verständnis und die Vorhersage des globalen Klimawandels (Holton et al., 1995; IPCC, 2007). Der mit dem Wasserdampftransport gekoppelte Energietransport ist darüber hinaus auch eine entscheidende Größe für die Vorhersage von extremen Wetterereignissen. Eine quantitative und schlüssige Erklärung der Wechselwirkung zwischen „Dynamik, globaler Zirkulation, Chemie, Strahlung und Mikrophysik“ (Wetter, 2002) im Tropopausenbereich steht noch aus.

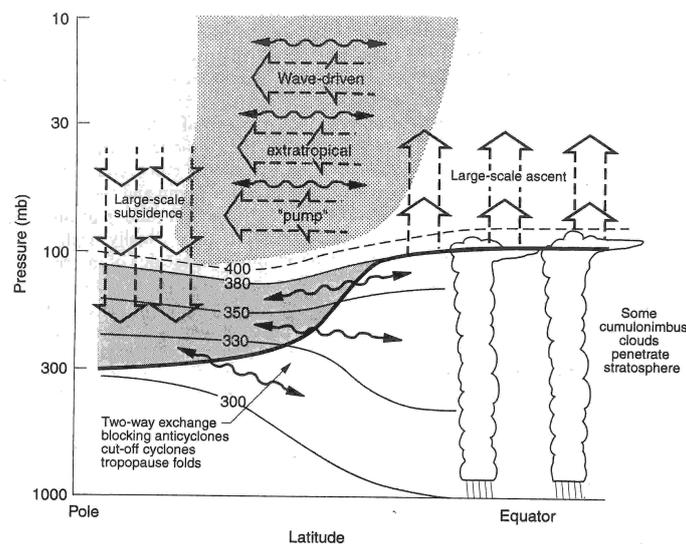


Abbildung 1.1: Schematische Darstellung der Austauschprozesse durch die Tropopause nach Holton et al. (1995). Die Skizze gilt sowohl für die nördliche- als auch die südliche Welthälfte.

Masseflüsse durch die Tropopause spielen sich in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre (eng.: **upper troposphere lower stratosphere**, kurz: UTLS) zwischen 8-25 km ab und können unterschiedliche Ursachen haben (Holton et al., 1995). Für einen globalen Austausch zwischen Tro-

posphäre und Stratosphäre sorgt die Brewer-Dobson-Zirkulation. Dabei kann troposphärische Luft in den Tropen durch starke Konvektion so weit angehoben werden, dass sie in die Stratosphäre eindringt. Wie in Abb. 1.1 dargestellt, wird die Luft dabei meridional polwärts transportiert, die dann durch diabatisches Absinken in den mittleren und hohen Breiten wieder in die Troposphäre gelangt. In den mittleren und hohen Breiten durchquert die Tropopause Flächen gleicher Temperatur bzw. Isentropen. Dadurch wird ein quasi-horizontaler adiabatischer Transport in beide Richtungen (Ping, 1995) entlang den Isentropen ermöglicht, welcher sich in synoptisch- und mesoskaligen Bereichen abspielt. Nicht nur in den Tropen, sondern auch in den mittleren Breiten ist ein diabatisches Aufsteigen über die Tropopause hinweg möglich. Starke Gewitter, wie sie häufig im Sommer über den Kontinenten auftreten, können Luft aus der bodennahen Grenzschicht innerhalb weniger Stunden in die unterste Stratosphäre transportieren. Obwohl bei diesen Prozessen relativ wenig Luft ausgetauscht wird, haben die troposphärischen Einträge antropogen verschmutzter bodennaher Luft einen großen Einfluss auf die Chemie der untersten Stratosphäre.

Die maximale vertikale Auflösung gängiger Klimamodelle beträgt 1 km, sodass die Tropopause-region noch nicht exakt wiedergegeben werden kann (Wetter, 2002). Nur durch hochauflösende Tracer-Messungen können Modellabweichungen herausdestilliert und quantifiziert werden. Somit können die Modelle validiert und weiterentwickelt werden.

Generell weisen Satellitenmessungen wegen ihrer globalen Abdeckung Vorteile bei der Untersuchung der Mischungsprozesse in der UTLS auf. Jedoch können mit Sensoren, die in Limb- oder Nadirrichtung schauen, die Variabilitäten in der Tropopause-region auf synoptischen Skalen nicht aufgelöst werden. Gerade bei der Berechnung der starken vertikalen Gradienten stoßen die meisten Chemie-Transport-Modelle (kurz: CTM) an ihre Grenzen (Law et al., 2000). Durch hochauflösende In-situ-Messungen können die chemischen Verteilungen in Stratosphäre und Troposphäre ermittelt und kleinskalige Austauschprozesse analysiert werden. Dafür werden entweder die Massenbilanzen einzelner Tracer oder Tracer-Tracer-Korrelationen über Transportwege hinweg betrachtet oder der Austausch und die Mischung dieser Tracer in der Tropopause-region analysiert.

Tracer sind Spurenstoffe, deren Lebenszeit größer ist als die Transportzeit zwischen zwei Regionen. Sind zudem die Quellen und Senken und damit die Mischungsverhältnisse des Spurenstoffs in beiden Regionen bekannt, so „markiert“ das Mischungsverhältnis die Ursprungsregion der Luft (Wetter, 2002). Die Troposphäre und die Stratosphäre weisen ausgeprägte Unterschiede in den Verteilungen verschiedener Spurengase auf. So finden sich beispielsweise hohe Mischungsverhältnisse von NO_2 , H_2O und CO in der Troposphäre und hohe O_3 - und NO_y -Mischungsverhältnisse in der Stratosphäre.

Die häufigste verwendete Kombination komplementärer Tracer zur Vermessung von Austauschprozessen durch die Tropopause ist O_3 und CO (Fischer et al., 2000), (Zahn und Brenninkmeijer, 2003), (Hoor et al., 2002), (Hoor et al., 2004), (Pan et al., 2004), (Pan et al., 2006), da beide Tracer einen starken vertikalen Gradienten entlang der extratropischen Tropopause besitzen und ihre chemische Lebensdauer die Transportzeiten übersteigt. H_2O ist kein idealer langlebiger Tracer, da er nicht erhalten bleibt, wenn die Temperatur der Luftpakete in den Bereich des Phasenübergangs kommt. In vielen Studien hat sich H_2O jedoch aufgrund des starken vertikalen Gradienten entlang der extratropischen Tropopause dennoch als geeignet erwiesen (Dessler et al., 1995), (Pan et al., 1997), (Hintsä et al., 1998), (Ray et al., 1999). Die Kombination aus O_3 und H_2O hat sich sogar als sehr effektiv beim Identifizieren von Mischungen stratosphärischer und troposphärischer Luft in der Nähe der Tropopause behauptet (Patmore und Toumi, 2006), (Karpechko et al., 2007), (Pan et al., 2007).

Hochaufgelöste Tracer-Messungen wurden bisher sehr erfolgreich mittels flugzeuggetragener In-situ-Instrumente durchgeführt. Jedoch sind damit nur eindimensionale Messungen möglich, was dazu führt, dass sehr aufwändige Flugmuster geflogen werden müssen. Außerdem ist der Messbereich aufgrund der Gipfelhöhe des jeweiligen Forschungsflugzeugs begrenzt. Sondenaufstiege oder

bodengestützte Lidarsysteme (Papayannis et al., 2005), (Eisele et al., 1999), (Trickl et al., 2010) verfügen für die Vermessung von STE-Prozessen zwar über ausreichend Auflösung, aber nicht über eine ausreichende Abdeckung der interessanten Gebiete, da sie nur punktförmige Beobachtungen vornehmen können. Dahingegen eignen sich flugzeuggetragene Lidarsysteme zur hochaufgelösten zweidimensionalen Vermessung von Ozon und Wasserdampf. Eine gleichzeitige flugzeuggestützte Messung beider Spurenstoffe ist jedoch bisher experimentell noch nicht realisiert worden.



Abbildung 1.2: Bild des neuen Forschungsflugzeugs HALO während der TECHNO-Kampagne. Mit den eingezeichneten Laserstrahlen sollen die zukünftig geplanten simultanen Ozon (blau)- und Wasserdampf (rot)-Lidarmessungen angedeutet werden.

Die u. a. am DLR (IPA) eingesetzten und weiterentwickelten Lidarmethoden eignen sich hervorragend zur Messung von Ozon- und Wasserdampfprofilen. Aufgabe der vorliegenden Arbeit war die Realisierung des kombinierten Lidarsystems AMALFI (**A**malgamated **L**idars for the Measurement of Trace Gas **F**luxes in the Atmosphere) zur Messung von Austauschprozessen in der Tropopausenregion vom Flugzeug aus. Die Kombination aus den beiden Lidarsystemen bietet erstmals die Möglichkeit, mit aktiven Fernerkundungsmethoden die kleinskaligen Austauschprozesse im Bereich der Tropopause darzustellen.

Das Messsystem AMALFI ist für das neue Forschungsflugzeug HALO (**H**igh **A**ltitude and **L**ong Range Research) vorgesehen. Aufgrund der einzigartigen Möglichkeiten, mit einer Flughöhe von mehr als 15 Kilometern und einer Reichweite von mehr als 8000 Kilometern, erlaubt HALO Messungen von der regionalen bis zur kontinentalen Skala, auf allen Breiten von den Tropen bis zu den Polen sowie in Höhen bis zur unteren Stratosphäre. Für die Realisierung von AMALFI ist ein H₂O-DIAL notwendig, das in der Lage ist Wasserdampf in der UTLS zu vermessen. Zusätzlich wird zur Vermessung des zu H₂O komplementären Tracers ein O₃-DIAL benötigt. Außerdem müssen beide Lidarsysteme so kompakt sein, dass sie sich auf HALO vereinen lassen.

In den vergangenen Jahren wurden am IPA eine der beiden wesentlichen Komponenten für AMALFI entwickelt: Es steht seit kurzem ein weltweit einzigartiges Mehrwellenlängen-Differenzial-Absorptions-Lidar (WALES) im Spektralbereich um 935 nm für die Messung von Wasserdampf zur Verfügung (Wirth et al., 2009). In diesem Wellenlängenbereich sind Wasserdampfabsorptionslinien vorhanden, die es ermöglichen, Wasserdampfprofile von der unteren Stratosphäre bis zur Grenzschicht mit hoher vertikaler Auflösung zu bestimmen.

Ergänzend wurde daher im Rahmen dieser Doktorarbeit ein Ozon-DIAL im ultravioletten Spektralbereich zur Vermessung der Ozonkonzentration im Tropopausenbereich entwickelt. Die Fest-

legung der notwendigen Laserstrahlparameter, wie z. B. die benötigten DIAL-Wellenlängen und benötigte Ausgangsleistung des UV-Transmitters, erfolgte mittels numerischer Simulation. Basierend auf diesen Voruntersuchungen wurde die UV-Strahlung anschließend mittels OPO aus dem Licht eines Nd:YAG-Lasers erzeugt. Dazu wurden unterschiedliche OPO-Varianten experimentell untersucht, die geeignetste ausgewählt und in einem flugzeugtauglichen, mit dem WALES-System kompatiblen Gehäuse realisiert. Die Eignung des flugzeugtauglichen OPO als Lasertransmitter in einem DIAL wurde im Anschluss durch bodengebundene Ozonmessungen erfolgreich verifiziert.

Die vorliegende Arbeit gliedert sich in 8 Kapitel.

Kapitel 2

Im Anschluss an diese Einleitung erfolgt eine allgemeine theoretische Einführung in die Methodik der Spurengassondierung mittels Lidar, die auf der Differentiellen Absorption (DIAL) basiert. Diese Einführung legt die Grundlage für die später beschriebene numerische Simulation. Am Ende des Kapitels wird das bereits existierende Mehrwellenlänge-Differential-Absorptions-Lidar (WALES) beschrieben, welches eine der beiden wesentlichen Komponenten von AMALFI darstellt.

Kapitel 3

Die Auswahl der für das Ozonlidar benötigten ultravioletten Laserwellenlängen wird mit Hilfe eines speziell für diese Anwendung entwickelten „end-to-end“-Simulators getroffen. Entscheidend für die Wahl der Wellenlängen ist die resultierende Messgenauigkeit, welche mit der numerischen Simulation abgeschätzt und in diesem Kapitel diskutiert wird. Hier werden die wesentlichen Eigenschaften eines idealen Lasertransmitters für die Ozonsondierung im Tropopausenbereich ermittelt.

Kapitel 4

Basierend auf den Simulationsergebnissen wurde im Rahmen dieser Arbeit eine UV-Strahlenquelle entwickelt, die die notwendigen Eigenschaften erfüllt. Voraussetzung für das Verständnis dieses Systems sind die theoretischen Grundlagen der nichtlinearen Optik, mit welchen das Prinzip der OPO und damit das Hauptelement des Transmitters erklärt werden können. Nach einem Überblick über den aktuellen Stand alternativer Lasertransmitter werden die Grundlagen und anschließend der Frequenzkonverter beschrieben und charakterisiert.

Kapitel 5

Aus dem entwickelten UV-Lasertransmitter und einer geeigneten, bereits existierenden Empfangseinheit wurde ein Ozon-DIAL-System kombiniert. Die gesamte Messeinheit wird in diesem Kapitel vorgestellt und charakterisiert.

Kapitel 6

Die Präsentation der Erprobung und der Validierung mittels unabhängiger Instrumente des im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Ozon-DIAL-Systems erfolgt in diesem Kapitel.

Kapitel 7

Eine vollständige Diskussion aller systematischen und statistischen Fehler der durchgeführten DIAL-Messungen findet sich in diesem Kapitel.

Kapitel 8

Die Arbeit schließt mit einer Zusammenfassung und einer kritischer Betrachtung der im Rahmen dieser Arbeit erreichten Ziele und erlangten Erkenntnisse. Auf dieser Grundlage werden Anregungen für zukünftige Weiterentwicklungen und Messungen gegeben.

Kapitel 2

Die Grundlagen des DIAL-Verfahrens

Grundlegend für die aktive optische Fernerkundung ist die Ausbreitung von Licht in der Atmosphäre. Daraus lässt sich die Lidargleichung ableiten, mit welcher die Analyse atmosphärischer Parameter erst ermöglicht wird. Für die Vermessung von Spurenstoffdichten wird das Differenzial-Absorptionslidar (DIAL) verwendet. In diesem Kapitel werden die Grundlagen für das Verständnis dieses Messprinzips erläutert. Beispielhaft für ein DIAL-System wird am Ende dieses Kapitels das Wasserdampf-DIAL WALES beschrieben, welches eine der beiden wesentlichen Komponenten von AMALFI darstellt.

2.1 Das Messprinzip Lidar

Ein Lidar ist ein dem Radar verwandtes Messinstrument, welches zur Fernerkundung verschiedenster atmosphärischer Parameter eingesetzt wird. Es besteht aus einer Sende- und einer Empfängereinheit (siehe Abb. 2.1). Für die Bestimmung unterschiedlicher atmosphärischer Parameter kommen ver-

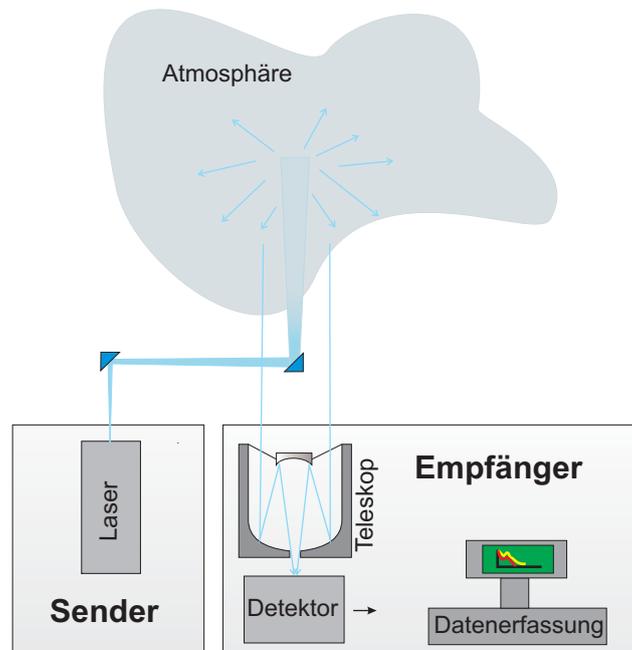


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung eines Lidarsystems. In der Transmittereinheit werden die gepulsten Messstrahlen mit den für die Messung notwendigen charakteristischen Eigenschaften erzeugt und in die Atmosphäre ausgesandt. Die Detektoreinheit empfängt und analysiert die zurückgestreute Strahlung.

schiedene Lidarverfahren zum Einsatz. In Abb. 2.2 sind die verschiedenen Lidartypen mit ihren Anwendungsgebieten dargestellt. Das elastische Rückstreu-Lidar basiert auf Rayleigh- und Mie-Rückstreuung an atmosphärischen Molekülen und Partikeln. Bei diesen elastischen Streuprozessen bleibt die Photonenenergie und somit die Wellenlänge eines gestreuten Photons unverändert. Aus den abstandsabhängigen zurückgestreuten Intensitäten können mit diesem Lidartyp Wolken und Aerosole detektiert werden.

Das Prinzip des Doppler-Lidar basiert ebenfalls auf Rayleigh- und Mie-Streuung in der Atmosphäre. Die Photonen erfahren beim Streuprozess durch die Geschwindigkeitskomponente der Streuteilchen in Strahlrichtung eine Wellenlängenverschiebung. Diese sogenannte Dopplerverschiebung kann in der Detektionseinheit nachgewiesen und in eine abstandsabhängige Windgeschwindigkeit umgerechnet werden. Im Gegensatz zu den auf elastischer Streuung basierenden Lidartypen basiert

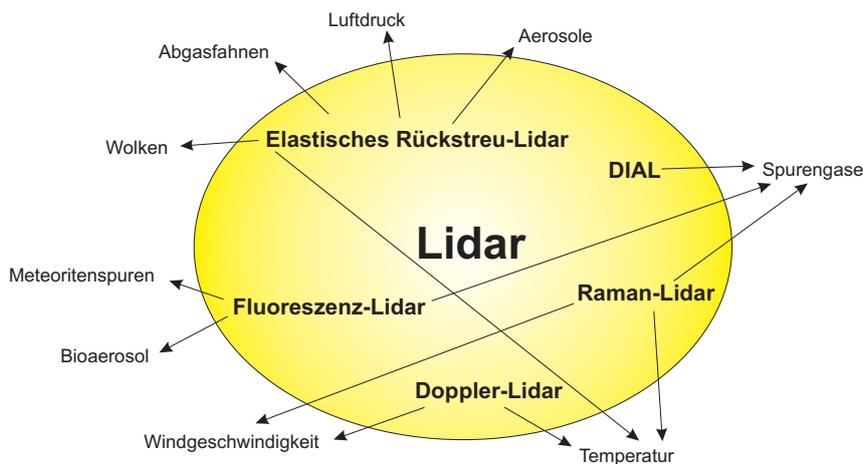


Abbildung 2.2: Die gängigsten Lidartypen und ihre Anwendungsgebiete.

das Raman-Lidar auf inelastischer Streuung. Dabei ändert sich die Rotations- und Schwingungsenergie des beteiligten Moleküls. Befindet sich das Molekül nach dem Streuvorgang auf einem höheren Energieniveau als zuvor, so ist die Energie und damit die Frequenz des emittierten Photons geringer als die des anregenden Photons. Dieser Vorgang wird als Stokes-Raman-Streuung bezeichnet. Befindet sich das streuende Molekül nach dem Anregungsvorgang auf einem niedrigeren Energieniveau als zuvor, so besitzt das gestreute Photon eine höhere Energie und damit eine höhere Frequenz als das anregende Photon. Dies wird als Anti-Stokes-Raman-Streuung bezeichnet. Die Energiedifferenz zwischen eingestrahlttem und gestreutem Photon wird als Raman-Frequenzverschiebung bezeichnet und ist charakteristisch für das streuende Molekül. Mit diesem Lidartyp können Spurenstoffkonzentrationen von z. B. Wasserdampf oder Ozon gemessen werden. Die spektrale Verteilung der Raman-Frequenzverschiebung ist zudem noch abhängig von der Umgebungstemperatur. Mit Hilfe von spektralen Filtern kann die spektrale Verteilung der empfangenen Strahlung ermittelt und daraus die Temperatur am Streuort berechnet werden.

Das Fluoreszenz-Lidar basiert auf der Resonanzabsorption von Molekülen. Dabei wird ein Molekül durch resonante Absorption eines Laserstrahls in einen angeregten Zustand versetzt. Aus diesem angeregten Zustand kann das Molekül durch spontane Emission in einen Zustand niedrigerer Energie übergehen. Dabei wird ein Photon mit einer Energie emittiert, die der Energiedifferenz der beiden Zustände entspricht. Die Wellenlänge des emittierten, sogenannten Fluoreszenzlichtes ist stoffspezifisch und kann detektiert werden. Anwendung findet ein solches Lidar bei der Messung von Metallschichten in der obersten Atmosphäre. Die Metalle, wie zum Beispiel Na, K, Ca, Li und Fe, befinden sich aufgrund der verdampfenden Meteoriten in der Stratosphäre.

Zur Bestimmung der zu messenden Parameter wird ein mathematisches Modell benötigt, welches die zurückgestreute und am Detektor empfangene Leistung berechnet. Die Lidargleichung für

elastische Signale berechnet sich (siehe z.B. Weitkamp (2005)) zu

$$P(\lambda, r) = K \cdot O(r) \cdot P_0 \cdot A \cdot \beta(\lambda, r) \cdot \frac{1}{r^2} \cdot \frac{c \cdot t_{\text{Impuls}}}{2} \cdot \exp(-2\tau(\lambda, r)) \quad . \quad (2.1)$$

Hierbei ist:

$$\begin{aligned} P(\lambda, r) &: \text{elektrische Empfangsleistung [W]} \\ K &: \text{Systemkonstante} \\ O(r) &: \text{Überlappfunktion} \\ P_0 &: \text{optische Ausgangsleistung des Lasers [W]} \\ A &: \text{effektive Teleskopfläche [m}^2\text{]} \\ \beta(\lambda, r) &: \text{Totaler Rückstreuoeffizient [1/m/sr]} \\ r &: \text{Streudistanz zum Lidar [m]} \\ c &: \text{Lichtgeschwindigkeit [m/s]} \\ t_{\text{Impuls}} &: \text{Impulsdauer [s]} \\ \tau(\lambda, r) &: \text{optische Dicke [1/m]} \end{aligned} \quad (2.2)$$

Das Verhältnis aus elektrischer Empfangsleistung und in das Teleskop einfallender Lichtleistung wird mit dem Systemfaktor K beschrieben. Die Überlappfunktion gibt das Verhältnis aus der emittierten Laserleistung innerhalb des Teleskopöffnungswinkels zur emittierten Laserleistung außerhalb an. Sie ergibt sich aus der Geometrie des Lidarsystems, der Divergenz des Laserstrahls und dem Teleskopöffnungswinkel und kann als Funktion des Abstandes zwischen Streuort und Empfänger angegeben werden.

Der Exponentialterm gibt die Transmission des Lichts bei der Propagation durch die Atmosphäre zum Streuort und zurück an und folgt aus dem Lambert-Beer-Gesetz. Die optische Dicke τ folgt dabei aus dem Wegintegral über den totalen Extinktionskoeffizienten $\alpha(\lambda, r)$:

$$\tau(\lambda, r) \doteq \int_0^r \alpha(\lambda, r') dr' \quad . \quad (2.3)$$

Der totale Extinktionskoeffizient berechnet sich mit der mit der Dichte $N^i(r)$ in $[\frac{\text{Teilchen}}{\text{m}^3}]$ aller Bestandteile i der Atmosphäre und den entsprechenden Streu- und Absorptionsquerschnitten $\sigma_{\text{Streu}}^i(\lambda, r)$ und $\sigma_{\text{Abs}}^i(\lambda, r)$ zu

$$\alpha(\lambda, r) = \sum_i N^i(r) \cdot [\sigma_{\text{Streu}}^i(\lambda, r) + \sigma_{\text{Abs}}^i(\lambda, r)] \quad . \quad (2.4)$$

Der Absorptionsquerschnitt ergibt sich aus den spezifischen molekularen oder atomaren Spektrallinien eines Übergangs zwischen zwei quantenmechanischen Zuständen.

Je nach Größe der Streuteilchen unterscheidet man bei der Streuung zwei Fälle: zum einen die Streuung an Atomen und Molekülen, also an Teilchen, deren Durchmesser gegenüber der Messwellenlänge gering ist, und zum anderen die Streuung an Aerosolen. Die Rayleighstreuung behandelt die elastische Streuung an Streuobjekten, deren Durchmesser wesentlich kleiner als die Wellenlänge des Lichtes ist. Dieser Streutyp ist für ein Lidar besonders wichtig, da die in der Atmosphäre am häufigsten vertretenen Teilchen, also Sauerstoff, und Stickstoff der Rayleighstreuung unterliegen. Nach dem englischen Physiker Lord Rayleigh, der 1871 eine zu λ^{-4} proportionale Abhängigkeit des atomaren/molekularen Streuquerschnittes entdeckt hatte, wurde diese Streuung Rayleighstreuung genannt (Jackson, 1998). Mit ihr lassen sich die allgemein bekannten stark wellenlängenabhängigen Phänomene wie das blaue Himmelslicht an sonnigen Tagen oder die Abendröte erklären. Aus der

Winkelverteilung berechnet sich das Lidarverhältnis oder Extinktions-Rückstreu-Verhältnis für Moleküle zu der Konstanten

$$\frac{\alpha_{\text{Rayleigh}}}{\beta_{\text{Rayleigh}}} = \frac{8\pi}{3} . \quad (2.5)$$

Der Greifswalder Physiker Gustav Adolf Mie beschrieb um 1908, dass ab einer gewissen Partikelgröße die Lichtstreuung nicht dem Rayleigh'schen λ^{-4} Gesetz folgt. Er formulierte eine allgemeinere Theorie von Lichtstreuung an sphärischen homogenen Objekten, deren Durchmesser in etwa dem der Wellenlänge der Strahlung entspricht und die die Rayleigh-Streuung als Spezialfall enthält. Mit dieser Theorie lassen sich beispielsweise Phänomene wie das Weiß der Wolken erklären. Je größer der Mie-Parameter $x = 2\pi a/\lambda$ ist, welcher das Verhältnis von Partikeldurchmesser a zur Wellenlänge λ des eingestrahlten Lichts angibt, desto stärker streut die im Vergleich zur Rayleighstreuung schwächer wellenlängenabhängige Mie-Streuung in Vorwärtsrichtung. Nach van de Hulst (1981) ergibt sich für die Mie-Extinktion die Wellenlängenabhängigkeit

$$\alpha_{\text{Mie}} \propto \lambda^{-\delta} . \quad (2.6)$$

Dabei ist δ der Angströmxponent im Bereich zwischen 0 und 4. Für große Partikel wie z. B. Wolkenpartikel ist $\delta = 0$ und für kleine Partikel ist $\delta = 3$. Im Gegensatz zur Rayleighstreuung ist das Lidarverhältnis $\frac{\alpha_{\text{Mie}}}{\beta_{\text{Mie}}}$ bei der Mie-Streuung nicht konstant, sondern von Parametern wie Wellenlänge und Partikelgrößenverteilung abhängig. Mit β_{Mie} und α_{Mie} enthält die Lidargleichung zwei unbekannte Größen, deren Einfluss auf das Messergebnis durch geschickte Annahmen reduziert werden muss.

Analog zum totalen Extinktionskoeffizienten setzt sich der totale Rückstreukoeffizient β ebenfalls aus Rayleigh- und Miestreuung zusammen

$$\beta(\lambda, r) = \beta_{\text{Rayleigh}}(\lambda, r) + \beta_{\text{Mie}}(\lambda, r) . \quad (2.7)$$

2.2 Die Grundgleichungen für das DIAL-Verfahren

Das Thema dieser Arbeit ist die Detektion von Spurenstoffkonzentrationen, welche mit dem Differential-Absorptions-Lidar (DIAL) gemessen werden. Beim DIAL-Verfahren werden zwei Impulse unterschiedlicher Wellenlängen in die Atmosphäre ausgesendet (siehe Abb. 2.3). Diese beiden Wellenlängen werden so gewählt, dass sie unterschiedlich stark von dem zu messenden Spurenstoff absorbiert werden, während alle anderen Bestandteile der Atmosphäre beide Wellenlängen möglichst gleichmäßig beeinflussen. Die stärker absorbierte Wellenlänge wird Mess- bzw. „Online“-Wellenlänge und die weniger stark absorbierte Referenz- bzw. „Offline“-Wellenlänge genannt. Somit wird die „Online“-Strahlung gegenüber der „Offline“-Strahlung bei der Propagation durch die Atmosphäre in Anwesenheit des Spurenstoffs stärker abgeschwächt. Diese Intensitätsunterschiede können im Detektor nachgewiesen werden und lassen sich auf eine bestimmte Dichte des zu ermittelnden Gases $N^{\text{Gas}}(r)$ am Streuort zurückführen. Entscheidend für die Bestimmung der Spurenstoffdichte ist die in Kap. 2.1 eingeführte Extinktion

$$\alpha(\lambda, r) = \sum_{i \neq \text{Gas}} N^i(r) \cdot [\sigma_{\text{Streu}}^i(\lambda, r) + \sigma_{\text{Abs}}^i(\lambda, r)] + N^{\text{Gas}}(r) \cdot \sigma_{\text{Abs}}^{\text{Gas}}(\lambda, r) . \quad (2.8)$$

Aus den Lidargleichungen für Mess- und Referenzstrahl kann die DIAL-Gleichung hergeleitet werden, welche die Spurenstoffdichte aus den empfangenen Leistungen berechnet. Nach Abschnitt 2.1 lauten die Lidargleichungen für „Online“- und „Offline“-Strahlung

$$P_{\text{on}}(r) = K \cdot P_0 \cdot A \cdot \beta_{\text{on}}(r) \cdot \frac{1}{r^2} \cdot \frac{c \cdot t_{\text{Impuls}}}{2} \cdot e^{-2\tau_{\text{on}}} \quad (2.9)$$

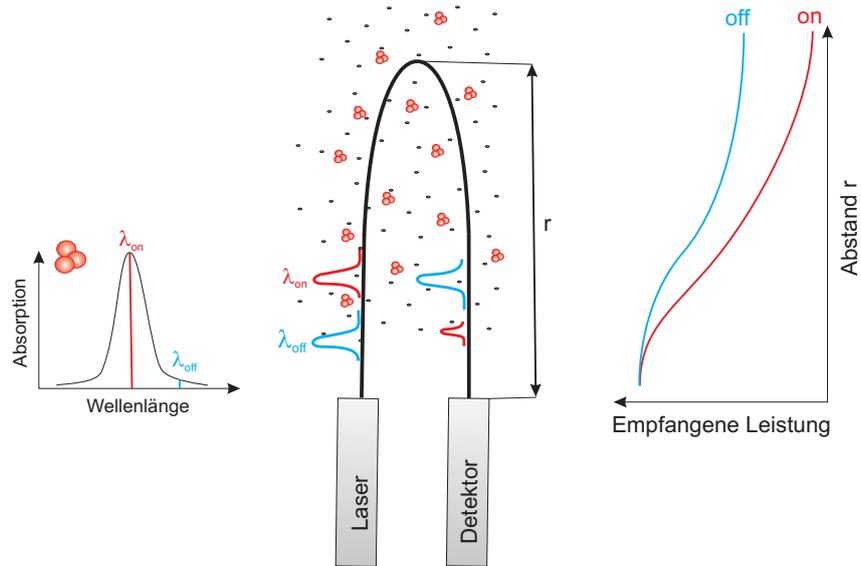


Abbildung 2.3: Messprinzip des Differential-Absorptions-Lidar (DIAL)-Verfahrens. Es werden abwechselnd Impulse mit unterschiedlichen Wellenlängen in die Atmosphäre ausgesendet. Die beiden Wellenlängen sind so gewählt, dass die Mess- bzw. „Online“-Wellenlänge von dem zu messenden Spurenstoff stark absorbiert wird und die Referenz bzw. „Offline“-Wellenlänge weniger stark. Aus dem Quotienten der empfangenen Intensitäten kann die Spurenstoffdichte im Abstand r ermittelt werden.

und

$$P_{off}(r) = K \cdot P_0 \cdot A \cdot \beta_{off}(r) \cdot \frac{1}{r^2} \cdot \frac{c \cdot t_{\text{Impuls}}}{2} \cdot e^{-2\tau_{off}} \quad (2.10)$$

Zunächst werden beide Gleichungen logarithmiert und voneinander subtrahiert. Die resultierende Gleichung wird anschließend nach dem Abstand r differenziert. Aufgelöst nach der Spurenstoffdichte und dem differentiellen Absorptionsquerschnitt $\Delta\sigma^i = \sigma_{on}^i - \sigma_{off}^i$ ergibt sich die gesamte DIAL-Gleichung zu

$$N^{\text{Gas}}(r) = \frac{1}{2 \cdot \Delta\sigma^{\text{Gas}}} \cdot \frac{d}{dr} \left[\ln \frac{P_{off}(r)}{P_{on}(r)} \right] - B - C - D - E \quad (2.11)$$

Dabei stehen die Buchstaben B, C, D und E für die Korrekturterme Rückstreuterm

$$B = \frac{1}{2 \cdot \Delta\sigma^{\text{Gas}}} \cdot \frac{d}{dr} \left[\ln \frac{\beta_{off}(r)}{\beta_{on}(r)} \right] \quad (2.12)$$

Rayleigh-Extinktionsterm mit $\Delta\alpha_{\text{Rayleigh}}(r) = \alpha_{on,\text{Rayleigh}}(r) - \alpha_{off,\text{Rayleigh}}(r)$

$$C = \frac{\Delta\alpha_{\text{Rayleigh}}(r)}{\Delta\sigma^{\text{Gas}}} \quad (2.13)$$

Mie-Extinktionsterm mit $\Delta\alpha_{\text{Mie}}(r) = \alpha_{on,\text{Mie}}(r) - \alpha_{off,\text{Mie}}(r)$

$$D = \frac{\Delta\alpha_{\text{Mie}}(r)}{\Delta\sigma^{\text{Gas}}} \quad (2.14)$$

und den Term, welcher die Querempfindlichkeit zu anderen in der Atmosphäre vorhandenen Gasen berücksichtigt

$$E = \frac{\sum_{i \neq \text{Gas}} N^i(r) \cdot \Delta\sigma^i}{\Delta\sigma^{\text{Gas}}} \quad (2.15)$$

Gleichung 2.11 zeigt, dass es sich bei der DIAL-Methode um eine selbstkalibrierende Messung handelt. Alle Instrumentenkonstanten K , P_0 , A und t_{Impuls} haben sich beim Kombinieren der beiden Lidargleichungen herausgekürzt. Im Idealfall sind die atmosphärischen Streueigenschaften beider Wellenlängen nahezu gleich groß, womit die Korrekturterme B , C und D in Gl. 2.11 vernachlässigt werden können. Werden die beiden Messwellenlängen zusätzlich so gewählt, dass die Querempfindlichkeit gegenüber anderen Spurengasen vernachlässigt werden kann, so reduziert sich die DIAL-Gleichung (2.11) zu der einfachen Form ohne Korrekturterme. Damit kann die Spurenstoffdichte allein durch den Quotienten aus den empfangenen Intensitäten für beide Wellenlängen ermittelt werden.

In der Realität können die Korrekturterme jedoch meist nicht vernachlässigt werden. Insbesondere bei O_3 -DIAL's können dadurch erhebliche Messabweichungen auftreten. Bei troposphärischen O_3 -DIAL-Systemen können in der unteren Troposphäre aufgrund der vergleichsweise hohen Konzentrationen von bis zu 1 nmol/mol SO_2 und bis zu einigen 10 nmol/mol NO_2 an heißen Sommertagen in urbanen Gebieten Querempfindlichkeiten auftreten. Stratosphärische O_3 -DIAL's benötigen einen Wellenlängenabstand von mehreren 10 nm um, eine ausreichend große differenzielle Ozon-Absorption zu erreichen. Aufgrund der Wellenlängendifferenz zwischen beiden DIAL-Wellenlängen können die Terme B und D zu erheblichen, aerosolbedingten systematischen Fehlern bei der Bestimmung der Spurengasdichte führen. Die molekularen Streueigenschaften $\beta_{\text{Rayleigh}}(\lambda, r)$ und $\alpha_{\text{Rayleigh}}(\lambda, r)$ können mit den besten verfügbaren meteorologischen Daten über Druck und Temperatur oder über geeignete Standardatmosphären genau genug vorhergesagt werden. Die aerosolen Streueigenschaften $\beta_{\text{Mie}}(\lambda, r)$ und $\alpha_{\text{Mie}}(\lambda, r)$ sind jedoch abhängig von der Größe, Form und chemischen Zusammensetzung der Aerosole und dem Feuchtegehalt der Luft. Sie sind somit eine Unbekannte und können im Falle großer Wellenlängendifferenz zu einem systematischen Fehler führen.

In stark inhomogen verteilten Aerosolschichten ist der Rückstreuterm B (Gl. 2.12) der dominierende Aerosolfehler und kann mehrere 100 % betragen. Eine Methode, bei der im Gegensatz zum gewöhnlichen DIAL die elastische Rückstreuung keine Rolle spielt, ist das Raman-DIAL. Wie von Lazzarotto et al. (2001) beschrieben, können damit Wasserdampf- und Ozondichteprofile gemessen werden, indem Licht nur einer Wellenlänge in die Atmosphäre ausgesendet wird. An Sauerstoff, Stickstoff und Wasserdampf wird das Licht inelastisch gestreut, wodurch es die Ramanfrequenzverschiebung erhält. Über geeignete schmalbandige spektrale Filter können die einzelnen Linien separat im Empfänger detektiert werden, woraus die H_2O - und O_3 -Dichteprofile gewonnen werden können. Das ramanverschobene Licht ist, bedingt durch die Filter, nicht von der elastischen Rückstreuung überlagert und daher unempfindlich gegenüber stark inhomogen verteilten Aerosolschichten. Jedoch ist aufgrund des um mehrere Größendordnungen kleineren Ramanstreuquerschnitts das inelastisch gestreute Licht viel schwächer als das elastisch gestreute Licht. Dadurch sind lange Mittelungszeiten im Bereich von Stunden nötig, um Spurenstoffprofile zu erhalten. Demnach können mit Raman-Systemen die dynamischen Prozesse im Bereich der Tropopause nicht aufgelöst werden und sind insbesondere für Flugzeuganwendungen ungeeignet.

Bei bekanntem Lidarverhältnis $S = \alpha_{\text{Mie}}/\beta_{\text{Mie}}$ kann die Lidargleichung jedoch invertiert werden und unter Verwendung eines erweiterten Klett-Verfahrens (Klett, 1985) die Rückstreuung und Extinktion berechnet und in der DIAL-Gleichung korrigiert werden. Dabei wird die Inversion der Lidargleichung auf die „Offline“-Wellenlänge angewendet, weil dort für gewöhnlich die Extinktion des Spurenstoffes vernachlässigbar ist (Browell et al., 1985). Mit der Inversion können die optischen Streueigenschaften der Partikel für die „Offline“-Wellenlänge ermittelt werden. Unter Annahme eines Angströmxponenten kann daraus auf die optischen Streueigenschaften der „Online“-Wellenlänge geschlossen werden, womit die vereinfachte DIAL-Gleichung mit den Korrekturtermen 2.12 und 2.14 korrigiert werden kann. Während das Klett-Verfahren, so, wie oben beschrieben, für das H_2O -DIAL WALES angewendet werden kann, ist die Extinktion der „Offline“-Wellenlänge bei dem in dieser

Arbeit vorgestellten O₃-DIAL nicht vernachlässigbar. Die „Offline“-Extinktion muss daher bei der Inversion iterativ berücksichtigt werden. Als „first guess“ wird das fehlerbehaftete O₃-Profil, wie es aus der vereinfachten DIAL-Gleichung gewonnen wird, verwendet. Mit dem aus der ersten Iteration erhaltenen korrigierten Ozonprofil wird das ganze Verfahren mehrfach durchlaufen, wobei immer das aus der vorherigen Iteration gewonnene korrigierte Ozonprofil verwendet wird. Die Iteration kann beliebig oft ausgeführt werden, bis die Ozonprofile konvergieren. Ausgangspunkt für die Inversion ist die Definition einer geeigneten Signalfunktion T aus bekannten Größen

$$T(r) = \ln \left(\frac{P(r) \cdot r^2 \cdot \exp \left(2 \cdot \int_0^r \alpha_{\text{Rayleigh}}(r') dr' \right) \cdot \exp \left(2 \cdot \int_0^r \alpha_{\text{O}_3}(r') dr' \right)}{\exp \left(2 \cdot S \cdot \int_0^r \beta_{\text{Rayleigh}}(r') dr' \right)} \right) \quad (2.16)$$

Mit der Signalfunktion kann die Lidargleichung 2.1 in die Form

$$T(r) = K \cdot R(r) \cdot \beta_{\text{Rayleigh}}(r) \cdot \exp \left(-2 \cdot S \cdot \int_0^r R(r') \cdot \beta_{\text{Rayleigh}}(r') dr' \right) \quad (2.17)$$

gebracht werden. Dabei beinhaltet K alle Konstanten der Lidargleichung. R(r) ist das Verhältnis

$$R(r) = \frac{\beta_{\text{Rayleigh}}(r) + \beta_{\text{Mie}}(r)}{\beta_{\text{Rayleigh}}(r)} = \frac{\beta(r)}{\beta_{\text{Rayleigh}}(r)} \quad (2.18)$$

aus totaler zur molekularer Rückstreuung. Durch Logarithmieren und Differenzieren nach dem Weg r ergibt sich aus Gl. 2.17 die Differenzialgleichung

$$\frac{dT(r)}{dr} = \frac{1}{\beta(r)} \cdot \frac{d\beta(r)}{dr} - 2 \cdot S \cdot \beta(r) \quad (2.19)$$

Diese bekannte Form der Differenzialgleichung nennt sich Bernoulli- oder homogene Ricatti-Gleichung (Klett, 1981). In Klett (1985) wird dafür folgende Lösung angegeben:

$$\beta(r) = \frac{\exp(T(r) - T_m)}{(R_m \cdot \beta_{\text{Rayleigh},m})^{-1} + 2 \cdot \int_0^r S \cdot \exp(T(r') - T_m) dr'} \quad (2.20)$$

Dabei ist $T_m = T(r_m)$, $\beta_{\text{Rayleigh},m} = \beta(r_m)$ bei einem Normierungsabstand r_m , in welchem das Rückstreuverhältnis $R_m = R(r_m)$ als bekannt vorausgesetzt wird. Für r_m sollte ein Bereich ausgewählt werden, welcher möglichst wenig mit Aerosol belastet ist und, in Bezug auf das Lidarsystem, hinter der Aerosolschicht liegt (Klett, 1981). Hiermit steht eine qualitative Abschätzung des aerosolen Einflusses auf die Signale zur Verfügung. Problematisch an dieser Abschätzung des Aerosoleinflusses auf die Signale ist der Angströmemponent. Dieser ist, anders als im Fall von Rayleighstreuung, abhängig von der Größenverteilung der Streupartikel und kann dadurch mit der Höhe variieren. Bei der Inversion wird jedoch ein höhenkonstanter Angströmemponent vorausgesetzt.

Das für die Klett-Inversion notwendige aerosole Lidarverhältnis kann auch direkt mit einem Ramanlidar vermessen werden. Dazu werden das elastisch und inelastisch gestreute Licht detektiert und aus der Kombination der beiden Kanäle die Partikelstreuereigenschaften abgeleitet. Da dieses Ramansignal um Faktor 20 (Rotations-Ramanlinie) bis 500 (Vibrations-Rotations-Ramanlinie) kleiner als die Rayleighstreuung ist, werden dafür lange Mittelungszeiten benötigt Weitkamp (2005). Wegen der geringen Streuquerschnitte werden Aerosol-Ramanlidars hauptsächlich bei Nacht betrieben, um den Einfluss solarer Strahlung zu vermeiden. Im Gegensatz dazu können mit spektral hochauflösendem Lidar (eng.: High spectral Resolution Lidar, kurz: HSRL) die aerosolen Streueigenschaften auch tagsüber und mit adäquaten Mittelungszeiten gewonnen werden. Ein derartiges HSRL für die Wellenlänge von 532 nm ist Bestandteil des Wasserdampfsystems WALES (siehe Esselborn (2008)). Bei diesem Lidarprinzip besitzt der Detektor einen Kanal für das gesamte

zurückgestreute Spektrum und einen reinen Rayleighkanal, welcher durch einen Spektralfilter den Mie-Anteil unterdrückt. Aus der Kombination beider Kanäle können nach Piironen und Eloranta (1994) die Partikel-Streueigenschaften und damit das aerosole Lidarverhältnis abgeleitet werden.

Für die Unterdrückung des Mie-Anteils werden hohe Anforderungen an die Filter gestellt, welche nur bei wenigen Wellenlängen erfüllt werden können. Daher muss für die meisten DIAL-Systeme auf das Klett-Verfahren zurückgegriffen werden. Jedoch greift das Klett-Verfahren im Falle stark inhomogen verteilter unterschiedlicher Aerosoltypen mit höhenabhängigen Angströmkoeffizienten nicht mehr. Hier kann die von Wang et al. (1997) vorgeschlagene Dual-DIAL-Methode verwendet werden, um den aerosolbedingten Messfehler zu reduzieren. Wie in Abb. 2.4 dargestellt, handelt es sich um

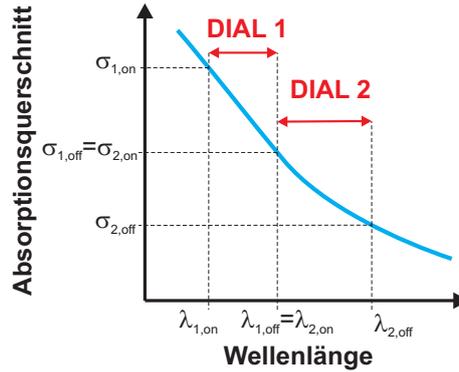


Abbildung 2.4: Prinzip des Drei-Wellenlängen-Dual-DIAL Verfahrens zur Kompensation des aerosolbedingten systematischen Fehlers.

ein Drei-Wellenlängen-Lidar ($\lambda_{1,on}$, $\lambda_{1,off} = \lambda_{2,on}$, $\lambda_{2,off}$), wobei die mittlere Wellenlänge einerseits als „Offline“-Wellenlänge des ersten DIAL-Paares und andererseits als „Online“-Wellenlänge des zweiten DIAL-Paares verwendet wird. Aus der Linearkombination der beiden DIAL-Gleichungen ergibt sich die Spurenstoffdichte zu

$$N^{Gas}(r) = \frac{1}{2\Delta\sigma'} \left\{ \frac{d}{dr} \left[-\ln \frac{P_{\lambda_{1,on}}(r)}{P_{\lambda_{1,off}}(r)} + C \cdot \ln \frac{P_{\lambda_{2,on}}(r)}{P_{\lambda_{2,off}}(r)} \right] + B' + E' \right\} \quad (2.21)$$

Dabei sind $\Delta\sigma' = [\sigma_{\lambda_{1,on}} - \sigma_{\lambda_{1,off}}] - C \cdot [\sigma_{\lambda_{2,on}} - \sigma_{\lambda_{2,off}}]$, $B' = B_1 - C \cdot B_2$ und $E' = E_1 - C \cdot E_2$ mit $B_i = \frac{d}{dr} \ln \frac{\beta_{\lambda_{i,on}}(r)}{\beta_{\lambda_{i,off}}(r)}$ und $E_i = -2[\alpha_{\lambda_{i,on}}(r) - \alpha_{\lambda_{i,off}}(r)]$ für $i = 1, 2$.

Die Konstante C ist frei wählbar und für einen Wert von

$$C = \frac{\lambda_{1,on} - \lambda_{1,off}}{\lambda_{2,on} - \lambda_{2,off}} \quad (2.22)$$

werden die Rückstreu- und Extinktionsterme nahezu null ($B' \approx 0$ und $E' \approx 0$). Nach Wang et al. (1997) wird die Spurengassondierung mit dieser Methode unempfindlich gegenüber inhomogen verteilten Aerosolschichten. Somit versagt diese Methode selbst bei einem höhenabhängigen Angströmxponenten nicht.

DIAL-Systeme, deren „Online“-Wellenlänge einer schmalbandigen Absorptionslinie entspricht, müssen zusätzlich die Rayleigh-Doppler-Verbreiterung (Ansmann, 1985; Ansmann und Bösenberg, 1987) in den Lidargleichungen berücksichtigen. Bedingt durch die brownische Bewegung der Streuteilchen mit Geschwindigkeitskomponente v entlang dem Laserstrahl ergibt sich die Frequenz des gestreuten Lichtes $\nu_{gestreut}$ zu

$$\nu_{gestreut} = \nu_{einfallend} \cdot \kappa(r) = \nu_{einfallend} \cdot \frac{1 + \frac{v(r)}{c}}{\sqrt{1 - \left(\frac{v(r)}{c}\right)^2}} \cong \nu_{einfallend} \cdot \left(1 + \frac{v(r)}{c}\right) \quad (2.23)$$

Dabei entspricht κ der Dopplerverschiebung und c der Lichtgeschwindigkeit. Aus der Boltzmann-Verteilung der Geschwindigkeiten aller Streuteilchen ergibt sich die Doppler-Verbreiterung des gestreuten Lichtes. Die im Vergleich zu den Molekülen relativ schweren Partikel haben aufgrund ihrer Trägheit keinen signifikanten Einfluss auf die Doppler-Verbreiterung. Daher ist nur durch Moleküle bedingte Verbreiterung, also die Rayleigh-Doppler-Verbreiterung, zu berücksichtigen. Bei der Vermessung schmalbandiger Absorptionslinien kann es passieren, dass die Verbreiterung in der Größenordnung der Breite der Absorptionslinien liegt, wodurch die in der Lidargleichung angenommene Extinktion überschätzt werden würde. Generell messen Ozon-DIAL-Systeme in der Hartley- (220-310 nm)- und Huggins-Bande (310-370 nm), einem Bereich des Ozonabsorptionsquerschnitts mit einer breiten Absorptionsbande von über 100 nm ohne viel Struktur, sodass der Effekt der Rayleigh-Doppler-Verbreiterung in Ozon-DIAL's vernachlässigt werden kann. Die Absorptionslinien des H₂O-DIAL WALES haben eine spektrale Breite von einigen 100 MHz (siehe Abb. 2.5 Kap. 2.3), sodass der Effekt Fehler von mehreren 10 % ausmachen kann (Wirth et al., 2001). Über Temperaturprofile aus Standardatmosphären oder Radiosondenaufstiegen kann jedoch der Einfluss der Verbreiterung in den Lidargleichungen berücksichtigt werden.

2.3 Mehrwellenlängen-H₂O-DIAL (WALES)

Aufgabe dieser Arbeit ist die Realisierung eines flugzeuggetragenen kombinierten Ozon- und Wasserdampf-DIAL-Systems für die Tropopausenregion. In den vergangenen Jahren wurden am Institut für Physik der Atmosphäre die wesentlichen Komponenten von AMALFI entwickelt: das weltweit einzigartige Mehrwellenlängen-Differential-Absorptions-Lidar WALES (eng.: **WA**ter **V**apor **L**idar **E**xperiment in **S**pace). Mit dem ursprünglich als Vorbereitung auf eine Weltraummission geplanten Projekt WALES sollten die Defizite bisheriger Messverfahren, wie sie bei Radiosonden und passiven satellitengestützten Sensoren auftreten, behoben werden. Radiosonden sind zwar unkomplizierte und kostengünstige Messinstrumente, doch liefern sie nur Daten mit zu geringer Genauigkeit aus der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre (Kley et al., 2000) und es gelingt daher keine ausreichende Abdeckung der Erdatmosphäre. Des Weiteren verfügen passive satellitengestützte Messsonden nicht über eine genügend hohe vertikale Auflösung. Im Gegensatz dazu würde ein satellitengestütztes Mehrwellenlängen-H₂O-DIAL globale Wasserdampf-Messungen mit angemessener zeitlicher und räumlicher Auflösung liefern. Das Gesamtsystem wurde im Sommer 2007 fertiggestellt und bereits sehr erfolgreich auf dem Forschungsflugzeug Falcon F20 während der Feldkampagnen COPS (Jul. 2007) (Wulfmeyer et al., 2008), SAMUM II (Jan./Febr. 2008) (Esselborn et al., 2008), IPY-Thorpex (Febr./März 2008) (Fix et al., 2008), EUCAARI (Mai 2008) und T-PARC (Aug./Sept. 2008) und auf dem Forschungsflugzeug HALO während der sogenannten TECHNO-Mission (Sept./Okt. 2010) eingesetzt.

Die wesentlichen Vorteile von WALES gegenüber anderen existierenden H₂O-DIAL-Systemen (siehe z. B. Browell et al. (1998), Ismail und Browell (1989) oder Bruneau et al. (2001)) sind dessen hohe elektrische Effizienz und kleine mechanische Abmessungen sowie die weltweit einzigartige große Messreichweite von der aerosolen Grenzschicht bis zur unteren Stratosphäre. Gerade bei Messungen in der UTLS erreicht WALES eine wesentlich höhere Auflösung und Genauigkeit als bisherige DIAL-Systeme. Denn nur WALES verfügt über Messwellenlängen im Bereich um 935 nm, in welchem sowohl schwache Absorptionslinien für troposphärische Messungen als auch starke Absorptionslinien für stratosphärische Messungen vorhanden sind (vgl. Abb. 2.5).

Ziel ist es, das neue Ozon-DIAL modular mit den Komponenten des WALES-Systems betreiben zu können. Daher ist es nicht nur notwendig, dass das Ozon-DIAL mechanisch mit dem WALES-System harmonisiert sondern auch, dass eine Kompatibilität zwischen dem neuen Modul und WALES in Bezug auf die elektrische und optische Leistungsaufnahme gegeben ist. Aus diesem Grund wird das WALES-System im Folgenden genauer vorgestellt. Zunächst wird der Messaufbau erläutert und

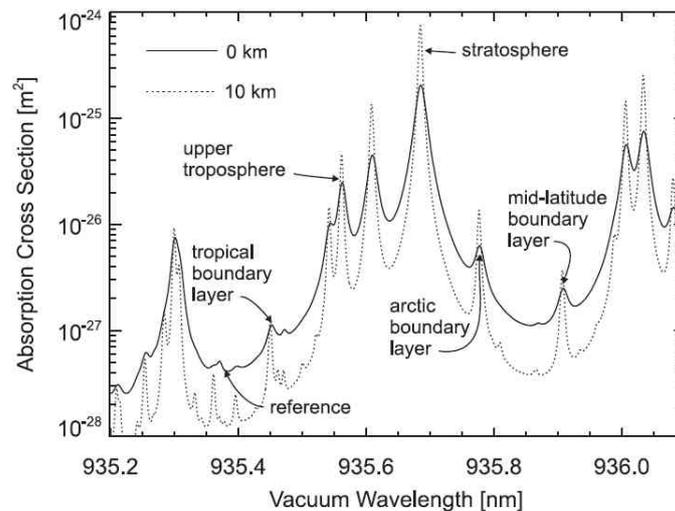


Abbildung 2.5: Für die Simulation von WALES verwendete H_2O -Absorptionslinien (Wirth et al., 2009). Absorptionsquerschnitte berechnet mit HITRAN (Rothman et al., 2005) für Normalnull (durchgezogene Linie) und 10 km Höhe (gestrichelte Linie).

charakterisiert und im Anschluss dessen hohe Genauigkeit am Beispiel einer Vergleichskampagne aufgezeigt. Eine ausführlichere Beschreibung der einzelnen Komponenten von WALES findet sich in Wirth et al. (2009).

2.3.1 Transmittereinheit

Beim WALES-Lidar handelt es sich um ein Vier-Wellenlängen-DIAL, mit einer Referenzwellenlänge und drei „Online“-Wellenlängen für die drei Höhenbereiche aerosole Grenzschicht, obere Troposphäre und untere Stratosphäre. Die Wasserdampfkonzentration in der aerosolen Grenzschicht nimmt von den Polen über die mittleren Breiten bis zu den Tropen stark zu. Daher muss die Stärke der Absorption der „Online“-Wellenlänge für die Grenzschicht in Abhängigkeit von der geographischen Breite angepasst werden.

Angelehnt an die Vorgängersysteme (Ehret et al., 1999; Poberaj et al., 2002) wurde für die Erzeugung der Messwellenlängen ein Nd:YAG-Laser in Master-Oszillator/Power Amplifier (eng.: master oscillator power amplifier, kurz: MOPA)-Konfiguration und zwei anschließenden Konversionsprozessen entwickelt.

Diese Anordnung erfüllt die Grundvoraussetzungen an ein Lidarsystem, denn sie ermöglicht die Erzeugung von longitudinal einrequenten Nanosekunden-Lichtimpulsen im Wellenlängenbereich zwischen 935-936 nm und einer gesamten mittleren Leistung von 8 W.

Es handelt sich um zwei übereinander angeordnete baugleiche Lasersysteme (vgl. Abb. 2.6 und 2.7), welche jeweils zwei der vier Messwellenlängen erzeugen. Jedes Lasersystem unterteilt sich in die drei Untersysteme Pumplaser, OPO-Frequenzkonverter und Seedlaser.

Der in MOPA-Konfiguration angeordnete Pumplaser mit der fundamentalen Wellenlänge von 1064 nm erreicht durch drei Verstärkerstufen eine Ausgangsenergie von > 400 mJ pro Impuls bei einer Repetitionsfrequenz von 100 Hz. Anschließend wird die fundamentale Strahlung jedes Nd:YAG-Lasers frequenzverdoppelt. Dazu wird ein $10 \times 10 \times 10$ mm³ großer KTP-Kristall in Typ-2-Konfiguration (oe \rightarrow e)¹ verwendet. Bei maximaler Laserleistung kann eine Konversionseffizienz von 55 % erreicht werden, sodass bis zu 220 mJ Impulsenergie bei 532 nm Wellenlänge zur Verfügung stehen.

¹siehe Kap. 4.2

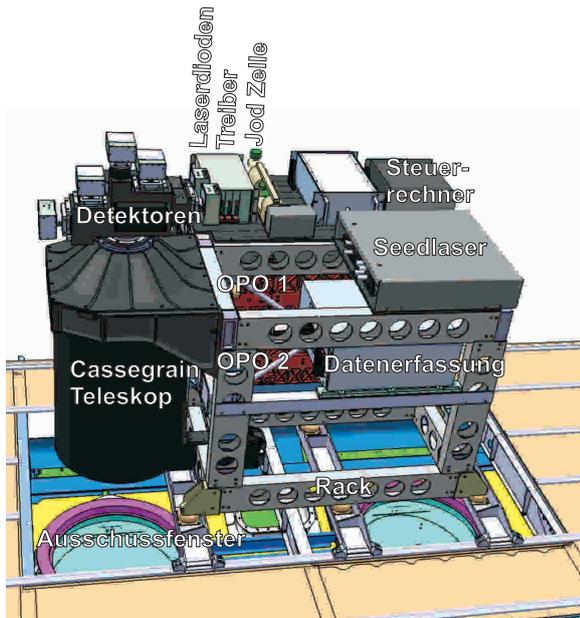


Abbildung 2.6: Seitenansicht des WALES-Systems in HALO, dargestellt als CAD (Foto der Seitenansicht ist im Flugzeug aus Platzgründen nicht möglich).

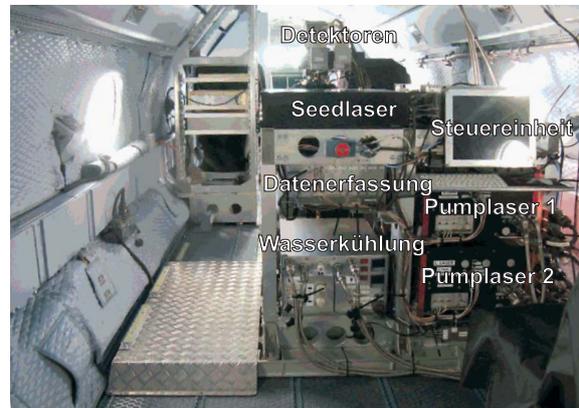


Abbildung 2.7: Foto des WALES-Systems, das in HALO während der TECHNO-Kampagne 2010 integriert worden ist.

Für die H₂O-DIAL-Wellenlängen wird Licht im Bereich von 935 nm benötigt, welches unter Verwendung eines optisch parametrischen Oszillators (OPO) aus der Ausgangsstrahlung der Wellenlänge 532 nm des Pumplasers generiert wird. Das Prinzip eines OPO wird detailliert in Kap. 4.2 beschrieben. Aufgrund der schmalbandigen H₂O-Absorptionsquerschnitte sollte die Bandbreite der Messwellenlängen im MHz-Bereich liegen (Wirth et al., 2009). Diese Schmalbandigkeit wird durch „Injection seeding“ des OPO erreicht (Fix, 1994). Dafür stehen vier verschiedene, im Einmoden-Betrieb arbeitende verteilte Rückkopplungs (eng: distributed feedback, kurz: DFB)-Laserdioden zur Verfügung, welche zusätzlich in den OPO eingekoppelt werden.

Ziel ist es, für den im Rahmen dieser Arbeit entwickelten O₃-DIAL-Transmitter den gleichen Pumplaser zu verwenden. Die beschriebenen Konversionsmodule sind über Schrauben an dem Pumplaser fixiert. Somit kann mit einem für Ozonmessungen geeigneten Konversionsmodul problemlos zwischen den H₂O- und O₃-Konversionsmodulen gewechselt werden. Die spektralen Anforderungen der O₃-Messwellenlängen liegen im Gegensatz zu den H₂O-Messwellenlängen im GHz-Bereich. Somit kann bei dem O₃-DIAL auf „Injection seeding“ verzichtet werden.

Im Vergleich zu dem früher verwendeten 10-Hz-Pumpsystemen der Ozon-DIAL-Transmitter (Fix und Ehret, 1998; Fix et al., 2002) wurden Impulsenergien $E_{Impuls} \sim 10$ mJ im ultravioletten Spektralbereich erzielt, was einer mittleren Leistung von $\bar{P} \sim 0,1$ W entspricht. Entscheidend für die Konversion ist die Einzelpulsenergie. Die mit dem WALES-System zur Verfügung stehende Pumpimpulsenergie von ~ 200 mJ entspricht der Pumpimpulsenergie des früheren 10-Hz-Systems. Daher werden auch für den im Rahmen dieser Arbeit zu entwickelnden O₃-DIAL-Transmitter UV-Impulsenergien im Bereich von 10 mJ erwartet. Mit der Repetitionsfrequenz von 100 Hz entspricht dies einer mittleren Leistung von 1 W. In den in Kap. 3 durchgeführten Simulationen wird eine Impulsenergie der UV-Strahlen von 8 mJ angesetzt, um das System eher zu unterschätzen als zu überschätzen. Insbesondere wird das hohe vertikale und horizontale Auflösungsvermögen, welches für die Vermessung von STE-Prozessen benötigt wird, nur durch die hohen mittleren Leistungen von ~ 1 W im UV erzielt.

2.3.2 Empfängereinheit

Die von der Atmosphäre zurückgestreute Lichtleistung wird mit einem 48 cm Cassegrain Teleskop empfangen, welches nadir- und zenithblickend installiert werden kann (siehe Abb. 2.6). Die verschiedenen Wellenlängen (532 nm, 935 nm und 1064 nm) werden mit dichroitischen Strahlteilern separiert. Die Unterdrückung des solaren Hintergrundlichts erfolgt mit ~ 1 nm breiten Interferenzfiltern. Für Wellenlängen von 532 nm und 1064 nm sind Depolarisationskanäle integriert, um Aerosoltypen anhand des Depolarisationsverhältnisses identifizieren zu können (zum Depolarisationslidar siehe z. B. Weitkamp (2005)). Für die Messung aerosoler Extinktion wird ein Teil der 532 nm Strahlung durch eine I_2 -Zelle geschickt, die eine Unterdrückung der aerosolen Rückstreuung von 10^4 und damit Bestimmung der aerosolen Streueigenschaften mit der Methode des hochspektral auflösenden Lidars ermöglicht (siehe Esselborn (2008)).

Durch geringfügige Modifikationen kann die Empfängereinheit gleichzeitig Licht der Wasserdampf- und Ozonmessungen detektieren. Dazu müssen dichroitische Strahlteiler ausgetauscht und einer der Depolarisationskanäle für 1064 nm durch einen geeigneten UV-Detektor ersetzt werden.

2.3.3 Validierung

Die hohe Genauigkeit von WALES wurde erfolgreich bei der Vergleichskampagne LUAMI im Oktober 2008 nachgewiesen (Immler et al., 2009). Hauptziel von LUAMI war der intensive Vergleich verschiedener In-situ-Messsysteme und Fernmessverfahren zur Bestimmung der grundlegenden meteorologischen Variablen wie Temperatur, Feuchte und Wind in der höheren Atmosphäre. Es wurde eine hervorragende Übereinstimmung der WALES-Wasserdampfmessungen mit dem Frostpunkthygrometer (CFH) und dem Lindenberger Ramanlidar RAMSES sowie den Raman-Lidars und Radiosonden des schweizerischen und des niederländischen Wetterdienstes erzielt. So kann das Wasserdampf-DIAL auch als Transferstandard für die Kalibrierung und Validierung anderer Methoden angesehen werden.

Mit einer horizontalen Auflösung von 10 km und einer vertikalen Auflösung von 200 m erreicht WALES eine Genauigkeit von kleiner 10 %. Damit eignet es sich hervorragend zur Sondierung des troposphärischen Tracers Wasserdampf bei klein- und großskaligen Austauschprozessen durch die Tropopausenregion von dem Forschungsflugzeug HALO aus.

Kapitel 3

Auswahl der Wellenlängen für Ozon im Tropopausenbereich

Die Analyse von Austauschprozessen durch die Tropopausenregion stellt aufgrund der damit verbundenen starken atmosphärischen Dynamik hohe Anforderungen an die Auflösung und die Genauigkeit der Messinstrumente. In der Studie von Ehret und Kiemle (2005) sind Anforderungen angegeben, die ein Ozon-DIAL-System vom Satelliten aus erfüllen sollte, um dynamische Prozesse in der UTLS zu beobachten. Auch flugzeuggebundene Systeme sollten diesen Anforderungen gerecht werden, weshalb diese Anforderungen (vgl. Tab. 3.1) zur Orientierung für die Auslegung des hier zu entwickelnden Ozon-DIAL-Systems verwendet wurden.

Tabelle 3.1: Grenzanforderungen an die Ozonmessung in der UTLS nach Ehret und Kiemle (2005). Die Zielanforderungen sind in Klammern dargestellt.

Parameter	Wertigkeit
Höhenbereich [km]	8 - 16
Vertikale Auflösung [km]	2(1)
Horizontale Auflösung [km]	50(10)
Dynamischer Bereich in Mischungsverhältnis [nmol/mol]	50-1000
Genauigkeit (1σ) [%]	< 20(10)
Präzision (systematischer Fehler) [%]	< 20(10)

Während das Wasserdampf lidar WALES nachweislich diesen Anforderungen genügt, ist es das Ziel im Rahmen dieser Arbeit, ein Ozon DIAL zu entwickeln, welches ebenfalls den genannten Anforderungen gerecht wird. Dabei bestimmt die Wahl der DIAL-Wellenlängen entscheidend die Messeigenschaften wie Auflösung, Genauigkeit und Reichweite und ist daher von konzeptioneller Bedeutung. Die Wahl der Wellenlängen wird zudem von äußeren Parametern wie

- Ozon-Absorptionsquerschnitt
- Ozonprofil
- Querempfindlichkeit zu anderen Spurengasen
- Belastung durch Aerosol
- solare Hintergrundstrahlung

beeinflusst. Ziel ist es, mittels numerischer Simulation diejenigen DIAL-Wellenlängen auszuwählen, mit denen unter minimalen statistischen und systematischen Fehlern eine maximale Messreichweite erzielt werden kann. Für die Berechnung der Messfehler wurde analog zu dem in Kiemle und Ehret (2005) beschriebenen „Performance-Modell“, ein speziell auf diese Applikation zugeschnittener „end-to-end“-Simulator entwickelt, durch welchen ein solcher Messvorgang numerisch simuliert werden kann.

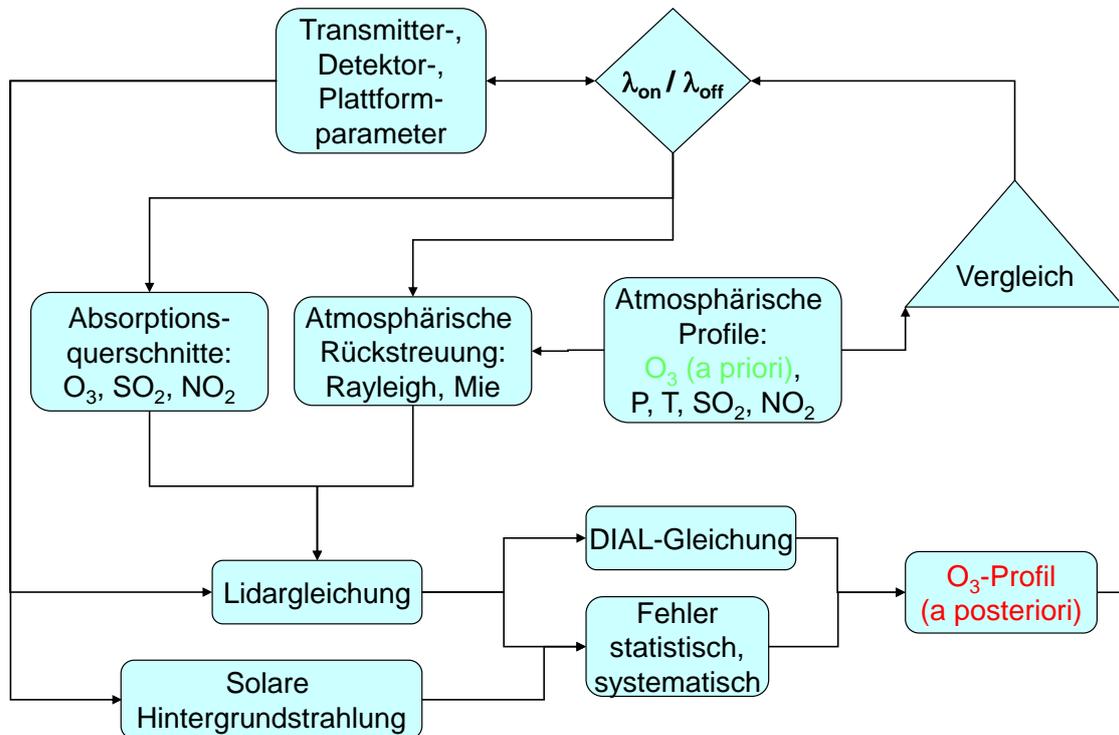


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der Ozon-DIAL-Simulation zur Auswahl der Laserwellenlängen. Bei dieser Software handelt es sich um einen „end-to-end“-Simulator. Demnach wird das zu Beginn in die Berechnungen hineingesteckte O₃-Profil mit dem aus den Rückstreusimulationen gewonnenen O₃-Profil verglichen und bewertet. Durch Variieren der Lidar-Systemparameter wird versucht, das ursprüngliche O₃-Profil so gut wie möglich wiederzugeben.

3.1 Simulation der Ozon-DIAL-Messung

Der Ablauf der Simulation wird mit Hilfe des Flussdiagramms aus Abb. 3.1 dargestellt. Zu Beginn der Berechnungen wird die Messeinheit durch Parameter charakterisiert (siehe Tab. 3.2). Dazu zählen die Transmitterparameter, die den Laserstrahl charakterisieren. Des Weiteren beinhalten diese Parameter die Detektoreigenschaften, bestehend aus dem Empfangsteleskop und dem eigentlichen Photodetektor, welcher die optische Empfangsleistung in elektrische Leistung umwandelt. Als Photodetektor eignet sich ein Photoelektronenvervielfacher¹, weshalb in der Simulation typische PMT-Parameter verwendet wurden. Die Plattformparameter wie Flughöhe und Fluggeschwindigkeit werden ebenfalls mit den Systemparametern festgelegt. Obwohl die Messwellenlängen zu den Transmitterparametern gehören, sind sie im Flussdiagramm gesondert dargestellt.

¹eng.: photomultiplier tube, kurz: PMT

Tabelle 3.2: Übersicht über die wichtigsten Systemparameter im „end-to-end“-Simulator.

Einheit	Parameter	Wertigkeit
Transmitter	Impulsdauer	8 ns
	Impulsenergie	8 mJ
	Repetitionsfrequenz	100 Hz / $\#\lambda_{DIAL}$
Teleskop	Teleskopdurchmesser	0.46 m
	Teleskopöffnungswinkel (FOV)	1.6 mrad
	Überlapp	1
PMT-Verstärker	Rauschen der Eingangsstromdichte	$4 \cdot 10^{-15}$ A/Hz ^{0.5}
	Rauschen der Eingangsspannungsdichte	$6 \cdot 10^{-9}$ V/Hz ^{0.5}
	Verstärkertemperatur	320 K
	Rückkopplungswiderstand	$1 \cdot 10^6$ Ω
	Äquivalente Kapazität inkl. Verdrahtung	10^{-12} F
	PMT-Korrelationsfaktor	1.15
	Antwortzeit des Detektors	$100 \cdot 10^{-9}$ s
PMT-Detektor	Detektor Bandbreite	$3.3 \cdot 10^6$ Hz
	Interne Verstärkung	10^3
	Lichtempfindlichkeit	0.045 A/W
	Überschussrauschverhältnis	1.5
Plattform (HALO)	Dunkelstromdichte	0 A/Hz ^{0.5}
	Geschwindigkeit	220 m/s
Mittelungsbereich	Flughöhe	0-13 km
	horizontale Auflösung	1-20 km
	vertikale Auflösung	100-400 m

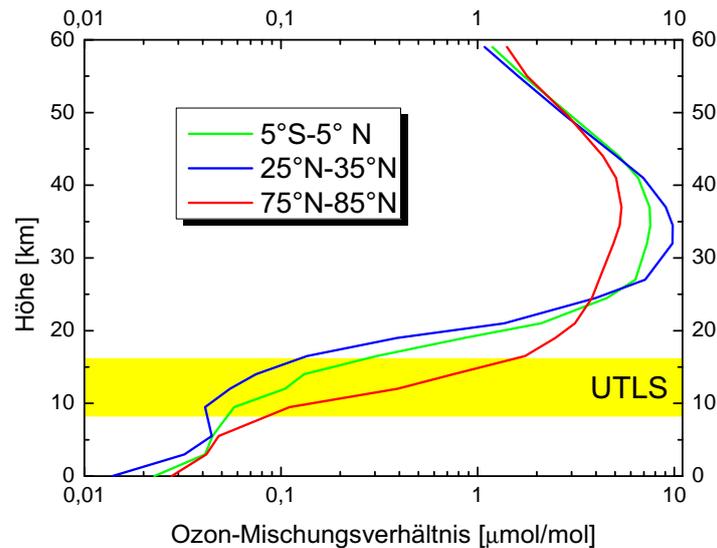


Abbildung 3.2: Dargestellt sind die Ozonkonzentrationsprofile für polare, mittlere und tropische Breiten, wie sie sich für den Monat Januar der Ozon-Klimatologie (Paul et al., 1998) entnehmen lassen. In gelb ist der angestrebte Messbereich der Tropopausenregion dargestellt.

Als Nächstes wird eine synthetische Atmosphäre benötigt, in welcher der Messvorgang simuliert werden soll. Dazu wurden die von der ESA zur Verfügung gestellten Referenzmodelle (eng.: Reference Model of the Atmosphere, kurz: RMA) verwendet, um daraus Druck- und Temperaturprofile zu gewinnen. Dabei handelt es sich um 42 Standardatmosphären für unterschiedliche Jahreszeiten und Breitengrade. Zusätzlich wird die Atmosphäre mit den für den Messvorgang chemisch relevanten Substanzen O_3 , SO_2 und NO_2 versehen. Die O_3 -Profile werden einer Ozon-Klimatologie entnommen, welche während des Beobachtungszeitraums von 1980-1991 erstellt wurde (Paul et al., 1998). Die Ozon-Klimatologie verfügt über zonale und monatliche Mittelwerte für 17 Zonen, welche sich über einen Bereich von 80° südlicher bis 80° nördlicher Breite mit einer vertikalen Auflösung von 19 Druckleveln über einen Höhenbereich von 1000-0,3 hPa erstrecken. Als Beispiel sind in Abb. 3.2 Ozonprofile für 3 verschiedene Breitenbereiche des Monats Januar dargestellt. Die Ozonprofile sind auf der Südhalbkugel näherungsweise dieselben. Daher wurden nur die Profile der Nordhalbkugel aufgetragen.

Zusätzlich enthält die Atmosphäre SO_2 und NO_2 als Gase, die eine Querempfindlichkeit zur O_3 -DIAL-Messungen aufweisen könnten. Das SO_2 -Profil wird Messungen, die während des Dissertationsprojekts von Fiedler (2007) durchgeführt wurden, entnommen. Die NO_2 -Profile stammen aus Messungen von Heland et al. (2002).

Mit den DIAL-Wellenlängen können die entsprechenden Rayleighstreuquerschnitte der Literatur (Miles et al., 2001; Bucholtz, 1995; Penndorf, 1957; Bates, 1984) entnommen werden. Nach Gl. 2.4 ergibt das Produkt aus Rayleighstreuquerschnitt und Luftdichte den Rayleighextinktionskoeffizienten, sodass mit dem Luftdichteprofil die Rayleighextinktionsprofile berechnet werden können. Über Gl. 2.5 können daraus die Rayleigh-Rückstreukoeffizienten gewonnen werden.

Um die Ozonextinktion nach Gl. 2.4 berechnen zu können, werden die Ozonabsorptionsspektren benötigt. Diese wurden der Datenbank von Nölle et al. (1998) entnommen, welche Absorptionsquerschnitte verschiedenster Moleküle vom ultravioletten bis in den sichtbaren Spektralbereich für unterschiedliche Umgebungstemperaturen enthält. Die Originaldaten stammen aus weltweit gemessenen und veröffentlichten Literaturwerten. Das O_3 -Molekül verfügt über Absorptionsbanden im ultravioletten und im nahinfraroten Spektralbereich. Aufgrund des höheren Rayleigh-

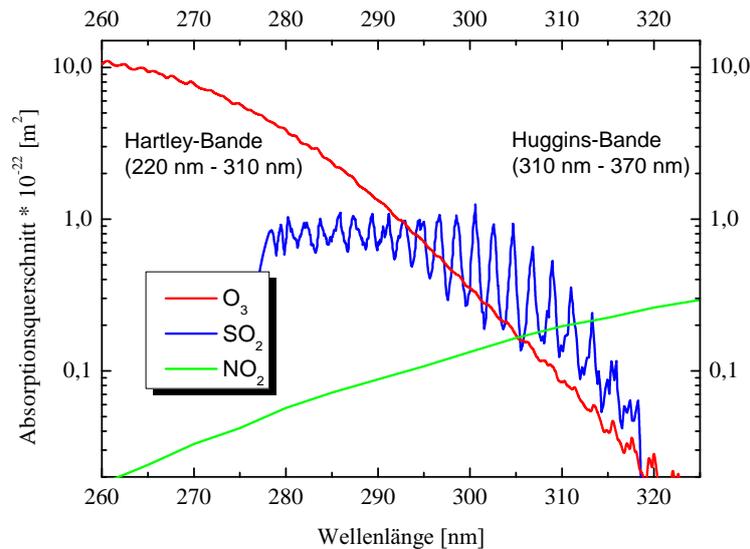


Abbildung 3.3: Ozon-, Schwefeldioxid- und Stickstoffdioxid-Absorptionsquerschnitte in logarithmischer Maßskala als Funktion der Wellenlänge (Nölle et al., 1998).

Rückstreukoeffizienten (vgl. Kap 2.1) und der geringeren solaren Hintergrundstrahlung werden alle O₃-DIAL-Systeme im ultravioletten Spektralbereich in der Hartley- oder Huggins-Bande betrieben. Der O₃-Absorptionsquerschnitt im Ultravioletten wurde in Abb. 3.3 aufgrund der möglichen Querempfindlichkeit gemeinsam mit denen von SO₂ und NO₂ dargestellt.

Mit Hilfe der Lidargleichung 2.1 wird mit den totalen Rückstreu- und Extinktionsprofilen und den Lidar-Systemparametern die elektrische Empfangsleistung berechnet. Aus diesen Signalen wird im nächsten Schritt mit Hilfe der vereinfachten DIAL-Gleichung 2.11 das Ozonprofil gewonnen. Das mit der DIAL-Gleichung berechnete Ozonprofil beinhaltet bereits automatische systematische Messfehler, die durch Querempfindlichkeiten anderer Gase und Aerosole bedingt sind. Der statistische Fehler muss extra aus den Photodetektorparametern abgeschätzt und zusätzlich dem Profil hinzugefügt werden.

Der mit Photodetektoren erzeugte Photostrom enthält immer einen gewissen Rauschanteil, welcher sich aus folgenden Anteilen zusammensetzt (siehe z. B. Demtröder (2007)):

- Photonenrauschen
- Thermischer Dunkelstrom
- Rauschen des Verstärkers.

Optische Signale sind an sich aufgrund der Quantennatur des Lichts verrauscht. Dieses Photonenrauschen überträgt sich im Photodetektor auf die emittierten Photoelektronen. Durch thermische Emission werden ohne Lichteinfall Elektronen aus der Kathode des PMT emittiert. Der dadurch entstehende thermische Dunkelstrom kann nur durch das Kühlen der Kathode reduziert werden. Der PMT-interne Verstärkungsfaktor multipliziert das Rauschen des Kathodenstromes und fügt aufgrund seiner eigenen Schwankung einen weiteren Anteil zum Rauschen des Kathodenstroms hinzu.

Das sogenannte Signal-Rausch-Verhältnis (eng.: signal-to-noise ratio, kurz: SNR) ist ein Maß für die Qualität eines Nutzsignals, das von einem Rauschsignal überlagert ist. In der Vergangenheit hat sich für Ozon-DIAL-Systeme der Photoelektronenvervielfacher des Modells R7400U-04 der Marke Hamamatsu als geeigneter Photodetektor erwiesen. Trotz ihrer vergleichsweise geringeren Quanteneffizienz verfügen PMT's wegen ihrer vergleichsweise rauschfreien internen Verstärkung im

optischen Leistungsbereich von DIAL-Systemen über das höchste SNR. Das SNR setzt sich in diesem Fall unter Anwendung eines PMT im Wesentlichen aus der Photonstatistik zusammen. Der Photostrom wird anschließend über einen Transimpedanzverstärker² (PMT-Verstärker) nachverstärkt und in eine messbare Spannung umgewandelt.

Für die Berechnung des SNR wurde das nach Wirth et al. (2001) zu Grunde liegende Detektormodell verwendet. In die Modellberechnung fließt sowohl das durch den PMT als auch das durch den TIA verursachte Rauschen über die in Tab. 3.2 eingeführten Parameter ein. Durch Gauß'sche Fehlerbetrachtung des gesamten SNR ergibt sich nach Wirth et al. (2001) der relative statistische Fehler der O₃-DIAL-Messung zu

$$\frac{\Delta N^{O_3}}{N^{O_3}}(r) = K_{ver} \cdot K_{hor} \cdot \frac{\sqrt{SNR_{on}^{-2}(r) + SNR_{off}^{-2}(r)}}{2 \cdot N^{O_3}(r) \cdot (\sigma_{on}^{O_3}(r) - \sigma_{off}^{O_3}(r))} \quad (3.1)$$

Somit hängt der statistische Fehler nicht nur von dem SNR der Signale, sondern zusätzlich von der differentiellen Absorption von Ozon ab. Bei der Optimierung im Hinblick auf den statistischen Fehler muss demnach ein Kompromiss zwischen Signalstärke (bzw. SNR) und differentieller Absorption gefunden werden. K_{ver} und K_{hor} sind die Rauschunterdrückungsfaktoren, die sich für vertikales und horizontales Mitteln ergeben. Nach Grant et al. (1988) ergibt sich für die Mittelung aus n voneinander unabhängigen Schusspaaren

$$K_{hor} = \frac{1}{\sqrt{n_{shots}}} \quad (3.2)$$

Zur Berechnung der O₃-Dichteprofile müssen die empfangenen Leistungen nach Gl. 2.11 durch numerisches Differenzieren berechnet werden. Dazu können verschiedene Verfahren wie die Zwei-Punkt-Methode, die Box-Methode und die Savitzky-Golay (kurz: SavGol)-Methode herangezogen werden. Der DIAL-Studie von Wirth et al. (2001) zufolge ist die Rauschunterdrückung bei der Verwendung eines SavGol-Filters für DIAL-Anwendungen am größten. Bei diesem Tiefpassfilter (Press et al., 2002) wird jeder Wert einer Serie durch Polynomianpassung mit $2n+1$ Nachbarpunkten (inklusive des zu glättenden Punktes) mit einem neuen Wert ersetzt. In der Originalpublikation von Savitzky und Golay (1964) wurde gezeigt, dass ein gleitender Polynom-Fit numerisch auf die gleiche Weise wie ein gewichteter gleitender Mittelwert gehandhabt werden kann, weil die Koeffizienten des Glättungsverfahrens für alle Werte konstant sind. Deshalb ist das Glättungsverfahren von Savitzky-Golay sehr einfach anzuwenden. Derselbe Algorithmus kann für die Berechnung der Glättung und für die Berechnung der Ableitungen der gemessenen, zurückgestreuten Lichtimpulse des Ozon-Lidars verwendet werden. Unter Verwendung der SavGol-Methode ergibt sich der vertikale Unterdrückungskoeffizient zu

$$K_{ver} = \frac{\sqrt{12}}{d \cdot \sqrt{N^3}} \quad (3.3)$$

Dabei ist N die Anzahl der im Glättungsfenster befindlichen Nachbarpunkte bzw. Rangebins und d die Breite bzw. Länge [m] eines solchen Rangebins. Neben der im Vergleich zu anderen numerischen Ableitungsalgorithmen besseren Rauschunterdrückung hat die Savgol-Methode einen weiteren Vorteil. Bei der Polynomianpassung mit $2n+1$ Punkten, wird die Anpassung so gewichtet, dass die äußeren Punkte weniger zur Geltung kommen. Dies ermöglicht sogar das Auflösen von Strukturen, die unterhalb des Mittelungsbereiches liegen. Umgerechnet in korrespondierende horizontale Auflösung (Δx) und vertikale Auflösung (Δr) ergibt sich folgende Proportionalität:

$$\Delta N^{O_3} \propto (\Delta r)^{-\frac{3}{2}} \cdot (\Delta x)^{-\frac{1}{2}} \quad (3.4)$$

²eng.: transimpedance amplifier, kurz: TIA

Demnach ist vertikales Mitteln effizienter als horizontales Mitteln. Jedoch führt Mitteln zu einer Reduktion der räumlichen Auflösung, und somit ist es besonders wichtig, zwischen räumlicher Auflösung und Präzision der Messung abzuwägen.

Ziel ist es, mit der Hilfe der numerischen Simulation die DIAL-Wellenlängen so auszuwählen, dass die Messabweichungen zwischen dem A-priori- und A-posteriori-Ozonprofil möglichst klein werden.

3.2 Vergleich verschiedener Wellenlängenpaare

Zweck der numerischen Simulation war die Ermittlung derjenigen DIAL-Wellenlängen, welche zu höchster Auflösung und kleinstmöglichen Messfehlern führen. Aus den von Weitkamp (2005), Goers (1995) und Remsberg und Gordley (1978) vorgeschlagenen Auswahlkriterien und den durchgeführten Simulationen ergab sich folgende Erkenntnis: Für die Wahl der DIAL-Wellenlängen ist die Analyse des statistischen Fehlers das primäre Kriterium. Dieser Fehler dominiert die DIAL-Messungen in der UTLS.

Auch aerosolbedingte systematische Fehler treten in der UTLS auf. Im Bereich der aerosolen Grenzschicht zwischen 0 und 2 km Höhe sind atmosphärische Partikel am häufigsten vorhanden und besitzen dort die größte Variabilität. In der freien Troposphäre (etwa 3-9 km Höhe) nimmt die Aerosolkonzentration rapide ab. Nur Zirrus-Bewölkung, Vulkanasche, Waldbrandaerosol etc. könnte die DIAL-Messung in der UTLS beeinträchtigen. Die dadurch entstehende charakteristische Messabweichung lässt sich leicht an den Profilen erkennen, sodass die durch Aerosol belasteten Höhenbereiche verworfen oder durch die in Kap. 2.2 beschriebene Klett-Inversion korrigiert bzw. mittels Dual-DIAL-Verfahren umgangen werden können. Daher ist dieser Fehler als sekundär zu betrachten.

Systematische Fehler, bedingt durch Querempfindlichkeiten zu anderen in der Atmosphäre enthaltenen Spurengasen die eine vergleichbar große differentielle Absorption hervorrufen, sind in der UTLS in der Regel zu vernachlässigen. Nach Proffitt und Langford (1997) haben Ozon-DIAL-Messungen Querempfindlichkeiten zu SO_2 , NO_2 , HNO_3 , CH_2O , O_2 und H_2O . Jedoch nur Schwefeldioxid und Stickstoffdioxid können eine genügend hohe optische Dicke erreichen, um eine Querempfindlichkeit zu bewirken. Schwefeldioxid entsteht hauptsächlich bei der Verbrennung von Kraftstoffen, und dessen Konzentration ist stark von der Kraftstoffsorte abhängig. In urbanen Gebieten, in denen mit Schwefel hochangereicherte Steinkohle verwendet wird, sind SO_2 -Konzentrationen von 50 nmol/mol nicht ungewöhnlich. Um die SO_2 -Einflüsse auf die O_3 -Messung zu reduzieren, müssen die DIAL-Wellenlängen so gewählt werden, dass der differentielle SO_2 -Absorptionsquerschnitt $\Delta\sigma^{\text{SO}_2}$ möglichst gering wird (vgl. Abb. 3.3). Flugzeuggetragenen In-situ-Messungen zufolge (Fiedler, 2007) verringert sich der SO_2 -Gehalt in der oberen Troposphäre so stark, dass der SO_2 -Korrekturterm in diesem Bereich und in der unteren Stratosphäre vernachlässigbar wird, weshalb nicht auf die Reduktion des SO_2 -Korrekturterms geachtet werden muss. Die SO_2 -Unempfindlichkeit in großen Höhen wird auch von Megie et al. (1985) bestätigt. Nur im Falle von Vulkanausbrüchen wie dem des Eyjafjallajökull im Frühjahr 2010 können große Mengen an SO_2 in die freie und obere Troposphäre und untere Stratosphäre gelangen. Bedingt durch den Vulkanausbruch in Island wurden beispielsweise im April 2010 auf der Zugspitze stark erhöhte SO_2 -Konzentrationen registriert, die Spitzenwerten von bis zu 3,6 nmol/mol aufwiesen (Gilge und Plass-Dülmer, 2010). Bei der Wahl des ungünstigsten DIAL-Wellenpaares und damit maximaler differentieller SO_2 -Absorption würde ein O_3 -Fehler von 30 % und bei einer geeigneten DIAL-Wellenlängen-Wahl ein Fehler von 3,6 % entstehen.

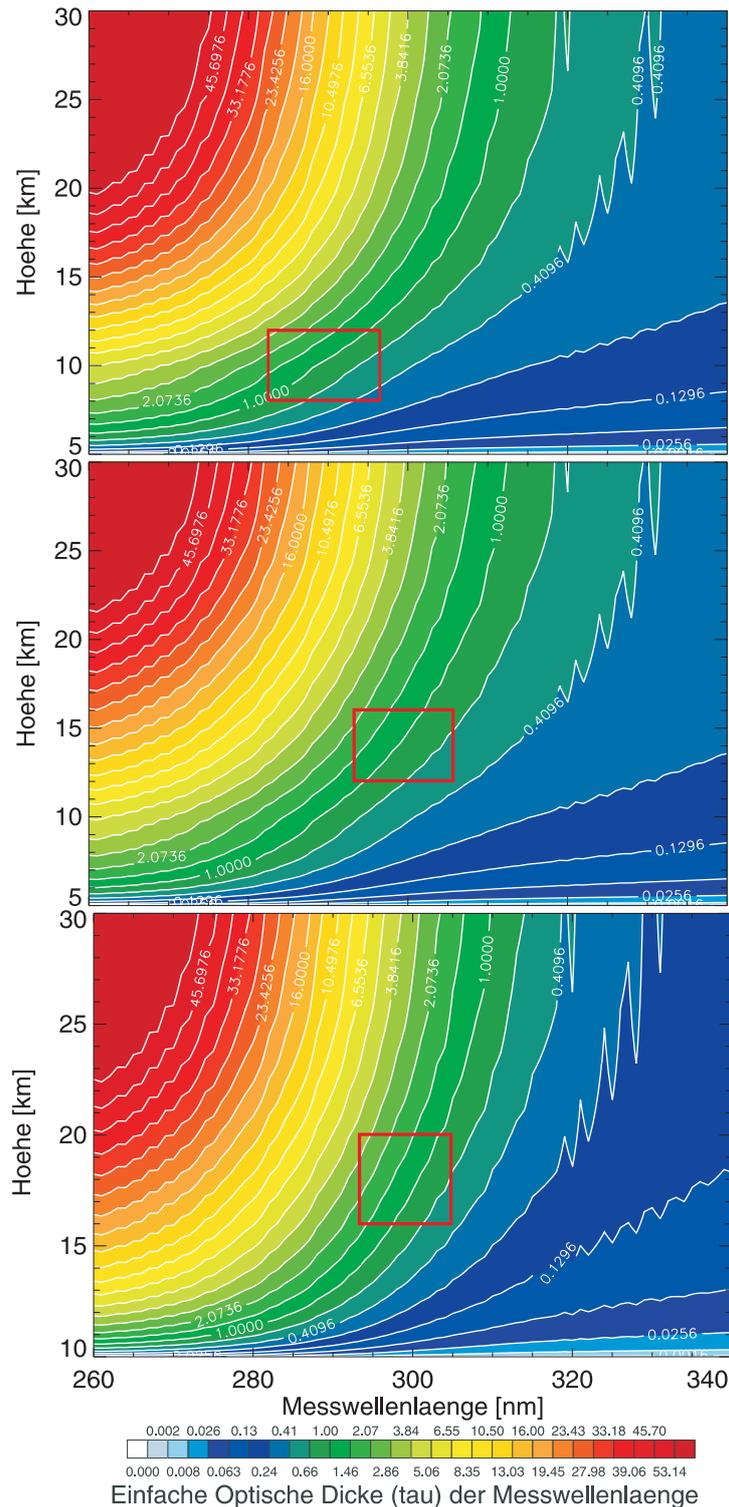


Abbildung 3.4: Einfache optische Dicke für Licht verschiedener Wellenlängen, das vertikal nach oben emittiert wird. Die obere Grafik gilt unter Annahme eines polaren, die mittlere unter Annahme eines Mittleren-Breiten- und die untere unter Annahme eines tropischen Ozonprofils. Um den statistischen Fehler gering zu halten, sollte die optische Dicke den Wert 1.1 annehmen, weshalb die Wellenlängen im grünen Feld anzustreben sind.

Die Querempfindlichkeit zu SO_2 kann deswegen so einfach reduziert werden, weil das SO_2 -Absorptionsspektrum im ultravioletten Spektralbereich mit einer Periode von $\sim 2,5$ nm oszilliert

(vgl. Abb. 3.3). Die O₃-DIAL-Wellenlängen können durch eine kleine Wellenlängenverschiebung von weniger als 1 nm so angepasst werden, dass die differentielle SO₂-Absorption möglichst klein wird ($\Delta\sigma_{SO_2}/\Delta\sigma_{O_3} \ll 1$). Die Verschiebungen der Messwellenlängen weg von den optimalen O₃-DIAL-Wellenlängen hat keinen großen Einfluss auf die O₃-Sondierung, wie sich weiter unten zeigen wird. Analog zu SO₂ ist NO₂ am häufigsten mit einigen nmol/mol in der unteren Troposphäre vorhanden (Heland et al., 2002). In der freien Troposphäre und unteren Stratosphäre sinkt die Anzahldichte auf einige 100 $\mu\text{mol/mol}$ ab. Bei einer hypothetisch konstanten NO₂-Schicht mit einer Anzahldichte von 1 nmol/mol ab 6 km Höhe aufwärts würde der größte Messfehler bei 6 km Höhe bei etwa -0,62 % liegen.

Nach Gl. 3.1 ist der statistische Fehler neben dem SNR auch eine Funktion der differentiellen Absorption. Je größer die differentielle Absorption ist, desto kleiner wird der statistische Fehler. Um eine genügend hohe differentielle Absorption zu erhalten, sollten sich die Absorptionsquerschnitte beider DIAL-Wellenlängen daher um mindestens eine Größenordnung unterscheiden. Dies ist in der Hartley-Bande des Ozonabsorptionsquerschnitts (220-310 nm) für einen Abstand von ~ 10 nm zwischen „Online“- und „Offline“-Wellenlänge gegeben (siehe Abb. 3.3). Daher wird im Folgenden $\Delta\lambda \sim 10$ nm angenommen.

Entscheidend ist zudem die optische Dicke der „Online“-Wellenlänge. Ist die optische Dicke des gesamten Weges hin zum Messvolumen zu groß ($\tau_{\lambda_{\text{on}}} \geq 4$), wird das zurückgestreute Signal der Messwellenlänge zu schwach, um es detektieren zu können. Ist die optische Dicke hingegen zu klein ($\tau_{\lambda_{\text{on}}} \leq 0,02$), so fällt die Signaldifferenz zwischen Mess- und Referenzstrahlung zu gering aus. In beiden Fällen steigt der statistische Fehler, welcher nur durch Mitteln reduziert werden kann, worunter die räumliche Auflösung leidet. Durch Extremwertbetrachtung ergibt sich nach Remsberg und Gordley (1978) für die einfache optische Dicke $\tau_{\lambda_{\text{on}}} \approx 1,1$ ein minimaler statistischer Fehler. In Abb. 3.4 ist die einfache optische Dicke als Funktion des Abstandes zum Lidar für unterschiedliche „Online“-Wellenlängen und unterschiedliche geographische Breitenbereiche farblich dargestellt. Es sind die Messwellenlängen im grünen Feld anzustreben.

Die UTLS erfasst den Bereich ober- und unterhalb der Tropopause und wurde hier ausgehend von Abb. 1.1 wie folgt festgelegt: in den Tropen zwischen 16-20 km Höhe, in den mittleren Breiten zwischen 8-14 km Höhe und an den Polen zwischen 6 - 12 km Höhe. Um den Einfluss der unterschiedlichen Höhenbereiche bei der Wahl der Wellenlängen zu berücksichtigen, wurde die einfache optische Dicke für alle drei Breitenbereiche (polar: oben, mittlere Breiten: Mitte, Tropen: unten) aufgetragen. Die einfachen optischen Dicken gelten dabei für Licht, das in den polaren und mittleren Breiten von 5 km und in den Tropen von 10 km aus nach oben emittiert wird. Diese Anordnung wurde so gewählt, dass in den jeweiligen Breitenbereichen der Tropopausenbereich von den Messwellenlängen abgedeckt werden kann. In den drei Grafiken sind rote Vierecke eingezeichnet. Die obere und untere Kante geben die Ober- und Untergrenze an der UTLS an. Daraus ergeben sich die linke und rechte Kante des Vierecks. Diese Kanten wiederum geben den Bereich an, in welchem nach Remsberg und Gordley (1978) die „Online“-Wellenlänge liegen sollte. Ein gemeinsamer Überlapp für alle Breitenbereiche ergibt sich für den Bereich 294-297 nm.

Mit Hilfe der numerischen Simulation kann der statistische Fehler für ein bestimmtes Szenario direkt berechnet werden. Er ist für verschiedene Wellenlängenpaare in Abb. 3.5 dargestellt. Aus durchgeführten Simulationen ergab sich, dass ein Wellenlängenabstand von kleiner 10 nm einen größeren statistischen Fehler hervorruft, da die differenzielle O₃-Absorption und damit die differenzielle O₃-Extinktion zu gering wird. Dahingegen ist die Verbesserung des statistischen Fehlers für einen Wellenlängenabstand von größer 10 nm vernachlässigbar. Daher ist die Wahl von $\Delta\lambda = 10$ nm für die DIAL-Messungen geeignet, weshalb in der Legende sind nur die „Online“-Wellenlängen angegeben.

Bei den Simulationen wurde eine vertikale Auflösung von 300 m und eine zeitliche (horizontale) Auflösung von 68 s (15 km horizontal) gewählt. Die Unstetigkeiten in den statistischen Fehlerprofilen

rühren von den a priori eingelesenen Ozonprofilen (vgl. Abb. 3.2). Aus den in Tab. 3.1 gestellten Zielanforderungen an O₃-Tracer-Messungen geht hervor, dass die Ozonprofile mit einer Genauigkeit von 10 % beobachtet werden sollten.

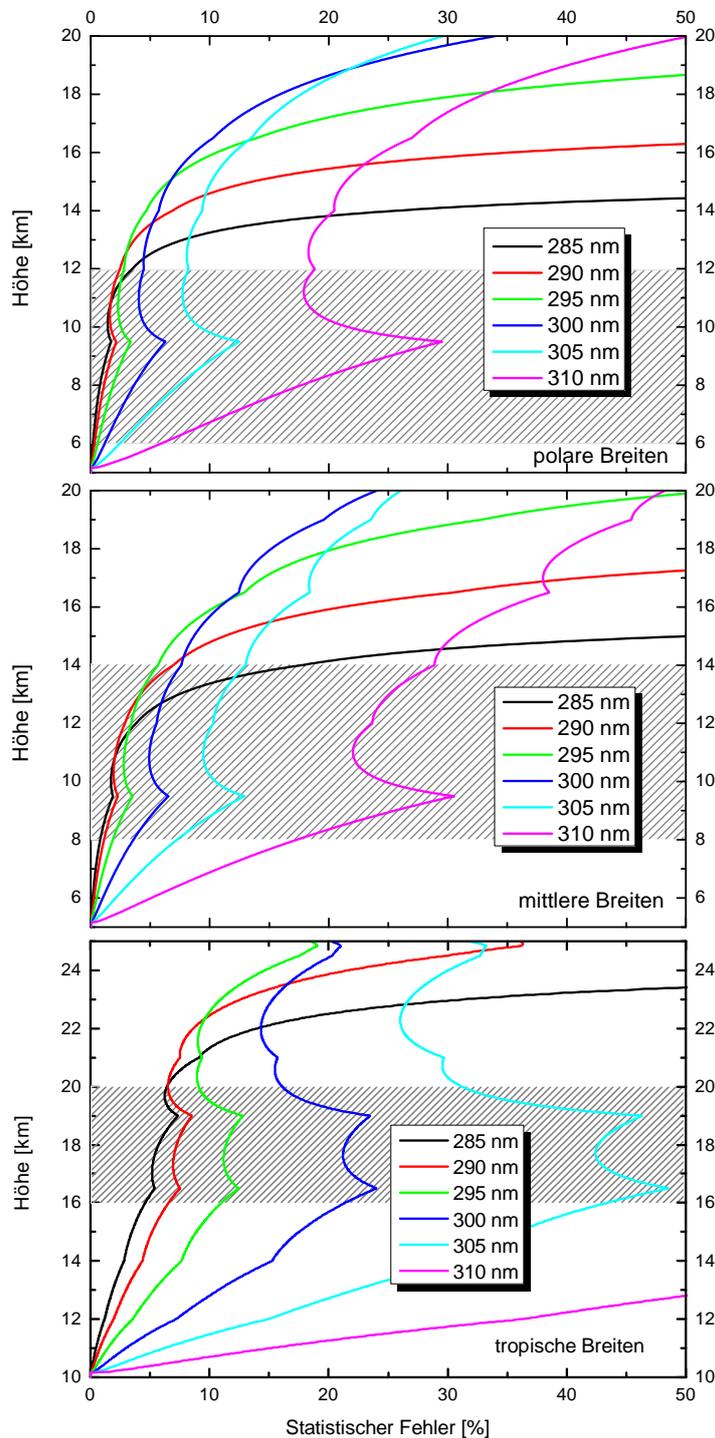


Abbildung 3.5: Simulierter statistischer Fehler in polarer (oben), mittlerer (Mitte) und tropischer (unten) Breite für verschiedene DIAL-Wellenlängenpaare. Die Messanordnung entspricht der aus Abb. 3.4. Angegeben sind die „Online“-Wellenlängen, die entsprechenden „Offline“-Wellenlängen sind zu den „Online“-Wellenlängen um 10 nm rotverschoben. Die schraffierten Bereiche sollen die Bereiche der UTLS andeuten.

In den polaren Breiten ist diese Anforderung für „Online“-Wellenlängen von 285-305 nm erfüllt.

In den mittleren Breiten gilt dies für 295-300 nm und in den tropischen Breiten für 285-295 nm. Anhand von Abb. 3.5 lässt sich erkennen, dass jedoch eine Abweichung von den optimalen Wellenlängen um einige Nanometer keine große Auswirkungen hat. Aus dem Überlapp zwischen den Wellenlängen der drei Breitenbereiche ergibt sich die optimale „Online“-Wellenlänge zu 295 nm. Dieses Ergebnis stimmt mit dem durch die optischen Dicken festgelegten optimalen Wellenlängenbereich überein. Somit soll das Wellenlängenpaar mit $\lambda_{on} = 295$ nm und $\lambda_{off} = 305$ nm angestrebt werden.

Weiter kann aus den Simulationen Folgendes abgeleitet werden: Je kleiner die Wellenlängen des DIAL Paares sind, desto geringer wird der statistische Fehler und desto geringer wird die Messreichweite. Dahingegen ruft ein längerwelliges DIAL-Paar einen größeren statistischen Fehler hervor, deckt aber auch eine größere Messreichweite ab (vgl. Abb. 3.5).

Um die Zielanforderungen für Austauschprozesse innerhalb der UTLS aus Tab. 3.1 erfüllen zu können, sollte das DIAL-Wellenlängenpaar den numerischen Simulationen zufolge innerhalb des folgenden Rahmens bleiben:

$$\begin{aligned} \lambda_{online} &= 300 \text{ nm} \pm x && \text{mit } x \in \{0 \text{ nm}; 5 \text{ nm}\} \\ \lambda_{offline} &= \lambda_{online} + 10 \text{ nm} \pm y && \text{mit } y \in \{0 \text{ nm}; 5 \text{ nm}\} \end{aligned} \quad (3.5)$$

Was die Festlegung der Wellenlängenbereiche bei der DIAL-Wellenlängen betrifft, wurde Wert auf eine große Reichweite gelegt, um vom Flugzeug aus mehrere Kilometer in die Stratosphäre hineinmessen zu können.

3.3 Solarer Hintergrund

In der Praxis sind die optischen Signalen tagsüber von der solaren Hintergrundstrahlung überlagert. Diese solare Hintergrundleistung wird bei jedem DIAL-Messvorgang aufgezeichnet, sodass in der Auswertung die optischen Signale von der Solarstrahlung bereinigt werden können. Der Rauschanteil der solaren Hintergrundstrahlung lässt sich jedoch nicht aus den optischen Signalen beseitigen und muss daher in dem SNR, also dem statistischen Fehler, berücksichtigt werden.

Um den statistischen Fehler für eine Messung bei Tageslicht abschätzen zu können, wurde das frei zugängliche Strahlungstransferprogramm „libRadtran“ (Mayer und Kylling, 2005) Version 1.3 verwendet. Es handelt sich hierbei um eine Sammlung von Programmen, Routinen und Datenbanken zur Berechnung des Strahlungstransfers in beliebiger Erdatmosphäre. Die für die DIAL-Simulation benötigte Größe ist die solare spektrale Radianz ($L_{background}$ [$W/m^2/nm/sr$]), aus welcher mit dem halben Detektoröffnungswinkel Θ in rad , der Teleskopfläche A in m^2 , der Teleskoptransmission τ_t und einem geeigneten Tageslichtfilter τ_f die solare Hintergrundleistung P_b in W auf dem Detektor berechnet werden

$$P_b = L_{atm} \cdot A \cdot 2\pi \cdot (1 - \cos(\Theta)) \cdot \tau_t \cdot \tau_f \quad . \quad (3.6)$$

Das Transmissionsspektrum des hypothetisch idealen Filters besitzt maximale Transmission für die Messwellenlängen und keine Transmission für alle restlichen Wellenlängen:

$$\begin{aligned} T_{ideal}(\lambda) &= 1 && \text{für } \lambda = \lambda_{online}, \lambda_{offline} \\ T_{ideal}(\lambda) &= 0 && \text{sonst} \end{aligned} \quad (3.7)$$

Ein Filtersystem, welches dem idealen Filter am nächsten kommen würde, besteht aus einem dichroitischen Strahlteiler und zwei Schmalbandfiltern mit Spitzentransmissionen bei den DIAL-Wellenlängen. Mit Hilfe des dichroitischen Strahlteilers könnte beispielsweise Licht der Wellenlänge kleiner 307 nm von Licht der Wellenlänge größer 307 nm räumlich voneinander getrennt werden. Jeder Lichtstrahl könnte dann den entsprechenden Schmalbandfilter durchlaufen, sodass „Online“- und „Offline“-Strahlung unabhängig voneinander detektiert werden könnte.

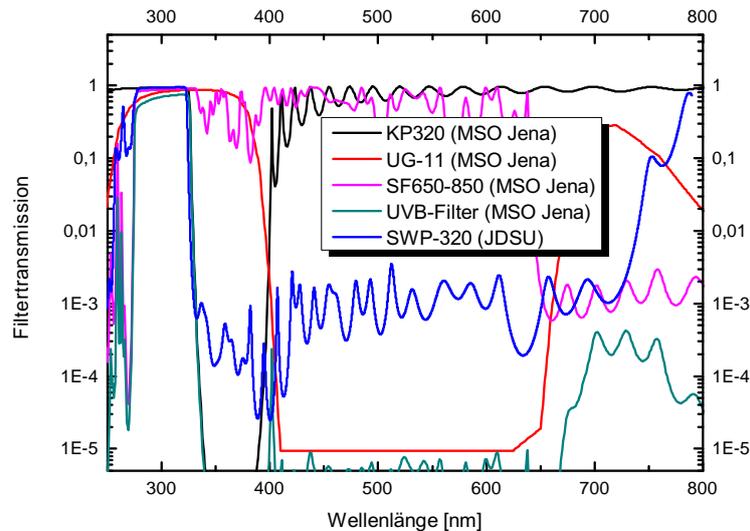


Abbildung 3.6: Transmissionsspektren der verschiedenen in Frage kommenden Filter im Vergleich, benannt nach ihrer Artikelnummer, Marke in Klammern.

Für das beschriebene Filtersystem würden somit zwei Detektionskanäle für Ozon benötigt werden. Nachteilig an zwei getrennten Empfangskanälen für „Online“- und „Offline“-Strahlung ist jedoch, dass eine Dejustage des Überlapps eines Kanals zu einem systematischen Messfehler in der DIAL-Messung führt. Dies ist unter der Verwendung von nur einem Kanal für beide Wellenlängen nicht möglich. Aus Platzgründen ist in der AMALFI-Detektorbox auch nur ein Kanal zur Analyse der Ozon-DIAL-Strahlen vorgesehen. Diese Detektorbox ist bereits für HALO zugelassen, und um weitere aufwändige Zulassungsprozeduren zu umgehen, wurde ein alternatives, leichter realisierbares Filtersystem verwendet.

Die DIAL-Messung mit nur einem Detektionskanal kann nur mit einem Bandpassfilter realisiert werden, welcher in einem bestimmten Wellenlängenbereich beide DIAL-Wellenlängen passieren lässt. Obwohl Reflexionsfilter als Tageslichtfilter für diese Anwendung besser geeignet sind, muss, ebenfalls aus Platzgründen, ein Transmissionsfilter verwendet werden.

Eine Marktrecherche erbrachte fünf mögliche Transmissionsfilter. Dabei wurde nach Filtern mit möglichst hoher Transmission in dem angestrebten DIAL-Wellenlängenbereich 295-315 nm und maximaler Unterdrückung längerer Wellenlängen gesucht. Wegen der Ozonabsorption in der Stratosphäre ist solare Hintergrundstrahlung unterhalb des in Gl. 3.7 festgelegten Bereichs vernachlässigbar. Daher spielt das Verhalten der Filter bei kleineren Wellenlängen keine Rolle. In Abb. 3.6 sind die Transmissionsspektren der in Frage kommenden Tageslichtfilter im Vergleich aufgetragen.

Wichtig bei der Wahl des Filters ist einerseits eine möglichst hohe Transmission der DIAL-Wellenlängen und andererseits eine ausreichende Unterdrückung ($\leq 10^{-3}$) längerer Wellenlängen. In Tab. 3.3 sind die wichtigsten Filterparameter einander gegenübergestellt.

Die Unterdrückung des UG-11-Filters beginnt erst bei 380 nm, sodass mit diesem Filter lediglich eine Unterdrückung der mit Hilfe von LibRadtran berechneten solaren Hintergrundleistung von 28,7 % erreicht wird (siehe Angaben zur Berechnung mit LibRadtran weiter unten). Mit dieser Unterdrückung übersteigt der statistische Fehler bereits in 2 km Abstand die 10 % Marke mit einer Fehlerzunahme von etwa 10 % pro km. Daher ist der UG-11-Filter für diese Anwendung ungeeignet. Der SF650-850 lässt sogar Licht bis zu einer Wellenlänge von 650 nm durch und ist damit noch

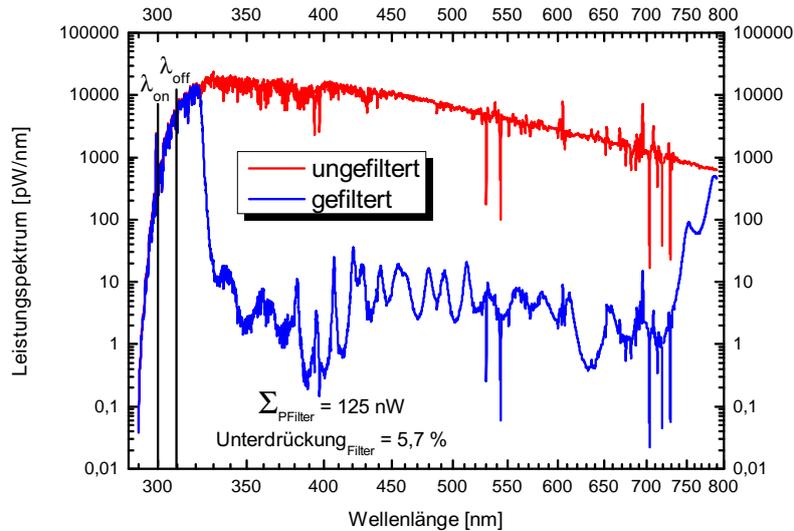


Abbildung 3.7: Solares Leistungsspektrum, das in 5 km Höhe für einen Sonnenzenithwinkel von 20° und eine Bodenbedo von 1 in Blickrichtung Zenith auf den Detektor fällt. In rot ist das ungefilterte Spektrum und in blau das mit dem SWP-320 gefilterte Spektrum dargestellt.

Tabelle 3.3: Gegenüberstellung der wichtigsten Parameter der möglichen Tageslichtfilter. Angegeben ist die maximale Transmission (T_{max}), die Unterdrückung (T_{min}) und die Wellenlänge (λ_{cutoff}), ab welcher die Unterdrückung einsetzt. Zusätzlich ist die Unterdrückung des Sonnenlichtes ($T_{Sonnenlicht}$), berechnet mit LibRadtran (vgl. Abb. 3.7), angegeben.

Filter: Artikelnummer (Marke)	T_{max}	λ_{cutoff}	T_{min}	$T_{Sonnenlicht}$
KP320 (MSO Jena)	0,93	320 nm	10^{-7}	43,7 %
UG-11 (MSO Jena)	0,88	380 nm	10^{-5}	28,7 %
SF650-850 (MSO Jena)	0,9	650 nm	10^{-3}	59 %
UVB-Filter (MSO Jena)	0,75	320 nm	10^{-9} - 10^{-5}	5,4 %
SWP-320 (JDSU)	0,95	320 nm	10^{-3}	5,7 %

ungeeigneter als der UG-11-Filter. Der KP320 verfügt über hohe Transmissionen im Bereich von 300 nm und blockt Licht ab einer Wellenlänge von größer 320 nm mit einer Unterdrückung von 10^{-7} . Jedoch lässt dieser Filter Licht der Wellenlänge ab größer 400 nm wieder transmittieren und ist daher ebenfalls ungeeignet.

Die beste Unterdrückung des Sonnenlichts liefern der SWP-320- und der UVB-Filter mit $\sim 5,5$ %. Aufgrund der hohen Transmission von 95 % im Bereich der DIAL-Wellenlängen wurde sich für den SWP-320 entschieden.

Für ein Szenario mit einer Bodenbedo von 1 und einem Sonnenzenithwinkel von 20° ergibt sich in einer Flughöhe von 5 km in Blickrichtung Zenith das in Abb. 3.7 dargestellte Leistungsspektrum auf dem Detektor. Das gewählte Szenario entspricht damit dem in Abb. 3.5 verwendeten Szenario, welches zur Berechnung des statistischen Fehlers in den mittleren Breiten verwendet wurde.

Die gesamte solare Leistung, die durch den SWP-320-Filter auf den Detektor fällt, beträgt 125 nW, womit der Filter eine Unterdrückung über den gesamten Spektralbereich von 5,7 % des Tageslichtes besitzt. Aus den Simulationen mit „libRadtran“ ging hervor, dass aufgrund der Reflexion am Boden die solare Hintergrundleistung in bei einer nach unten schauenden Messanordnung um eine Größenordnung größer ist (1,8 nW) als bei einer nach oben schauenden Messanordnung. Mit einer nach unten schauenden Anordnung ergibt sich in einer Flughöhe von 10 km mit dem SWP-320-Filter eine Unterdrückung des Tageslichtes von 2,9 %, was zu einer Messreichweite von knapp 3

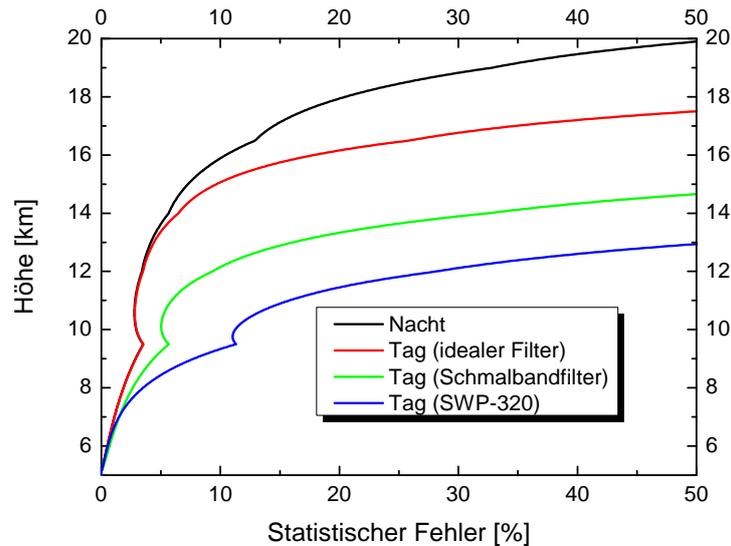


Abbildung 3.8: Vergleich des statistischen Fehlers im Falle einer Nacht- und einer Tagesmessung. Zusätzlich zu dem ausgewählten SWP-320-Filter ist der Fehler aufgetragen, der aus der Verwendung eines hypothetischen Schmalbandfiltersystems resultiert.

km führt. Der statistische Fehler ist in diesem Bereich kleiner 10 %. Dieses Ergebnis gilt für eine wolkenfreie Atmosphäre. Im Falle von Wolken führt das Sonnenlicht bei einer nach unten schauenden Anordnung an der Wolkenobergrenze zu hohen Reflexionen, sodass in diesem Fall der Detektor ausgeschaltet werden muss, um diesen vor Beschädigung zu schützen.

Die typische spektrale Empfindlichkeit des Detektors kann dem Datenblatt des PMT R7400U-04 der Marke Hamamatsu (http://sales.hamamatsu.com/assets/pdf/parts_R/R7400U_TP_MH1204E07.pdf [Stand 2011-10-18]) entnommen werden. Im Wellenlängenbereich um 300 nm besitzt der Detektor fast die höchste spektrale Empfindlichkeit, weshalb dieser Wert der Einfachheit halber als Konstante für alle Wellenlängen angenommen wurde. Mit der solaren Hintergrundleistung kann die Berechnung des statistischen Fehlers angetrieben werden.

In Abb. 3.8 sind der statistische Fehler für Tages- und Nachtmessungen im Vergleich aufgetragen. Durch die solare Hintergrundstrahlung nimmt der statistische Fehler stark zu. Mit der Anforderung, dass die Bestimmung der Ozonkonzentration bis zu einem statistischen Fehler von 10 % noch ausreichend ist, ergibt sich mit dem SWP-320-Filter tagsüber eine Messabdeckung von über 4 km.

Eine größere Messabdeckung kann, wie in Abb. 3.8 dargestellt, nur mit dem beschriebenen Schmalbandfiltersystem erreicht werden. Dazu wurden die beiden schmalbandigen Filter mit den realistischen Werten einer Bandbreite von 1 nm, einer Spitzentransmission von 50 % und einer Blockung von 10^{-3} modelliert. Mit dem Schmalbandfiltersystem würde über den ganzen Spektralbereich eine Unterdrückung von 0,15 % des Tageslichts erreicht werden, woraus tagsüber eine Messabdeckung von über 7 km resultieren würde. Zum Vergleich ist der statistische Fehler des idealen Filters dargestellt. Dieser wurde mit einer Bandbreite von 0,03 nm (welches der Bandbreite der DIAL-Wellenlängen entspricht), einer Spitzentransmission von 1 und einer Unterdrückung von 10^{-8} modelliert. Somit würde sich im besten Fall mit dem idealen Filter eine Unterdrückung von 5 % des Tageslichts ergeben.

Für das vorgeschlagene Schmalbandfiltersystem reicht jedoch der Platz in der AMALFI-Detektorbox nicht aus. Daher stellt unter den gegebenen Randbedingungen der SWP-320-Filter die beste Wahl dar.

3.4 Aerosolfehler

Bedingt durch den kontinuierlichen Ozon-Absorptionsquerschnitt (vgl. Abb. 3.3) im ultravioletten Spektralbereich werden große Abstände zwischen „Online“- und „Offline“-Wellenlänge benötigt, um eine genügend große differentielle Ozonextinktion zu erhalten. In Bezug auf den statistischen Fehler ist ein Wellenlängenabstand von mindestens 10 nm für Ozonmessungen in der UTLS im Wellenlängenbereich um 295 nm optimal (vgl. Kap. 3.2). Die vereinfachte DIAL-Gleichung (vgl. 2.11) ist jedoch nur dann gültig, wenn die beiden Messwellenlängen mit Ausnahme des zu messenden Spurengases von der Atmosphäre gleichmäßig beeinflusst werden. Diese Annahme ist bei einem Wellenlängenabstand von 10 nm jedoch nicht mehr zutreffend, weshalb die Korrekturterme (2.12-2.15) nicht vernachlässigt werden können und in diesem Abschnitt diskutiert werden.

Um den Einfluss von Aerosolen auf die Messung abschätzen zu können, wurden in der numerischen Simulation die aerosolen Rückstreukoeffizienten a priori berechnet. Dazu wurden in einem ersten Schritt die von Vaughan et al. (1998) vorgeschlagenen aerosolen Rückstreuprofile verwendet. Es kann dabei zwischen fünf unterschiedlich stark durch Aerosole belasteten

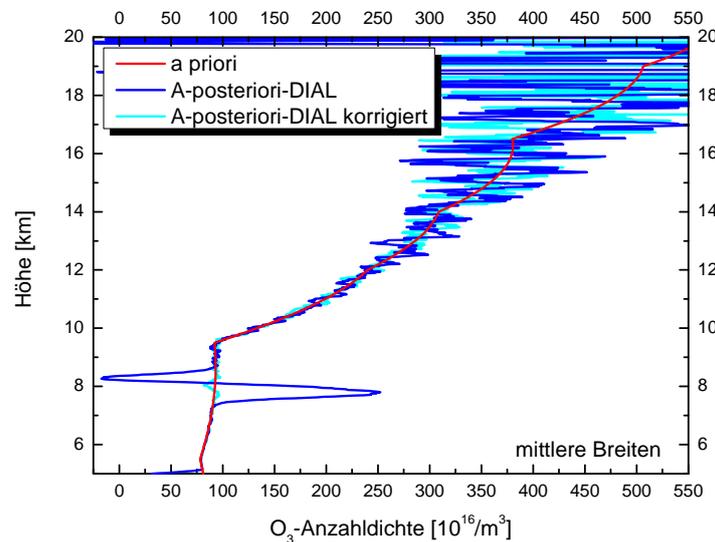


Abbildung 3.9: Untersuchung des Einflusses einer Aerosolschicht in 8 km Höhe auf die O₃-DIAL-Messung. In rot ist das a priori verwendete O₃-Profil dargestellt. In dunkelblau ist das A-posteriori-O₃-Profil, berechnet mit der vereinfachten DIAL-Gleichung, aufgetragen. Unter Verwendung der Klett-Inversion kann der systematische Fehler bei der O₃-Bestimmung korrigiert werden (hellblau).

Rückstreuprofilen gewählt werden. Das sind: „Lower Decile“, „Lower Quartile“, „Median“, „Higher Quartile“ und „Higher Decile“. Für die Simulationen wurde das Aerosol-Rückstreukoeffizientenprofil einer mittleren Aerosolbelastung („Median“) verwendet. Die aerosolen Rückstreukoeffizienten gelten für eine Wellenlänge von 1064 nm und können analog zu Kap. 2.1 über eine Exponentialabhängigkeit auf die beiden DIAL-Wellenlängen skaliert werden. Dieser Angströmxponent liegt zwischen 0 und 4 (vgl. Kap. 2.1). Für die Simulation wurde der mittlere Wert von $\delta = 2$ verwendet. Typischerweise liegt nach Weitkamp (2005) das aerosole Lidarverhältnis je nach Aerosoltyp im Bereich zwischen 0 und 100 sr. Für die vorliegenden Simulationen wurde das Lidarverhältnis auf $S = \alpha_{Mie}/\beta_{Mie} = 50$ sr festgelegt. Mit dem Angströmxponenten und dem aerosolen Lidarverhältnis kann aus den in der Literatur angegebenen aerosolen Rückstreukoeffizientenprofilen auf die aerosolen Rückstre- und Extinktionsprofile der DIAL-Wellenlängen geschlossen werden.

Daraus wurden zunächst mit der vereinfachten DIAL-Gleichung (ohne Mie-Korrekturterme) das A-posteriori-Ozonprofil berechnet, um einen systematischen Aerosolfehler zu erzwingen. Die durch diese Aerosolbelastung bedingte Messabweichung zum A-priori-Profil ist kleiner 1 %. Demnach spielt

das Hintergrundaerosol einer mittleren Aerosolbelastung bei den DIAL-Messungen im Bereich der UTLS keine Rolle.

Zusätzlich zu dem Hintergrundaerosol wurde der Fall einer dünnen Aerosolschicht mit starken Rückstreuoeffizientengradienten wie beispielsweise im Fall von Zirrusbewölkung untersucht. Zirren können aufgrund ihrer im Vergleich zu anderen Wolkentypen geringen geometrischen Ausdehnung in der Regel gut von Lidarsignalen durchdrungen werden (Vaughan et al., 1998).

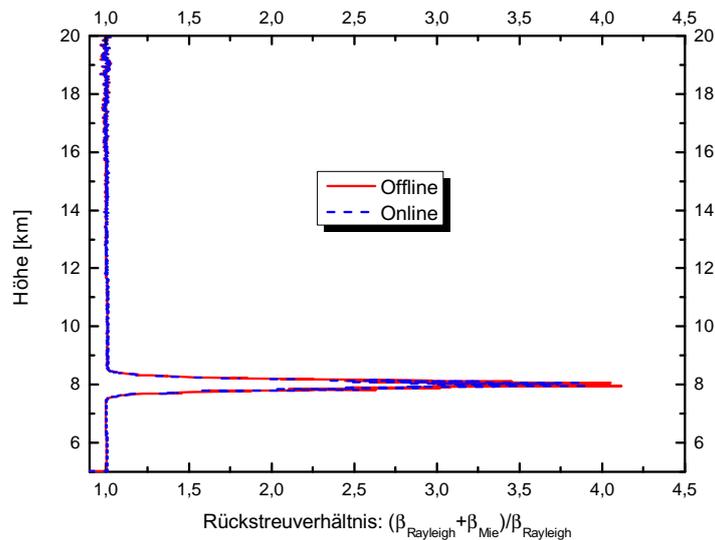


Abbildung 3.10: Aufgetragen ist das durch die Klett-Inversion erhaltene Rückstreuverhältnis beider DIAL-Wellenlängen.

Bei den Simulationen wird von einer dünnen gaußförmigen Zirruschicht mit einer Dicke von 300 m in einer Höhe von 8 km ausgegangen. Nach Vaughan et al. (1998) liegen die Rückstreuoeffizienten typischerweise bei $\beta_{Mie} = 10^{-6}$ /m/sr. Daher wurde das Maximum des Rückstreuoeffizientenprofils in 8 km Höhe auf diesen Wert festgelegt. Das mit der vereinfachten DIAL-Gleichung (ohne Mie-Korrekturterme) berechnete A-posteriori-Ozonprofil ist in Abb. 3.9 dunkelblau dargestellt.

Die Simulation wurde für die mittleren Breiten durchgeführt. In tropischen und hohen Breiten ergibt sich der gleiche Sachverhalt, der deshalb nicht extra diskutiert wird. Die dargestellte Messabweichung vom ursprünglichen Profil ist charakteristisch. Anhand von Gl. 2.12 zeigt sich, dass der starke aerosole Rückstreuoeffizientengradient (vgl. Abb. 3.10) im Bereich um 8 km Höhe für die Über- und Unterschwinger verantwortlich ist. Der Rückstreukorrekturterm dominiert dabei den Fehler über den Mie-Extinktionsterm.

Um den systematischen Aerosolfehler zu korrigieren, wurde die in Kap. 2.2 vorgestellte Klett-Inversion verwendet. Damit wurden zunächst die Rückstreuverhältnisse beider Wellenlängen berechnet (siehe Abb. 3.10). Wie erwartet fiel die Korrektur dann am besten aus, wenn die a priori festgelegten Parameter ($S = 50$ sr und $\delta = 2$) verwendet wurden. Das Ergebnis der Korrektur ist in Abb. 3.9 mit der hellblauen Kurve dargestellt. Somit kann unter der hier gegebenen Voraussetzung eines konstanten Angströmxponenten der aerosolbedingte systematische Fehler von über 100 % auf wenige Prozent reduziert werden. In der Literatur wurden mit dieser Methode erfolgreich aerosolbedingte systematische Fehler reduziert, sodass davon ausgegangen werden kann, dass die Voraussetzungen zur Anwendung der Klett-Korrektur von den meisten Aerosoltypen erfüllt werden.

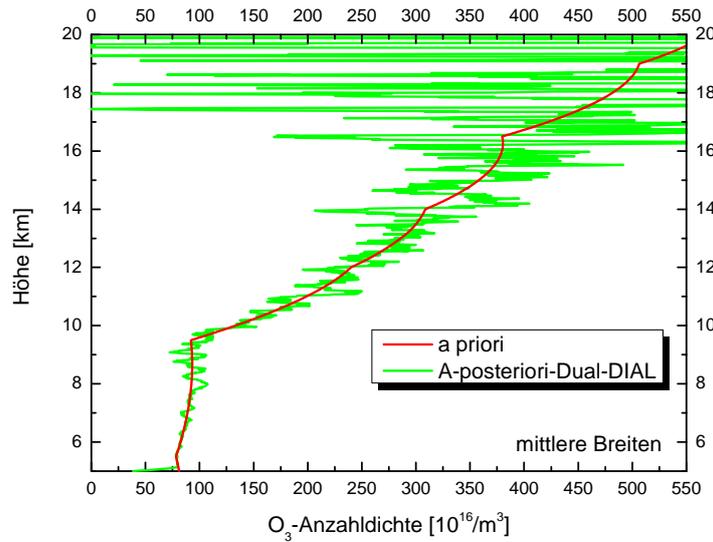


Abbildung 3.11: Dargestellt in grün ist die mit der Dual-DIAL-Methode nach Wang et al. (1997) berechnete O_3 -Dichte bei Anwesenheit einer Aerosolschicht, die dieselben Streueigenschaften aufweist, wie bei der Berechnung der Klett-Inversion (siehe oben).

Jedoch können Aerosolschichten, welche aus unterschiedlichen Schichten von Aerosoltypen verschiedener Streueigenschaften bestehen, zu einem höhenabhängigen Angströmkoefizienten führen. Im Gegensatz zu der Klett-Inversion ist die in Kap. 2.2 eingeführte Dual-DIAL-Methode nach Wang et al. (1997) sogar unempfindlich gegenüber einer derartigen Aerosolschicht. Voraussetzung für dieses Messprinzip ist ein Lasertransmitter, welcher drei unterschiedliche Wellenlängen so erzeugen kann, dass jeweils zwei Wellenlängen ein geeignetes DIAL-Paar aus dem in Gleichung 3.7 festgelegten Bereich mit genügend hoher differentieller Extinktion ergeben.

Um die Eigenschaften dieses Verfahrens zu untersuchen, wurden für die durchgeführten Simulationen die drei Wellenlängen $\lambda_{1,on} = 295$ nm, $\lambda_{1,off} = \lambda_{2,on} = 305$ nm und $\lambda_{2,off} = 315$ nm verwendet. Zur Berechnung wurden dieselben atmosphärischen Bedingungen wie der Berechnung mit Hilfe der Klett-Inversion verwendet. Das resultierende O_3 -Dichte-Profil im Falle der Dual-DIAL-Methode ist in Abb. 3.11 in grün aufgetragen. Der aerosolbedingte systematische Fehler in 8 km Höhe ist, ohne Annahmen über die optischen Streueigenschaften von Aerosolen zu verwenden, verschwunden.

Ein Nachteil der Dual-DIAL-Methode ist der statistische Fehler, der größer ist als bei der Verwendung der Standard-DIAL-Methode in Kombination mit der Klett-Inversion. Dafür gibt es zwei Ursachen. Zum einen werden für ein einzelnes mit der Dual-DIAL-Methode erstelltes O_3 -Profil drei aufeinanderfolgende Lichtimpulse benötigt, wohingegen mit dem Standard-DIAL-Verfahren nur zwei aufeinanderfolgende Lichtimpulse nötig sind. Dadurch verringert sich die mittlere Leistung „pro Profil“ um den Faktor $2/3$. Zum anderen ergibt sich analog zu Kap. 3.1 durch Gauß'sche Fehlerfortpflanzung der statistische Fehler der Dual-DIAL-Messung zu

$$\frac{\Delta N^{O_3}}{N^{O_3}}(r) = K_{ver} \cdot K_{hor} \cdot \frac{\sqrt{SNR_{\lambda_{1,on}}^{-2}(r) + (1+C) \cdot SNR_{\lambda_{1,off}}^{-2}(r) + C \cdot SNR_{\lambda_{2,off}}^{-2}(r)}}{2 \cdot N^{O_3}(r) \cdot (\sigma_{on}^{O_3}(r) - \sigma_{off}^{O_3}(r))} \quad (3.8)$$

Dabei ist C der in Kap. 2.2 definierte Faktor, mit welchem die Linearkombination beider DIAL-Gleichungen ausgeführt wird, und es gilt weiterhin $\lambda_{1,off} = \lambda_{2,on}$. Demnach gehen die SNR aller drei beteiligten Wellenlängen in die Berechnung des statistischen Fehlers ein. Die beiden statistischen Fehler sind im Vergleich in Abb. 3.12 dargestellt. Die Mittelungszeiten entsprechen denen aus Kap. 3.2, also 300 m vertikal und 15 km horizontal.

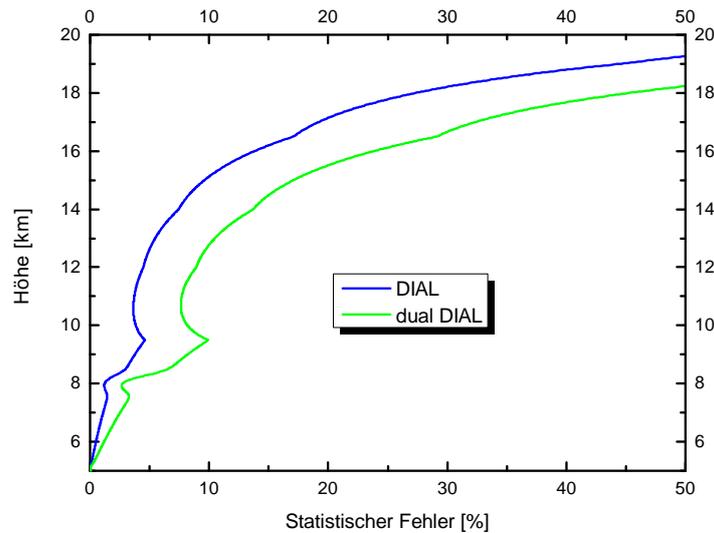


Abbildung 3.12: Vergleich der statistischen Fehler zwischen dem DIAL (blau)- und dem Dual-DIAL (grün)-Messverfahren.

Welche Methode sich besser zur Reduktion des systematischen Fehlers eignet, kommt also auf die Zusammensetzung der Aerosolschicht an. Für eine Aerosolschicht, welche aus einem einzelnen Aerosoltyp besteht, reicht das Klett-Inversionsverfahren aus. Im Falle einer Aerosolschicht mit unterschiedlichen, schlecht durchmischten Aerosoltypen, also unterschiedlichen Streueigenschaften und damit einem höhenabhängigen Angströmkoefizienten, ist das Dual-DIAL-Verfahren die bessere Alternative.

Also wäre es das Sinnvollste, eine Strahlquelle zu haben, mit der je nach Aerosolbelastung der optimale Fall gewählt werden kann. Was den aerosolen systematischen Fehler angeht, stellt eine durchstimmbare Strahlquelle die beste Wahl dar.

3.5 Marginale Fehlerquellen

Fehlerquellen mit Auswirkungen von kleiner 1 % sind im Vergleich zum statistischen Fehler vernachlässigbar. Fehler dieser Art wurden bei der Wahl der Messwellenlängen nicht berücksichtigt, werden aber der Vollständigkeit halber in diesem Abschnitt diskutiert. Diese Fehler sind:

- Bandbreite der DIAL-Strahlung
- Mehrfachstreuung
- Speckle-Rauschen
- Temperaturabhängigkeit des Ozonabsorptionsquerschnitts.

Durch die Absorption eines hochenergetischen Photons aus dem ultraviolettem Spektralbereich dissoziiert das Ozonmolekül, womit sich, wie in Abb. 3.3 dargestellt, ein Absorptionskontinuum im UV ergibt. Extrem kleine Frequenzbandbreiten, wie beispielsweise beim Wasserdampf-DIAL gefordert, sind beim Ozon-DIAL daher nicht notwendig. Damit der durch die Bandbreite bedingte Fehler bei der Ozon-DIAL-Messung einen Fehler von 1 % nicht übersteigt, darf die Linienbreite 0,05 nm nicht überschritten werden.

Die Lidargleichung beruht auf der Annahme von Einfachstreuung. Für eine Atmosphäre, die frei von optisch dicken Wolken ($\tau_{\text{Wolke}} > 0,9$) ist, bleibt der Anteil an Mehrfachstreuung des Signals

aufgrund des kleinen Teleskopöffnungswinkels im Millirad-Bereich im einstelligen Prozentbereich (Ruppersberg et al., 1997). Der dadurch vergrößerte Rückstreuoeffizient kürzt sich jedoch in der DIAL-Gleichung heraus und bereitet keine Probleme bei der Messgenauigkeit.

Durch die Kohärenz des emittierten Laserlichts entstehen bei der Lichtstreuung sogenannte Speckles. Die in der Atmosphäre befindlichen Streuteilchen streuen das Licht mit einer bestimmten Phasenlage relativ zur Phase der einfallenden Welle zurück. Aufgrund der räumlichen Verteilung der Streuteilchen schwankt diese Phase statistisch für verschiedene Streuteilchen, „sodass die rückgestreuten Wellen unterschiedliche Interferenzmuster mit verschiedenen Streifenabständen und unterschiedlicher Orientierung bilden, je nach Abstand und Winkellage der beteiligten Rückstreuungspunkte. In der Beobachtungsebene überlagern sich diese Interferenzmuster statistisch und bilden ein Specklemuster, das aus zufällig im Raum verteilten hellen und dunklen Bereichen besteht“ (Poprawe, 2005). Speckles führen zu großen statistischen Fluktuationen in den empfangenen Lidarsignalen. Das durch Speckles hervorgerufene SNR kann aber durch zeitliches Mitteln erhöht werden. Der DIAL-Studie (Wirth et al., 2001) zufolge liegt aufgrund der ohnehin schon notwendigen zeitlichen Mittelung in DIAL-Systemen der durch Speckles verursachte Fehler bei kleiner 1 % und ist damit vernachlässigbar.

In dem angestrebten Messbereich von etwa ± 5 km um die Tropopause kann eine Temperaturdifferenz von bis zu 60° C die Ozon-DIAL-Messung verfälschen. Obwohl die Temperaturabhängigkeit des Ozonquerschnitts in der Hartley- und Huggins-Bande gering ist, kann der Fehler, wie in Kap. 7.1 gezeigt werden wird, mehrere Prozent betragen. Daher sollte die Temperaturabhängigkeit nach jeder DIAL-Messung mit Hilfe von Sondenaufstiegen oder ECMWF-Daten in der Auswertung berücksichtigt werden, um den dadurch entstehenden systematischen Fehler zu reduzieren. Mit einer typischen Temperaturgenauigkeit von 2 K ergibt sich in der O_3 -DIAL Messung somit eine Fehlerobergrenze von 0,34 %.

Damit haben alle in diesem Abschnitt genannten Fehler einen nur geringen Einfluss auf die Qualität der Messung und werden daher nicht weiter betrachtet.

3.6 Anforderungen an den Lasertransmitter

Zweck der Simulation war die Ermittlung geeigneter Wellenlängen für die Messung von Ozon im Tropopausenbereich mittels Lidar vom Flugzeug aus. Dazu wurden als Zielanforderungen an das Ozon-Lidar die Werte aus Tab. 3.1 angesetzt.

Als Strahlparameter wurde bei den Simulationen eine Impulsenergie von 8 mJ bei einer Impulswiederholfrequenz von 100 Hz vorausgesetzt (vgl. Kap. 2.3.1). Insbesondere wird die hohe Auflösung in der UTLS durch die daraus resultierende hohe mittlere Leistung von knapp 1 W erreicht.

Aus den Ergebnissen der numerischen Simulation folgt, dass die Zielanforderungen dann erfüllt werden, wenn die „Online“-Wellenlänge im Bereich um $300 \text{ nm} \pm 5 \text{ nm}$ liegt und die „Offline“-Wellenlänge zu dieser etwa um einen Abstand von $+ 10 \text{ nm} \pm 5 \text{ nm}$ verschoben ist (vgl. Kap. 3.2). Bei der Festlegung des Rahmens, innerhalb dessen die DIAL-Wellenlängen liegen sollen, wurde eine große Messreichweite gegenüber einer besseren Genauigkeit in nahen Abständen (bis ~ 5 km) priorisiert. Das Wellenlängenpaar $\lambda_{on} = 295 \text{ nm}$ und $\lambda_{off} = 305 \text{ nm}$ stellt das Optimum aller Paare in allen Breitenbereichen dar.

Des Weiteren sollte die Linienbreite den Wert von 0,05 nm nicht übersteigen, um den dadurch bedingten Fehler der Ozon-DIAL-Messung kleiner 1 % zu halten.

Falls der zu entwickelnde Lasertransmitter ein festfrequentes System ist, wäre die Erzeugung einer dritten Messwellenlänge mit großem Aufwand verbunden. Dahingegen kann bei einem durchstimmbaren System ohne zusätzlichen Zeit- und Kostenaufwand problemlos von zwei auf drei Wellenlängen umgeschaltet werden kann. Somit kann, je nach Aerosolbeladung, entweder das Standard-DIAL-Verfahren in Kombination mit der Klett-Inversion oder das Dual-DIAL-Verfahren verwendet

werden. Daher stellt eine durchstimmbare Lichtquelle die beste Wahl dar.

Ein weiterer Vorteil eines durchstimmbaren Systems ist die Möglichkeit, die Querempfindlichkeit zu SO_2 zu reduzieren. Wie in Kap. 3.2 diskutiert kann die Messabweichung je nach Wahl der Wellenlängen zwischen 3,6 % und 30 % liegen. Mit einem durchstimmbaren System könnte in einem solchen Fall die Wellenlänge problemlos angepasst werden, um den Fehler zu minimieren.

Aus den aufgeführten Argumenten folgt, dass der optimale Lasertransmitter im Wellenlängenbereich zwischen 295 nm und 315 nm durchstimmbare sein sollte.

Die praktische Realisierung eines Transmitters mit dem angestrebten Wellenlängenbereich wird im nächsten Kapitel beschrieben.

Kapitel 4

Entwicklung eines geeigneten Ozon-DIAL-Transmitters

Die Herausforderung dieser Arbeit ist die Realisierung einer geeigneten Strahlenquelle zur Sondierung von Ozon um die Tropopause vom Flugzeug aus. Aus den Ergebnissen der in Kap. 3 vorgestellten numerischen Simulation lassen sich Anforderungen an einen geeigneten Lasertransmitter für Ozon-DIAL-Messungen in der UTLS ableiten. Demnach sollte der Transmitter im Bereich zwischen 295 nm und 315 nm Wellenlänge durchstimmbaar sein und über eine mittlere Leistung von $\gtrsim 1$ W verfügen. Die praktische Realisierung im Flugzeug erfordert zudem ein robustes, möglichst leichtes System mit minimalen mechanischen Abmessungen und einen hohen elektrischen zu optischen Wirkungsgrad. Kernaspekt dieses Kapitels ist die Beschreibung der für diese Applikation entwickelten neuartigen Strahlenquelle. Zunächst erfolgt ein Abschnitt über alternative Messapparaturen, um das neue System in den aktuellen Stand der Technik einordnen zu können. Anschließend werden die theoretischen Grundlagen zur Frequenzkonversion, die zum Verständnis der neuen Strahlenquelle beitragen sollen, abgehandelt, um daraus ein geeignetes Transmitterkonzept zu entwickeln. Schließlich wird der flugzeugtaugliche Ozon-DIAL-Transmitter vorgestellt und charakterisiert.

4.1 Bisherige Ozon-DIAL-Transmitter

Das weltweit erste funktionsfähige Ozon-DIAL wurde am Observatorium von Haute-Provence betrieben und von Megie et al. (1977) vorgestellt. Die Strahlquelle bestand aus einem Blitzlampengepumpten Rhodamin 6G Farbstofflaser mit anschließender Frequenzverdopplung (SHG). Ein Lidar auf Basis eines ähnlichen Konzeptes wurde bereits sehr erfolgreich auf dem Forschungsflugzeug Douglas DC-8 der NASA eingesetzt (Browell et al., 1998). Im Unterschied zum französischen System wird hierbei der Farbstofflaser mit Hilfe der zweiten Harmonischen eines Nd:YAG-Lasers gepumpt. Das System der NASA stellt den leistungsstärksten bisher geflogenen Ozon-DIAL-Transmitter dar. Mit einem Gesamtgewicht von 1,7 t wäre dieses System jedoch für das Forschungsflugzeug HALO ungeeignet. Die NASA forscht derzeit an einem neuen Transmitterkonzept, basierend auf einem Nd:YAG-gepumpten Ti:Saphir-Laser und anschließender Frequenzverdreifung (THG) (Elsayed et al., 2002), um die Probleme des hohen Wartungsaufwands und der Frequenzinstabilität des alten Konzepts zu beheben. Aufgrund dieser Nachteile ist der Großteil der heutigen O₃-DIAL's mit frequenzstabileren, einfach handhabbareren, weniger wartungsintensiven und kostengünstigeren Lasern ausgestattet. Bei diesen Systemen handelt es sich entweder um einen frequenzvervierfachen (FHG) Nd:YAG-Laser ($\lambda_{4X Nd:YAG} = 266$ nm) (Baray et al., 1999; Simoneonov et al., 2000; Lazzarotto et al., 2001; Papayannis et al., 1999), einen Kryptonfluorid (KrF)-Excimer-Laser ($\lambda_{KrF} = 248,5$ nm) (Veselovskii und Barchunov, 1999; Kempfer et al., 1994) oder einen Xenonchlorid (XeCl)-Excimer-Laser ($\lambda_{XeCl} = 307,9$ nm) (McDermid et al., 1990), deren Ausgangswellenlänge in Gaszel-

len mit Hilfe stimulierter Ramanverschiebung durch weitere UV-Wellenlängen zu geeigneten DIAL-Paaren ergänzt wird. Diese Strahlquellen bestehen aus nur einem Laser und sind daher kompakter und mobiler als die Festkörpervarianten, können jedoch nur festfrequente Strahlung erzeugen. Somit sind auf Ramanverschiebung basierende Systeme in der Wellenlänge nicht kontrollierbar und daher nicht durchstimmbare. Eine flugzeuggetragene Nd:YAG-basierte Variante wird von der Universität Pierre und Marie Curie (UPMC) auf der French Fokker 27 eingesetzt (Ancellet und Ravetta, 1998). Generell sind Nd:YAG-basierte DIAL's kompakter und zuverlässiger und verfügen über eine längere Lebensdauer der einzelnen optischen Komponenten als Excimer-Laser-basierte Systeme. Jedoch stehen mit Excimer-Lasern höhere Pulsenergien und Pulswiederholraten und damit kleinere Mittelungszeiten bei der O₃-Dichtebestimmung zur Verfügung.

Tabelle 4.1: Zusammenstellung häufig verwendeter Ozon-DIAL-Transmittersysteme mit den charakteristischen Parametern im Vergleich.

Lasertyp	Plattform	mittlere Leistung [W]	Wellenlängen [nm]	Durchstimmbar	Wirkungsgrad [%]	Abmessungen l X b X h [cm ³]	Gewicht [t]
SHG Nd:YAG-gepumpter Farbstofflaser und anschließender SHG	Douglas DC-8	≤ 0,9	289-300	Ja	0,003	600 X 100 X 110	1,8 (gesamt)
	Quellen: Browell et al. (1998)						
FHG Nd:YLF-gepumpter Ce:LiCAF-Resonator	Twin Otter	typ. ~ 0,1	283-310	Ja	0,024	76 X 142 X 114	0,4
	Quellen: Alvarez et al. (1998), Alvarez et al. (2011)						
Nd:YAG-gepumpter Ti:Saphir-Laser mit anschließender THG	kein belegter Einsatz	≤ 0,9	289-300	Ja	—	—	—
	Quellen: Elsayed et al. (2002)						
Nd:YAG-gepumpter OPO	Cessna 208 Grand Caravan	~ 0,1	280-300	Ja	0,009	200 X 170 X 100	0,27
	Quellen: Fix et al. (2002), Meister (2005), Hair et al. (2010)						

Fortsetzung der Tabelle auf der nächsten Seite

Fortsetzung der Tabelle der letzten Seite

Ramanverschiebung von FHG Nd:YAG-Laser	Fokker 27 / Falcon 20	$\leq 0,2$	266 + 289 + 299 + 316	Nein	0,006	—	—
	Quellen: Baray et al. (1999), Simoneonov et al. (2000) Lazzarotto et al. (2001), Papayannis et al. (1999) Ancellet und Ravetta (1998)						
Ramanverschiebung von Kryptonfluorid-Excimer-Laser	bodengestützt	$\leq 2,4$	277,1 + 291,9 + 313,2	Nein	—	—	—
	Quellen: Veselovskii und Barchunov (1999), Kempfer et al. (1994)						
Ramanverschiebung von Xenonchlorid-Excimer-Laser	bodengestützt	≤ 75	308 + 353	Nein	—	—	—
	Quellen: McDermid et al. (1990)						

Eine weitere Transmitter-Methode wird von der Wetter- und Ozeanografiebehörde der Vereinigten Staaten (NOAA) auf dem Forschungsflugzeug Twin Otter verwendet. Bei diesem System pumpt die vierte Harmonische (FHG) eines Nd:YLF-Lasers bei 262 nm einen durchstimmbaren Ce:LiCAF-Resonator (Alvarez et al., 1998, 2011). Der mit einem solchen System generierbare Wellenlängenbereich (283-310 nm) würde sich hervorragend für die Vermessung von Ozon im Tropopausenbereich eignen. Jedoch liegen die mittleren Leistungen dieses Systems typischerweise bei 0,1 W und sind damit eine Größenordnung kleiner als die für die Vermessung von Austauschprozessen in der UTLS geforderten mittleren Leistungen (vgl. Kap. 3.6).

Eine weitere Alternative bieten Nd:YAG-gepumpte optisch parametrische Oszillatoren (OPO), welche trotz ihrer kleinen mechanischen Abmessungen und ihres geringen Gewichts, beachtliche Impulsenergien, die über einen großen Wellenlängenbereich durchstimmbare sind, erzeugen können. Das am DLR entwickelte TropOlex-System zur Vermessung bodennahen Ozons (Fix et al., 2002; Meister, 2005) basiert auf diesem Prinzip und wurde schon erfolgreich auf der DLR Cessna Grand Caravan eingesetzt. Dieses System generiert Pulse mit einer Energie von etwa 10 mJ bei einer Repetitionsfrequenz von 10 Hz. Ein ähnliches System der NASA ist der Global Ozone Lidar Demonstrator (GOLD) (Hair et al., 2010), welcher bereits erfolgreich vom Boden aus getestet und für den Einsatz auf der NASA Dryden Global Hawk entwickelt wurde. Eine Gegenüberstellung der wichtigsten Parameter der vorgestellten Ozon-DIAL-Transmitter findet sich in Tab. 4.1.

Ziel dieser Arbeit ist die Entwicklung einer UV-Strahlenquelle mit hoher Impulsenergie und hoher mittlerer Leistung, welche modular mit dem bereits existierenden Wasserdampf-DIAL WALES verwendet werden kann. Folglich muss der neue UV-Transmitter mit dem WALES-System mechanisch kompatibel sein. Des Weiteren muss die optische Leistungsaufnahme des neuen Transmittermoduls der optischen Ausgangsleistung der WALES-Pumpmodule entsprechen. Darüber hinaus sollten die Strahlparameter wie Impulsdauer, Repetitionsfrequenz, Divergenz, Strahlprofil etc. des WALES-Pumpstrahls für das neue Transmittermodul geeignet sein. Die WALES-Pumpmodule wurden speziell für den anschließenden optisch-parametrischen-Oszillator-Prozess entwickelt, mit welchem die für H₂O-DIAL-Messungen notwendigen Wellenlängen um 935 nm generiert werden. Daher ist die optische und mechanische Kompatibilität eines OPO gegeben und bietet sich auch für den neuen O₃-DIAL-Transmitter an.

Im Gegensatz zu dem Vorgängersystem TropOlex wird der OPO des neuen Ozon-DIAL-Transmitters nun mit einer Repetitionsfrequenz von 100 Hz gepumpt. Durch die 10-fach höhere Reptitionsfrequenz werden für das neue System mittlere Leistungen von ~ 1 W im UV erwartet. Des Weiteren sollte der Durchstimmbereich den numerischen Simulationen zufolge etwa um 10 nm gegenüber den Wellenlängen des TropOlex-Systems rotverschoben sein (siehe Kap. 3.2). Der Grund für die Verschiebung zu längeren Wellenlängen ist die größere Ozondichte, die, im Gegensatz zur unteren Troposphäre, in der unteren Stratosphäre vorliegt. Damit die Ozonextinktion in der unteren Stratosphäre nicht zu groß wird, muss also die Ozonabsorption der Laserstrahlen durch eine Verschiebung hin zu größeren Messwellenlängen (vgl. Abb. 3.3) reduziert werden.

4.2 Optisch parametrische Verstärkung

Die optisch parametrische Oszillation (OPO) beruht auf dem Funktionsprinzip der optisch parametrischen Verstärkung (OPA). Beides sind Prozesse in der nichtlinearen Optik, welche die Farbumwandlung, also Frequenzkonversion von Licht beschreibt. Das Phänomen der nichtlinearen Frequenzkonversion wurde erstmals im Jahr 1961 bei der Propagation der Ausgangsstrahlung eines Rubinlasers durch einen Quarzkristall von Franken et al. (1961) beobachtet. Neben der fundamentalen Strahlung registrierten die Autoren eine zweite Strahlung mit doppelter Frequenz. Diese Beobachtung kann als die Geburtsstunde der Frequenzkonversion angesehen werden, welche sich seither zu einem dynamischen Forschungsgebiet entwickelt hat und in vielen Bereichen von Technik und Wissenschaft Anwendung findet. Für die Beschreibung nichtlinearer optischer Phänomene wurde Nicolaas Bloembergen 1981 mit dem Nobelpreis in Physik ausgezeichnet.

Nichtlineare Polarisation

Grundlegend für die nichtlineare Optik ist die Wechselwirkung zwischen Licht und Materie. Dabei wird ein elektrisch nicht leitendes und unmagnetisches Medium, also ein Dielektrikum, betrachtet. Dieses besteht aus ortsfesten Kernen und Elektronen, die sich wie Massepunkte in einem klassischen Potential bewegen. Trifft eine Lichtwelle mit Feldvektor \mathbf{E} auf ein Dielektrikum, so übt sie über die elektrische Suszeptibilität χ auf die Elektronen eine Kraft aus. Dadurch werden die Elektronen in Schwingung versetzt, und durch die Auslenkung gegenüber den Atomkernen entstehen Elementardipole. Diese Schwingung im Material wird, wie in Zernike und Midwinter (1973), mit der Polarisationswelle \mathbf{P} beschrieben

$$\mathbf{P} = \underbrace{\epsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E}}_{\text{lineare Optik}} + \underbrace{\epsilon_0 \chi^{(2)} \mathbf{E} \mathbf{E} + \epsilon_0 \chi^{(3)} \mathbf{E} \mathbf{E} \mathbf{E} + \dots}_{\text{nichtlineare Optik}} \quad . \quad (4.1)$$

Für schwache elektromagnetische Felder ist die lineare Optik eine gute Näherung. Für stark fokussierte oder gepulste Laserstrahlen müssen jedoch die Terme höherer Ordnung berücksichtigt werden. Betrachtet man beispielsweise die Überlagerung zweier unterschiedlicher Felder \mathbf{E}_1 und \mathbf{E}_2 im Dielektrikum, so entstehen in der nichtlinearen Polarisation 2. Ordnung Mischterme, welche nicht die Frequenzen der fundamentalen Lichtwellen ω_1 oder ω_2 besitzen. Die Mischterme enthalten die Frequenzkomponenten der doppelten Grundfrequenz¹ $\omega_3 = 2\omega_i$ für $i=1,2$, der Summenfrequenz² $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$, der Differenzfrequenz³ $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ und des statischen elektrischen Feldes⁴ $\omega_3 = 0$. Der letzte Beitrag beschreibt das Phänomen der „optischen Gleichrichtung“. In einem geeigneten Material mit genügend hoher Intensität treten immer alle Prozesse auf. Um einen der Prozesse

¹eng.: second harmonic generation, SHG

²eng.: sum frequency generation, SFG

³eng.: difference frequency generation, DFG

⁴eng.: optical rectification, OR

mit hoher Effizienz gezielt selektieren zu können, müssen die Phasen der am Prozess beteiligten Lichtwellen angepasst werden. Eine Beschreibung dazu findet sich in Kap. 4.2.

Der Mischprozess DFM ist die Grundlage des in dieser Arbeit entwickelten OPO, welcher auf dem Funktionsprinzip der optisch parametrischen Verstärkung⁵ beruht.

Nichtlineare Suszeptibilität χ

Die Amplitude der Polarisierungen unterschiedlicher Ordnungen ist materialabhängig und wird durch die Materialkonstante χ festgelegt. Generell gilt für alle Materialien $\chi^{(1)} \gg \chi^{(2)} \gg \chi^{(3)} \gg \dots$. Typischerweise liegt $\chi^{(1)}$ in der Größenordnung von 1, $\chi^{(2)} \approx 10^{-13}$ bis $10^{-10}[\frac{m}{V}]$ und $\chi^{(3)} \approx 10^{-23}$ bis $10^{-18}[\frac{m^2}{V^2}]$ (siehe z. B. Reider (1997)). Die Suszeptibilität zweiter Ordnung ist ein Tensor dritter Stufe und besitzt $3^3 = 27$ komplexe Elemente, die sich aber aus Symmetrieüberlegungen auf wenige unabhängige von null verschiedene Komponenten reduzieren lassen. So kann z. B. im Fall von Kleinman-Symmetrie (Kleinman, 1962), die dann gilt, wenn alle am Prozess beteiligten Frequenzen weit unterhalb der untersten Resonanzfrequenz des Materials liegen, die Frequenzabhängigkeit des Suszeptibilitätssensors vernachlässigt werden ($\frac{d\chi}{d\omega}$). In einem solchen Fall können die Indizes i, j, k permutieren, ohne Frequenzen zu ändern, und es bleiben nur noch 18 freie Parameter übrig. Gemeinsam mit der Kleinman-Symmetrie wird für den Suszeptibilitätstensor oft eine verkürzte Schreibweise verwendet:

$$d_{il} := \frac{1}{2} \chi_{ijk} \quad . \quad (4.2)$$

Mit i: x→1, y→2, z→3

jk:	xy	yy	zz	yz,zy	zx,xz	xy,yx
l:	1	2	3	4	5	6

Durch die verkürzte Schreibweise vereinfacht sich die Darstellung der Suszeptibilität zweiter Ordnung, da nun an die Stelle eines Tensors dritter Ordnung eine 3×6 -Matrix verwendet werden kann, um den Zusammenhang zwischen Polarisation und elektrischem Feld zu beschreiben. Der Zusammenhang zwischen Feld und Materie sieht unter Berücksichtigung der Kleinman-Symmetrie folgendermaßen aus:

$$\begin{pmatrix} P_x^{(2)} \\ P_y^{(2)} \\ P_z^{(2)} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x^2 \\ E_y^2 \\ E_z^2 \\ 2E_y E_z \\ 2E_x E_z \\ 2E_x E_y \end{pmatrix} \quad (4.3)$$

Unter Berücksichtigung der verschiedenen Kristallsymmetrien lässt sich die Anzahl der freien Parameter weiter reduzieren. Für eine feste Geometrie, also feste Ausbreitungsrichtung und Polarisation der Felder, kann man die nichtlineare Polarisation somit vereinfachen und es ergibt sich die skalare Beziehung

$$P^{(2)} = d_{eff} E_1 E_2 \quad . \quad (4.4)$$

Hierbei ist d_{eff} in $[\frac{m}{V}]$ der effektive nichtlineare Koeffizient, den man durch Ausführen der Summation in Gl. 4.3 erhält. Generell sind nichtlineare Kristalle doppelbrechend und damit anisotrop. Der effektive nichtlineare Koeffizient der gängigsten Materialien findet sich in der Literatur (siehe

⁵eng: optical parametric amplifier, kurz: OPA

z. B. Dmitriev et al. (1999)) in Abhängigkeit von den Phasenanpassungswinkeln θ und Φ tabelliert, welche sich aus dem kristallographischen Koordinatensystem ergeben.

Die gekoppelten Wellengleichungen

Die angeregten Elementardipole senden wiederum elektromagnetische Strahlung aus. Dieser Vorgang wird mit den Maxwell'schen Gleichungen (Maxwell, 1865) beschrieben. Mit der nichtlinearen Polarisation $\mathbf{P}^{(2)}$ als Quellterm ergibt sich das im Dielektrikum generierte elektromagnetische Feld (Zernike und Midwinter, 1973) zu

$$\nabla^2 \mathbf{E} = \frac{\partial^2}{\partial t^2} \left(\frac{\epsilon}{c^2} \mathbf{E} \right) - \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \quad . \quad (4.5)$$

Dabei ist ϵ die Dielektrizitätskonstante des Mediums und c die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum.

Bedingt durch die hier verwendeten Wellenlängen, Intensitäten und Impulslängen im Nanosekundenbereich ist die Änderung des elektrischen Feldes $\frac{\partial \mathbf{E}}{\partial z}$ und dessen Ableitung sehr klein und damit über die geringe Distanz z zu vernachlässigen (siehe „SVAA“⁶ in beispielsweise (Zernike und Midwinter, 1973; Byer, 1974)). Damit ergeben sich die drei gekoppelten Amplitudengleichungen für die drei Frequenzen ω_i ($i=1,2,3$) zu

⁷ bezeichneten Näherung die drei gekoppelten Amplitudengleichungen für die drei Frequenzen ω_i ($i=1,2,3$)

$$\begin{aligned} \frac{\partial E_1}{\partial z} &= -i \frac{8\pi\omega_1^2}{k_1 c^2} d_{eff} E_2^* E_3 e^{i\Delta k z} \\ \frac{\partial E_2}{\partial z} &= -i \frac{8\pi\omega_2^2}{k_2 c^2} d_{eff} E_1^* E_3 e^{i\Delta k z} \\ \frac{\partial E_3}{\partial z} &= -i \frac{8\pi\omega_3^2}{k_3 c^2} d_{eff} E_1^* E_2 e^{-i\Delta k z} \quad . \end{aligned} \quad (4.6)$$

Δk entspricht dabei der Phasendifferenz („phase mismatch“) der Wellenzahlen k_i

$$\Delta k = k_3 - k_2 - k_1 \quad (4.7)$$

und die Frequenzen ω_i stehen o.B.d.A. über die Relation

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2 \quad (4.8)$$

miteinander in Verbindung. Diese Bedingung entspricht der des Energieerhaltungssatzes.

Die gekoppelten Amplitudengleichungen geben die Änderungsrate einer elektromagnetischen Welle entlang der Propagationsrichtung z als Funktion der beiden anderen beiden elektromagnetischen Wellen und der Phasendifferenzen an. Demnach beeinflussen sich die Lichtwellen gegenseitig.

Anschaulich betrachtet bedeutet das für den OPA, einen Mischprozess aus den drei in der Literatur als Pump- (p), Signal- (s) und Idlerstrahlung (i) bezeichneten Lichtwellen, Folgendes⁸: Das Pumpphoton der Frequenz ω_p spaltet sich gemäß der Energieerhaltung in ein Signal- und ein Idlerphoton der Frequenzen ω_s und ω_i auf. Die Betrachtung im Photonenbild ist schematisch in Abbildung 4.1 skizziert.

⁶eng: slowly varying amplitude approximation

⁷eng: slowly varying amplitude approximation, Die Feldamplitude ändert sich nur geringfügig mit z

⁸Die höherfrequente Strahlung wird dabei als Signalstrahlung bezeichnet, also gilt immer: $\omega_s > \omega_i$.

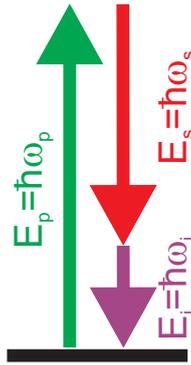


Abbildung 4.1: Anschauliche Darstellung der optisch parametrischen Verstärkung im Photonbild. Ein Pumpphoton wird in ein Signal- und ein Idlerphoton umgewandelt.

Phasenanpassung

Eine wichtige Voraussetzung für hohe Konversionseffizienzen ist die Kopplung zwischen den am Prozess beteiligten Lichtwellen. Da es sich hierbei um Lichtwellen mit verschiedenen Frequenzen handelt, weisen diese, bedingt durch die Dispersionsrelation des Mediums, unterschiedliche Phasengeschwindigkeiten auf. In einem dispersiven Medium laufen die Phasen, also die Stellen gleicher Amplitude, daher schnell auseinander. Somit wäre in diesem Fall die sogenannte Kohärenzlänge, über die sich die an verschiedenen Punkten generierten Lichtwellen konstruktiv überlagern, nur wenige Wellenlängen kurz, nämlich $l_{coh} \sim 10\text{-}100 \lambda$ (Reider, 1997). Dementsprechend gering wäre die erreichbare Konversionseffizienz.

Aus den gekoppelten Amplitudengleichungen 4.6 ergibt sich die Phasenanpassungsbedingung maximaler Kopplung zu

$$\Delta k = k_3 - k_1 - k_2 \stackrel{!}{=} 0 \quad . \quad (4.9)$$

Diese Bedingung stellt die Impulserhaltung der Photonen dar. Mit $k = \omega n/c$ ergibt sich die Phasenanpassungsbedingung in Frequenzen ausgedrückt zu

$$\omega_3 n_3 - \omega_1 n_1 - \omega_2 n_2 = 0 \quad . \quad (4.10)$$

Nur in anisotropen Materialien kann, bedingt durch die Doppelbrechung, die Phasenanpassungsbedingung erfüllt werden. Bei diesen speziellen Materialien ist der Brechungsindex n richtungs- und polarisationsabhängig. Der Feldvektor des einfallenden Lichts wird in anisotropen Materialien in die beiden erlaubten Polarisationsrichtungen, welche senkrecht aufeinanderstehen, zerlegt. Licht, dessen Polarisationsrichtung nicht einer der beiden Richtungen entspricht, wird entsprechend seinen Komponenten in die beiden Richtungen aufgeteilt. Die senkrecht zur optischen Achse polarisierte Feldkomponente wird in der Literatur als ordentlich⁹ bezeichnet. Die andere Komponente wird außerordentlich¹⁰ genannt. Für einachsige Kristalle gilt $n_x = n_y = n_o$ und $n_z = n_e$, wobei x , y und z den kristallografischen Achsen entsprechen. Die optische Achse entspricht dabei der kristallografischen z -Achse. Somit berechnet sich, wie in Zernike und Midwinter (1973) beschrieben, der Brechungsindex des außerordentlichen Strahls in einachsigen Kristallen als Funktion des Polarwinkels θ zwischen der Propagationsrichtung und der optischen Achse zu

$$n_e(\theta) = \frac{n_e n_o}{\sqrt{(n_o^2 \sin^2(\theta) + n_e^2 \cos^2(\theta))}} \quad . \quad (4.11)$$

⁹eng: ordinary, kurz: o

¹⁰eng: extraordinary, kurz: e

Im Rahmen dieser Arbeit wurde nicht nur der uniaxiale Kristall BBO verwendet, sondern auch die biaxialen Kristalle KTA und KTP. Für zweiachsige Kristalle ist der Sachverhalt komplizierter, da es drei verschiedene Brechungsindices n_x , n_y und n_z gibt. Eine detaillierte Beschreibung biaxialer Kristalle findet sich in Zernike und Midwinter (1973). Beschränkt man die Ausbreitung der Wellen jedoch auf eine Ebene (wie in diesem Fall die X-Z-Ebene mit dem Azimuth-Winkel $\phi = 0^\circ$), so verhält sich der Kristall wie ein einachsiger Kristall (Bhar et al., 1996) mit o-Strahlen bei Polarisierung in y-Richtung und e-Strahlen bei Polarisierung in der x-z-Ebene.

Gilt $n_e > n_o$, bezeichnet man das Material als positiv doppelbrechend, und gilt $n_e < n_o$, bezeichnet man das Material als negativ doppelbrechend. BBO ist ein negativ doppelbrechendes Material, wohingegen KTA und KTP positiv doppelbrechende Materialien sind.

In einem Drei-Wellen-Mischprozess sind zwei Phasenanpassungstypen möglich. Typ 1 bedeutet, die Eingangsstrahlen haben dieselbe Polarisierung, und Typ 2 bedeutet, die Eingangsstrahlen haben eine unterschiedliche Polarisierung. Beide Phasenanpassungstypen wurden in dem hier entwickelten UV-OPO verwendet.

Für einen außerordentlichen Strahl sind Wellenvektor \mathbf{k} und Pointingvektor \mathbf{S} , der den Energiefluss beschreibt, nur für $\theta = 0^\circ$ oder 90° parallel, wohingegen im Falle eines ordentlichen Strahls \mathbf{k} und \mathbf{S} stets parallel sind. Obwohl die Phasen der o- und e-Strahlen kollinear verlaufen, laufen die Strahlen in einem doppelbrechenden Kristall im sogenannten „walk-off“-Winkel räumlich auseinander. Dadurch vermindert sich der Überlappbereich der einzelnen Strahlen. Der „walk-off“-Winkel ergibt sich, wie in Dmitriev et al. (1999) beschrieben, als Funktion von θ zu

$$\rho(\theta) = \pm \arctan[(n_o/n_e)^2 \tan(\theta)] \mp \theta \quad . \quad (4.12)$$

Die oberen Rechenzeichen gelten dabei für negative Kristalle und die unteren für positive Kristalle.

Für die praktische Realisierung zur Erfüllung der Phasenanpassungsbedingung existieren, wie in Zernike und Midwinter (1973) beschrieben, verschiedene Techniken. Dazu gehören

- Anlegen eines äußeren elektrischen Feldes
- Anpassen der Kristalltemperatur
- Die Phasengeschwindigkeiten können z. B. mit periodisch gepolten Kristallen im Mittel angepasst werden (Quasi-Phasenanpassung)
- Drehen des Kristallwinkels relativ zur Laserstrahlung.

In der Vergangenheit hat sich die Winkelphasenanpassung in einem OPO für den Einsatz im DIAL als geeignet erwiesen, da sie eine schnelle Anpassung ermöglicht, einfach zu handhaben ist und mit ihr ein großer spektraler Durchstimmbereich erzielt werden kann (vgl. WALES (Wirth et al., 2009) oder TropOlex (Meister, 2005)). Aus diesem Grund wurde bei dem im Rahmen dieser Arbeit entwickelten OPO ausschließlich die Winkelphasenanpassung verwendet.

In der Realität kann die Phasenanpassungsbedingung jedoch nie vollständig erfüllt werden, da die zu konvertierende Strahlung keine ebene Welle darstellt, also divergent, gepulst und nichtmonochromatisch ist und die Temperatur des Kristalls instabil ist. In Dmitriev et al. (1999) werden für gegebene Konfigurationen die Akzeptanzbandbreiten für die Größen Phasenanpassungswinkel (Winkelakzeptanz), spektrale Breite der beteiligten Strahlungen (Bandbreitenakzeptanz) und die Abhängigkeit von der Kristalltemperatur (Temperaturakzeptanz) angegeben. Um eine effiziente Frequenzkonversion zu gewährleisten, sollten die Toleranzen der einzelnen Größen nicht überschritten werden.

4.3 Optisch parametrische Oszillation

Basierend auf dem Prozess der Differenzfrequenzmischung bauen sich in einem optisch parametrischen Verstärker die Intensitäten der Signal- und Idlerstrahlung auf Kosten der Pumpstrahlung auf. Dazu wird die Pumpstrahlung gemeinsam mit einer der beiden längerwelligen Strahlung in einem nichtlinearen optischen Kristall überlagert. Bettet man einen solchen OPA, wie in Abb. 4.2 dargestellt, in einen optischen Resonator ein, so erhält man einen OPO.

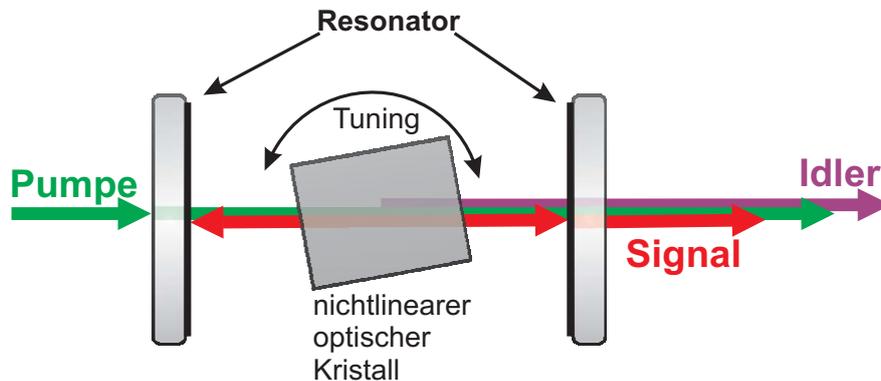


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung eines planparallelen SRO OPO, der für die Signalstrahlung resonant ist.

Der erste funktionstüchtige OPO wurde von Giordmaine und Miller (1965) demonstriert. Aufgrund der Möglichkeit, beliebige Wellenlängen durchstimmbare und effizient zu erzeugen, eignet sich der OPO hervorragend für spektroskopische Analysen, wie hier bei der optischen Spurengassondierung in der Atmosphäre.

Aufgrund der Rückkopplung im Resonator reicht es aus, den OPO nur mit der Pumpstrahlung zu beleuchten, um den Prozess zu initiieren. Erklärungen für dieses Phänomen liefert die Quantenfluktuation der Quantenfeldtheorie (Louisell et al., 1961; Gordon et al., 1963; Wagner und Hellwarth, 1964). Demnach sind sowohl Signal- als auch Idlerwelle immer im parametrischen Hintergrundrauschen vorhanden und müssen lediglich aus dem Rauschen heraus verstärkt werden.

Die im Kristall generierte Lichtenergie oszilliert innerhalb des Resonators und wird durch mehrmaliges Durchlaufen des nichtlinearen Kristalls weiter erhöht. Bei einem solchen Resonator kann es sich um einen einfach resonanten Oszillator¹¹ handeln, der entweder für die Idler- oder die Signalwelle resonant ist, oder um einen doppelt¹² resonanten Resonator, der sowohl für Idler- als auch Signalwelle resonant ist. Der SRO lässt sich technisch einfacher umsetzen, da die Anforderungen an die Spiegel und den Resonator nicht so hoch sind und der maximale Wirkungsgrad aufgrund des Auftretens von Rückkonversion beim DRO bis zu einem Faktor von 2 größer ist (Bjorkholm, 1971). Zudem weisen die DRO-Varianten häufig starke Schwankungen in den Ausgangsleistungen auf. Jedoch kann die Schwelle durch die Verwendung eines DRO um den Faktor 2 reduziert werden.

Da für ein DIAL möglichst große Impulsenergien und zudem für ein flugzeuggestütztes Lidar ein stabiler Aufbau benötigt wird, ist der im Rahmen dieser Arbeit entwickelte OPO ein SRO.

Durchgestimmt oder „getuned“ wird der winkelpassengepasste OPO über die Kristallrotation (vgl. Abb. 4.2). Die fixe Größe in der Phasenanpassungsbedingung Gl. 4.10 ist die Frequenz des Pumplasers ω_p . Durch Verkippen des Kristalls können die Brechungsindizes n_p , n_s und n_i , wie in Kap. 4.2 beschrieben, so variiert werden, dass die Erzeugung unterschiedlicher Frequenzverhältnisse der Signal- und Idlerstrahlung begünstigt wird (vgl. Abb. 4.1).

¹¹eng.: singly-resonant oscillator, kurz: SRO

¹²eng.: doubly-resonant oscillator, kurz: DRO

4.3.1 Schwelle, Effizienz und Bandbreite

Wichtig für die Realisierung eines OPO ist die Bestimmung von Schwellwert, Konversionseffizienz und Bandbreite. Ähnlich wie bei einem Laser startet der OPO-Prozess erst mit dem Erreichen der Schwellintensität I_{th} . Was die Schwelle anbelangt, wird von Brosnan und Byer (1979) für einen SRO folgende Abschätzung angegeben:

$$I_{th} = \frac{1.12}{\kappa g_s l_{eff}^2} \left(\frac{L}{t_p c} \ln \left(\frac{P_s}{P_n} \right) + 2\alpha l + \ln \frac{1}{\sqrt{R}} + \ln 2 \right)^2 \quad . \quad (4.13)$$

Dabei entspricht L der Länge eines halben Resonatorumlaufs, $\kappa = \frac{8 \cdot \pi^2 \cdot FOM}{\lambda_s \cdot \lambda_i \cdot \epsilon_0 \cdot c}$ der Kopplungskonstante mit der Gütezahl¹³, $FOM = \frac{d_{eff}^2}{n_s \cdot n_i \cdot n_p}$, $g_s = \frac{1}{1 + (\frac{\omega_s}{\omega_p})^2}$ dem räumlichen Modenkopplungskoeffizienten und $l_{eff} = \frac{\sqrt{\pi} \omega_p}{2\rho}$ der effektiven Kristalllänge und der Verluste α im Kristall der Länge l. Der Logarithmus aus dem Verhältnis der Signalleistung an der Schwelle der Rauschleistung zur Signalmode beträgt nach Brosnan und Byer (1979) $\ln(\frac{P_s}{P_n}) = 33$. R entspricht der Reflektivität der Resonatorspiegel, $\omega_{s/p}$ den Signal-/Pumpstrahldurchmessern und ρ dem „walk-off“-Winkel. Demnach ist die Schwelle niedrig, wenn der OPO folgende Voraussetzungen erfüllt:

- Große FOM
- Langer Kristall
- Kleiner „walk-off“-Winkel
- Kurzer Resonator
- Kleine resonatorinterne Verluste.

Sobald die Schwelle erreicht ist, kann sich die Signal- und Idlerstrahlung auf Kosten der Pumpwelle aufbauen. Nach Bjorkholm (1971) ergibt sich die Konversionseffizienz im stationären Zustand zu

$$\eta = 1 - \frac{P_{trans}}{P_{pump}} \quad . \quad (4.14)$$

Somit lässt sich die Effizienz aus eingestrahelter zu transmittierter Pumpleistung berechnen und ist eine Funktion der Schwellüberhöhung N. Unter stationärem Zustand versteht sich hier der Abbau der Pumpintensität durch Konversion, bis die Verstärkung in Sättigung geht. Im Idealfall perfekter Phasenanpassung ($\Delta k=0$) und ebener Wellen kann für η im Zentrum der Verstärkung eine implizite Gleichung angegeben werden (Fischer und Kulevskii, 1977):

$$\eta = \sin^2 \sqrt{\eta N} \quad . \quad (4.15)$$

Demnach ist bei einer Schwellüberhöhung von $(\frac{\pi}{2})^2$ theoretisch ein Konversionseffizienz von $\eta = 100$ % möglich. Nach Bjorkholm (1971) ist mit einer Gauß'schen Intensitätsverteilung und einer ebenen Wellenfront der Pumpstrahlung theoretisch eine maximale Konversionseffizienz von $\eta = 71$ % möglich.

Die spektrale Breite der Ausgangsstrahlung eines OPO ergibt sich aus den Eigenschaften des Resonators und der Verstärkungsbandbreite $\Delta\nu$ (siehe z. B. Fix (1994)) zu

$$|\Delta\nu| = \frac{0,886}{\beta \cdot l} \quad \text{mit} \quad \beta = n_s - n_i + \lambda_s \frac{\partial n_s}{\partial \lambda_s} - \lambda_i \frac{\partial n_i}{\partial \lambda_i} \quad . \quad (4.16)$$

¹³eng: figure of merit, kurz: FOM

In Byer (1975) und Brosnan und Byer (1979) wird eine Abschätzung für die Reduktion der Bandbreite in Abhängigkeit von

$$p = \frac{c \cdot t_{Impuls}}{2 \cdot L} \quad (4.17)$$

der Anzahl p der Durchgänge durch das verstärkende Medium angegeben:

$$\Delta\nu(p) = \frac{1}{\sqrt{p}} \Delta\nu \quad . \quad (4.18)$$

4.4 Auswahl des Konversionskonzeptes

Ziel ist es, mit Hilfe eines OPO aus der fundamentalen Nd:YAG-Laser-Wellenlänge von 1064 nm effizient UV-Strahlung im Bereich von 295-315 nm Wellenlänge durchstimmbare zu erzeugen. Generell ist für die erfolgreiche Entwicklung eines OPO die Auswahl geeigneter Kristalle Voraussetzung. Die Kristallauswahl wird bestimmt durch

- den Transparenzbereich,
- eine mögliche Phasenanpassung,
- die Zerstörschwelle,
- die Konversionseffizienz (FOM),
- die Akzeptanzbandbreiten,
- den Winkelbereich der Phasenanpassung ($\Delta\theta$),
- die Änderung der Wellenlänge mit dem Anpassungswinkel ($\frac{\partial\lambda}{\partial\theta}$)
- den „walk-off“-Winkel (ρ).

Beim OPO handelt es sich, wie in Kap. 4.2 beschrieben, um einen Drei-Wellen-Mischprozess. Demnach sollte der Transparenzbereich alle drei beteiligten Wellenlängenbereiche, also Pump-, Signal- und Idlerwellenlängen umfassen. Damit die Konversion über die gesamte Kristalllänge effizient ausgenutzt werden kann, muss in dem Material eine Phasenpassung möglich sein ($l_{coh} \sim l_{Kristall}$, vgl. Kap. 4.2). Darüber hinaus ist die Zerstörschwelle eine wichtige Größe, da, wie in der Theorie diskutiert, nichtlineare optische Prozesse erst bei großen Feldstärken bemerkbar sind. Des Weiteren muss die FOM groß genug sein, damit eine effiziente Konversion stattfinden kann. Um die Effizienz zu gewährleisten, müssen zudem die Akzeptanzbandbreiten des jeweiligen Prozesses unterschritten werden. Zudem sollte der Winkelbereich der Phasenanpassung in einem angemessenen Bereich von einigen Grad liegen. Ein zu großer Winkelbereich führt zu einem dazu, dass die Kristallabmessungen so angepasst werden müssen, dass der Pumpstrahl von den Kanten des Kristalls nicht abgeschnitten wird. Zum anderen bereiten die AR-Beschichtungen bei einem großen Einfallswinkel Probleme, da sie für einen Einfallswinkel von 0° ausgelegt sind. Bei einem zu kleinen Winkelbereich reagiert die Änderung der Wellenlänge sehr empfindlich auf Änderungen des Phasenanpassungswinkels, was zu Problemen in der Einstellgenauigkeit führt. Weiter muss darauf geachtet werden, dass durch den „walk-off“-Winkel die am Prozess beteiligten Lichtstrahlen bei der Propagation durch den Kristall räumlich nicht zu weit auseinanderlaufen.

Der Transparenzbereich der verfügbaren Kristalle erstreckt sich vom ultravioletten bis in den fern-infraroten Spektralbereich. In Abb. 4.3 sind die Transmissionsspektren einiger gängiger Kristallmaterialien dargestellt. Je nach Applikation können meistens mehrere mögliche Kristalle verwendet werden. Ziel ist es, aus ihnen den geeignetsten auszuwählen.

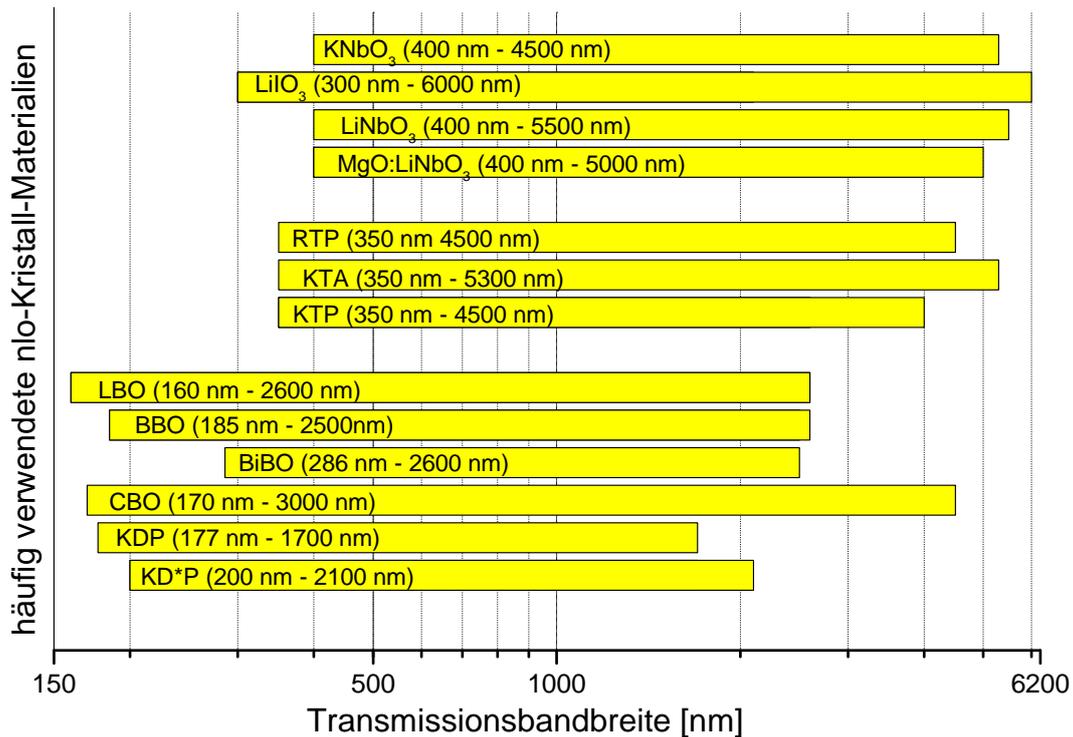


Abbildung 4.3: Transparenzbereich einiger optischer nichtlinearer Kristallmaterialien, aufgetragen in logarithmischer Skala (Dmitriev et al., 1999).

Als Pumpwellenlängen stehen die Harmonischen des Nd:YAG-Lasers bei 1064 nm, 532 nm, 355 nm und 266 nm Wellenlänge zur Verfügung, da sich die höheren Harmonischen durch entsprechende Verfahren einfach und effizient aus der fundamentalen Wellenlänge erzeugen lassen. Eine vergleichsweise einfache Realisierung eines mit 266 nm gepumpten OPO, welcher direkt die erforderlichen DIAL-Wellenlängen generiert, wäre mit dem Material BBO möglich und wurde von Kondratyuk et al. (2000) untersucht. Mit diesem System wurden, bezogen auf die fundamentale Wellenlänge, Konversionseffizienzen von bis zu 6,3 % bei 340 nm Wellenlänge erreicht. Die Effizienz nimmt jedoch zu kürzeren Wellenlängen aufgrund der geringer werdenden Nichtlinearität von BBO so stark ab, dass die damit erreichbare Leistung um 300 nm Wellenlänge weniger als 1 mJ betragen würde und damit für diese DIAL-Anwendung nicht ausreicht.

Nur durch einen weiteren nichtlinearen Prozess lassen sich die mit den übrigen Pumpwellenlängen generierbaren OPO-Wellenlängen in die gewünschten UV-Wellenlängen konvertieren. In Tab. 4.2 sind alle Möglichkeiten der in Frage kommenden Prozesse mit entsprechend geeigneten Kristallmaterialien dargestellt.

Wenn der OPO mit Licht der Wellenlänge 1064 nm gepumpt wird, muss die entstehende Signalstrahlung mit 355 nm gemischt werden, um die gewünschten UV-Wellenlängen zu erhalten. Für den mit 532 nm gepumpten OPO kommen zwei Verfahren in Frage, um die UV-Wellenlängen zu erzeugen. Entweder wird die Idlerstrahlung mit 355 nm gemischt oder die Signalstrahlung mit 532 nm. Der mit 355 nm gepumpte OPO lässt sich ebenfalls in zwei Varianten realisieren: Entweder wird die Signalstrahlung mit 532 nm gemischt oder frequenzverdoppelt.

Nach Fix und Ehret (1998) konnten bis zu 2,3 mal höhere Konversionseffizienzen erzielt werden, wenn die im OPO erzeugte Strahlung anschließend mittels Frequenzmischung anstatt Frequenzverdopplung ins UV konvertiert wird. Demnach ist der 4. Prozess dem 5. Prozess aus Tab. 4.2 vorzuziehen. Für die Frequenzverdopplung ist ein Konversionsschritt und für die Frequenzverdrehung sind zwei Frequenzkonversionsschritte notwendig. Energetisch ist ein mit 355 nm gepumpter

OPO daher ungünstig, da der Laser dann bei 532 nm viel mehr Leistung besitzt als bei 355 nm und als grobe Faustformel für das Verhältnis zwischen Pumpenergie und Mischenergie der Wert 2:1 angenommen werden kann.

Tabelle 4.2: Potentielle nichtlineare Konversionsprozesse zur Generierung der Ozon-DIAL-Wellenlängen auf einen Blick. Die einzelnen Wellenlängen ergeben sich aus dem Energieerhaltungssatz Gl. 4.8. Je nachdem ob die Signal- oder die Idlerstrahlung weiter verwendet wird, gilt $x = \text{Signal}$ oder Idler . In der Tabelle sind sowohl Signal- als auch Idlerstrahlung enthalten, wobei nur die obere Strahlung weiterverwendet wird.

1. Prozess: OPO

$$\lambda_{OPOPumpe} \mapsto \lambda_x$$

$$\frac{1}{\lambda_{OPOPumpe}} = \frac{1}{\lambda_{Signal}} + \frac{1}{\lambda_{Idler}} \quad \text{Energieerhaltung}$$

2. Prozess: SFM

$$\lambda_{SFMPumpe} + \lambda_x \mapsto \lambda_{UV}$$

$$\frac{1}{\lambda_{SFMPumpe}} + \frac{1}{\lambda_x} = \frac{1}{\lambda_{UV}}$$

Prozess	$\lambda_{OPO\ Pumpe}$ [nm]	λ_{OPO} [nm]	mögliche OPO-Kristalle	$\lambda_{SFM\ Pumpe}$ [nm]	λ_{UV} [nm]
1	1064	1745 – 2795 (2726 - 1718)	CTA, LiIO ₃ , KTA, KTP	355	295 – 315
2	532	1745 – 2795 (765 - 657)	KTP, KTA, LiIO ₃ , CTA, BBO	355	
3	532	662 – 772 (2709 - 1711)	KTP, KTA, LiIO ₃ , CTA, BBO	532	
4	355	662 – 772 (765 - 657)	LiIO ₃ , BBO, LBO	532	
5	355	590 – 630 (891 - 941)	LiIO ₃ , BBO, LBO	SHG der Signal	

Ein mit 1064 nm gepumpter OPO ist energetisch die geeignetste Variante, da bei dieser Wellenlänge sehr viel Pumpenergie und genügend Energie für die SFM vorhanden ist. Allerdings ist hierbei die Frequenzüberwachung schwierig, da weder in den Signal- noch in den Idlerwellenlängenbereichen einfache Gitterspektrometer vorhanden sind. Da neben den hohen Ausgangsleistungen die Überwachung und Regelung der exakten Messwellenlängen in einem DIAL-System wichtig ist, ist auch der 1. Prozess für diese Anwendung nicht geeignet.

Die beiden mit 532 nm Wellenlänge gepumpten OPO-Varianten stellen einen guten Kompromiss zwischen hoher Pumpenergie und einfacher Frequenzüberwachung dar. In Abb. 4.4 ist die Güte der beiden mit 532 nm gepumpten OPO-Konfigurationen für die in Frage kommenden Kristalle aufgetragen.

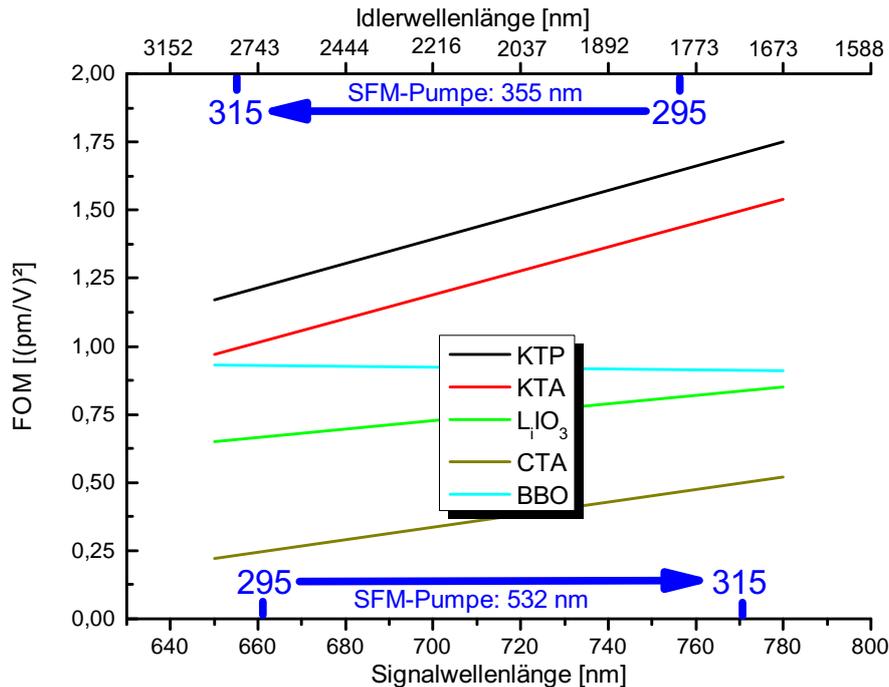


Abbildung 4.4: Vergleich der Gütezahlen (zu FOM siehe Kap. 4.3.1) der beiden mit 532 nm gepumpten OPO-Prozesse der in Frage kommenden Kristallmaterialien. Dabei sind auf den x-Achsen die Signal- (untere) und Idlerwellenlänge (obere) des OPO-Prozesses aufgetragen. Analog zu Tab. 4.2 wird im 2. Prozess die Idlerstrahlung mit 355 nm und im 3. Prozess die Signalstrahlung mit 532 nm gemischt, um die gewünschten UV-Wellenlängen zu erhalten. Die resultierenden UV-Wellenlängen beider Prozesse sind unten und oben in blau aufgetragen.

Die höchste Güte und damit auch die höchsten Effizienzen ergeben sich für die beiden Materialien KTP und KTA. Für die Vermessung troposphärischen Ozons ist nach Meister (2005) ein Wellenlängenbereich von 280-300 nm geeignet. Für kürzere UV-Wellenlängen ist nach Abb. 4.4 die mit 355 nm Wellenlänge gemischte Variante mit dem Material KTP am effizientesten, weshalb sie auch in dem Vorgängersystem TropOlex realisiert worden ist.

Was Ozon-DIAL-Messungen im Tropopausenbereich betrifft, sind beide Varianten der Güte nach gleichwertig, da für diesen speziellen Wellenlängenbereich mit beiden Konfigurationen dieselben Signal- und Idlerwellenlängenbereiche abgedeckt werden müssen.

Der Vorteil der Variante, bei der mit 532 nm gemischt (Prozess 3, Tab. 4.2) wird, ist, dass vollständig auf eine Verdreifachung der Grundwellenlänge verzichtet werden kann und so die gesamte Energie aus der Verdopplung zur Verfügung steht. Demnach verspricht diese Variante (Prozess 3, Tab. 4.2) die höchste Effizienz und wurde in dem neuen UV-OPO realisiert.

Bezüglich der potentiellen OPO-Kristalle, des mit 532 nm gepumpten und mit 532 nm gemischten OPO-Prozesses, sind die wichtigsten Kristallparameter in Tab. 4.3 zusammengefasst.

Das Material CTA besitzt den geringsten „walk-off“-Winkel. Nachteilig ist aber, dass CTA gegenüber den anderen Materialien eine vergleichbar geringe Güte der Effizienz aufweist. Ein weiteres Argument, das gegen CTA spricht, ist, dass der gesamte Wellenlängenbereich mit diesem Material nur über ein $\Delta\theta$ von $22,3^\circ$ zu erreichen ist. Der CTA-Kristall müsste dem Snellius'schen Brechungsgesetz zufolge um $\pm 21^\circ$ verkippt werden, um den gesamten Wellenlängenbereich abzudecken. Derart große Kippwinkel führen zu den eingangs beschriebenen Problemen. Für die restlichen Kristalle sind alle geforderten Wellenlängen über einen angemessenen Winkelbereich von einigen Grad zu erreichen. Damit ist auch die Empfindlichkeit der Einstellung nicht zu groß.

Tabelle 4.3: Kristallparameter der möglichen Kristalle des OPO-Prozesses, bei welchem mit 532 nm gepumpt und gemischt wird. „Figure of Merit“ (FOM) und d_{eff} sind ein Kennzeichen für die Güte der Konversionseffizienz.

Kristall	Wellenlänge UV, Signal, Idler [nm]	Phasen-anpassungs-winkel θ (ϕ)	$\Delta\theta, \frac{\partial\lambda}{\partial\theta}$	„walk-off“-Winkel ρ	d_{eff} [pm/V]	FOM [pm ² /V ²]
KTP	295, 662, 2705	45,0° (0°)	10,6°,	3,1°	2,61	1,23
XZ	305, 714, 2080	50,2° (0°)	10,4	3,3°	2,86	1,46
Typ II	315, 772, 1710	55,6° (0°)	nm/°	2,85°	3,11	1,72
KTA	295, 662, 2705	45,6° (0°)	12,9°,	2,94°	2,47	1,02
XZ	305, 714, 2080	51,9° (0°)	8,5	2,84°	2,75	1,26
Typ II	315, 772, 1710	58,5° (0°)	nm/°	2,58°	3,02	1,5
BBO	295, 662, 2705	20,9°	1°,	2,99°	2,04	0,93
	305, 714, 2080	21,3°	110	3,03°	2,04	0,92
Typ I	315, 772, 1710	21,9°	nm/°	3,1°	2,03	0,91
LiIO ₃	295, 662, 2705	24,6°	3,3°,	3,77°	2,09	0,68
	305, 714, 2080	26,5°	33,3	3,96°	2,23	0,77
Typ I	315, 772, 1710	27,9°	nm/°	4,1°	2,33	0,85
CTA	295, 662, 2705	39,8° (90°)	22,3°,	2,23°	1,28	0,25
YZ	305, 714, 2080	50,5° (90°)	4,9	2,2°	1,57	0,37
Typ II	315, 772, 1710	62,1° (90°)	nm/°	1,82°	1,82	0,5

Die „walk-off“-Winkel ρ liegen außer für CTA in etwa bei 3°. Dadurch würde bei einer für diese Anwendungen typischen Kristalllänge von ~ 10 mm der außerordentliche von dem ordentlichen Strahl um 0,52 mm getrennt sein, was, bei einem Strahldurchmesser von 6 mm und unter der vereinfachten Annahme eines homogenen Strahlprofils, an der Austrittsfläche einem Überlapp von knapp 84 % entspricht. Im Vergleich zu dem mit dem geringsten „walk-off“-Effekt verbundenen Material CTA führen die anderen Materialien aufgrund der wesentlich höheren Nichtlinearität zu besseren Wirkungsgraden.

KTA und KTP sind unter Betrachtung der wesentlichen Parameter nahezu gleichwertig und für den hier ausgewählten Prozess am geeignetsten. Sie verfügen im Vergleich zu den anderen Materialien über die höchste Nichtlinearität und haben eine ausreichend hohe optische Zerstörschwelle (siehe Kap. 4.5). Die Nichtlinearität von KTP ist gegenüber der von KTA leicht höher. KTA verspricht jedoch einen größeren Durchstimmbereich (siehe Kap. 4.5), weshalb zunächst KTA die günstigsten Eigenschaften aufzuweisen scheint und KTP die zweite Wahl ist. Im Experiment konnte dies jedoch nicht bestätigt werden, wie sich weiter unten zeigen wird.

Eine Gegenüberstellung der wesentlichen Parameter des Mischprozesses für die möglichen Kristalle findet sich in Tab. 4.4. Für alle Materialien liegt der Kippwinkelbereich bei einigen Grad und bereitet damit keine Probleme. Der „walk-off“-Winkel beträgt für CBO, LBO, KDP und KD*P $\sim 1,5^\circ$ und für BBO und BIBO $\sim 5^\circ$. Bei einer für diese Anwendung typischen Mischkristalllänge von 3 mm würde der außerordentliche von dem ordentlichen Strahl in der Austrittsebene um 0,06 mm bzw. 0,26 mm getrennt sein. Für beide Werte beträgt der Überlapp unter obiger Annahme an der Austrittsfläche des Kristalls 98 % bzw. 92 %. Beim Mischen spielt der Effekt für einen Typ-1-Prozess jedoch keine Rolle, da die beiden fundamentalen Strahlen in diesem Fall kaum räumlich voneinander getrennt werden.

Tabelle 4.4: Kristallparameter der möglichen Kristalle für den Mischprozess im Vergleich. Die Mischpump-Wellenlänge beträgt 532 nm. „Figure of Merit“ (FOM) und d_{eff} sind ein Kennzeichen für die Güte der Konversionseffizienz.

Kristall	Wellenlänge UV, Signal [nm]	Phasen-anpassungs-winkel θ (ϕ)	$\Delta\theta$	„walk-off“-Winkel ρ	d_{eff} [pm/V]	FOM [pm ² /V ²]
BIBO	295, 662	121,6° (90°)	10,3°	4°	2,95	1,25
YZ	305, 714	127,1° (90°)		4,02°	3,23	1,53
Typ I	315, 772	131,9° (90°)		4,24°	3,55	1,89
BBO	295, 662	41,1°	3,7°	4,75°	1,88	0,76
	305, 714	39,2°		4,67°	1,91	0,79
Typ I	315, 772	37,4°		4,57°	1,93	0,8
CBO	295, 662	58,2° (90°)	12,4°	1,15°	1,17	0,35
YZ	305, 714	51,6° (90°)		1,26°	1,24	0,39
Typ I	315, 772	45,8° (90°)		1,26°	1,24	0,39
LBO	295, 662	90° (64,8°)	11,5°	0,87°	0,4	0,04
XY	305, 714	90° (58,6°)		1°	0,48	0,05
Typ I	315, 772	90° (53,3°)		1,06°	0,55	0,07
KDP	295, 662	61,6°	6,1°	1,49°	0,41	0,05
	305, 714	58,3°		1,58°	0,39	0,04
Typ I	315, 772	55,5°		1,64°	0,37	0,04
KD*P	295, 662	63,8°	7,2°	1,3°	0,37	0,04
	305, 714	59,9°		1,42°	0,36	0,04
Typ I	315, 772	56,6°		1,49°	0,34	0,03

Die höchste Güte der Effizienz weist das Material BIBO auf. Bei Wismutborat (BiB₃O₆ oder BIBO) handelt es sich um ein neues Material, welches erst seit 1999 in verwendbaren Dimensionen hergestellt werden kann (Peltz et al., 2005). Seine vergleichsweise hohen nichtlinearen Koeffizienten führen in vielen Anwendungen zu einer großen Attraktivität. Da jedoch wenig über optische Zerstörschwellen von BIBO bekannt ist, wurde sich gegen dieses Material entschieden. Derzeit läuft ein Verbundprojekt verschiedener Forschungseinrichtungen, in welchem unter anderem die Zerstörschwelle von BIBO untersucht wird (S. Vernay, F.E.E. GmbH, persönliche Mitteilung). Eine Erprobung von BIBO in diesem UV-OPO wurde im Rahmen dieser Arbeit aufgrund der mangelnden Informationen nicht durchgeführt.

Ein im Vergleich zu BIBO technisch sehr ausgereiftes Material ist BBO. Bei BBO sind die Zerstörschwellen bekannt und ausreichend hoch (siehe Kap. 4.6) und es verfügt, abgesehen von BIBO, über die höchste Güte der Effizienz. Daher wurde für den Mischkristall das Material BBO verwendet.

Zusammenfassend wurden für den OPO-Prozess die Materialien KTP und KTA aufgrund ihrer Transmissionsbandbreite, ihrer hohen Nichtlinearität und ihrer hohen optischen Zerstörschwelle ausgewählt. Als Mischkristall wurde BBO ausgewählt, da dieses technisch sehr ausgereifte Material über einen ausreichenden Transmissionsbereich, eine hohe Nichtlinearität und eine hohe optische Zerstörschwelle verfügt. Im Folgenden werden die Eigenschaften dieser drei Kristalle näher beschrieben.

4.5 Die OPO-Kristalle KTP und KTA

Kaliumtitanylphosphat (KTiOPO_4 , KTP) ist das am weitesten verbreitete nichtlineare Kristallmedium und findet heutzutage Anwendung in optischen Systemen der Industrie, des Militärs, der Medizin und der Wissenschaft. Am häufigsten wird es zur Frequenzverdopplung von Nd-dotierten Lasern eingesetzt. Seine Vorteile sind der hohe nichtlineare Koeffizient, der geringe „walk-off“-Winkel, die hohe Temperaturbandbreite und die hohe laserinduzierte Zerstörschwelle von bis zu $2\text{--}3 \frac{\text{GW}}{\text{cm}^2}$ für 1064 nm bei 10 Hz Repetitionsfrequenz und 11 ns Impulsdauer (Vanherzeele et al., 1988; Bierlein und Vanherzeele, 1989) und sogar bis $30 \frac{\text{GW}}{\text{cm}^2}$ für 526 nm. Außerdem sind die Herstellungsmethoden mittlerweile so weit ausgereift, dass KTP im Gegensatz zu seinen Konkurrenten zu einem günstigeren Preis angeboten werden kann.

Bei der Herstellung werden, wie in Peltz (2004) erläutert, hauptsächlich zwei verschiedene Verfahren angewendet. Bei dem Flux-Growth-Verfahren wird ein Kristallkeim langsam aus der Schmelze gezogen, sodass dieser bei geeigneter Kühlung anwächst. Die Schmelze enthält bei der KTP-Zucht nur Bestandteile des Kristalls und hat eine Temperatur von 850–950 °C. Im Falle des hydrothermal gezogenem Verfahrens werden die KTP-Kristalle unter hohem Druck und geringerer Temperatur (~ 450 °C) aus einer wässrigen Lösung gewachsen. Die optische Kristallqualität ist hier im Allgemeinen besser, doch dauert die Wachstumszeit länger. In Abb. 4.5 ist die Transmissionskurve von

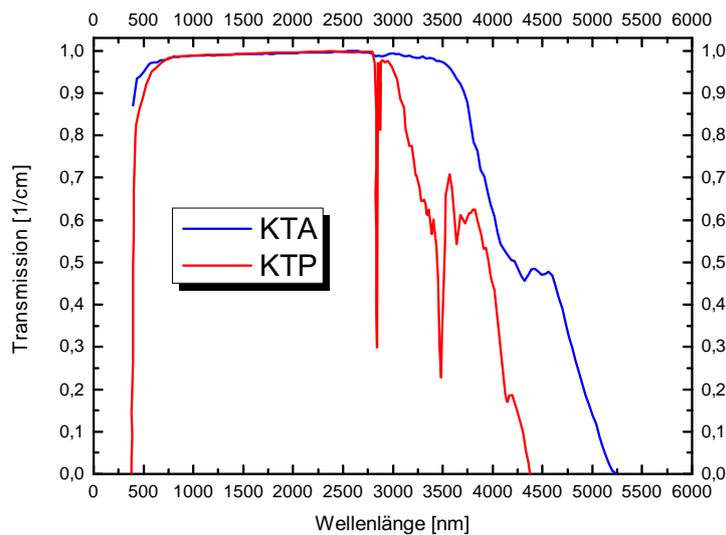


Abbildung 4.5: Transmissionspektrum von KTA und KTP (Hansson et al., 2000).

KTP dargestellt. Die Absorptionsbanden bei c.a. 2800 nm sind Banden der OH-Streckschwingung (Peltz, 2004). Die Existenz von OH-Bindung im Kristall geht auf Einschlüsse von H_2O während des Kristallwachstums zurück. Die Abnahme der Transmission im mittleren Infrarot wird auf molekulare Absorption der PO_4^- - und TiO_6 -Strukturen zurückgeführt. Im Vergleich zu den Phosphat-Isomorphen haben die Arsenat-Isomorphe eine deutlich höhere Transmission im mittleren Infrarot (Peltz, 2004).

Die Transmissionskurve des Arsenat-Isomorphs Kaliumtitanylarsenat (KTiOAsO_4 , KTA) ist ebenfalls in Abb. 4.5 aufgetragen. Es besitzt zwar fast dieselben Eigenschaften wie KTP und verfügt über einen geringfügig kleineren nichtlinearen Koeffizienten, wird aber wegen der besseren MIR-Transmission überall dort eingesetzt, wo mittleres Infrarot verwendet wird. Seine Zerstörschwelle liegt bei über $1,2 \frac{\text{GW}}{\text{cm}^2}$ für 1064 nm Wellenlänge, 20 Hz Repetitionsfrequenz und 8 ns Impulsdauer (Bösenberg et al., 1994) und bei über $1 \frac{\text{GW}}{\text{cm}^2}$ für 850 nm Wellenlänge und 2 ns Impulsdauer¹⁴ (Kung,

¹⁴unbekannte Impulswiederholffrequenz

1994).

Tabelle 4.5: Gegenüberstellung des theoretisch zu erreichenden Durchstimmbereiches unter Verwendung von KTP und KTA als OPO-Kristalle für den aus Tab. 4.2 ausgewählten Prozess (# 3).

Prozess #	$\lambda_{\text{OPO Pumpe}}$ [nm]	λ_{OPO} [nm]	OPO-Kristall	$\lambda_{\text{SFM Pumpe}}$ [nm]	λ_{UV} [nm]
3	532	662 – 772 (2709 - 1711)	KTP	532	295 - 315
3	532	627 – 772 (3511 - 1711)	KTA	532	287,8 - 315

Aus der Energieerhaltung (vgl. Gl. 4.8) folgt für den Mischprozess, dass, je kleiner die Signalwellenlänge ist, desto kleiner ist die erzeugte Wellenlänge im UV. Aus der Energieerhaltung folgt ebenfalls für den OPO-Prozess, dass, je kleiner die Signalwellenlänge ist, desto größer ist die Idlerwellenlänge. Für die Erzeugung einer relativ kleinen UV-Wellenlänge wird im OPO also eine relativ große Idlerwellenlänge erzeugt. Durch die Verwendung von KTP als OPO-Kristall ist der Durchstimmbereich im UV aufgrund der ab 2700 nm Wellenlänge einsetzenden Absorption damit bis zu einer Wellenlänge von 295 nm nach unten begrenzt. Demnach können mit KTP alle für diese Anwendung notwendigen UV-Wellenlängen generiert werden. Durch die Verwendung von KTA kann, wegen der hohen MIR-Transmission bis zu einer Wellenlänge von 3500 nm, der Durchstimmbereich im UV bis zu 287,8 nm ausgebaut werden (vgl. Tab. 4.2). Somit könnten mit einem OPO durch die Verwendung von KTA sowohl die optimalen Wellenlänge für Ozon im Tropopausen-Bereich als auch für troposphärisches Ozon (siehe DIAL Wellenlängen Meister (2005)) generiert werden. Aufgrund dieser Tatsache wurde sich zunächst für das Material KTA entschieden. Die Vorteile von KTA ließen sich, wie weiter unten gezeigt wird, jedoch im Experiment nicht bestätigen. Daher wurde schließlich das Material KTP verwendet.

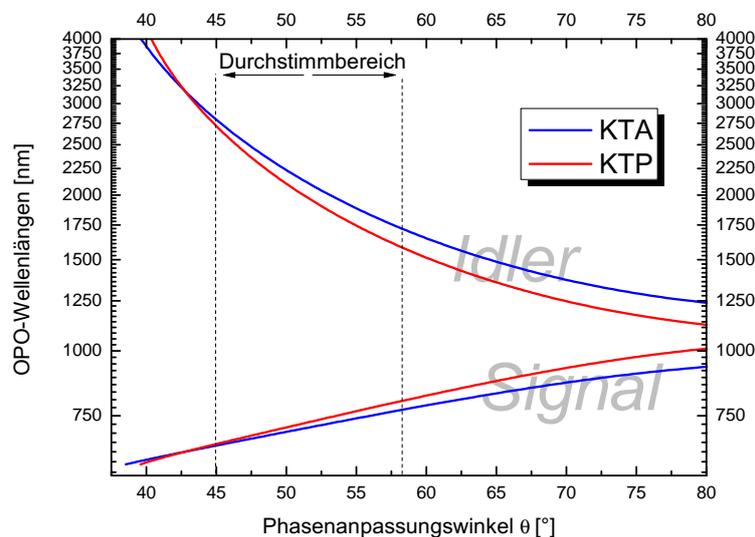


Abbildung 4.6: OPO Wellenlängen aufgetragen über den Phasenanpassungswinkel für die KTP- und KTA-OPO-Kristalle (<http://www.sandia.gov/pcnsc/departments/lasers/snlo-software.html> [Stand 17.10.2011]).

Bei beiden Materialien handelt es sich um optisch positive zweiachsige Kristalle der Kristallklasse $mm2$ (Punktgruppe). Nach Bhar et al. (1996) ist KTP in der XZ-Ebene ($\phi = 0^\circ$) in der Typ-2-Phasenabstimmungsgeometrie am effizientesten, was unter anderem auch für KTA gilt. In dieser Konfiguration gilt:

- Signal- und Idlerstrahlung sind orthogonal polarisiert (Typ 2).
- Alle Strahlen liegen in der XZ-Ebene.
- Pump- und Idlerwelle sind ordentliche Strahlen, die Signalwelle ist außerordentlich ($o \rightarrow eo$).

Die Funktion von Signal- und Idlerwellenlänge gegenüber dem Phasenanpassungswinkel θ ist für beide Materialien in Abb. 4.6 dargestellt.

Je länger der OPO-Kristall ist, desto niedriger ist die OPO-Schwelle (vgl. Gl. 4.13). Allerdings kommt es aufgrund der in der Praxis nicht vermeidbaren Phasenfehlpassung bei zu langen Kristallen zur Rückkonversion in die fundamentale Strahlung. Nach Fix und Ehret (1998) wurden für diesen Prozess mit einem 12 mm langen OPO-Kristall gute Ergebnisse bezüglich der Konversionseffizienz erzielt, weshalb auch in dieser Arbeit KTP- und KTA-Kristalle mit einer Länge von 12 mm verwendet wurden.

Die Akzeptanzbandbreiten skalieren mit der reziproken Kristalllänge. Um eine effiziente Konversion zu erreichen, sollten die Akzeptanzbandbreiten nicht überschritten werden. Die Bandbreitenakzeptanz der Pumpstrahlung spielt aufgrund der geringen Linienbreite der Pumpstrahlung (im MHz-Bereich vgl. Kap. 4.7) bei einem OPO keine Rolle. Die Winkelakzeptanz für die Pumpstrahlung beider Kristallmaterialien kann für die Länge 12 mm der Tab. 4.2 entnommen werden. Die Divergenz der Pumpstrahlung beträgt 0,55 mrad (vgl. Kap. 4.7). Da die Winkelakzeptanz in Tab. 4.2 der Toleranz im Material entspricht, muss diese auch mit der Divergenz im Material verglichen werden. Nach dem Snellius'schen Brechungsgesetz ergibt sich bei einem Brechungsindex von $n_{532\text{ nm}} = 1,79$ ($n_{532\text{ nm}} = 1,83$) für KTP (KTA) die Divergenz der Pumpstrahlung im Material zu 0,3 mrad (0,3 mrad) und ist damit geringer als die in Tab. 4.2 geforderten Winkelakzeptanzen.

Tabelle 4.6: Berechnete Akzeptanzbandbreiten von KTA und KTP der Länge 12 mm für den Prozess 3 aus Tab. 4.2. Die Werte Winkelakzeptanz und Bandbreitenakzeptanz der Signalstrahlung entsprechen der Divergenz und der homogenen Verbreiterung der Signalstrahlung.

	λ_{Signal}	KTP	KTA
Winkelakzeptanz Signal (Pumpe)	662 nm	0,56 (0,56) mrad	0,58 (0,58) mrad
	714 nm	0,63 (0,63) mrad	0,65 (0,65) mrad
	772 nm	0,72 (0,72) mrad	0,77 (0,77) mrad
Bandbreitenakzeptanz Signal	662 nm	0,32 nm	0,27 nm
	714 nm	0,37 nm	0,32 nm
	772 nm	0,45 nm	0,39 nm
Temperaturakzeptanz	662 nm	16,18 K	20,88 K
	714 nm	15,76 K	12,48 K
	772 nm	16,2 K	9,22 K

Die Werte Winkelakzeptanz und Bandbreitenakzeptanz der Signalstrahlung aus Tab. 4.6 entsprechen der Divergenz¹⁵ und der homogenen Verbreiterung der Signalstrahlung.

Weitere Daten wie z. B. die nichtlinearen Koeffizienten, Brechungsindizes und Dispersionseigenschaften finden sich unter anderem in dem „handbook of nonlinear optical crystals“ (Dmitriev et al., 1999).

Für die experimentellen Untersuchungen wurden Kristalle mit den Abmessungen 9 X 11 X 12 mm³ gewählt, und die Ein- und Austrittsflächen sollten aufgrund der Kippwinkel von $\pm 10^\circ$

¹⁵Unter der Annahme, die Pumpstrahlung sei eine ebene Welle.

planparallel sein, um die Strahlage im Resonator zwischen „Online“- und „Offline“-Strahlung nicht zu verändern. Für die Schnittwinkel der Kristalle wurden für KTP $\theta = 50,7^\circ$ und für KTA $\theta = 49,3^\circ$ gewählt. Zur Minimierung der Verluste innerhalb des Resonators sind die Außenfacetten des Kristalls für alle drei beteiligten Wellenlängenbereiche mit AR-Beschichtungen versehen.

4.6 Der SFM-Kristall BBO

Beta-Barium-Borat (β -BaB₂O₄, BBO) ist ein negativ einachsiger Kristall mit trigonaler Kristallstruktur, der Raumgruppe $R3c$ und Punktgruppe $3m$. Nach Mohs wird BBO der Härtegrad 4 zugeordnet, sodass dieser Kristall vergleichsweise weich ist. Seine Dichte beträgt $3,85 \text{ g/cm}^3$. Sein Transparenzbereich erstreckt sich von 190-3500 nm (Chen et al., 1985; Bromley et al., 1988) und ist in Abb. 4.7 dargestellt.

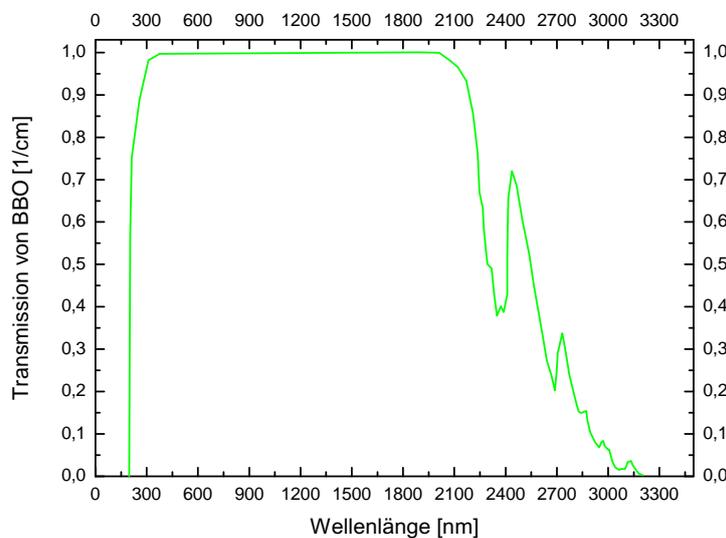


Abbildung 4.7: Transmissionspektrum von BBO (<http://www.sandia.gov/pcnsc/departments/lasers/snlo-software.html> [Stand 17.10.2011]).

Nach Komine (1988) liegt die optische Zerstörschwelle für Licht der Wellenlänge 307,8 nm mit 12 ns Impulsdauer bei $0,2 \text{ GW/cm}^2$, für 532,1 nm Wellenlänge und 0,025 ns Impulsdauer und 10 Hz Repetitionsfrequenz bei über $4,2 \text{ GW/cm}^2$ (Zhang et al., 1993) und für 694,3 nm Wellenlänge und 0,02 ns Impulsdauer nach Chen et al. (1985) bei 10 GW/cm^2 . Neben den vorteilhaften Eigenschaften wie Transparenz und Zerstörschwelle wird BBO auch gerade wegen seiner wesentlich höheren Nichtlinearität gegenüber seinen Konkurrenten wie beispielsweise LBO oder KDP vorgezogen.

Was den Mischprozess betrifft, kann die Phasenanpassung für BBO sowohl für Typ-1- als auch Typ-2-Prozess erreicht werden. Realisiert wurde die Typ-1-Konfiguration, da sie eine höhere Güte der Effizienz aufweist. Die Phasenanpassungswinkel sind für die UV-Wellenlängen in Abb. 4.8 aufgetragen.

Die Bandbreitenakzeptanz spielt in dieser Arbeit hauptsächlich beim Mischprozess eine Rolle, da sie die maximal zulässige spektrale Breite der Signalstrahlung bestimmt. Die Akzeptanzbandbreite skaliert mit der reziproken Kristalllänge (Dmitriev et al., 1999). Das bedeutet, je kürzer der Mischkristall ist, desto größer ist der zulässige Spektralbereich, innerhalb dessen Strahlung effizient konvertiert werden kann. Mit einem Mischkristall von 3 mm Länge ergeben sich die in Tab. 4.7 aufgelisteten Akzeptanzbandbreiten.

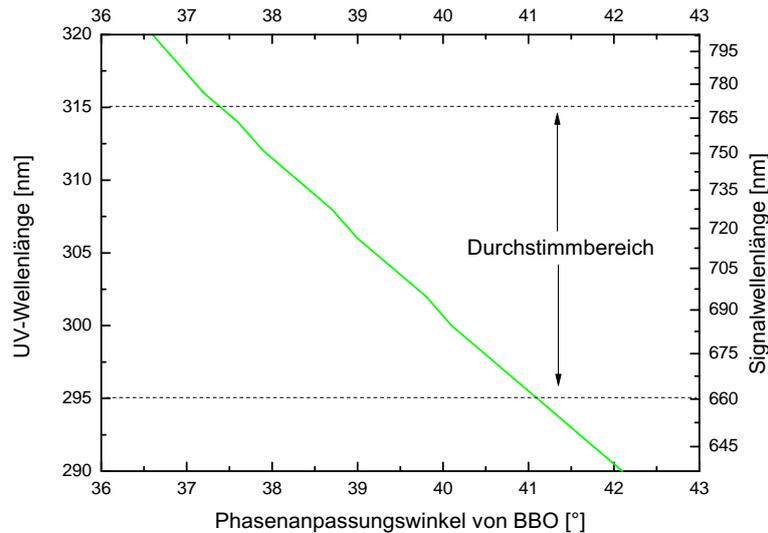


Abbildung 4.8: UV-Wellenlängen aufgetragen über den Phasenanpassungswinkel für den BBO-Mischkristall (<http://www.sandia.gov/pcnsc/departments/lasers/snlo-software.html> [Stand 17.10.2011]).

Tabelle 4.7: Berechnete Akzeptanzbandbreiten von BBO der Länge 3 mm für den Prozess 3 aus Tab. 4.2.

	λ_{Signal}	BBO
Winkel- akzeptanz Signal (Pumpe)	662 nm	1,6 (1,27) mrad
	714 nm	1,76 (1,3) mrad
	772 nm	1,93 (1,33) mrad
Bandbreiten- akzeptanz Signal (Pumpe)	662 nm	1 (1,25) nm
	714 nm	1,26 (1,65) nm
	772 nm	1,56 (2,2) nm
Temperatur- akzeptanz	662 nm	27,5 K
	714 nm	30,57 K
	772 nm	34 K

Die spektrale Breite der Signalstrahlung, lässt sich über die in Kap. 4.2 beschriebene Reduktion (p -facher Durchgang durch das verstärkende Medium) aus der homogenen Verbreiterung der Signalstrahlung (vgl. Tab. 4.6) berechnen. Die Impulsdauer des in dieser Arbeit verwendeten Pumpstrahls beträgt etwa 10 ns und die Resonatorlänge des entwickelten OPO entspricht $L = 8,2$ cm. Dadurch ergeben sich mit Gl. 4.17 $p \approx 18,17$ Resonatorumläufe pro Pumpimpuls, wodurch sich die Bandbreite um einen Faktor von $\sqrt{p} = 4,26$ gegenüber der homogenen Verbreiterung aus Gl. 4.16 reduziert. Demnach liegt die spektrale Breite der Signalstrahlung mit $\lesssim 0,2$ nm über den gesamten Durchstimmbereich hinweg innerhalb der Bandbreitenakzeptanz des Mischprozesses. Die Linienbreite der Pumpstrahlung unterschreitet die Toleranz um drei Größenordnungen.

Die Divergenz der Pumpstrahlung (0,55 mrad in Luft, siehe Kap. 4.7) berechnet sich mit dem Brechungsindex $n_{532\text{ nm}} = 1,67$ für BBO nach dem Snellius'schen Brechungsgesetz zu 0,33 mrad im Material. Damit unterschreitet die Divergenz die Winkelakzeptanz der Pumpstrahlung für einen 3 mm langen BBO-Kristall (vgl. Tab. 4.7). Die Divergenzen der Signalstrahlung im Material KTP bzw. KTA lassen sich Tab. 4.6) entnehmen und betragen maximal 0,8 mrad. Mit den entsprechenden Brechungsindizes der Signalstrahlung in den OPO-Kristallen und dem Brechungsindex der Signalstrahlung im BBO-Kristall ergibt sich die Divergenz der Signalstrahlung über das Snellius'sche Brechungsgesetz zu maximal 0,73 mrad im BBO-Kristall. Nach Tab. 4.7 ist die Divergenz der Signalstrahlung ebenfalls kleiner als die Winkelakzeptanz.

Der verwendete BBO-Kristall hat die Dimension $10 \times 10 \times 3 \text{ mm}^3$. Der Schnittwinkel beträgt $\theta = 40^\circ$ und die Außenfacetten wurden mit einer AR-Beschichtung für die Signal-, Mischpump- und den UV-Wellenlängenbereich versehen.

4.7 Charakterisierung der OPO-Pumpe

Im Allgemeinen hängt die Güte jedes nichtlinearen Prozesses maßgeblich von den Eigenschaften der Pumpstrahlung ab. Als Pumpe für den UV-OPO stand der Nd:YAG-Laser des WALES-Systems (vgl. Kap. 2.3.1) zur Verfügung. Durch Frequenzverdopplung wird aus der fundamentalen Wellenlänge die für die ausgewählten Konversionsprozesse notwendige Pumpwellenlänge von 532 nm generiert.

Die Verdopplung erfolgt mittels KTP-Kristall der Dimension $10 \times 10 \times 10 \text{ mm}^3$ in Typ-2-Konfiguration ($eo \rightarrow o$). Der Kristall wird in der XY-Ebene unter den Phasenanpassungswinkeln $\theta = 23.5^\circ$ und $\phi = 90^\circ$ (Wirth et al., 2009). Die Bandbreite der fundamentalen Strahlung beträgt nach Wirth et al. (2009) 54 MHz. Unter der vereinfachten Annahme, dass die Intensität der fundamentalen Strahlung im Frequenzraum homogen verteilt ist, ergibt sich für die frequenzverdoppelte Strahlung maximal eine Bandbreite von 108 MHz.

Mit diesem Frequenzkonverter ergibt sich die in 4.9 dargestellte Leistungskurve. Demnach stehen bei 532 nm maximal 21,1 W mittlere Leistung oder 211 mJ Impulsenergie zu Verfügung. Die maximal erzielte Konversionseffizienz liegt bei 60 %.

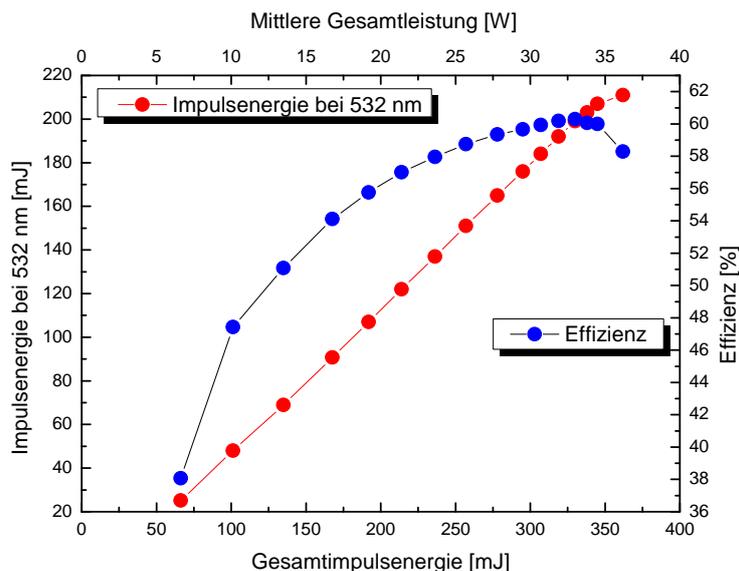


Abbildung 4.9: Vermessene Leistungs- und Effizienzkurve der Frequenzverdopplung.

Gerade bei den hohen Leistungsdichten, die bei ns-Impulslasern im Bereich der Zerstörschwellen der Optiken liegen können, ist es besonders wichtig, den OPO mit Strahlen hoher räumlicher Strahlqualität zu pumpen. Treten große Strahldivergenzen auf oder weist das Strahlprofil, also die Intensitätsverteilung über den Strahlquerschnitt, Inhomogenitäten auf, so bedeutet dies einen hohen Strahlpropagationsparameter M^2 (Siegman, 1991). Der Literatur lassen sich jedoch keine Toleranzen in Bezug auf die Strahlqualität von OPO-Pumpen entnehmen. Allerdings steht mit der M^2 -Wertmessung ein quantitatives Verfahren zur Bewertung der Strahlqualität zur Verfügung.

Mit Hilfe einer CCD-Kamera kann analog dem ISO-111461:2005-Standard der Verlauf des Strahlradius hinter einem fokussierenden Element bestimmt werden. Aus dem Verlauf ergibt sich der

M²-Wert zu

$$M^2 = \frac{D_{min}}{Z_R} D_{min} \frac{\pi}{4\lambda} \quad . \quad (4.19)$$

Dabei ist D_{min} der sich aus einer hyperbolische Anpassung an den Strahldurchmessererlauf ergebende Taillendurchmesser und Z_R die Rayleighlänge, welche dem Abstand zu derjenigen Strahltaile entspricht, bei der der Strahldurchmesser auf $\sqrt{2}$ des Taillendurchmessers angewachsen ist. Die Divergenz eines Laserstrahls ergibt sich aus dem Strahldurchmesser D_f in der Brennebene der Linse und der Brennweite f zu

$$\theta = \frac{D_f}{f} \quad . \quad (4.20)$$

In Abb. 4.10 ist der Strahlradiusverlauf der Pumpstrahlung hinter einer Linse mit der Brennweite 497 mm dargestellt. Die Strahlqualität des Pumpstrahls ergibt sich aus dem Mittelwert beider großen Halbachsen des elliptischen Strahlprofils zu $M^2 = 3,42$ und die Divergenz wurde zu $\theta = 0,55$ mrad bestimmt.

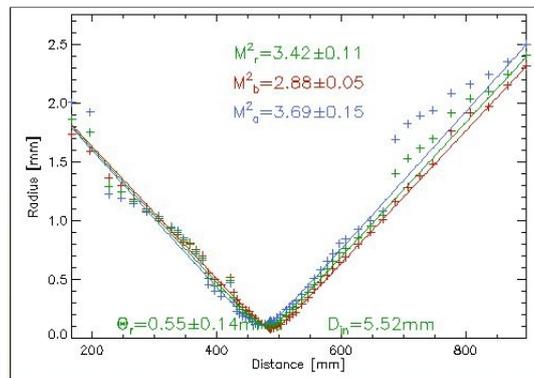


Abbildung 4.10: Strahlradius der Pumpstrahlung maximaler Leistung als Funktion des Abstandes hinter einer Linse der Brennweite $f = 497$ mm. Die Indizes a und b entsprechen den beiden großen Halbachsen des elliptischen Laserstrahlprofils. Der Index r ist der Mittelwert aus beiden großen Halbachsen.

Das Strahlprofil im Nahfeld am Ort des OPO wurde mittels CCD-Kamera vermessen und ist in Abb. 4.11 dargestellt. Der Strahlradius beider großen Halbachsen des elliptischen Strahlprofils beträgt 2,62 mm und 2,66 mm. Es lassen sich keine Inhomogenitäten der Intensitätsverteilung erkennen.

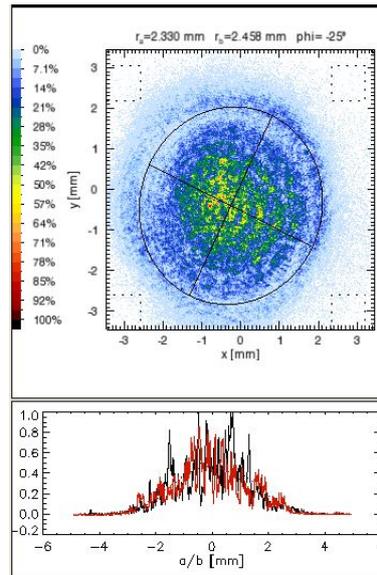


Abbildung 4.11: Oben: Strahlprofil der Pumpe vor dem OPO. Unten: Intensitätsverteilung entlang den beiden großen Halbachsen des Profils.

Unter Verwendung von KTP als SHG-Kristall steht demnach eine geeignete Pumpquelle für den OPO und die SFM zur Verfügung.

4.8 Auswahl einer geeigneten Resonatorgeometrie

Wichtig für eine erfolgreiche Konversion mittels OPO ist die Wahl der richtigen Resonatorgeometrie. Aus Gl. 4.13 ergibt sich eine niedrige Schwelle bzw. eine hohe Effizienz für einen kurzen Resonator mit geringen Verlusten. Die Verluste können reduziert werden, indem die Reflektivitäten und Transmissionen der Optikoflächen mit geeigneten Beschichtungen unterstützt werden.

Um durch den Mischprozess hohe UV-Impulsenergien zu erhalten, sind hohe Pumpintensitäten notwendig, da die Konversionseffizienz eine Funktion des Produktes der beiden fundamentalen Wellen ist. Fix und Ehret (1998) zufolge kann demnach der Wirkungsgrad ins UV weiter gesteigert werden, wenn der Mischprozess innerhalb der Kavität stattfindet. Dabei wird sich die hohe resonatorinterne Intensität der Signalstrahlung zunutze gemacht. Unter Berücksichtigung dieser Tatsache kommen für den OPO die in Abb. 4.12-4.14 skizzierten Resonatorgeometrien in Frage.

Der Unterschied zwischen den beiden linearen Geometrien ergibt sich rein aus der technischen Realisierbarkeit des Einkoppelspiegels (M1) der Pumpe. Während es sich im linearen Resonator um einen Langpassspiegel handelt, ist der Einkoppelspiegel im linear gewinkelten Resonator ein Kurzpassspiegel. In der Regel ist der spektrale Bereich der Transmission eines Langpassfilters größer als der Bereich der Reflexion in einem Kurzpassfilter. Für das Vorgängersystem TropOlex kam aus diesem Grund nur die lineare Konfiguration in Frage.

Über den hier angestrebten Signalwellenlängenbereich von 627-770 nm (vgl. Tab. 4.5 für KTA) sind die realisierbaren Transmissions- und Reflektionsspektren der jeweiligen M1-Spiegelbeschichtungen gleichwertig, sofern die Polarisation im gewinkelten Resonator senkrecht zur Einfallsebene¹⁶ (des Spiegels M1) polarisiert ist.

¹⁶Den Fresnel'schen Gleichungen (siehe beispielsweise Hecht (2005)) zufolge verfügt senkrecht zur Einfallsebene polarisiertes Licht über eine höhere Reflektivität als parallel polarisiertes Licht. Senkrechte Polarisation wird dabei als s-pol und parallele Polarisation als p-pol bezeichnet.

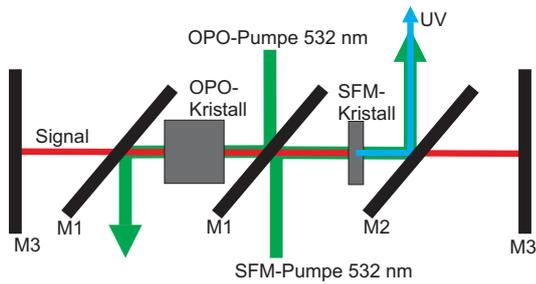


Abbildung 4.12: Skizze linearer Resonator.

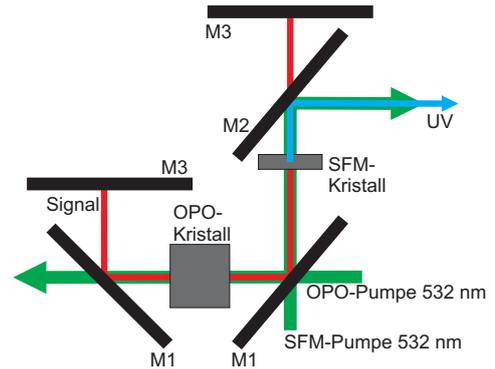


Abbildung 4.13: Skizze linearer gewinkelter Resonator.

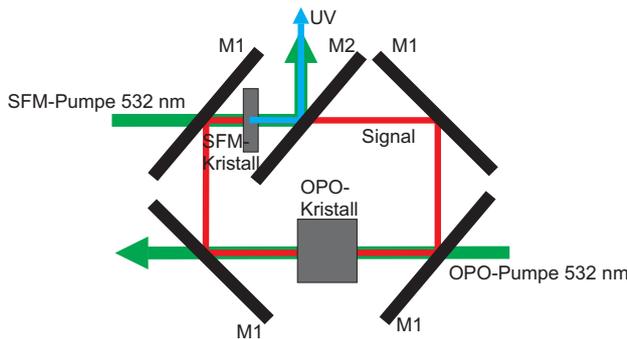


Abbildung 4.14: Skizze Ringresonator.

In Fix und Ehret (1998) wurden verschiedene Resonatorgeometrien für einen mit 532 nm gepumpten und mit 532 nm gemischten OPO untersucht. In diesem Fall zeigte sich, dass mit einer ähnlichen linear gewinkelten Geometrie am meisten Leistung im UV generiert werden konnte. Aus diesem Grund wurde hier der linear gewinkelte Resonator dem linearen Resonator vorgezogen.

Tabelle 4.8: Beschichtungen der Resonatorspiegel. Die Abkürzungen *s* und *p* stehen für optimiert auf *s-pol* oder *p-pol*. Die Relevanz der Spiegel M4 und M5 wird in den Kap. 4.9.2 und 4.9.5 erklärt.

Spiegel	Beschichtung Vorderseite	Beschichtung Rückseite
M1	HR 620 - 770 nm /s, HT 532 nm /p, HT 1800 - 3300 nm /p /45°	AR 532 nm /p, AR 1800 - 3300 nm /p /45°
M2	HR 288 - 315 nm /p, HR 532 nm /s, HT 620 - 770 nm /s /45°	AR 620 - 770 nm /s /45°
M3	HR (und PR 98 %) 620 - 770 nm /0°	—
M4	PR (76 %) 750 nm /45°	—
M5	PR (90 %,80 % und 70 %) 620 - 770 nm /s, HT 532 nm /p, HT 1800 - 3300 nm /p /45°	AR 532 nm /p, AR 1800 - 3300 nm /p /45°

Ein Vorteil der beiden linearen Konfigurationen ist, dass die Konversionseffizienz, wie in Fix und Ehret (1998) beschrieben, noch weiter optimiert werden kann, indem der OPO mit Pumprückreflex betrieben wird. Dabei wird der OPO-Pumpstrahl unter 0° reflektiert und läuft erneut durch den OPO-Kristall. Dadurch lässt sich die Schwelle weiter reduzieren.

Eine Reduktion der Schwelle durch Pumprückreflexion ist in der Ringresonator-Anordnung nicht möglich, da die Signalstrahlung nur in einer Umlaufrichtung propagiert. Allerdings lassen sich, im Gegensatz zu den beiden linearen Varianten, mit einem Ringresonator kompaktere Aufbauten und damit kürzere Resonatoren realisieren. Des Weiteren reduziert sich in einem Ringresonator die optische Leistungsdichte der Signalstrahlung auf den Resonatoroptiken, da die Signalstrahlung nach einem halben Resonatorumlauf nicht über denselben Weg zum Ausgangspunkt zurückreflektiert wird.

Für die Ringkonfiguration werden dieselben Spiegel wie für die linear gewinkelte Anordnung benötigt. Dies ermöglicht die Untersuchung beider Konfigurationen mit demselben Spiegelsatz. Die Beschichtungen der Resonatorspiegel wurden daher so gewählt, dass mit diesen sowohl die linear gewinkelte als auch die Ringkonfiguration untersucht werden kann. In den ersten Untersuchungen (siehe Kap. 4.9.1) wurden die Spiegel M1-M3 aus Tab. 4.8 verwendet. Jedoch hat sich gezeigt, dass es sinnvoll ist, den OPO mit teilreflektierenden¹⁷ Resonatorspiegeln aufzubauen, um die Leistungsdichte der Signalstrahlung innerhalb des Resonators zu reduzieren. Dazu wurden zunächst der im Laborbestand vorhandene PR-Spiegel M4 (siehe Kap. 4.9.2) und anschließend die Spiegel M5 4.9.5 verwendet.

4.9 Experimentelle Untersuchungen mit KTA als OPO-Kristall

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der Untersuchungen des KTA-basierten UV-OPO dargestellt. Weiter werden die durch das Material KTA verursachten Probleme bei der praktischen Realisierung untersucht und erfolgreich behoben. Abschließend wird diskutiert, ob ein KTA-basierter UV-OPO für ein flugzeuggetragenes Ozon-DIAL zielführend ist oder nicht.

4.9.1 Gewinkelter Resonator

KTA-OPO mit einem Kristall

Der KTA-basierte OPO wurde zunächst in der linear gewinkelten Konfiguration realisiert. In Abb. 4.15 befindet sich der Laboraufbau schematisch skizziert. Wie in Kap. 4.8 festgelegt, ist die Signalstrahlung senkrecht zur Einfallsebene der beiden 45° -Spiegel polarisiert. Daraus ergeben sich die eingezeichneten Polarisierungen der Pumpstrahlen und die Kristallrotationsachsen. Mittels Verzögerungsplatte ($\lambda/2$) und Dünnschichtpolarisator können die notwendigen Polarisierungen eingestellt und das Leistungsverhältnis aus beiden Pumpstrahlen optimal angepasst werden. Die Verzögerungsstrecke ist dabei der optische Weg, den der Mischpumpstrahl zusätzlich zurücklegen muss, um die durch die Einschwingzeit des Resonators resultierende Zeitverzögerung zwischen Signal- und Pumpstrahlung zu kompensieren.

Gefertigt wurde das Resonatorgehäuse auf der Grundlage eines dafür entworfenen CAD-Modells. Um eine geringe OPO-Schwelle zu erhalten, wurde bei dem Entwurf die Resonatorlänge möglichst kurz gehalten (vgl. Gl. 4.13). Die Länge beträgt 10,7 cm. Obwohl die Resonatorlänge ~ 2 cm kürzer als die des UV-OPO des TropOlex-Systems ist, lag die Schwelle dieser Konfiguration oberhalb der maximalen Ausgangsleistung der SHG-Strahlung. Daher konnte in dieser Konfiguration keine Oszillation der Signalwellenlänge erreicht werden.

Um die Schwelle zu senken, wurde der Mischkristall und der UV-Auskoppelspiegel entfernt und der Mischzweig so verkürzt, dass die Resonatorlänge 7,6 cm misst. In dieser Konfiguration konnte eine Oszillation der Signalstrahlung erreicht werden. Dabei lag die Schwelle bei einer Pumpimpulsenergie von 78 mJ. Ein Unterschied zwischen den hochreflektierenden ($HR = 100\%$) und den

¹⁷eng: partial reflection, kurz: PR

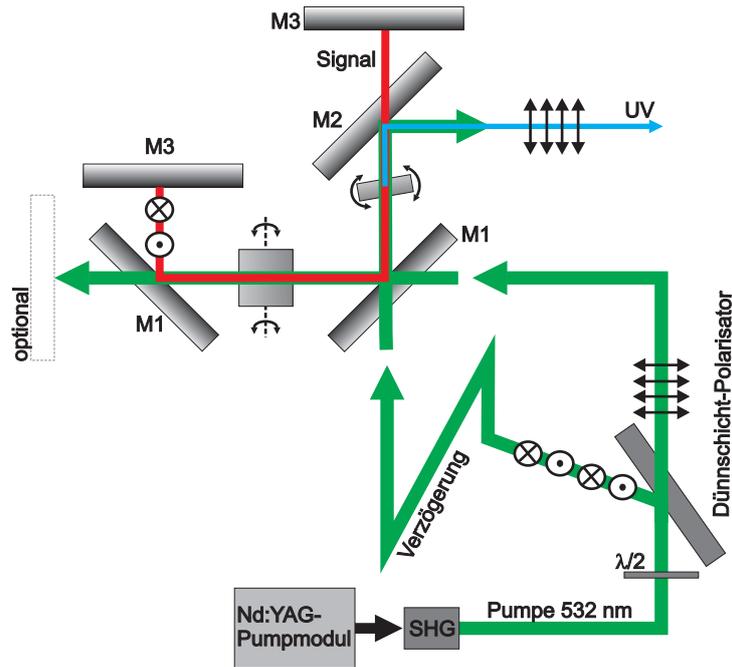


Abbildung 4.15: Schematische Darstellung des linear gewinkelten Resonators.

teilreflektierenden ($PR = 98\%$) M3-Resonatorspiegeln (vgl. Tab. 4.8) konnte im Rahmen der Messgenauigkeit nicht festgestellt werden.

Aus der Verdopplung (SHG) können maximal ~ 200 mJ Impulsenergie bei 532 nm Wellenlänge erzeugt werden (siehe Kap. 4.7), wovon ein Teil für den Mischprozess benötigt wird. Wie in Koechner (1999) beschrieben, geht etwa bei einer fünfachen Schwellwertüberhöhung die Konversionseffizienz eines OPO in Sättigung. Demnach sollte der Arbeitspunkt für maximale Effizienz etwa dem fünfachen Schwellwert entsprechen. Das kann mit diesem Aufbau nicht erreicht werden.

Eine weitere Möglichkeit, die Schwelle zu senken, bietet die Option des Pumprückreflexes, wie sie in Abb. 4.15 angedeutet ist. In dieser Konfiguration konnte die Schwelle um den Faktor 4 auf 19 mJ Pumpimpulsenergie reduziert werden. Demzufolge ist das Erreichen des optimalen Arbeitspunktes und somit eine effiziente Konversion möglich. Bei einer Pumpimpulsenergie von 47 mJ haben jedoch unter Verwendung des Pumpenrückreflexes die beiden Spiegel M1, der KTA-Kristall, der Dünnschicht-Polarisator und der KTP-Verdopplerkristall gleichzeitig irreparable optisch verursachte Beschädigungen davongetragen.

Als Ursache für die Beschädigungen der Optiken wurde ein schlechtes Strahlprofil der OPO-Pumpe beim Doppeldurchgang vermutet. Bei einer Anordnung mit Pumprückreflex kann die zurückreflektierte Strahlung nur zwischen dem Nd:YAG-Laser und der SHG-Einheit aus dem Strahlengang isoliert werden. Damit erhöht sich die Leistungsdichte innerhalb des Verdopplerkristalls mit der Folge, dass die Pumpstrahlqualität schlechter wird.

Um dies zu verifizieren, wurden die M^2 -Werte der OPO-Pumpe (ohne OPO) mit und ohne Pumprückreflex im Vergleich gemessen. Die Ergebnisse sind in Abb. 4.16 dargestellt. Im Einzeldurchgang bleibt der M^2 -Wert mit zunehmender Pumpenergie nahezu konstant. Dahingegen nimmt der M^2 -Wert im Doppeldurchgang zu. Damit ist nachgewiesen, dass sich die Strahlqualität unter der Verwendung von KTP im Doppeldurchgang verschlechtert.

Im Vergleich dazu wurde zusätzlich LBO als Verdopplerkristallmaterial untersucht. Lithium-Triborate (LiB_3O_5 oder LBO) ist ein negativer zweiachsiger Kristall der Punktgruppe $mm2$. Es verfügt zwar im Gegensatz zu KTP über eine geringere Güte bei der Verdopplung zu 532 nm Wellenlänge, besitzt aber nach Dmitriev et al. (1999) eine um eine Größenordnung geringere Absorption

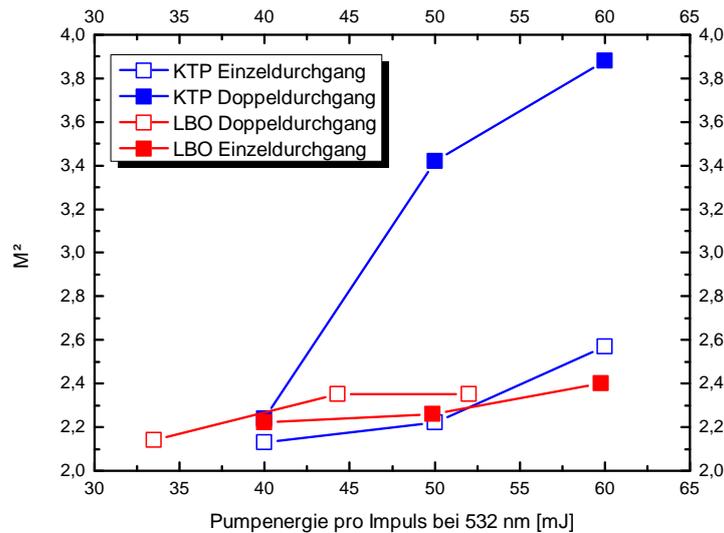


Abbildung 4.16: M^2 -Messung der OPO-Pumpe (532 nm) im Einzel- und Doppeldurchgang für verschiedene Leistungen. Zum Vergleich wurde als Verdopplerkristall KTP und LBO verwendet.

und Temperaturabhängigkeit des Brechungsindex, wodurch ein besseres Strahlprofil bei 532 nm Wellenlänge im Doppeldurchgang vermutet wird. Es standen zwei LBO-Kristalllängen zur Auswahl. Mit einer Länge von 18 mm konnten mit einer Verdopplungseffizienz von 33,4 % nur 110 mJ Impulsenergie bei 532 nm Wellenlänge generiert werden. Mit dem 25 mm langen LBO-Kristall ergab sich die Verdopplungseffizienz zu 55 %, womit 187 mJ Impulsenergie SHG erzeugt werden konnten. Für den längeren Kristall ergab sich bei maximaler Leistung im Einzeldurchgang der M^2 -Wert der SHG-Strahlung zu $M^2 = 3,25$ und ist damit nicht wesentlich geringer als der M^2 -Wert bei maximaler Leistung im Einzeldurchgang unter Verwendung von KTP (vgl. Kap. 4.7). Jedoch ist bei LBO in Abb. 4.16 keine Abnahme der Pumpenstrahlqualität im Doppeldurchgang zu erkennen. Unter Verwendung von LBO als SHG-Kristall wurde jedoch trotzdem bei einer Pumpenergie von 68 mJ in der Doppeldurchgang-Anordnung die Beschichtung des KTA-OPO-Kristalls zerstört. Dies lässt darauf schließen, dass nicht nur der Verdopplerkristall, sondern auch der OPO-Kristall im Doppeldurchgang für eine schlechte räumliche Strahlqualität sorgt.

Bei 10-Hz-Lasersystemen, wie beispielsweise in Meister (2005) oder Fix und Ehret (1998) beschrieben, sind keine Probleme mit der Rückreflexion des OPO-Pumpstrahls aufgetreten. Es handelt sich hierbei also um ein Artefakt, das bei höheren Impulswiederhol frequenzen wie in diesem Fall bei 100 Hz und damit bei höheren mittleren Leistungen auftritt.

Daher musste auf den Pumprückreflex verzichtet und alternative Methoden zur OPO-Schwellenreduktion untersucht werden.

KTA-OPO mit zwei Kristallen

Durch Hinzufügen eines zweiten KTA-Kristalls in den Resonator verdoppelt sich die effektive Kristalllänge in Gl. 4.13, wodurch sich die Schwelle um den Faktor 4 reduziert.

Wie in Kap. 4.2 beschrieben, laufen Energiefluss und Wellenvektor bei kritischer Phasenanpassung auseinander. Aufgrund dessen würde die Verstärkung für den zweiten Kristall abnehmen, da weniger Energie im Wechselwirkungsbereich zur Verfügung steht (siehe Abb. 4.17 links). Der „walk-off“-Effekt kann dadurch kompensiert werden, indem der zweite Kristall unter einem Winkel von 2θ zur optischen Achse des ersten Kristalls positioniert wird (Bösenberg et al., 1989). Dadurch läuft der „walk-off“-Effekt im zweiten Kristall in die entgegengesetzte Richtung (siehe Abb. 4.17 rechts).



Abbildung 4.17: Links: nicht „walk-off“-kompensiert; rechts: „walk-off“-kompensiert.

Durch den zusätzlichen OPO-Kristall vergrößert sich der gewinkelte Resonator mit zwei KTA-Kristallen auf eine Länge von 12,5 cm. In diesem Aufbau liegt die OPO-Pumpschwelle, für die Signalwellenlänge von 755 nm, bei 22 mJ Impulsenergie. In dieser Konfiguration konnte mit einer OPO-Pumpenergie von 85 mJ einer SFM-Pumpenergie von 15 mJ und einer optimierten Verzögerungsstrecke von 65,5 cm nur 0,15 mJ Impulsenergie bei 312 nm Wellenlänge erzeugt werden.

Obwohl der OPO in Bezug auf die Schwellwertüberhöhung fast im optimalen Arbeitspunkt betrieben wurde, konnte keine akzeptable Konversion ins UV erreicht werden. Eine eindeutige Erklärung für die ineffiziente Konversion ins UV konnte nicht ermittelt werden. Aufgrund der unbefriedigenden Ergebnisse, die mit der linear gewinkelten Anordnung erreicht wurden, wurde der Ringresonator als Alternative untersucht.

4.9.2 Ringresonator

Im Folgenden werden die Ergebnisse der Untersuchungen des KTA-basierten UV-OPO in Ringkonfiguration beschrieben. Mit den Spiegeln M1 aus Tab. 4.8 ist es möglich, einen hochresonanten Ringresonator aufzubauen.

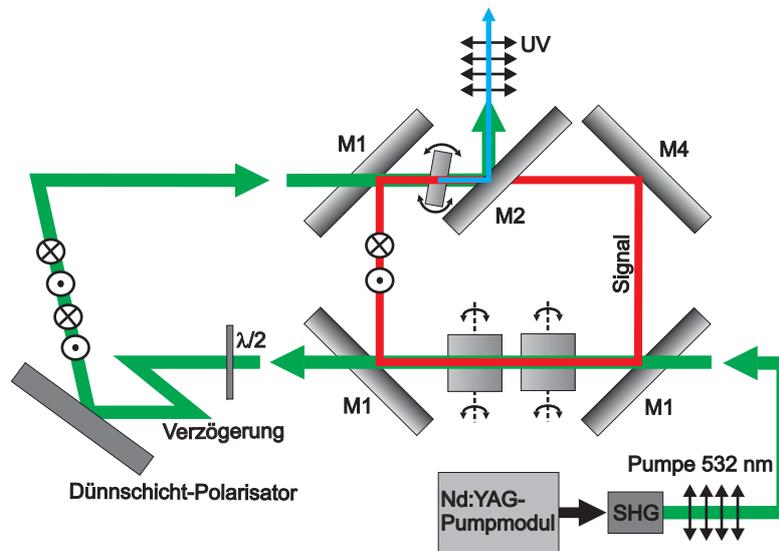


Abbildung 4.18: KTA-Ringresonator mit zwei OPO-Kristallen und Pumpstrahlwiederverwertung.

Um mögliche Zerstörungen der Resonatoroptiken zu vermeiden, wurde die Leistungsdichte im Resonator reduziert, indem die Verluste der Signalstrahlung pro Resonatorumlauf erhöht wurden. Dies kann durch Austauschen eines der M1-Resonatorspiegel durch einen PR-Spiegel erreicht werden. Dazu bot sich der M4-Spiegel aus Tab. 4.8 an, da er bereits im Laborbestand vorhanden war. Dieser Spiegel ist ausgelegt für die Wellenlänge 750 nm, eine Reflexion von PR = 70 % und einen Einfallswinkel von 0°. Unter 45° Einfallswinkel mit Licht der Wellenlänge 750 nm erbrachte eine Messung eine Reflektivität des M4-Spiegels von $R = 76\%$.

Zunächst wurde der Ring mit einem und zwei KTA-OPO-Kristallen ohne Mischkomponenten untersucht. Mit einem Kristall lag die Schwelle für einen 75 mm langen Resonator bei 41,7 mJ

Impulsenergie. Mit zwei Kristallen ergab sich mit einer Resonatorlänge von 110 mm die Schwelle zu 15 mJ Impulsenergie. Aufgrund der niedrigen Schwelle wurden für die folgende Untersuchung zwei Kristalle im Resonator in „walk-off“-kompensierender Anordnung positioniert. Mit Mischkristall und UV-Auskoppelspiegel M2 betrug die Resonatorlänge 15 cm.

In dieser Konfiguration konnten bei maximaler Pumpenergie unter Optimierung der Verzögerungsstrecke und des Pumpverhältnisses eine Impulsenergie von 3 mJ bei 311,2 nm Wellenlänge erzeugt werden. Da mit dem Konverter 10 mJ im UV angestrebt werden, ist dieser Wert nicht ausreichend.

Um die Konversion ins UV weiter zu erhöhen, wurde der Aufbau so modifiziert, dass der OPO-Pumpstrahl für die SFM wiederverwertet werden kann (vgl. Abb. 4.18). Dies hat den Vorteil, dass der OPO nun mit der gesamten verdoppelten Energie gepumpt und gemischt werden kann.

Mit einer Verzögerungsstrecke von 30 cm konnten bei einer gesamten Pumpimpulsenergie von 90 mJ bei 532 nm Wellenlänge 7 mJ UV-Energie bei 311,2 nm Wellenlänge erzeugt werden. Trotz der hohen Konversionseffizienz konnte dieses Konzept nicht weiter verfolgt werden, da dieses Ergebnis nicht ohne laserinduzierte Zerstörungen der Optiken (Dünnschicht-Polarisator und Einkoppelspiegel M1) reproduziert werden konnte.

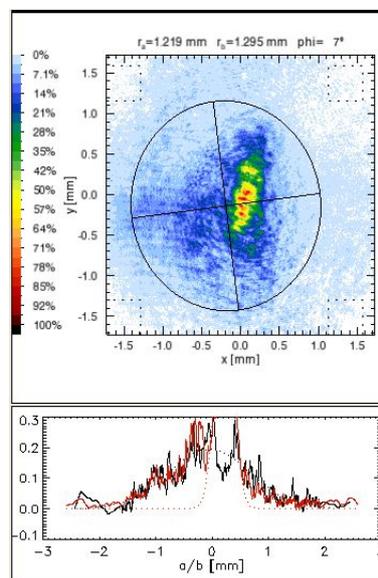


Abbildung 4.19: Oben: Strahlprofil der Pumpe hinter dem OPO. Unten: Intensitätsverteilung entlang den beiden großen Halbachsen des Profils.

Als mögliche Ursache für die Zerstörungen wurde ein inhomogenes Strahlprofil der Pumpe hinter dem OPO vermutet. Zur Überprüfung des Strahlprofils der OPO-Pumpe wurde hinter dem OPO (~ 30 cm) eine CCD-Kamera verwendet. Das ermittelte Strahlprofil findet sich in Abb. 4.19 dargestellt. Vor dem OPO (vgl. Kap. 4.7) beträgt der Strahlradius für beide Achsen des elliptischen Strahlprofils etwa 2,6 mm, während die Strahlradien hinter dem OPO 1,3 und 1,4 mm betragen. Das homogene Strahlprofil der Pumpe wird bei der Propagation durch die beiden KTA-Kristalle also stark inhomogen. Daher eignet sich ein durch den OPO propagierter Pumpstrahl nicht als Mischpumpe. Als Ursache für die Veränderung des Strahlprofils wurde die Absorption einer der am OPO-Prozess beteiligten Wellenlängen in dem Material KTA vermutet. Um diese Hypothese experimentell zu bestätigen, wurden Transmissionsmessungen an den OPO-Kristallmaterialien KTA und KTP durchgeführt.

Die Ergebnisse der mit KTA als OPO-Kristallmaterial durchgeführten Untersuchungen finden sich in Tab. 4.9 aufgelistet.

Tabelle 4.9: Zusammenfassung der Ergebnisse der mit KTA als OPO-Kristallmaterial durchgeführten Messungen.

Winkel- / Ringgeometrie	Einzel- / Doppeldurgang	# OPO- Kristalle	Resonator- länge [cm]	Ergebnis	Bedeutung für die Arbeit
W	E	1	10,7	keine Oszillation der Si- gnal	Konfiguration nicht ge- eignet
W	E	1	7,6	$E_{Schwelle} = 78 \text{ mJ}$	OPO-Schwelle zu hoch
W	D	1	7,6	$E_{Schwelle} = 19 \text{ mJ}$, Zerstörung bei $E_{Pumpe} = 47 \text{ mJ}$	OPO-Schwelle gut, schlechtes Pumpstrahl- profil zerstört Optiken
W	E	2	12,5	$E_{Schwelle} = 22 \text{ mJ}$, bei $E_{Pumpe} = 83,6 \text{ mJ} \Rightarrow$ $E_{UV \text{ MAX}} = 0,15 \text{ mJ}$	OPO-Schwelle gut, Effi- zienz schlecht, Ursache unklar
R	E	1	7,5	$E_{Schwelle} = 41,7 \text{ mJ}$	OPO-Schwelle zu hoch
R	E	2	11	$E_{Schwelle} = 15 \text{ mJ} \Rightarrow$ $E_{UV \text{ MAX}} = 3 \text{ mJ}$	OPO-Schwelle gut, max. UV-Energie nicht ausreichend
R	E	2	11	Pumpstrahlwiederver- wertung: $E_{UV \text{ MAX}} = 7 \text{ mJ}$	Max. UV-Energie akzeptabel, schlech- tes Strahlprofil der SFM-Pumpe zerstört Optiken

4.9.3 Transmissionsmessungen der OPO-Kristalle

In Kap. 4.4 sind die Kriterien für die Wahl eines geeigneten nichtlinearen Kristalls aufgelistet. Darunter fällt die Transparenz für alle an dem Prozess beteiligten Wellenlängen. Daher sollte das Material für Pump-, Signal- und Idlerstrahlung höchste Transmission aufweisen. Für die Auswahl der Materialien wurden die in der Literatur angegebenen Transmissionspektren von Hansson et al. (2000) verwendet, welche in Abb. 4.5 aufgetragen sind.

Da jedoch unter Verwendung von KTA als OPO-Kristall keine erfolgreiche Konversion ins UV möglich war, wurde die Transmission der OPO-Materialien KTA und KTP mit eigenen Messungen überprüft, um die oben aufgestellte Hypothese zu verifizieren. Diese Messungen wurden mit einem Zweistrahlinterferometer (CARY) durchgeführt. Das Ergebnis dieser Messung ist in Abb. 4.20 dargestellt.

Im Bereich der Signalwellenlängen um 700 nm verfügt KTA über eine hohe Transmission von bis zu 98 % pro cm. Für die Pumpwellenlänge 532 nm liegt die Transmission von KTA jedoch nur bei 90 % pro cm. Im Vergleich dazu liegt die Transmission von KTP für die Pumpwellenlänge bei 98,6 % pro cm. Die Reflektivitäten der Oberflächen liegen bei 532 nm Wellenlänge nach Herstellerangaben für KTA bei 0,115 % und für KTP bei 0,199 %. Demnach wird die unterschiedlich starke Transmission bei 532 nm Wellenlänge beider Materialien nicht durch die Oberflächenbeschichtungen hervorgerufen. Eine quantitative Aussage darüber, welcher Anteil an nichttransmittierter Strahlung absorbiert und welcher Anteil gestreut wurde, könnte jedoch nur durch weitere aufwendige Untersuchungen getroffen werden. Jedoch deutet das Ergebnis auf eine größere Absorption hin, als in

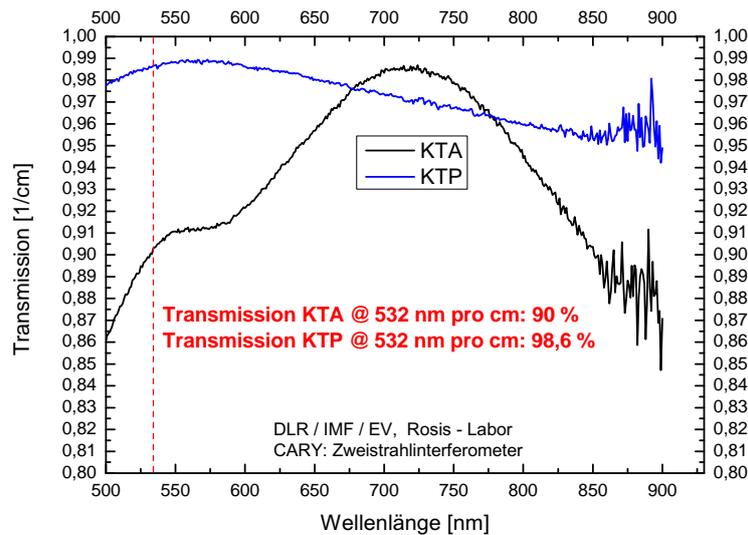


Abbildung 4.20: Gemessenes Transmissionsspektrum von KTP und KTA.

der Literatur angegeben. Dort wird dem Material KTA bei 532 nm Wellenlänge sogar eine höhere Transmission als KTP zugeschrieben (Hansson et al., 2000).

In nichtlinearen Prozessen ist die Absorption der Pumpstrahlung besonders ungünstig, da von den beteiligten Strahlen die Pumpstrahlung über die höchste Leistung verfügt. Die absorbierte Leistung führt innerhalb des Materials zu einem Temperaturgradienten entlang dem Laserstrahlradius, wodurch eine Brechungsindexänderung hervorgerufen wird. Der Brechungsindexgradient wirkt, wie in Koechner (1999) beschrieben, wie eine Sammellinse¹⁸ auf die Laserstrahlung. Daher wird das Licht konvergent und bildet in einem bestimmten Abstand einen Fokus. Für die Dauer jedes Pumpimpulses durchläuft die Signalstrahlung die Anordnung der zwei KTA-OPO-Kristalle etwa 18 Mal. Bei jedem Umlauf wird die Signalstrahlung durch die thermische Linse konvergenter. Da die Leistungsdichte proportional zum Kehrwert des Strahlradius zum Quadrat ist ($I \propto \frac{1}{w^2}$), führen thermische Linsen sehr schnell zu optisch verursachten Zerstörungen der Resonatoroptiken.

Mit der thermischen Linse lässt sich auch das schlechte Strahlprofil und die Reduktion des Strahlradius der Pumpstrahlung hinter dem OPO (vgl. Abb.4.19) erklären.

Aus dieser Messung geht hervor, dass das Material KTA als OPO-Kristall aufgrund der Absorption bei 532 nm für den hier entwickelten OPO nicht geeignet ist. Dies steht im Widerspruch zur Aussage des Lehrbuchs Koechner (1999). Dort ist KTA explizit als geeignetes Kristallmaterial für einen mit 532 nm gepumpten OPO aufgeführt.

4.9.4 Einfluss der Laserimpulsrepetitionsfrequenz

In der im Folgenden beschriebenen Messung wird der Frage nachgegangen, ob die mittlere Leistung, die Impulsenergie oder eine andere Ursache für die ineffiziente Konversion des KTA-basierten OPO verantwortlich ist. Dazu wurde der Einfluss der Repetitionsfrequenz auf den KTA-basierten Ringresonator mit zwei Kristallen untersucht. Für einen Zeitraum von einem Monat stand der diodengepumpte, gütegeschaltete Nd:YAG-Laser (Innolas, Spitlight-DPSS) zur Verfügung. Mit diesem System kann zwischen den Repetitionsfrequenzen 10 Hz, 20 Hz, $33,3$ Hz, 50 Hz und 100 Hz umgeschaltet werden, ohne dabei andere Strahlparameter wie Impulsenergie, Impulsdauer, Strahlradius etc. wesentlich zu verändern. Die maximale Impulsenergie der fundamentalen Strahlung beträgt 220 mJ und entspricht damit nur gut der Hälfte der maximalen Impulsenergie des WALES-Pumpasers.

¹⁸eng.: thermal lensing

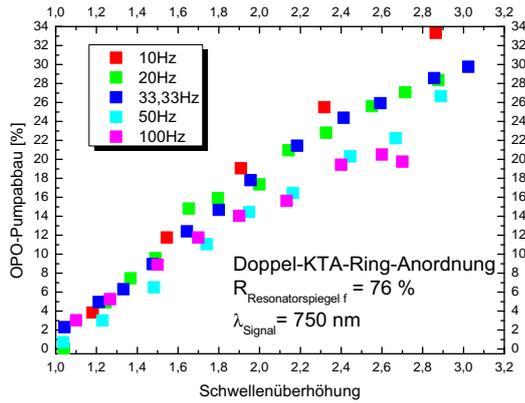


Abbildung 4.21: Dargestellt ist der OPO-Pumpabbau als Funktion der Schwellenüberhöhung für die verschiedenen Repetitionsfrequenzen.

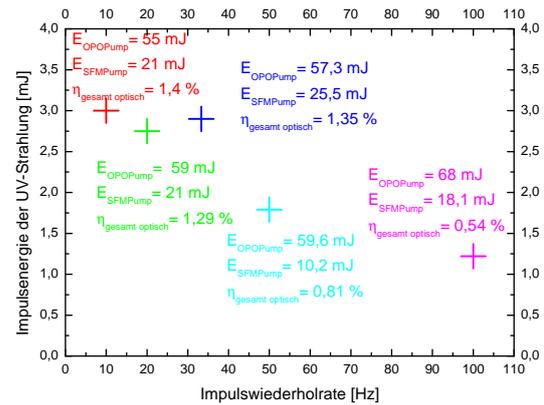


Abbildung 4.22: Dargestellt ist die maximal generierte UV-Leistung in Abhängigkeit von der Repetitionsfrequenz.

Daher waren Schwellenüberhöhungen nur bis Faktor ~ 3 möglich.

Ziel war es, die Konversionseffizienz des OPO bei den verschiedenen mittleren Leistungen zu untersuchen. In Abb. 4.21 sind die Ergebnisse der Effizienzmessungen dargestellt. Demnach lassen sich mit geringeren Repetitionsfrequenzen höhere Effizienzen erzielen. Bei einer Schwellenwertüberhöhung von 2,8 ist die Effizienz des OPO-Prozesses für eine Repetitionsfrequenz von 10 Hz fast doppelt so hoch wie für eine Repetitionsfrequenz von 100 Hz.

Der Grund dafür ist aller Wahrscheinlichkeit nach die Ausprägung einer thermischen Linse. Denn neben der Zerstörung der Optiken hat die thermische Linse einen weiteren Nachteil. Durch die Reduzierung des Signalstrahlradius verringert sich der Überlapp zwischen der OPO-Pumpstrahlung und der Signalstrahlung. Dadurch wird nur noch ein Teil des zur Verfügung stehenden Pumpquerschnitts zur Konversion verwendet, wodurch die Effizienz des Prozesses abnimmt. Wie in Kap. 4.3.1 beschrieben lässt sich die Effizienz aus eingestrahelter zu transmittierter Pumpleistung berechnen und ist eine Funktion der Schwellenüberhöhung. Bei gleicher Impulsenergie ist also die mittlere Leistung von Strahlung mit 100 Hz Repetitionsfrequenz 10-mal höher als bei Strahlung mit 10 Hz. Das heißt, je mehr Pulse pro Zeiteinheit durch die KTA-Kristalle propagieren, desto mehr Lichtleistung wird von den Kristallen absorbiert und desto stärker ist die Ausprägung der thermischen Linse und desto geringer ist der Überlapp zwischen Pump- und Signalstrahlung und damit die Konversionseffizienz. Entsprechend wirkt sich dies auf den Mischprozess aus. Daher kann mit der 10-Hz-Repetitionsfrequenz bei gleicher Pumpimpulsenergie die höchste Konversionseffizienz bzw. UV-Impulsenergie erzielt werden, wie in Abb. 4.22 zu sehen ist.

Um diese Hypothese zu prüfen, wurde mit Hilfe einer CCD-Kamera das Strahlprofil der unabgebauten Signalstrahlung und der UV-Strahlung hinter dem OPO bei den verschiedenen Repetitionsfrequenzen aufgezeichnet. Die daraus abgeleiteten Strahlradien sind Abb. 4.23 zu entnehmen. Aus welchem Grund die Strahlradien in x-Richtung bei $33,3\text{ Hz}$ Repetitionsfrequenz kleiner als bei 50 Hz sind, konnte nicht ermittelt werden. Jedoch ist ein deutlicher Trend, also eine Abnahme der Strahlradien mit zunehmender Repetitionsfrequenz zu erkennen.

Als Ergebnis dieser Untersuchungen kann festgestellt werden, dass in einem mit 532 nm gepumpten OPO das Material KTA für ein 10-Hz-Lasersystem sicherlich unbedenklich, aber ab 50 Hz oder höheren Repetitionsfrequenzen nicht problemlos einsetzbar ist. Demnach ist die Repetitionsfrequenz und damit die mittlere Leistung in einem mit 532 nm gepumpten und KTA-basierten

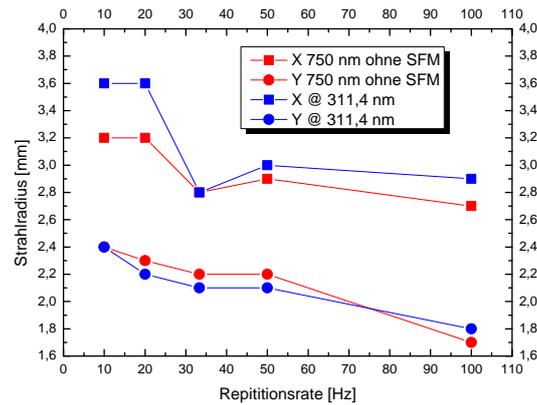


Abbildung 4.23: Gegenüberstellung der Strahlradien der Signalstrahlung und der UV-Strahlung. Aufgrund des elliptischen Strahlquerschnitts sind die beiden großen Halbachsen X und Y aufgetragen.

OPO nicht beliebig nach oben skalierbar. Für den im Rahmen dieser Arbeit zu entwickelnden OPO sind jedoch 100 Hz als Repetitionsfrequenz vorgesehen. Im Folgenden wird beschrieben, wie die thermische Linse im Resonator kompensiert wurde und ob dieser Ansatz für die vorliegende Arbeit zielführend ist.

4.9.5 Ringresonator mit interner Kompensationslinse

Thermische Linsen werden in Festkörperlaser standardmäßig mittels Kompensationslinsen behoben. Daher ist diese Methode auch für den auf zwei KTA-Kristallen basierten UV-OPO in Ringkonfiguration vielversprechend.

Tabelle 4.10: Vermessung der Brennweite der thermischen Linse in Abhängigkeit von der OPO-Pumpleistung mit Hilfe eines HeNe-Lasers.

P_{Pump} /W	f_{HeNe} /m
4,7	12,75
7,2	8,65
9,2	4,4
16,3	2,78

Die Brennweite der Kompensationslinsen sollte in der Größenordnung der Brennweite der thermischen Linse liegen. Zur Bestimmung der Brennweite der Signalstrahlung eignet sich ein HeNe-Dauerstrichlaser aufgrund seiner Ausgangswellenlänge von 632,816 nm, welche in etwa der Wellenlänge der Signalstrahlung entspricht. Der HeNe-Laser wird zusätzlich zur OPO-Pumpstrahlung unter einem kleinen Winkerversatz in die Doppel-KTA-Kristall-Anordnung gestrahlt und der Fokus des HeNe-Laserstrahls in Abhängigkeit von der Pumpleistung ermittelt. Die Ergebnisse dieser Untersuchung finden sich in Tab. 4.10 aufgelistet.

Basierend auf diesen Ergebnissen wurde für den KTA-OPO mit zwei Kristallen Meniskuslinsen mit den Brennweiten: $f = -600$ mm, $f = -1000$ mm und $f = -2000$ mm ausgewählt. Der Vorteil von Meniskuslinsen gegenüber den alternativen Plankonkav- oder Bikonkav-Linsen ist, dass Meniskuslinsen so in den Strahlengang eingesetzt werden können, dass das an den Oberflächen der Linse zurückgestreute Licht divergent verläuft (siehe Anordnung Meniskuslinse in Abb. 4.24). Damit werden laserinduzierte Zerstörungen durch zurückgestreutes Licht vermieden. Die Meniskuslinse wird mit Hilfe eines XY-Verschiebetisches in dem Resonator positioniert.

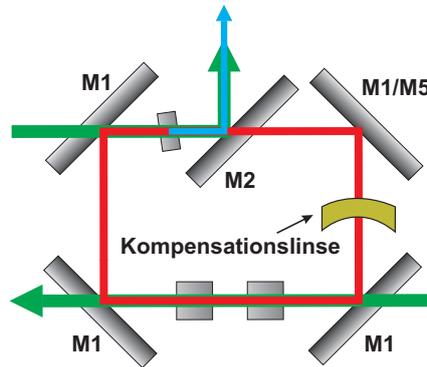


Abbildung 4.24: Schematische Darstellung des KTA-Ring-OPO-Konzeptes mit zwei OPO-Kristallen und integrierter Kompensationslinse. Die Optiken entsprechen denen aus Abb. 4.14.

Die weiter oben beschriebenen Untersuchungen mit Ringkonfiguration wurden unter Verwendung des auf 750 nm ausgelegten PR-Spiegels M4 aus Tab. 4.8 durchgeführt. Um eine Durchstimmbarkeit über den angestrebten Signalwellenlängenbereich von 620-780 nm hinweg zu erreichen, standen für die folgenden Untersuchungen die PR-Resonatorspiegel M5 aus Tab. 4.8 zur Verfügung.

Aus den verschiedenen brennweitigen Kompensationslinsen und den Resonatorspiegeln von HR bis PR = 70 % konnte der OPO in Abhängigkeit von der Güte und der Divergenz bzw. Konvergenz der Signalstrahlung untersucht werden. In Abb. 4.25 sind die aus den verschiedenen Kombinationen resultierenden maximalen UV-Impulsenergien als Funktion der UV-Wellenlänge aufgetragen. Für jede Kombination wurde die Verzögerungsstrecke und das Verhältnis aus OPO- zur SFM-Pumpe angepasst. Da die Signalstrahlung mit der kurzbrennweitigen Linse ($f = -600$ mm) sehr divergent wurde, wurde der Resonator instabil und es konnte nur vergleichsweise wenig UV-Impulsenergie erzeugt werden. Mit der langbrennweitigen Linse ($f = -2000$ mm) konnte die größte Effizienz erzielt werden. Jedoch wurde bei dem Versuch, mit der langbrennweitigen Linse andere UV-Wellenlängen zu generieren, der UV-Auskoppelspiegel M3 zerstört. Dies lässt darauf schließen, dass die Signalstrahlung unter dem Einsatz der langbrennweitigen Linse noch immer zu konvergent ist.

Die Linse mit einer Brennweite von $f = -1000$ mm ist für die beiden Auskoppelgrade HR und PR = 80 % Auskoppelgrade untersucht worden. Da mit dem hochresonanten Resonator keine laserinduzierten Zerstörungen aufgetreten sind, wurden keine weiteren Auskoppelgrade mit dieser Linse getestet, da keine höheren Leistungen zu erwarten sind.

Mit der Konfiguration eines hochresonanten Resonators und einer Linsenbrennweite von $f = -1000$ mm ist es das erste Mal gelungen, UV-Strahlung im Bereich von 1 W mittlerer Leistung zu erzeugen. In Abb. 4.26 ist die Effizienz des OPO- und SFM-Prozesses und die gesamte optische Effizienz von der fundamentalen bis zur UV-Strahlung als Funktion der UV-Wellenlängen für diese Kombination dargestellt.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass es sogar mit den vergleichsweise ungeeigneten KTA-Kristallen gelungen ist, UV-Strahlung der Wellenlänge 294-317 nm mit akzeptablen Impulsenergien zu erzeugen. Dies ist die erste dem Autor bekannte Realisierung eines OPO mit resonatorinterner Kompensationslinse. Dennoch weist auch dieses OPO-Konzept Nachteile auf.

Zu kleineren Signal- und damit UV-Wellenlängen nimmt die Effizienz aufgrund der kleiner werdenden Güte des Materials stark ab (vgl. Abb. 4.4). Der Wellenlängenbereich von 287-294 nm, der mit KTA im Gegensatz zu KTP theoretisch zu erreichen wäre, ließ sich jedoch nicht effizient erzeugen.

Außerdem musste der OPO-Resonator für jeden Messpunkt in Abb. 4.25 neu justiert werden. Bei einer fixen Justage mit Priorität auf der „Online“-Wellenlänge konnte für beispielsweise eine „Online“-Wellenlänge von 303,45 nm mit 8 mJ Impulsenergie die „Offline“-Wellenlänge mit 315,89

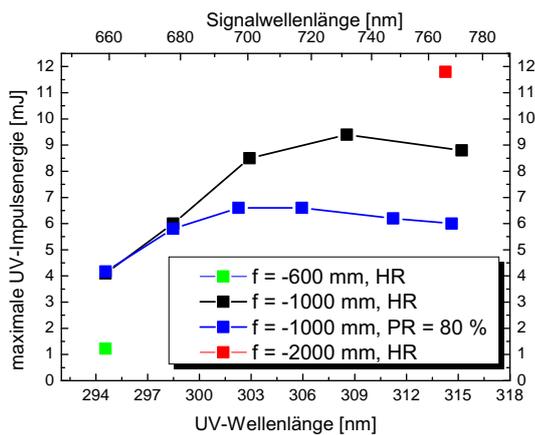


Abbildung 4.25: Maximale UV-Impulsenergie als Funktion der UV-Wellenlänge für verschiedenen brennweitige Linsen und Auskoppelgrade.

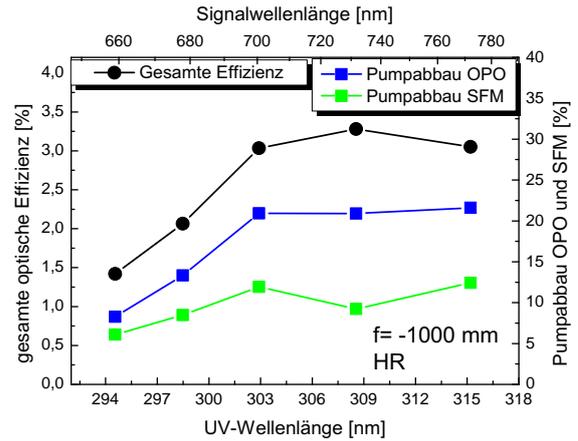


Abbildung 4.26: Effizienzen der nichtlinearen Prozesse als Funktion der UV-Wellenlänge für das Konzept mit der Kompensationslinse $f_{Komp} = -1000$ mm und maximaler Güte.

nm nur mit einer Impulsenergie von 5 mJ erzeugt werden. Die Ursache dafür ist, dass durch das Umschalten zwischen beiden DIAL-Wellenlängen der Mischkristall einen Parallelversatz der Signalstrahlung hervorruft, worauf die Kompensationslinse im Resonator aufgrund der etwa 18 Umläufe extrem empfindlich reagiert.

Des Weiteren reagiert der OPO sehr empfindlich auf leichte Fehlstellungen der Resonatorlinse. Eine derart empfindliche Justage erscheint für den Einsatz im Flugzeug nicht geeignet.

Anhand dieser Untersuchung hat sich gezeigt, dass sich die Probleme, die durch die thermische Linse innerhalb des Materials KTA verursacht werden, mit Kompensationslinsen beheben lassen. Jedoch ist ein OPO mit resonatorinterner Linse aus den genannten Gründen sowohl für die DIAL-Anwendung als auch für den Einsatz im Flugzeug nicht zielführend. Somit erschien zu diesem Zeitpunkt die Realisierung eines KTP-basierten OPO das erfolgsversprechendere Konzept. Daher wurde die Realisierung eines OPO mit dem Kristallmaterial KTP untersucht. Die Ergebnisse werden in den folgenden Abschnitten vorgestellt.

4.10 Experimentelle Untersuchungen mit KTP als OPO-Kristall

Da die Ringkonfiguration im Gegensatz zur linear gewinkelten keine Nachteile aufwies und zudem in den oben beschriebenen Untersuchungen mit KTA viel Erfahrung bei der Justage von Ringresonatoren gesammelt worden war, lag es nahe, den KTP-OPO auch in Ringkonfiguration auszuprobieren.

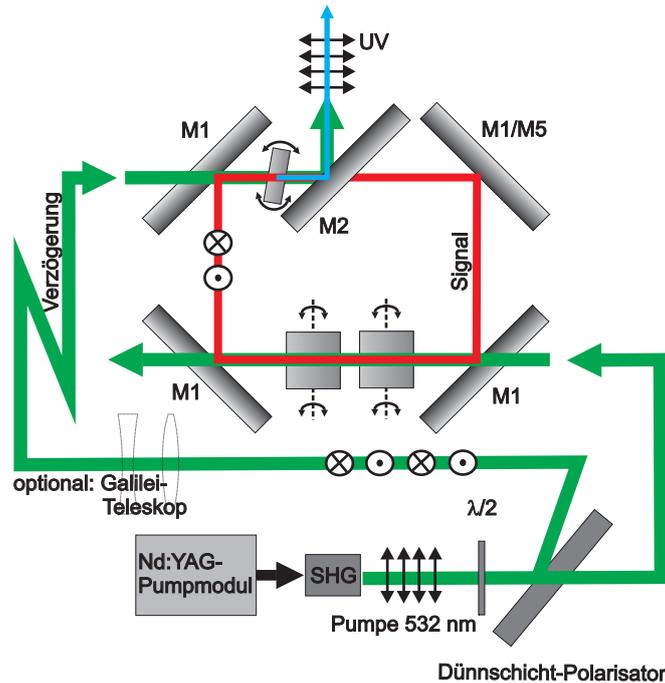


Abbildung 4.27: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus des Ringresonators mit zwei KTP-Kristallen. Die Trennung der SHG-Strahlung in die OPO- und die SFM-Pumpe erfolgt vor dem OPO.

Ein weiterer Vorteil der Ringkonfiguration ist die geringere Belastung der Optiken durch die Signalstrahlung. Während die Signalstrahlung im linearen Resonator nach einem halben Umlauf auf demselben Weg zurückreflektiert wird, um zum Ausgangspunkt zu gelangen, wird sie im Ringresonator über einen anderen Weg zum Ausgangspunkt gelenkt, wodurch die Optiken weniger stark von der Laserstrahlung belastet werden.

Um die Schwelle des KTP-basierten OPO niedrig zu halten, wurden zwei Kristalle in „walk-off“-kompensierender Anordnung im Resonator positioniert. Der Versuchsaufbau ist in Abb. 4.27 schematisch dargestellt.

Mit Hilfe der zur Verfügung stehenden Spiegel mit $PR = 70\%$, 80% , 90% und 100% konnte die Güte des Resonators variiert werden. Da auch das Material KTP das Laserlicht nicht ohne Absorption transmittieren lässt, kann es analog zu dem KTA-basierten OPO zu einer Reduktion des Signalstrahlradius kommen. Im KTA-basierten OPO wurde ein minimaler Signalstrahlradius von 1,7 mm gemessen (vgl. Abb. 4.23). Dies entspricht 70 % des Strahlradius der SHG-Strahlung. Mit einem Galilei-Teleskop lässt sich der Strahlradius um 25 % reduzieren und könnte damit gegebenenfalls an den Strahlradius der Signalstrahlung angepasst werden, um die Effizienz des Mischprozesses zu steigern. Die Intensität der Mischpumpe vergrößert sich dabei um den Faktor 1,78.

Ziel dieser Untersuchung war es, eine effiziente und geeignete Kombination zu ermitteln. Daher wurde der KTP-basierte OPO mit zwei Kristallen mit

- unterschiedlichen Resonatorgüten,
- mit und ohne Kompensationslinse,
- mit verschiedenen Strahlradien der Mischpumpe und
- mit und ohne Pumpstrahlwiederverwertung (vgl. Kap. 4.9.2)

untersucht. In Abb. 4.28 sind die maximal erzeugten UV-Impulsenergien als Funktion der UV-Wellenlänge aufgetragen. Die optimale Verzögerungsstrecke ergab sich für alle Varianten zu 45 cm.

Für alle Konfigurationen bewegt sich das Verhältnis aus Leistung der Mischpumpe zur gesamten Leistung der SHG-Strahlung in einem Bereich zwischen 0,3 und 0,34.

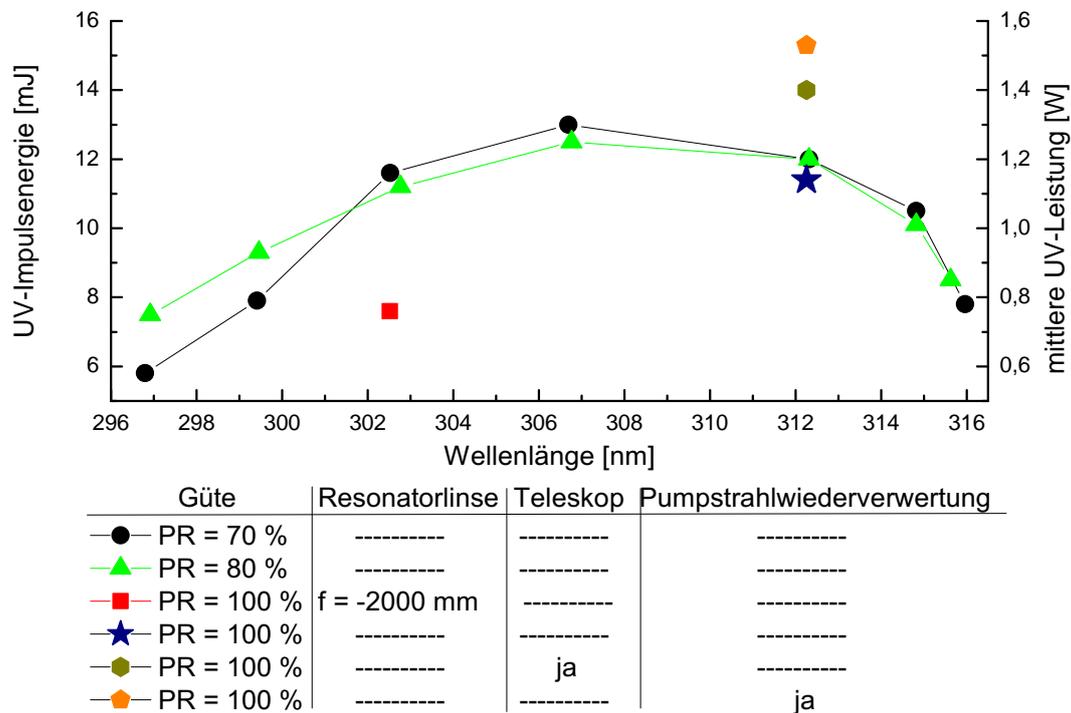


Abbildung 4.28: Maximale UV-Ausgangsleistung als Funktion der Wellenlänge für die unterschiedlichen Konfigurationen: Güte mit und ohne Kompensationslinse, mit und ohne Galilei-Teleskop zur Strahlradius-Anpassung, mit und ohne Pumpstrahlwiederverwertung.

Mit den PR = 70%- und 80%-Spiegeln konnte erstmals fast der gesamte angestrebte Wellenlängenbereich mit den notwendigen Leistungen generiert werden. Jedoch konnten bei maximaler Pumpleistung laserinduzierte Zerstörungen der Optiken auch für diese Anordnung nicht vermieden werden. Für Signalwellenlängen um die 700 nm kam es zu Beschädigungen der KTP-Kristalloberflächen. Als mögliche Ursache für die Zerstörung wird eine leichte Absorption der Idlerstrahlung in den AR-Beschichtungen vermutet. Bei 700 nm Signalwellenlänge liegt die Idlerwellenlänge bei etwa 2200 nm, was einem OH-Absorptionsband von leicht verunreinigtem SiO₂ entspricht. Das verwendete AR Coating der KTP-Kristalle besteht nach Herstellerangaben aus SiO₂ und einem weiteren hochbrechenden Oxid (Ta₂O₅). „Sehr schwache OH-Absorptionsbanden zeigen sich bei Wellenlängen um 1390 nm, 2200 nm und 2720 nm, verursacht durch den OH-Gehalt von ≤ 8 gewichts ppm“ [<http://www.quarzglas-heinrich.de/assets/templates/qgh/downloads/O433MInf.pdf>, Stand: 15.08.2011] Die Absorptionskurven von „Schott-fused silica“ oder „Infrasil“ weisen also schwache Absorptionen im IR auf. Der Kristallhersteller GWU kann keine alternativen Beschichtungen anbieten. Laut persönlicher Mitteilung des Beschichtungsunternehmens Laseroptik GmbH (Hr. Riggers) könnten die Kristalle dort durch die Verfahren IBS¹⁹ oder IAD²⁰ mit einem infraroten Material mit höherer Reinheit beschichtet werden, welches die Probleme beheben könnte. Die Untersuchung eines Kristalls mit beschriebener Beschichtung lag außerhalb der Möglichkeiten dieser Arbeit. Aus diesem Grund musste für weitere Untersuchungen auf die Erzeugung von UV-Wellenlängen im Bereich von 300 nm verzichtet werden. Aus Fix und Ehret (1998) sind keine solche Probleme bekannt, was darauf schließen lässt, dass es sich hierbei wieder um einen Effekt der 10-fach

¹⁹eng.: Ion Beam Sputtering

²⁰eng.: Ion assisted deposition

höheren mittleren Leistung handelt, die durch die Repetitionsfrequenz von 100 Hz bedingt ist.

Der Resonator maximaler Güte (PR = 100 %) wurde zunächst mit der Kompensationslinse $f = -2000$ mm betrieben, um mögliche Zerstörungen der Resonatoroptiken zu vermeiden. Damit ließ sich jedoch nur wenig UV-Leistung erzeugen. Demnach ist eine Kompensationslinse unter Verwendung von KTP nicht notwendig. Ohne Kompensationslinse ergab sich nahezu dieselbe UV-Leistung wie im Fall von PR = 70 % bzw. 80 %. Durch die Verwendung des Galilei-Teleskops konnten knapp 1,4 W Leistung im UV erzeugt werden.

Die höchste Konversion konnte mit dem Resonator mit maximaler Güte (PR = 100 %) und Pumpstrahlwiederverwertung (vgl. Abb. 4.18) erzielt werden. Damit wurden 1,52 W Leistung im UV erzeugt. Dieses Ergebnis war jedoch nicht reproduzierbar, da der Dünnschicht-Polarisator dabei zerstört wurde, was auf ein schlechtes Strahlprofil der Pumpstrahlung hinter dem OPO mit zwei KTP-Kristallen hindeutet.

Ziel ist es, einen zuverlässigen Betrieb zu gewährleisten und nicht kurzzeitige Spitzenleistungen zu erzielen. Daher wurde die Variante des hochresonanten OPO nicht weiterverfolgt. Mit den PR = 70%- und 80%-Spiegeln konnte ein Wellenlängenbereich von 303-316 nm, reproduzierbar mit den angestrebten Leistungen im Bereich von ~ 1 W, generiert werden. Leider ist es nicht gelungen, den gesamten angestrebten Wellenlängenbereich von 295-315 nm zu erzeugen. Der eingeschränkte Wellenlängenbereich ist jedoch ausreichend, um die geforderte Auflösung und Genauigkeit der Lidarmessung im Tropopausenbereich zu erfüllen (vgl. Kap. 3.2). Ob sich UV-Wellenlängen unterhalb von 300 nm ohne Beschädigung der Optiken erzeugen lassen, wurde im Rahmen dieser Arbeit nicht mehr ausgetestet. Für zukünftige Kristallgenerationen sollte, wie oben diskutiert, über geeignetere Beschichtungen nachgedacht werden.

Aus diesen Messungen geht abschließend hervor, dass

- die Resonatorgüte mit PR = 70 % oder 80 % eingestellt werden sollte,
- keine Kompensationslinse notwendig ist,
- ein Galilei-Teleskop für die Mischpumpe als Option zur Steigerung der Effizienz sinnvoll ist,
- keine Pumpstrahlwiederverwertung verwendet werden sollte,
- das Verhältnis aus Mischpumpleistung zur gesamten SHG-Leistung zwischen 0,3 und 0,34 liegen sollte und
- die Verzögerungsstrecke bei 45 cm liegen sollte,

um eine effiziente und zuverlässige Konversion ins UV zu gewährleisten.

4.11 Realisierung des flugzeugtauglichen Konverters

Ziel war es, einen UV-Frequenzkonverter zu entwickeln, welcher sich modular mit den WALES-Frequenzkonvertern (vgl. Kap. 2.3.1) austauschen lässt. Demnach sind die äußeren mechanischen Abmessungen und damit das Gehäuse des neuen UV-Konverters vorgegeben. Analog zu den WALES-Konvertern sollte das UV-Modul in eine Optik- und eine Elektronikammer unterteilt werden die durch eine Mittelplatte voneinander getrennt sind. Dadurch ist die empfindliche Optik bei Arbeiten an der Elektronik geschützt. In Abb. 4.29 ist ein Blick in die Optikammer des UV-Konverters aus der Vogelperspektive dargestellt. Dazu findet sich in Abb. 4.30 eine schematische Zeichnung.

4.11.1 Optikkammer

Der Konverter wurde analog zu dem in Kap. 4.10 erarbeiteten Konzept entwickelt. Dazu wurde ein Oszillatorgehäuse mit einer Resonatorlänge von 82 mm mittels CAD-Software entwickelt. Das Oszillatorgehäuse ist aus dem entspannungsarmen Material ACP 5080 gefertigt, da bei diesem Material für Laseranwendungen vergleichbar geringe nachteilige Nachverformungen auftreten. Zwei der vier Resonatorspiegel sind justierbar gelagert. Montiert ist der Oszillator mit einer Dreipunktaufgabe auf Keramikugeln, um den Einfluss von Temperaturexpansionen zu reduzieren. Aus den Laboruntersuchungen ergab sich die optimale Verzögerungsstrecke zu 450 mm. Da das Oszillatorgehäuse ($L_{Res} = 82$ mm) mittels CAD-Software im Gegensatz zu dem Laboraufbau ($L_{Res} = 110$ mm) um 28 mm kürzer realisiert werden konnte und damit die Einschwingzeit nicht genau bekannt war, sind zwei unterschiedlich lange Verzögerungsstrecken vorgesehen: eine kurze Verzögerungsstrecke mit einer Länge von 344 mm und eine lange mit 504 mm.

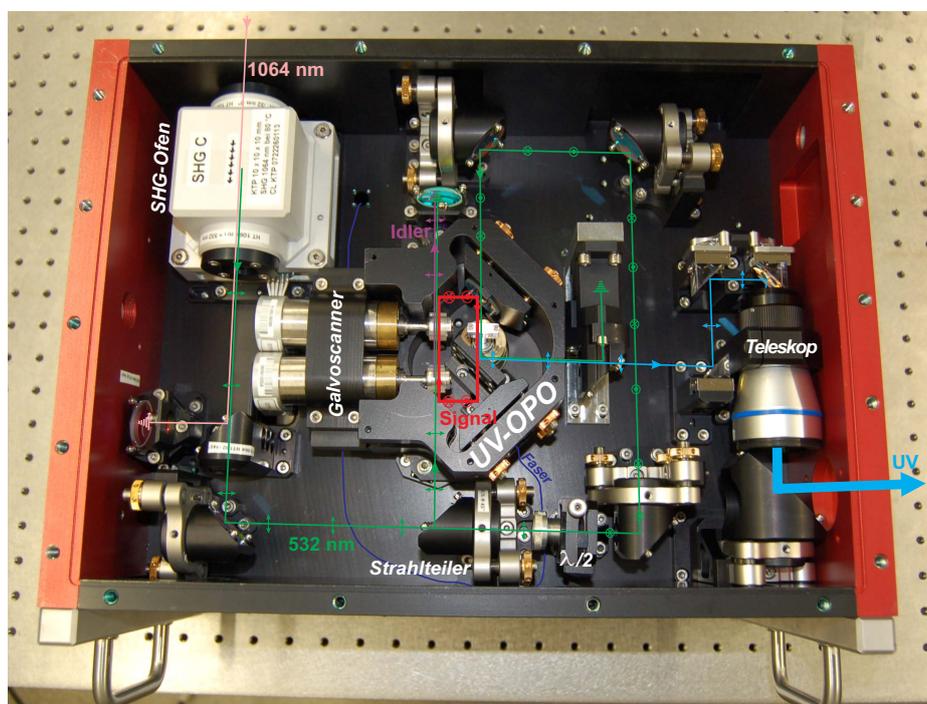


Abbildung 4.29: Ansicht der Optikkammer des flugzeugtauglichen UV-Frequenzkonverters aus der Vogelperspektive mit eingezeichneten Strahlengängen und entsprechenden Polarisierungen. (Der Deckel wurde für das Foto entfernt.)

Mithilfe von Galvoscanern können die Kristalle gekippt werden (siehe Kap. 4.11.4). Der Galvoscaner des Mischkristalls ragt durch die Mittelplatte in die Elektronikammer. Der in den nicht-linearen Prozessen nichtkonvertierte Anteil der Pumpstrahlen wird über dichroitische Spiegel aus dem Strahlengang entfernt und in sogenannten Strahlsümpfen abgeführt. Optional kann ein Galilei-Teleskop installiert werden, um den Strahlradius der Mischpumpe zu variieren. Um das Risiko der Zerstörung durch „gray-tracking“ (Boulanger et al., 1994) zu minimieren, wird der Verdopplerkristall mit einem Ofen auf eine Temperatur von 80° aufgeheizt.

Für die Auftrennung zwischen OPO- und SFM-Pumpe wurde ein Strahlteiler verwendet. Ein Dünnschicht-Polarisator, der an dieser Stelle in den Voruntersuchungen verwendet wurde, führt aufgrund der mit ihm verbundenen Strahlableitung um 112° zu keinem platzsparenden Aufbau. Daher wurde eine kompaktere Variante mit einem Strahlteilerspiegel unter 45° und anschließender $\lambda/2$ -Platte verwendet. Das Teilverhältnis eines Strahlteilers ist im Gegensatz zu einem Dünnschicht-Polarisator fest vorgegeben und kann nicht mehr verändert werden. Die Voruntersuchungen erga-

ben, dass das optimale Verhältnis der SFM-Pump-Leistung zur gesamten SHG-Leistung zwischen 0,3 und 0,34 liegt. Daher standen drei Strahlteilerspiegel mit den Verhältnissen $PR = 62,5\%$, 70% und $77,5\%$ zur Verfügung.

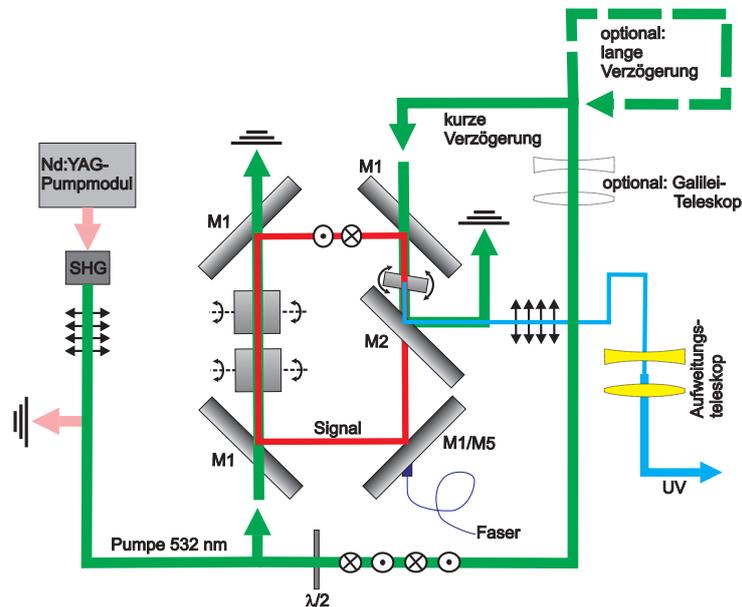


Abbildung 4.30: Schematische Darstellung der Strahlengänge des flugzeugtauglichen UV-OPO.

Über drei Umlenkprismen wird die im OPO erzeugte UV-Strahlung durch ein 2,5-fach-Aufweitungssteleskop (Qioptik, bm.x UV2.5x) justiert, um damit die Divergenz zu reduzieren. Anschließend wird die UV-Strahlung über einen Umlenkspiegel aus dem Konvertermodul gelenkt. Die Umlenkprismen und der 2-Zoll-Auskoppelspiegel sind sowohl für die UV-Wellenlängen als auch für 532 nm HR-beschichtet. Dadurch ist es möglich, falls erwünscht, nicht nur die UV-Strahlung, sondern auch die Mischpumpstrahlung in die Atmosphäre auszusenden.

4.11.2 Elektronikammer

Eine wichtige Voraussetzung für den Flugzeugbetrieb ist neben der mechanischen die elektrische Kompatibilität des Konverters mit dem WALES-Pumpmodul. Dazu wird die gesamte Versorgungsspannung des Frequenzkonverters über einen Anschluss mit der Nd:YAG-Pumpeinheit in der Elektronikammer des Konverters bereitgestellt. Die 28-V-Gleichspannung des Pumpmoduls wird an eine Verteilerplatine weitergeleitet und über Spannungswandler angepasst. Die Steuereinheit des SHG-Ofens wird mit 28 V versorgt und die drei Treiberplatten der Galvoscaner benötigen ± 15 V. Insbesondere muss für die Flugzeugtauglichkeit eine elektromagnetische Verträglichkeit gewährleistet sein, damit die empfindliche Elektronik des Flugzeugboardnetzes nicht gestört wird. Dies wurde mit Hilfe von Netzfiltern umgesetzt, welche sich zusätzlich auf der Verteilerplatine befinden.

An der Steuereinheit des SHG-Ofens befindet sich eine außen angebrachte Temperaturanzeige und -regelung, über welche die Temperatur des SHG-Kristalls überwacht und angepasst werden kann. Die Steuerspannung wird über drei USB-Anschlüsse eingespeist. Die Treiberplatten der Galvoscaner sind an den Außenwänden des Konverters angebracht, damit entstehende Wärme nach außen abgeführt werden kann. Über einen weiteren USB-Anschluss wird das Spektrometer mit Spannung versorgt und ausgelesen.

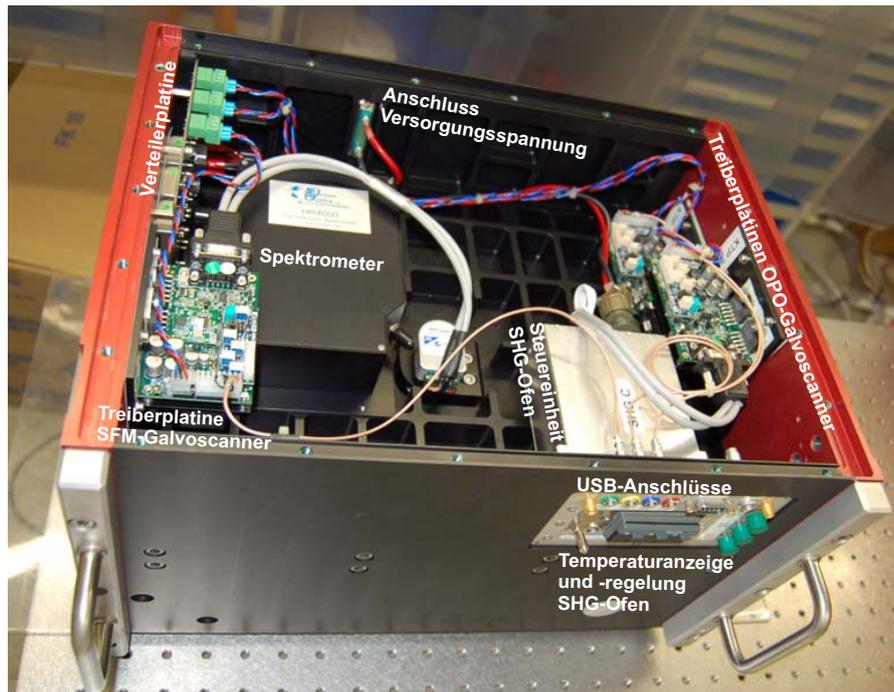


Abbildung 4.31: Ansicht der Elektronikammer des flugzeugtauglichen UV-Frequenzkonverters. (Die Bodenplatte wurde für das Foto entfernt.)

4.11.3 Charakterisierung des Frequenzkonverters

In diesem Kapitel wird eine vollständige Charakterisierung des UV-Frequenzkonverters gegeben. Dazu wurden die folgenden Parameter untersucht:

- Leistung als Funktion der Wellenlänge
- OPO-Schwelle als Funktion der Wellenlänge
- Effizienz der Konversion als Funktion der Wellenlänge
- Strahlprofil und Strahlqualität (M^2)
- Divergenz
- Bandbreite
- Wellenlängenstabilität.

Um die Optiken vor optisch verursachten Beschädigungen zu schützen, wurde die Variante der geringsten Leistungsdichte innerhalb der Kavität gewählt. Somit wurde der Pumpenstrahlteiler-Spiegel mit der $PR = 62,5\%$ ($P_{SFM}/P_{Ges} = 0,375$) gewählt, und der Resonator wurde mit geringster Güte ausgestattet ($PR_{Signal} = 70\%$).

Die höchste UV-Ausbeute wurde mit der kurzen Verzögerungsstrecke ($\Delta x = 344\text{ mm}$) und ohne das Galilei-Teleskop der SFM-Pumpe erzielt, weshalb in diesem Aufbau die kurze Verzögerungsstrecke ohne Teleskop verwendet wurde.

In Abb. 4.32 sind die mittleren UV-Ausgangsleistungen für fünf verschiedene UV-Wellenlängen und für sechs unterschiedliche Pumpleistungen aufgetragen. Der Konverter erzeugt demnach über den gesamten Wellenlängenbereich von 302,3-316,3 nm Strahlung mit einer mittleren Leistung von

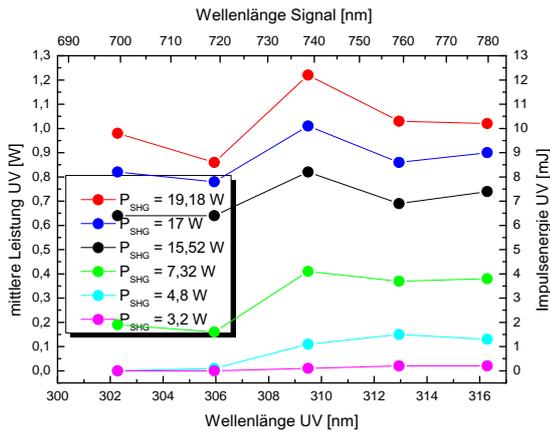


Abbildung 4.32: Mittlere UV-Leistung bzw. Impulsenergie als Funktion der UV-Wellenlänge. Es sind Kurvenscharen für sechs unterschiedliche Werte der Pumpleistung dargestellt. Zusätzlich befindet sich zur Orientierung auf der oberen x-Achse die Signalwellenlänge aufgetragen.

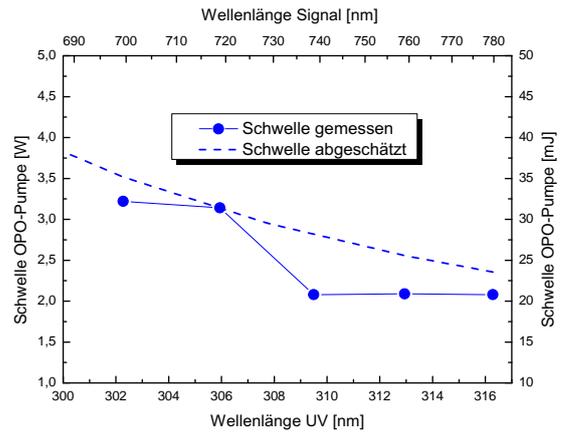


Abbildung 4.33: Schwelle aufgetragen als Funktion der UV-Wellenlänge, gemessen und abgeschätzt (vgl. Kap. 4.3.1).

über 1 W. Eine Erzeugung von UV-Strahlen kleiner 300 nm wurde, um eine Beschädigung weiterer Optiken zu vermeiden, nicht untersucht.

In Abb. 4.33 sind die Pumpschwellen, die für die unterschiedlichen Wellenlängen gemessen wurden, aufgetragen. Die Zunahme der Schwelle mit abnehmender UV-Wellenlänge lässt

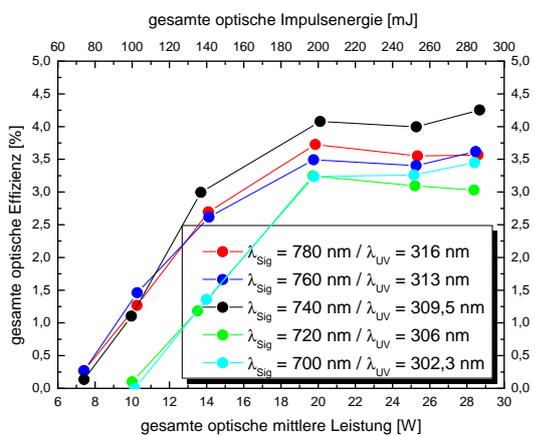


Abbildung 4.34: Gesamte optische Effizienz als Funktion der gesamten optischen Leistung. Es sind Kurvenscharen für fünf unterschiedliche Signal- bzw. UV-Wellenlängen dargestellt.

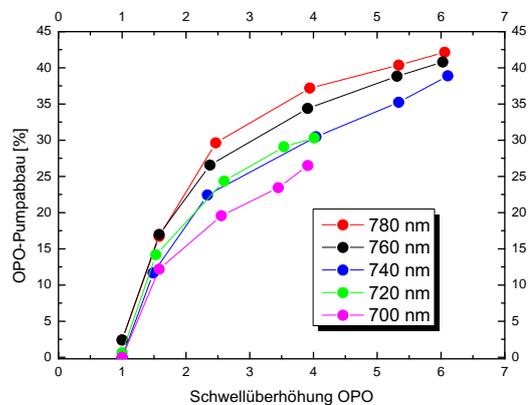


Abbildung 4.35: Konversionseffizienz des OPO-Prozesses als Funktion der Schwellenwertüberhöhung der OPO-Pumpe.

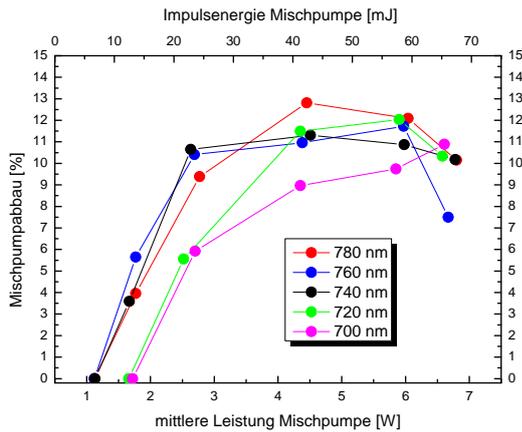


Abbildung 4.36: Pumpabbau der Mischpumpe als Funktion der Mischpumpleistung. Aufgetragen sind Kurvenscharen für fünf verschiedene Signal- bzw. UV-Wellenlängen.

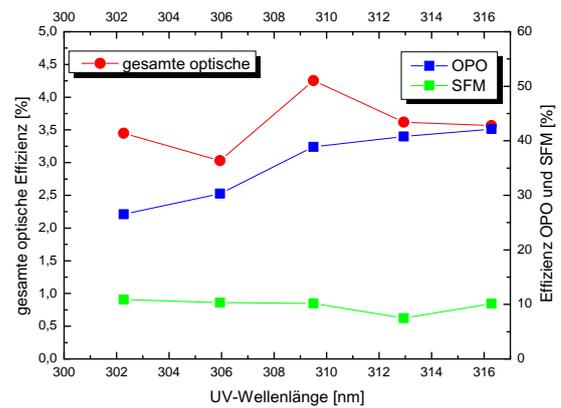


Abbildung 4.37: Gesamte optische Effizienz, OPO-Konversionseffizienz und Mischpumpabbau aufgetragen als Funktion der UV-Wellenlängen für maximale Pumpleistung.

sich mit der FOM des OPO-Prozesses erklären (siehe Abb. 4.4). Die nach Gl. 4.13 für dieses Konzept erwarteten Schwellenwerte stimmen größenordnungsmäßig mit den gemessenen Werten überein. Bei der Berechnung wurde jedoch die Güte des Resonators über den gesamten Wellenlängenbereich als konstant angenommen. Wegen der unterschiedlichen Beschichtungen der verschiedenen Optiken trifft dies in der Realität jedoch nicht exakt zu. Dies könnte eine mögliche Ursache für die Abweichungen zwischen Theorie und Experiment sein.

Die gesamte optische Effizienz von der fundamentalen bis zur UV-Strahlung ist in Abb. 4.34 dargestellt. Die Effizienz des OPO-Prozesses entspricht nach Gl. 4.14 dem Abbau der OPO-Pumpe, welcher sich relativ leicht durch Blockieren der Signalstrahlung innerhalb der Kavität bestimmen lässt. Der Abbau ist in Abb. 4.35 als Funktion der Schwellenwertüberhöhung dargestellt. Dazu wurden die gemessenen Schwellenwerte aus Abb. 4.33 herangezogen.

Analog dazu lässt sich der Pumpabbau der Mischpumpe bestimmen, welcher in Abb. 4.36 dargestellt ist. Interessant ist, dass der Pumpabbau für Wellenlängen ab 720 nm ab einem bestimmten Wert wieder abnimmt. Dann nämlich geht die Summenfrequenzmischung in Sättigung. Demnach ist eine Erhöhung der Intensität mittels Galilei-Teleskop in diesem Fall nicht erforderlich. Zur Übersicht sind die Effizienzen der gesamten optischen Leistung, des OPO-Prozesses und der Mischpumpabbau für die maximale Pumpleistung dargestellt.

Die Strahlqualität der erzeugten UV-Strahlung wurde für die Wellenlängen 305 nm und 315 nm analog zur in Kap. 4.7 beschriebenen M^2 -Wert-Messung bestimmt. Die Ergebnisse der Messung (mit Aufweitungssteleskop) sind in Abb. 4.39 und 4.41 dargestellt. In den Abb. 4.38 und 4.40 ist das Strahlprofil für beide Wellenlängen im Fernfeld abgebildet.

Für einen idealen Gaußstrahl gilt $M^2 = 1$. Bei maximaler Leistung wurde der Strahlpropagationsparameter der fundamentalen Strahlung zu $M^2 = 1,8$ und jener der SHG-Strahlung zu $M^2 = 3,42$ vermessen. Weshalb die Strahlqualität im UV stark von einem idealen Gaußstrahl abweicht, konnte nicht ermittelt werden. Möglicherweise könnten thermische Effekte der Optiken das Strahlprofil deformieren, wodurch der M^2 -Wert ansteigt.

Der M^2 -Wert ist, obwohl von physikalischem Interesse, für Lidaranwendungen nur indirekt wichtig. Beim Lidar ist die Divergenz der emittierten Laserstrahlen entscheidend. Optimalerweise sollte sie kleiner als der Teleskopöffnungswinkel sein, damit der Überlapp $O(r)$ in der Lidargleichung 2.1 gegen 1 geht. Für die verwendete Plankonvex-Linse betragen die Brennweiten für beide Wellenlängen $f_{305nm} = 470$ mm und $f_{315nm} = 472,25$ mm. Die Strahldurchmesser beider großen Halbachsen (hier: x und y) des elliptischen Strahlprofils in der Brennebene und die sich mit Gl. 4.20 zu berechnenden

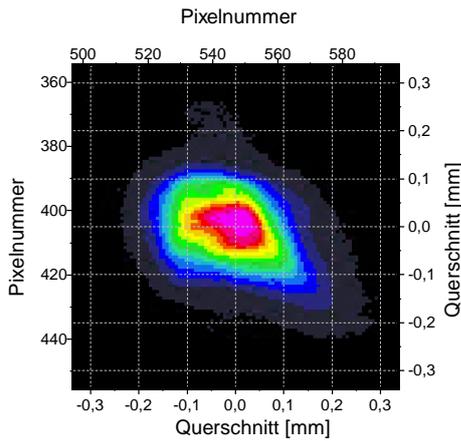


Abbildung 4.38: Strahlprofil im Fernfeld der 305-nm-Strahlung bei 10 mJ Impulsenergie.

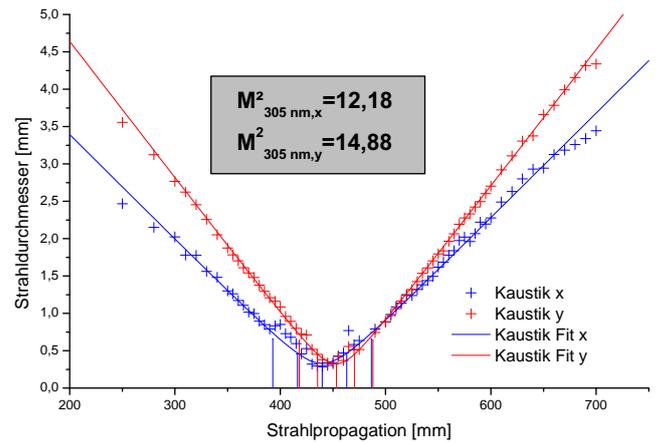


Abbildung 4.39: Messung der Beugungsmaßzahl für die 305-nm-Strahlung bei 10 mJ Impulsenergie.

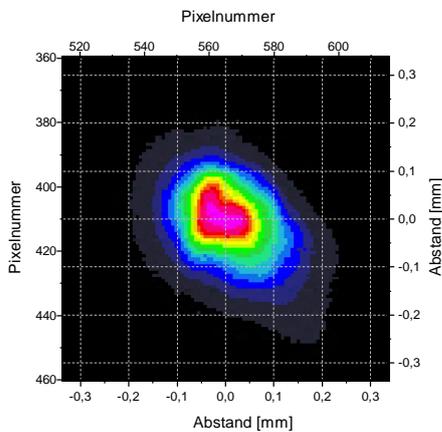


Abbildung 4.40: Strahlprofil im Fernfeld der 315-nm-Strahlung bei 10 mJ Impulsenergie.

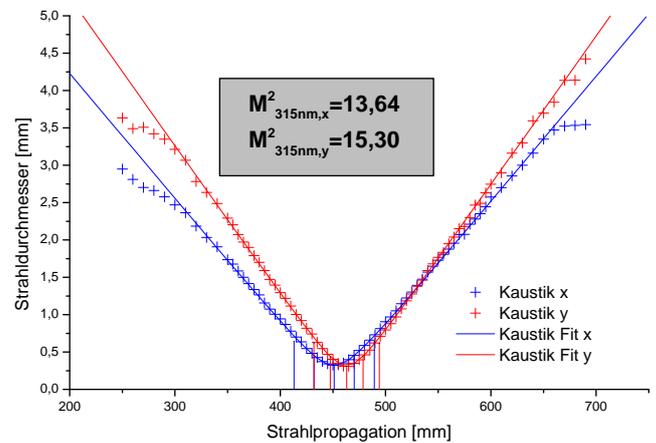


Abbildung 4.41: Messung der Beugungsmaßzahl für 315-nm-Strahlung bei 10 mJ Impulsenergie.

Divergenzen sind Tab. 4.11 zu entnehmen. Der Öffnungswinkel des Teleskops²¹ beträgt 1,6 mrad und die Divergenz sollte kleiner als das FOV sein, damit die Überlappfunktion in der Lidargleichung gegen 1 geht ($O(r) = 1$). Die UV-Strahlung, die direkt aus dem OPO austritt, ist größer als das FOV des Teleskops ($\theta_{\text{ohneTeleskop}} > \text{FOV}$), weshalb das Aufweitungsteleskop verwendet wurde, mit welchem die Divergenz einen angemessenen Wert annimmt ($\theta_{\text{mitTeleskop}} < \text{FOV}$).

In den numerischen Simulationen aus Kap. 3.5 wurde für die Bandbreite der UV-Strahlung 0,05 nm angenommen. Durch Gauß'sche Fehlerfortpflanzung ergibt sich daraus ein Fehler von 0,93 % in der Bestimmung der Ozondichte.

Um die Gültigkeit dieser Annahme zu verifizieren, wurde die Signalstrahlung mit dem hochauflösenden optischen Spektrumanalysator (ANDO, AQ6317B) vermessen. In den Abb. 4.42 und 4.43 sind die Leistungsspektren bei einer „Online“-Signalwellenlänge von 718,9 nm und einer „Offline“-Signalwellenlänge von 770,5 nm dargestellt. Für den OPO ohne Berücksichtigung der Resonatoreigenschaften wird nach Tab. 4.6 für 714 nm eine homogene Verbreiterung von 0,37 nm und für 772 nm eine Verbreiterung von 0,45 nm erwartet. Unter Berücksichtigung der Resonatoreigenschaften wird unter Verwendung von Gl. 4.18 eine Bandbreite von 0,087 nm für 714 nm Wellenlänge und

²¹eng.: field of view, kurz: FOV

Tabelle 4.11: Berechnung der Strahldivergenz der generierten UV-Strahlung für die Wellenlängen 305 nm und 315 nm ohne und mit Aufweitungsteleskop.

Wellenlänge [nm]		$D_{f,ohneTeleskop}$ [mm]	$\theta_{ohneTeleskop}$ [mrad]	$D_{f,mitTeleskop}$ [mm]	$\theta_{mitTeleskop}$ [mrad]
305	(x)	0,8	1,7	0,36	0,77
	(y)	1,1	2,34	0,45	0,96
315	(x)	0,82	1,74	0,25	0,53
	(y)	1,08	2,29	0,35	0,74

von 0,11 nm für 772 nm Wellenlänge erwartet. Die vermessenen Bandbreiten sind demnach etwa 1,6-mal größer als erwartet.

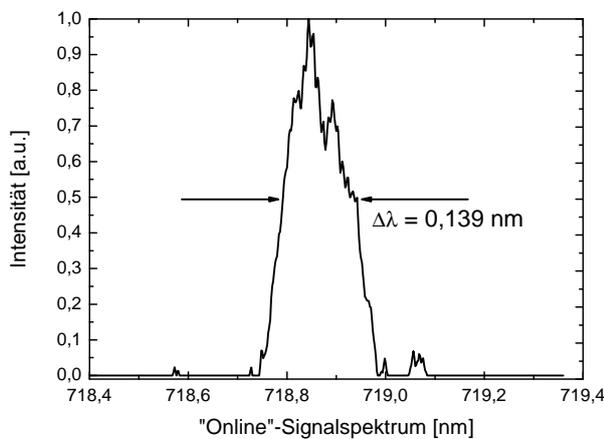


Abbildung 4.42: Intensitätsspektrum der Signalstrahlung bei 718,9 nm.

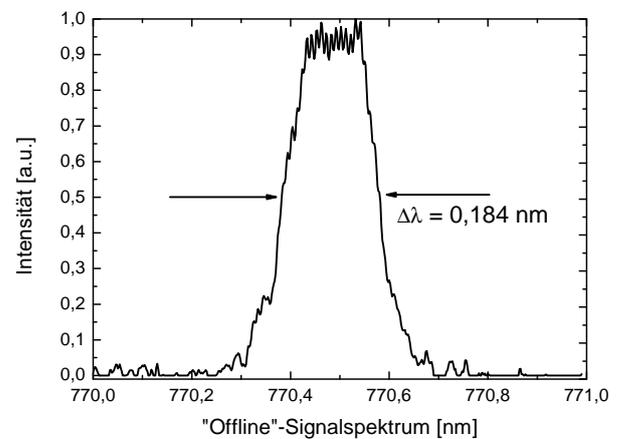


Abbildung 4.43: Intensitätsspektrum der Signalstrahlung bei 770,5 nm.

Die Akzeptanzbandbreiten des BBO-Kristalls für den Mischprozess liegen nach Tab. 4.7 bei 1,26 nm für 714 nm Wellenlänge und bei 1,56 nm für 772 nm Wellenlänge und sind damit größer als die vermessenen Bandbreiten der Signalstrahlung. Erst diese Tatsache ermöglicht eine effiziente Konversion von Energie im BBO-Mischkristall. Aufgrund dieser Tatsache kann davon ausgegangen werden, dass die Bandbreite der UV-Strahlung maximal der Bandbreite der Signalstrahlung entspricht. Damit berechnet sich die Bandbreite für die Strahlung der Wellenlänge 305,75 nm zu 0,025 nm und für die Strahlung der Wellenlänge 314,7 nm zu 0,03 nm. In Frequenzen ausgedrückt entspricht dies einer Bandbreite von 80,17 GHz für 305,75 nm und 90,8 GHz für 314,7 nm Wellenlänge.

Da die tatsächliche Bandbreite kleiner ist als die in der oben getroffenen Annahme, liegt der Fehler in der Bestimmung der Ozondichte bei $< 1\%$ und hat damit keinen signifikanten Einfluss auf die Qualität der Ozon-DIAL-Messung.

4.11.4 Wellenlängensteuerung und Langzeitstabilität

Die emittierten Wellenlängen des OPO ergeben sich aus dem Winkel zwischen Kristall und Pumpstrahlung. Durch Drehen der Kristalle können die Wellenlängen entsprechend verstimmt werden.

Für ein DIAL-System werden mindestens zwei unterschiedliche Wellenlängen benötigt. Wegen der für die nichtlinearen Prozesse benötigten Einzelimpulsenergie werden die Wellenlängen hier alternierend und nicht simultan emittiert. Dafür müssen die Winkel zwischen dem OPO-Pumpstrahl und den beiden OPO-Kristallen und der Winkel zwischen dem SFM-Pumpstrahl und dem SFM-Kristall synchron mit 100 Hz verstellt werden. Um die Geschwindigkeit der Rotation und die Repro-

duzierbarkeit der Kristallwinkel von Impuls zu Impuls über einen hinreichend langen Zeitraum zu gewährleisten, wurde für alle drei Kristalle ein Galvoscaner (Cambridge Technology, MPM-20A) verwendet.

Die exakte Kenntnis über die ausgesendeten „Online“- und „Offline“-Wellenlängen ist für die DIAL-Auswertung von großer Bedeutung. Damit der Messfehler in der Ozondichtebestimmung vernachlässigbar wird, also bei $< \pm 1 \%$ liegt, ist eine Reproduzierbarkeit der Signalwellenlänge von $\pm 0,25 \text{ nm}$ erforderlich. Laut Herstellerangaben beträgt der maximal mögliche Stellwinkel $\pm 40^\circ$. Für eine Auslenkung von $\pm 20^\circ$ beträgt die Einstellgeschwindigkeit $750 \mu\text{s}$ und die Kurzzeitwiederholpräzision $\pm 15 \mu\text{rad}$. Damit ist es möglich, die gewünschte Wellenlänge von Impuls zu Impuls (10 ms) über die dazugehörige Regelelektronik und einen PC einzustellen. Ausgehend von den Werksangaben ergibt sich daraus eine Reproduzierbarkeit von $\pm 0,0089 \text{ nm}$ in der Signalwellenlänge. Verglichen mit der Bandbreite der Signalstrahlung von etwa $\pm 0,15 \text{ nm}$ ist dies vernachlässigbar. Im Folgenden wird die Reproduzierbarkeit experimentell überprüft.

Zu diesem Zweck wird hinter dem teilreflektierenden Resonatorspiegel ein geringer Anteil der austretenden Signalstrahlung in eine Glasfaser eingekoppelt und so die Signalwellenlänge mit Hilfe eines fasergekoppelten Spektrometers (Ocean Optics, HR4000) für jeden einzelnen Laserimpuls aufgezeichnet. Das Spektrometer besteht aus einem 3648 Pixel CCD, ist für den Wellenlängenbereich zwischen 610 nm und 790 nm ausgelegt und besitzt nach Herstellerangaben eine Auflösung von 0,11 nm. Die Datenerfassung speichert zu jedem ausgehenden Impuls die Wellenlänge maximaler Intensität auf, welche die Zentralwellenlänge repräsentiert. Dadurch lässt sich die exakte Wellenlänge bei der Auswertung in der DIAL-Gleichung berücksichtigen.

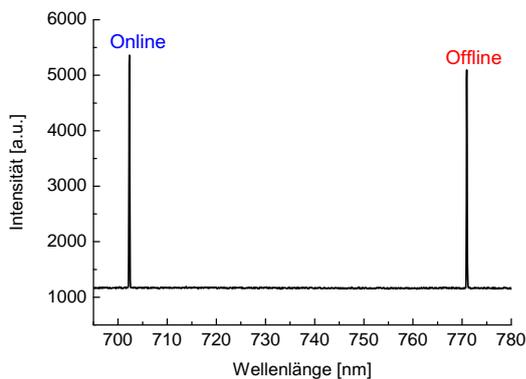


Abbildung 4.44: Darstellung des Spektrometers bei der abwechselnden Generierung beider DIAL-Wellenlängen.

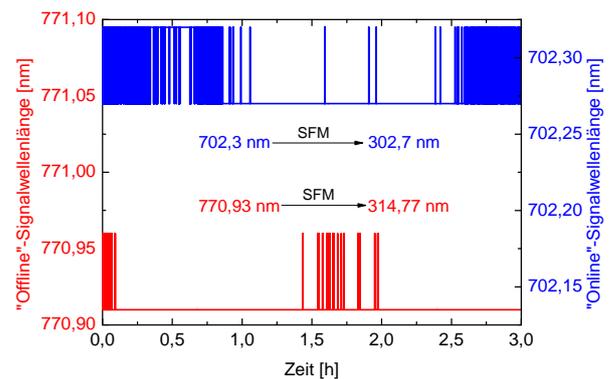


Abbildung 4.45: Langzeitstabilität der Zentralwellenlängen beider DIAL-Strahlungen.

Die Wellenlängenstabilität wurde experimentell über einen Zeitraum von drei Stunden überprüft. Das Ergebnis findet sich in Abb. 4.45 aufgetragen. Zur Veranschaulichung ist die Anzeige des Spektrometers in Abb. 4.44 dargestellt. Das Maximum beider Spektren wird als Zentralwellenlänge verwendet. Die Variation sowohl der „Online“- als auch der „Offline“-Wellenlänge beträgt 0,055 nm. Möglicherweise handelt es sich hierbei um eine Änderung im Rahmen der Rundungsgenauigkeit. Setzt man also bei der Bestimmung der Signalwellenlänge das theoretische Auflösungsvermögen von 0,11 nm als realistischen Wert an, so ergibt sich eine Genauigkeit der UV-Wellenlänge von 0,022 nm. Der dadurch hervorgerufene Fehler bei der Bestimmung der Ozonkonzentration liegt damit bei maximal 0,39 %.

Der hier entwickelte Frequenzkonverter erfüllt alle an einen DIAL-Transmitter gestellten An-

forderungen, was die Leistung, den UV-Wellenlängenbereich, die Bandbreite, die Divergenz und die Wellenlängestabilität betrifft. In Kombination mit der Pumpeinheit des WALES-Systems steht somit ein kompakter, effizienter und zuverlässiger DIAL-Transmitter für die Vermessung von Ozon im Tropopausenbereich vom Flugzeug aus zur Verfügung.

Kapitel 5

Beschreibung des Aufbaus zur Erprobung des Ozon-DIAL

Ursprünglich war das Ziel dieser Arbeit, gleichzeitig Ozon und Wasserdampf mit dem hier entwickelten UV-Transmitter in Kombination mit den Komponenten des WALES-Systems von dem Forschungsflugzeug HALO aus zu vermessen. Dabei sollte die Eignung des UV-Transmitters praktisch verifiziert werden. Geplant war eine Beteiligung der beiden Spurengaslidare an der Demo-Mission POLSTRACC¹, welche ursprünglich auf Winter 2009/2010 angesetzt war. Dies konnte jedoch nicht realisiert werden, da aufwendige Zulassungsverfahren der Umbauten an HALO, der Basissensorik und der wissenschaftlichen Instrumentierung zu einer Verschiebung aller geplanten wissenschaftlichen Einsätze mit HALO führten. Daher stand der Messträger für die Aufgabenstellung der Arbeit nicht zur Verfügung. Um die Eignung des Systems zu demonstrieren, wurden daher bodengebundene Ozon-DIAL Messungen vorgenommen. Zusätzlich zur Erprobung wurde das entwickelte Ozon-DIAL mittels unabhängiger Instrumente validiert.

Allerdings macht es vom Boden aus keinen Sinn, Ozon gemeinsam mit Wasserdampf zu vermessen. Denn bedingt durch die hohen Wasserdampf-Mischungsverhältnisse von einigen Prozent in Bodennähe ist die Extinktion der Wasserdampf-DIAL-Strahlung vom Boden aus zu hoch, um ein ausreichend starkes Signal aus der Tropopausenregion zu erhalten. Daher wurde auf eine gemeinsame Messung beider Spurenstoffe verzichtet.

Das Messinstrument AMALFI besteht im Flieger aus dem in Kap. 2.3.1 beschriebenen Transmittersystem. Dabei ist einer der beiden Wellenlängenkonverter für Wasserdampf mit dem in dieser Arbeit entwickelten UV-Wellenlängenkonverter ausgetauscht. Zu den weiteren Bestandteilen von AMALFI im Flieger zählen das Teleskop und die für einen UV-Kanal modifizierte Detektorbox der in Kap. 2.3.2 beschriebenen Empfangseinheit. Da im Rahmen dieser Arbeit keine gemeinsame Messung von Wasserdampf und Ozon vorgenommen wurde, musste die AMALFI-Detektorbox nicht notwendigerweise verwendet werden. Daher konnte die für UV-Strahlung ausgelegte Detektorbox des TropOlex-Systems verwendet werden. Sie ist kompatibel zu einem am Boden einfacher handhabbaren Teleskop, was Montage und Justage betrifft. Die Unterschiede zwischen der endgültigen und der hier verwendeten Empfangseinheit sind

- der Teleskopdurchmesser und
- die Wellenlängenabhängigkeit der Strahlführung vom Ozonkanal.

Die restlichen Parameter sind identisch. Da sowohl der Teleskoptyp als auch der Photodetektor in beiden Systemen identisch sind, ergeben sich keine Unterschiede in Bezug auf die Verifikation der

¹The **Polar Stratosphere** in a **Changing Climate**

Eignung des UV-Konverters als Ozon-DIAL-Transmitter. Somit gelten auch die durch bodengebundene Lidarmessungen gezogenen Schlussfolgerungen für das endgültige Flugzeugsystem im selben Maße.

In diesem Kapitel erfolgt die Beschreibung des Aufbaus des Lidarsystems, mit welchem die Erprobung vom Boden aus durchgeführt wurde.

5.1 Empfangseinheit

Eine detaillierte Beschreibung des hier verwendeten Teleskops und der Detektorbox befindet sich in Meister (2005). Der Teleskopdurchmesser misst $D_{Teleskop} = 0,35$ m und die Teleskopbrennweite beträgt $f_{Teleskop} = 5$ m. Im Vergleich dazu hat das WALES-Teleskop einen Durchmesser von $D_{Teleskop,WALES} = 0,48$ m bei gleicher Brennweite. Durch die größere Teleskopfläche wird mit dem WALES-Teleskop ein $\sim 1,9$ -mal stärkeres Signal und um denselben Faktor mehr Hintergrundlicht empfangen als mit dem hier verwendeten Teleskop.

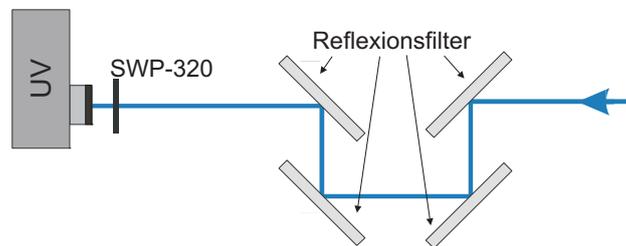


Abbildung 5.1: Schematische Darstellung des Strahlengangs innerhalb der TropOlex-Detektorbox. (Meister, 2005)

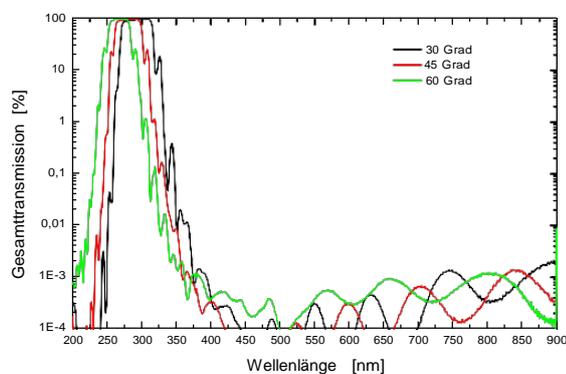


Abbildung 5.2: Reflexionskurven des Filtersystems in logarithmischer Darstellung. (Meister, 2005)

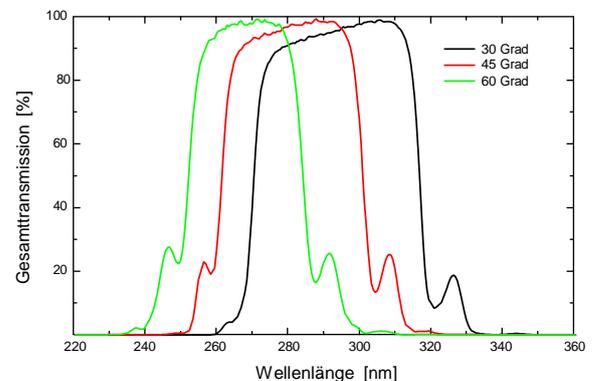


Abbildung 5.3: Reflexionskurven des Filtersystems in linearer Darstellung. (Meister, 2005)

In der Detektorbox befindet sich ein Reflexionsfiltersystem, bestehend aus vier Interferenzfiltern, welche je nach Winkelstellung nur einen gewissen UV-Wellenlängenbereich an den Photodetektor weiterleiten. Der Strahlengang innerhalb der Detektorbox sowie die winkelabhängigen Reflexionskurven des Filtersystems sind in den Abb. 5.1, 5.2 und 5.3 dargestellt. Über eine Justierschraube können die Reflexionsfilter gegeneinander verkippt werden, sodass für die verwendeten DIAL-Wellenlängen eine maximale Reflexion eingestellt werden kann. Die Unterdrückung des sichtbaren Wellenlängenbereichs wird zusätzlich durch den SWP-320-Transmissionfilter (vgl. Kap. 3.3) unterstützt. Mit einer Transmission des SWP-320-Filters von 95 % ergibt sich die Gesamttransmission

vom Teleskop zum Photodetektor zu $T_{Gesamt} = 92\%$. Im Vergleich dazu trennt in der Detektorbox des WALES-Systems ein Kantenfilter die für das WALES-System notwendigen Wellenlängen $\geq 532\text{ nm}$ von den für die Ozonmessung benötigten UV-Wellenlängen. Ein Reflexionsfiltersystem ist in der WALES-Detektorbox nicht vorgesehen, sodass sich die Gesamttransmission allein aus dem SWP-320-Tageslichtfilter ergibt.

Die Divergenz der UV-Strahlung beträgt $\theta < 1\text{ mrad}$ (vgl. Kap. 4.11.3 Tab. 4.11). Damit die Überlappfunktion in der Lidargleichung gegen 1 geht ($O(r) = 1$), muss das Teleskop-FOV größer als die Divergenz der Laserstrahlung sein. Daher wurde in der Brennebene des Teleskops eine Blende mit der Größe $8,2\text{ mm}$ integriert. Daraus ergibt sich mit

$$FOV = \frac{f_{Teleskop}}{d_{Blende}} \quad (5.1)$$

das FOV des Teleskops zu $1,64\text{ mrad}$ ($\Rightarrow FOV_{Teleskop} > \theta$).

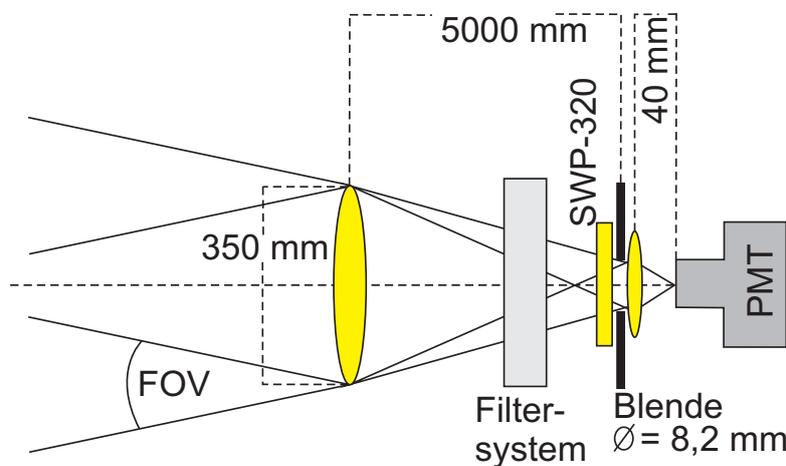


Abbildung 5.4: Schematische Darstellung des Strahlengangs in der TropOlex-Empfangseinheit. Die Zeichnung ist nicht maßstabsgetreu.

In Abb. 5.4 ist der Strahlengang in der Empfangseinheit des TropOlex-Systems schematisch skizziert.

Zwischen der Blende und dem Photodetektor befindet sich eine kurzbrennweitige Linse der Brennweite $f_{Linse} = 40\text{ mm}$, in deren Brennebene der Photodetektor steht. Durch die Abbildung der Eintrittsöffnung auf den Detektor ist das Ausleuchtungsmuster auf dem Detektor für Rückstreuung innerhalb des gesamten Überlappbereichs gleich. Somit ist durch die kurzbrennweitige Linse die effektive Quanteneffizienz des Detektors nicht mehr abhängig vom Streuabstand und damit eine Konstante.

Der Photodetektor ist ein Photoelektronenvervielfacher des Modells R7400U-04 der Marke Hamamatsu. In Tab. 5.2 sind die Eigenschaften des Detektors aufgelistet. Mit einer Detektorbandbreite von 10 MHz ergibt sich eine vertikale Auflösung von 15 m .

5.2 Aufbau in der Lidarkuppel

Für Messungen über den angestrebten vertikalen Bereich von etwa 15 km eignet sich nur eine monostatische Anordnung², um den Überlapp über den gesamten Messbereich zu gewährleisten. Eine monostatische Anordnung kann, wie in den Abb. 5.5 und 5.6 dargestellt, entweder in koaxialer oder in biaxialer Geometrie realisiert werden. Um die Dynamik des Signals besser ausnutzen zu

²monostatisch: Teleskopachse und Laserstrahlachse sind parallel.

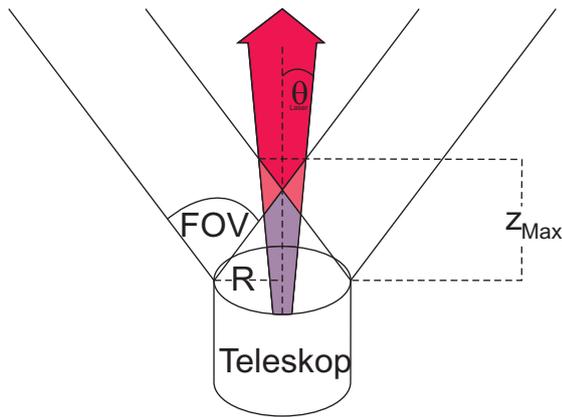


Abbildung 5.5: Monostatische koaxiale Anordnung.

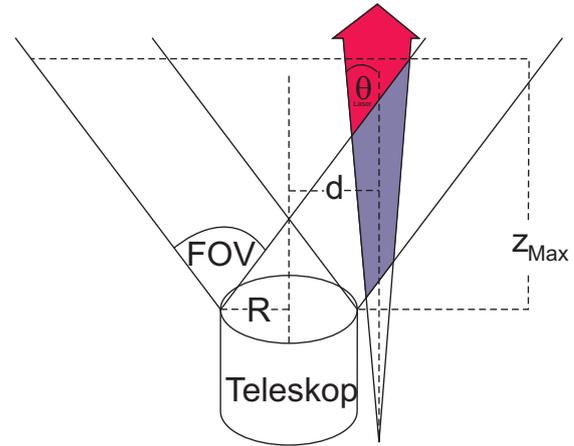


Abbildung 5.6: Monostatische biaxiale Anordnung.

können, ist es vom Boden aus vorteilhafter, eine monostatisch biaxiale Anordnung zu verwenden (Halldorsson und Langerholc, 1978). Im Flugzeug wird jedoch eine monostatische koaxiale Anordnung verwendet, da das Lidar näher an das interessante Messvolumen herangeführt werden kann und damit die Dynamik des Signals bis hin zu dem Messvolumen, das hier interessiert, geringer ist. Außerdem nimmt ein Lidar in dieser Anordnung weniger Platz in Anspruch, was gerade für den Einsatz im Flugzeug wichtig ist.

Über den Achsenabstand d einer biaxialen Anordnung kann der Überlappabstand vergrößert werden. Dadurch kann der Detektor im Nahfeld entlastet und vor Zerstörung geschützt werden. Aus den in den Abb. 5.5 und 5.6 gezeichneten Geometrien können die Überlappabstände (z_{Max}) berechnet werden. Für eine koaxiale Anordnung ergibt sich mit den oben diskutierten Teleskopparametern der Überlappabstand zu $z_{Max} = 420$ m, während dieser für einen Achsenabstand von $d = 70$ cm in biaxialer Geometrie $z_{Max} = 2100$ m entspricht. Dadurch reduziert sich der Intensitätsbereich der empfangenen Leistung um etwa 2 Größenordnungen. Aus diesem Grund wurde für die Bodenmessung die biaxiale Geometrie mit dem angegebenen Achsenabstand gewählt.

In den Abb. 5.7 und 5.8 befinden sich Fotografien der Lidarkuppel und in den Abb. 5.9 und 5.10 ist der monostatisch biaxiale Messaufbau abgebildet. In den Tabellen 5.1 und 5.2 sind die wichtigsten Send- und Empfangsparameter überblicksartig zusammengestellt.

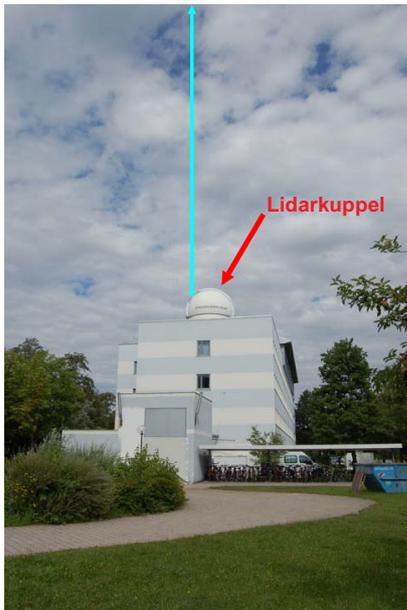


Abbildung 5.7: Rückseite des Instituts für Physik der Atmosphäre des Deutschen Zentrums für Luft- und Raumfahrt in Oberpfaffenhofen.



Abbildung 5.8: Lidarkuppel auf dem Dach des Instituts.

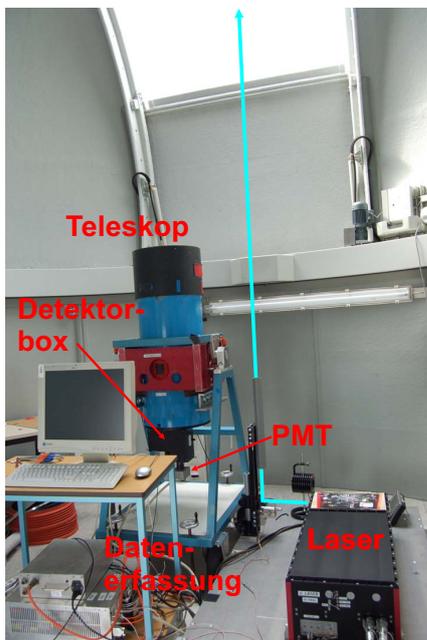


Abbildung 5.9: Vorderansicht des Messaufbaus.



Abbildung 5.10: Seitenansicht des Messaufbaus.

Tabelle 5.1: Zusammenstellung der wichtigsten Transmitterparameter des Ozon-DIAL.

Transmitterparameter des Ozon-DIAL-Systems		
Pumplaser	Typ	diodengepumpter Nd:YAG-Laser mit drei Verstärkerstufen (100 Hz)
	Impulsenergie	360 mJ @ 1064 nm 210 mJ @ 532 nm
	Impulsdauer	8 ns @ 1064 nm 7,5 ns @ 532 nm
	Strahldurchmesser	~ 6,8 mm @ 1064 nm ~ 5 mm @ 532 nm
	Divergenz	0,45 mrad @ 1064 nm 0,55 mrad @ 532 nm
	Strahlpropagationsparameter M^2	1,8 @ 1064 nm 3,42 @ 532 nm
	Bandbreite	54 MHz @ 1064 nm \leq 108 MHz @ 532 nm
	Gewicht	75 kg
	Abmessungen	700x412x256 mm ³
UV OPO	OPO-Kristalle (2 Stk.)	KTP Typ 2, xz-Ebene, 9x11x12 mm ³ , 50,7°
	SFM-Kristall	BBO Typ 1, 10x10x3 mm ³ , 40°
	Impulsdauer	~ 5 ns
	Durchstimmbereich	303-316 nm
	UV Ausgangsimpulsenergie	\geq 10 mJ
	UV Ausgangsleistung	\geq 1 W
	Strahldurchmesser	3,5 mm
	Divergenz	\leq 0,96 mrad
	Strahlpropagationsparameter M^2	\leq 15,3
	Bandbreite	\leq 0,03 nm bzw. \leq 90 GHz
	Gewicht	27 kg
	Abmessungen	300x412x256 mm ³
Galvo-Scanner	Typ	MPM-20A
	Marke	Cambridge Technology
	max. Auslenkung	\pm 30°
	Wiederholbarkeit	\pm 15 μ rad bzw. \pm 0,0089 nm
	Geschwindigkeit	\leq 750 μ s für \pm 20°
Spektrometer	Typ	HR4000
	Marke	Ocean Optics
	spektraler Bereich	610-790 nm
	Gitter	1200 Linien pro mm
	Auflösungsvermögen	0,11 nm

Tabelle 5.2: Zusammenstellung der wichtigsten Empfangsparameter des Ozon-DIAL.

Empfangsparameter des Ozon-DIAL-Systems		
Teleskop	Typ	Cassegrain
	Marke	Bernhard Halle Nachfolger
	Ø des Primärspiegels	350 mm
	Reflexionsbereich	250-1100 nm
	Brennweite	5 m
	Max. Öffnungswinkel (FOV)	±4 mrad
	Anordnung	monostatisch biaxial
	Achsenabstand (Teleskop-Laserstrahl)	70 cm
	Überlappabstand	2100 m
Detektor- box	Gesamttransmission Filter	92 %
	Detektortyp	PMT
	Modell	R7400U-04
	Marke	Hamamatsu
	Quanteneffizienz	~18 %
	Übertragung (digital)	14-bit, 10 MHz
	Anode-zu-Kathode-Spannung (max.)	1 kV
	vertikale Auflösung	15 m

Kapitel 6

Erprobung und Validierung

Ziel dieses Kapitels ist die Präsentation der Ergebnisse der ersten Testmessungen des im Rahmen dieser Arbeit entwickelten und in Kap. 5 präsentierten UV-DIAL. Über einen Vergleich mittels unabhängiger Messinstrumente wird die Genauigkeit des hier entwickelten Ozon-DIAL-Systems aufgezeigt. Eine detaillierte Diskussion der Messfehler findet sich in Kapitel 7.

6.1 Strategie der Validierung

Ziel der Validierung ist eine unabhängige Überprüfung der Messgenauigkeit systematischer und statistischer Fehler. Generell stehen zur Ermittlung atmosphärischer Ozonkonzentration folgende Systeme zur Verfügung:

- atmosphärische Chemie-Modelle
- satellitengestützte Sensoren
- flugzeuggetragene In-situ-Instrumente
- Ozonsonden
- Lidarsysteme.

Atmosphärische Chemie-Modelle und satellitengestützte Sensoren können den starken Ozongradienten entlang der Tropopause nicht genau genug wiedergeben (Ehret und Kiemle, 2005). Daher sind sie zur Validierung ungeeignet. Dagegen verfügen optisch und chemisch basierte flugzeuggetragene Messinstrumente über eine ausreichende Auflösung und Genauigkeit. Jedoch wäre eine Validierung mit diesen Instrumenten, bedingt durch die Plattform, sehr kostenintensiv. Unkomplizierter und qualitativ gleichwertig ist jedoch der Vergleich mit Ozonsonden. Ein weiterer leicht zugänglicher Vergleich kann mit Hilfe bodengebundener Lidarsysteme durchgeführt werden.

Zur Validierung des entwickelten Ozon-DIAL boten sich die zwei unterschiedlichen Ozonmessverfahren an, die am nahe gelegenen meteorologischen Observatorium auf dem Hohenpeißenberg genutzt werden. Das Observatorium des Deutschen Wetterdienstes ist vom Institut für Physik der Atmosphäre in Oberpfaffenhofen 37,5 km entfernt, in südwestlicher Richtung gelegen. Mit einem Xenonchlorid-Excimer-Laser-basierten DIAL werden dort in wolkenfreien Nächten Ozonprofile zwischen 13 km und 50 km Höhe gemessen. Über eine mit einem Wasserstoff gefüllten Gummiballon getragene Brewer-Mast-Ozonsonde in Kombination mit einer normalen Radiosonde werden Ozon-, Druck-, Temperatur-, Feuchte- und Windprofile mit einer vertikalen Auflösung von 70 m gemessen. Der Ballon steigt mit etwa 300 m pro Minute und trägt die Sonde in eine Höhe von über 30 km, bevor er zerplatzt.

Mit diesen beiden Messinstrumenten kann ein direkter Vergleich mit dem im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Ozon-DIAL vorgenommen werden. Zur Unterscheidung der beiden DIAL-Systeme wird das hier entwickelte System im Folgenden WALES UV DIAL genannt.

Das Ozon-DIAL des DWD ist für stratosphärische Messungen ausgelegt. Der Messbereich beginnt in der unteren Stratosphäre. Das Ozonprofil in der unteren Stratosphäre wird jeweils 1 h nach Beginn und 1 h vor Ende jeder Messung aufgezeichnet. Aus dem zeitlichen Mittel beider Messabschnitte und mit einer dynamisch vertikalen Auflösung von 600-1000 m ergibt sich das Ozonprofil in der unteren Stratosphäre. Jedoch weisen die Messungen dort in der Regel nur eine Genauigkeit von $\sim 25\%$ auf. Die Brewer-Mast-Ozonsonde verfügt nach Smit und Kley (1996) in der UTLS über eine Genauigkeit von besser als $\pm 10\%$. Das Hauptaugenmerk der Validierung liegt daher auf dem Vergleich mit der Brewer-Mast-Sonde.

Zusätzlich zum direkten Vergleich können aus den Messdaten der drei Instrumente Tropopausenhöhen ermittelt werden. Dafür werden die drei in der Meteorologie festgelegten Definitionen zur Identifizierung der Tropopausenhöhe verwendet, welche auf den Parametern basieren, die sich mit den zur Verfügung stehenden Methoden bestimmen lassen:

Thermische Tropopause

Die thermische Tropopausenhöhe ist das niedrigste Niveau, auf dem der vertikale Temperaturgradient größer als -2 K km^{-1} ist, falls auch der Mittelwert dieses Gradienten zwischen diesem und allen weiteren Niveaus innerhalb der darüber liegenden 2 km größer als -2 K km^{-1} ist (World Meteorological Organization, 1957).

Ozontropopause

Die Höhe der Ozontropopause ist das niedrigste Niveau, auf dem das Ozonmischungsverhältnis den Wert 80 ppbv^1 ² und der vertikale Gradient (ermittelt über eine Höhendifferenz von $\sim 200 \text{ m}$) dieses Ozonmischungsverhältnisses den Wert 60 ppbv km^{-1} übersteigen, falls das Ozonmischungsverhältnis unmittelbar über der Tropopause größer als 110 ppbv ist (Bethan et al., 1996).

Dynamische Tropopause

Die dynamische Tropopausenhöhe ist das niedrigste Niveau, auf dem der Wert der potentiellen Wirbelstärke einen festgelegten Schwellenwert überschreitet.

Mit der Messung aus dem Sondenaufstieg kann sowohl die thermische als auch die Ozontropopause bestimmt werden. Für die Ozontropopause werden hochaufgelöste Ozonprofile benötigt, um insbesondere das Gradientenkriterium anwenden zu können. Obwohl die vertikale Auflösung des im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Ozon-DIAL vom Boden aus bei $\sim 1 \text{ km}$ liegt, können die damit ermittelten Tropopausenhöhen als gute Näherung verwendet werden.

Aufgrund dynamischer Prozesse in der Troposphäre kann es zu zeitlichen Variationen in der Tropopausenhöhe kommen. In den mittleren Breiten ist die Entwicklung von Hoch- und Tiefdruckgebieten entscheidend für die Tropopausenhöhe. So ist beispielsweise ein Hochdruckgebiet mit einer anomal hohen Tropopause und ein Tiefdruckgebiet mit einer anomal niedrigen Tropopause verbunden. Um die Messdaten besser interpretieren und miteinander vergleichen zu können, wurden dynamische Tropopausenhöhen aus der Datenbank des Europäischen Zentrums für mittelfristige Wettervorhersagen³ verwendet. In der Literatur ist der Schwellenwert der potentiellen Wirbelstärke

¹ $1 \text{ ppbv} = 1 \text{ nmol/mol}$

² parts per billion by volume, 10^{-9}

³ eng.: European Centre for Medium-Range Weather Forecasts, kurz: ECMWF

nicht eindeutig festgelegt und liegt zwischen 1-3,5 PVU⁴ (Shapiro et al., 1987; Hoerling et al., 1991; Hoinka, 1998; Wirth, 2000; Zängl und Hoinka, 2001). Die in dieser Arbeit verwendete 2-PVU-Fläche wird häufig zur Analyse von STE-Prozessen verwendet.

Ein weiteres Hilfsmittel bei der Interpretation der Daten ist der mittlere Wasserdampfgehalt in der freien Troposphäre. Dieser wird aus den Messungen geostationärer Wettersatelliten⁵ der Europäischen Organisation für die Nutzung meteorologischer Satelliten⁶ gewonnen (von NERC Satellite Receiving Station, Dundee University, Scotland, <http://www.sat.dundee.ac.uk>). Der IR-Kanal (5,35-7,15 μm) steht repräsentativ für einen gewichteten Mittelwert des Wasserdampfgehalts zwischen 3 km und 9 km Höhe. Kommt es zu einer Absenkung der Tropopause, so wird dieser im Mittel trockenere Bereich auf dem Satellitenbild dunkler dargestellt (Appenzeller und Davies, 1992).

6.2 Auswertung der Daten

Zur Ermittlung des Ozonprofils aus den DIAL-Daten wurde eine Auswerteroutine entwickelt, welche im Folgenden kurz erläutert wird.

In einem ersten Schritt wird das Hintergrundlicht, welches während der DIAL-Messung vor jedem ausgesendeten Laserimpuls gemessen wird, von den Signalen abgezogen. Im Anschluss daran werden aufeinanderfolgende Signalverläufe jeder DIAL-Wellenlänge über einen angemessenen Zeitraum zwischen 10 und 80 min gemittelt und logarithmiert. Die Ableitung der logarithmierten Signalverläufe nach der Höhe wird mittels Savitzky-Golay-Filter (vgl. Kap. 3) berechnet. Dabei wird vertikal über einen angemessenen Höhenbereich zwischen 750 und 1200 m gemittelt. Die zeitlichen und vertikalen Mittelbereiche wurden für jede Messung so angepasst, dass der statistische Fehler im Bereich der Tropopause bei $\leq 20\%$ liegt. Die Rayleigh-Streuquerschnitte werden aus den in Miles et al. (2001) angegebenen Querschnitten auf die verwendeten DIAL-Wellenlängen extrapoliert. Über die Luftdichte aus den etwa zeitgleichen Messungen des Ozonsondenaufstieges kann mit den Rayleigh-Streuquerschnitten die Rayleigh-Extinktion und die Rayleigh-Rückstreuung berechnet werden. Die aus Malicet et al. (1995) und Daumont et al. (1992) entnommenen Ozon-Absorptionsquerschnitte werden auf die DIAL-Wellenlängen extrapoliert.

- Die nach dem Abstand abgeleiteten Signale,
- die Rayleigh-Extinktion und -Rückstreuung der DIAL-Wellenlängen und
- die Ozon-Absorptionsquerschnitte der DIAL-Wellenlängen

fließen in die DIAL-Gleichung (Gl. 2.11) ein, woraus sich das Profil der Ozonanzahldichte berechnen lässt.

6.3 Messzeiten und -ziele

Die Validierungsmessungen wurden im Zeitraum vom 11.04.2011 bis 30.06.2011 durchgeführt. Die hier zur Validation beispielhaft ausgewählten Messungen (siehe Tab. 6.1) wurden an vier unterschiedlichen Messtagen gesammelt. An all diesen Messtagen standen Sonden- und Lidardaten des DWD-Observatoriums Hohenpeißenberg zur Verfügung.

Ziel der ersten beiden Messungen war ein Vergleich zwischen den drei Instrumenten (vgl. Tab. 6.2). Dabei konnte in der ersten Messung zusätzlich eine zeitlich variierende Tropopausenhöhe beobachtet werden. Aufgrund eines zeitlich besseren Überlapps der Messinstrumente bei der zweiten Messung konnte bei dieser eine bessere Übereinstimmung der Messinstrumente beobachtet werden.

Tabelle 6.1: Zusammenstellung der Messzeiten.

#	Datum	Messzeit WALES UV DIAL (UTC)	Sondenaufstieg (UTC)	Messzeit DIAL HP (UTC)
1	18.04.2011	14:32 - 20:56	04:48	22:38 - 04:39(+1d)
2	20.04.2011	02:41 - 07:27	04:46	21:54 - 04:36(+1d)
3	04.05.2011	20:20(-1d) - 07:10	04:32	22:39 - 04:05(+1d)
4	29.06.2011	19:09(-1d) - 00:46	04:41	22:32 - 04:14(+1d)

Während der dritten Messung am 04.05.2011 wurde versucht, die vorhergesagte Variabilität der Tropopausenhöhe im Zusammenhang mit einem Tiefdruckgebiet zu messen. Am vierten Messtag war geplant, Ozonprofile in Anwesenheit von Saharastaub mittels des Dual-DIAL-Verfahrens zu vermessen. Dabei sollten die beiden Aerosolkorrekturmethode Klettinversion und dual DIAL (siehe Kap. 2.2) miteinander verglichen werden. Eine erhöhte Aerosolbelastung durch Wüstenstaub blieb jedoch aus, sodass lediglich eine weitere Vergleichsmessung vorgenommen werden konnte.

In Tab. 6.3 sind die Wellenlängen mit entsprechenden Ozon-Absorptionsquerschnitten der einzelnen Messungen aufgelistet. Für die Dual-DIAL-Messung (# 4) ist die Konstante C analog zu Gl. 2.22 aus Kap. 2.2 und dem dort eingeführten effektiven differentiellen Absorptionsquerschnitt ($\Delta\sigma'$) aufgelistet.

Tabelle 6.2: Zusammenstellung der synoptischen Situation, Messziele und Ergebnisse der einzelnen Messungen. Z entspricht hier der Höhe der Ozon-Tropopause.

#	synoptische Situation	Messziel	Zusammenfassung Ergebnisse
1	Hochdruckgebiet, wolkenfrei	Validierung	Messung zeitlich nicht überlappend \Rightarrow Diskrepanz zwischen $z_{O_3 \text{ Sonde}}$ und $z_{WALES \text{ UV}}$ von über 1 km, dynamische Tropopausenhöhe
2	Hochdruckgebiet, wolkenfrei	Validierung	Zeitlich überlappende Messung: $z_{O_3 \text{ Sonde}} = z_{WALES \text{ UV}} = 10,4$ km, konstante Tropopausenhöhe
3	Tiefdruckgebiet, bewölkt	Dynamik	Anstieg von $z_{WALES \text{ UV}}$ von 9,2 auf 9,9 km
4	Hochdruckgebiet, wolkenfrei, Verteilung von Wüstenstaubaerosol über Deutschland	Dual DIAL	keine Einlagerung von Wüstenstaubaerosol innerhalb des Messvolumens

Bei den vorgenommenen Messungen ist zu berücksichtigen, dass die bodengebundenen Messungen die Flugzeugmessungen nur bedingt widerspiegeln können. Vom Boden aus bis zur Tropopause

⁴1 PVU = $10^{-6} \text{ Km}^2 \text{ kg}^{-1} \text{ s}^{-1}$

⁵eng.: Meteorological satellite, kurz: Meteosat

⁶eng.: European Organisation for the Exploitation of Meteorological Satellites, kurz: EUMETSAT

Tabelle 6.3: Verwendete Messwellenlängen und entsprechende Ozon-Absorptionsquerschnitte der einzelnen Messungen.

#	Wellenlängen [nm]	O ₃ -Absorptionsquerschnitte [m ²]
1	$\lambda_{on} = 304,08$	$\sigma_{on} = 21,66e-24$
	$\lambda_{off} = 314,77$	$\sigma_{off} = 4,49e-24$
	$\Delta\lambda = 10,69$	$\Delta\sigma = 17,17e-24$
2	$\lambda_{on} = 304,14$	$\sigma_{on} = 21,6e-24$
	$\lambda_{off} = 314,8$	$\sigma_{off} = 4,49e-24$
	$\Delta\lambda = 10,66$	$\Delta\sigma = 17,1e-24$
3	$\lambda_{on} = 304,16$	$\sigma_{on} = 21,18e-24$
	$\lambda_{off} = 314,78$	$\sigma_{off} = 4,4e-24$
	$\Delta\lambda = 10,62$	$\Delta\sigma = 16,78e-24$
4	$\lambda_{on} = 303,86$	$\sigma_{on} = 22,08e-24$
	$\lambda_{mid} = 309,04$	$\sigma_{mid} = 11,33e-24$
	$\lambda_{off} = 314,85$	$\sigma_{off} = 4,58e-24$
	Konstante $C = 0,89$	$\Delta\sigma' = 4,75e-24$

müssen die Messstrahlen einen weiten Bereich von ~ 10 km zurücklegen und zudem durch die dichte Atmosphäre der unteren Troposphäre propagieren. Dadurch erfahren die optischen Signale eine größere Extinktion als vom Flugzeug aus. Daraus lassen sich folgende Unterschiede bzw. Nachteile bodengestützter Messungen im Vergleich zu den Flugzeugmessungen ableiten:

- schwächere Empfangssignale \Rightarrow kleineres SNR \Rightarrow größerer statistischer Fehler
- geringere Messreichweite
- größere zeitliche und vertikale Auflösung, um gleiches SNR zu erhalten.

Aufgrund der schwächeren Signale sind die bodengebundenen Messungen mit einer erhöhten Empfindlichkeit gegenüber der solaren Hintergrundstrahlung verbunden. Daher waren tagsüber keine Ozonmessungen im Tropopausenbereich möglich.

Der UV-Transmitter wurde bei jeder DIAL-Messung mit maximaler Leistung betrieben. Vor- und im Anschluss an jede Lidarmessung wurde die Leistung mittels Leistungsmessgerät überprüft. Im Mittel standen 0,95 W mittlere Leistung im UV zur Verfügung.

6.3.1 Messung # 1 (18.04.2011)

Am 18.04.2011 lag ein großräumiges Hochdruckgebiet über Zentraleuropa, weshalb an diesem Tag nur mit wenig Bewölkung zu rechnen war. Da zudem an diesem Morgen ein Ozonsondenaufstieg vorgenommen wurde, war dieser Tag für eine erste Vergleichsmessung geeignet.

In Abb. 6.1 sind die Rückstreusignale nach Abzug des Hintergrundlichts dargestellt. Anhand der Rückstreusignale lassen sich die während der Lidarmessung am Instrument vorgenommenen Einstellungen erkennen. Bis etwa 15:50 Uhr UTC wurde noch keine Laserstrahlung in die Atmosphäre ausgesendet, da der Laser noch vorgewärmt wurde. Jedoch wurde zu diesem Zeitpunkt bereits der PMT mit einer Anoden-zu-Kathoden-Spannung von 499 V betrieben und die Signale von der Datenerfassung aufgezeichnet. Gegen etwa 16:00 Uhr UTC wurden die DIAL-Strahlen in die Atmosphäre emittiert und der Überlapp mit dem Teleskop justiert. Für ein hohes SNR ist eine hohe Empfindlichkeit des Detektors notwendig, welche mit der Detektorspannung eingestellt wird. Dabei muss jedoch darauf geachtet werden, dass der Detektor durch den solaren Hintergrund nicht übersteuert wird. Die Detektorspannung kann daher mit abnehmendem Sonnenstand erhöht werden.

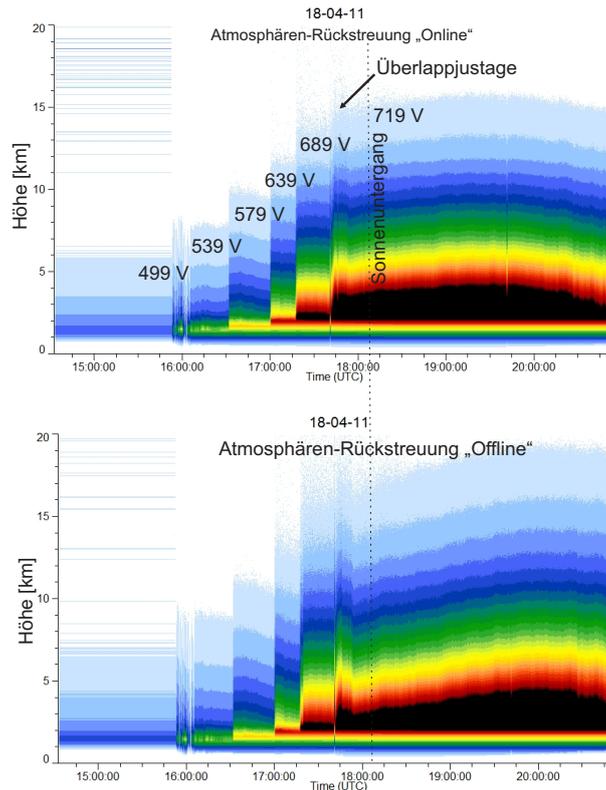


Abbildung 6.1: Rückstreusignale der DIAL-Strahlungen. Farbskala ist in willkürlichen Einheiten. Die eingestellte Detektorspannung ist in der Grafik enthalten.

Wie in Abb. 5.9 und 5.10 zu erkennen ist, ist der Laser auf einer Stahlplatte montiert. Durch Änderungen der Umgebungstemperatur, die sich im Laufe der Tageszeit ergeben, können thermisch bedingte Verformungen der Platte auftreten, weshalb sich der Überlapp zwischen Laserstrahl und Teleskopblickwinkel dejustiert. Daher wurde gegen 17:45 Uhr UTC der Überlapp neu justiert. Ab etwa 19:30 Uhr UTC nehmen die beiden Rückstreusignale wieder ab, was ebenfalls mit der temperaturabhängigen Überlappjustage zusammenhängt.

Ein durch die Extinktion von Ozon bedingter Unterschied in den zurückgestreuten Leistungen zwischen „Online“- und „Offline“-Strahlung ist überhalb einer Höhe von etwa 15 km gut zu erkennen.

Aus diesen Signalen lässt sich das Ozonmischungsverhältnis, wie in Abb. 6.2 dargestellt, bestimmen. Dazu wurden die Signale zeitlich über 50 min und 38 s und vertikal über 900 m gemittelt. Es ist zu erkennen, wie das Rauschen der Ozonkonzentration nach dem Sonnenuntergang abnimmt. Ab etwa 18:30 Uhr UTC ist das Hintergrundlicht gegenüber dem optischen Messsignal vernachlässigbar. Der Sonnenuntergang fand an diesem Tag um 18:09 Uhr UTC statt. Die Farbskala ist so gewählt, dass der Übergang von blau zu grün 80 nmol/mol entspricht, der das notwendige Kriterium für die Ozontropopause darstellt. Der Verlauf der Ozontropopause ist durch die schwarze Linie gekennzeichnet.

Die direkten Vergleiche werden in Anzahldichte in $1/\text{cm}^3$ aufgetragen, da die Anzahldichte im Gegensatz zum Mischungsverhältnis unabhängig vom Luftdruck ist. Dadurch reduziert sich die Anzahl der Größenordnungen, über die die Ozonprofile dargestellt werden, auf zwei. Dadurch kann sowohl die Troposphäre als auch die Stratosphäre gut aufgelöst dargestellt werden. In Abb. 6.3 befindet sich der Vergleich der drei Messinstrumente in Ozonanzahldichte aufgetragen. Dafür wurde das Ozonprofil aus Abb. 6.2 für den Mittelwert von 20:06 Uhr UTC ausgewählt, da hier keine solare Hintergrundstrahlung die Messung beeinflusst. Die Abweichung der beiden Instrumente vom Hohenpeißenberg zum WALES UV DIAL ist in Abb. 6.4 dargestellt.

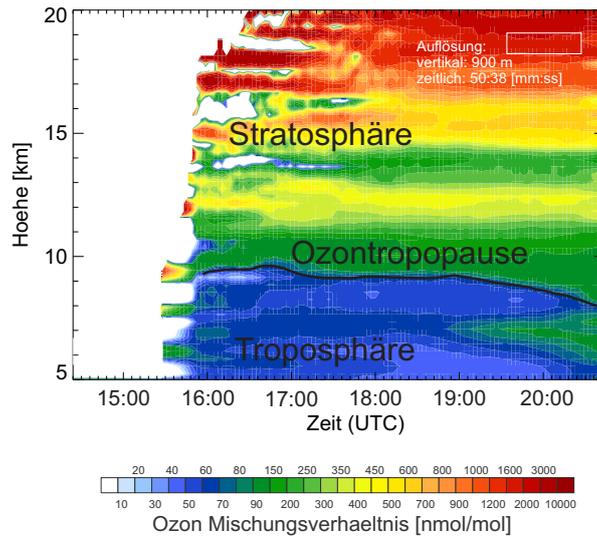


Abbildung 6.2: Zweidimensionales Ozonmischungsverhältnis aufgetragen in nmol/mol. Die Höhe der Ozontropopause ist in schwarz dargestellt. Das weiße Rechteck entspricht der für die Berechnung der Ozonprofile verwendeten Auflösung.

Aus den beiden Abbildungen (6.3 und 6.4) geht Folgendes hervor. In der Stratosphäre ab einer Höhe von 14 km aufwärts stimmen die Ergebnisse des WALES UV DIAL im Rahmen der Messgenauigkeit mit den beiden DWD-Instrumenten überein. Zwischen 9 km und 12 km Höhe misst das WALES UV DIAL etwa 100 % mehr als die Ozonsonde. Dies ist auch für frühere Zeiten als 20:06 Uhr (vgl. Abb. 6.3) der Fall. Die in Abb. 6.2 erhöhte Ozonkonzentration ab $\sim 20:00$ Uhr in 7 km Höhe hat demnach keinen Einfluss auf die Abweichung zwischen 9 km und 12 km. Aus den Profilen der Ozonsonde und dem WALES UV DIAL können mit Hilfe der oben eingeführten Definitionen die Höhen der Ozontropopause berechnet werden. Zusätzlich kann über das Temperaturprofil der Ozonsonde auf die thermische Tropopausehöhe geschlossen werden. Die Tropopausehöhe des Son-

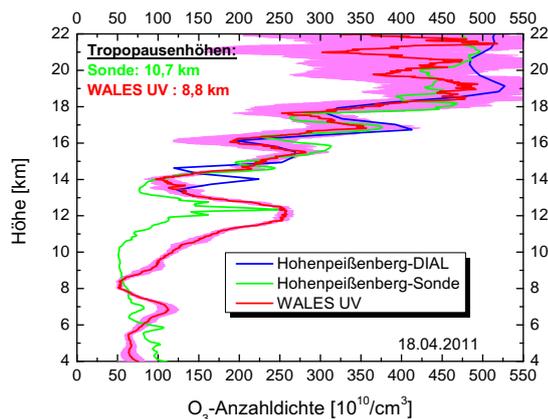


Abbildung 6.3: Vergleich der gemessenen Anzahl-dichte der drei Messinstrumente. Der statistische Fehler der WALES-UV-DIAL-Messung ist in lila aufgetragen.

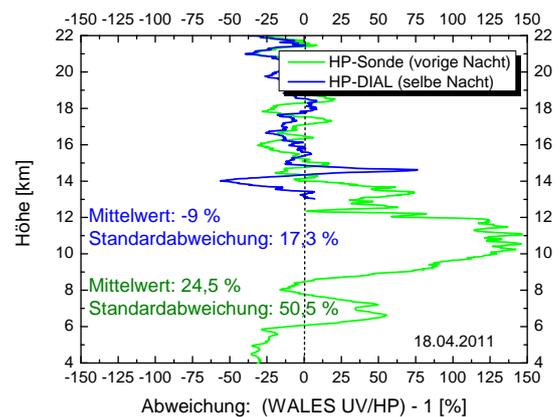


Abbildung 6.4: Abweichung des WALES UV DIAL zu den beiden Messinstrumenten des Hohenpeißenbergs.

denaufstiegs bestimmt sich zu $z_{\text{thermisch}} = 11,6$ km und $z_{\text{Ozon}} = 10,7$ km. Die Tropopausehöhe während der WALES-UV-DIAL-Messung sinkt von 9,5 km (17:00 Uhr UTC) auf 8 km (19:50 Uhr UTC) ab (siehe Abb. 6.2). Im Vergleich zur Messung der Tropopausehöhe mit der Ozonsonde

ergibt dies einen Höhenunterschied von 1,2-2,7 km.

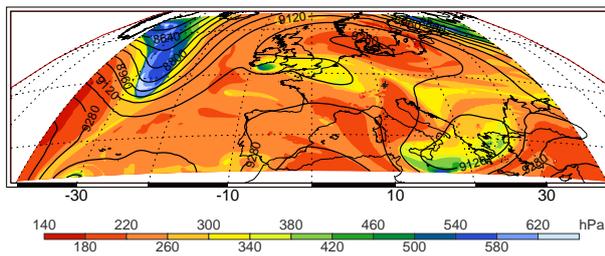


Abbildung 6.5: Tropopausenhöhe, bestimmt mit 2-PVU-Schwellenwert für 06:00 Uhr UTC, entspricht 12800 m (200 hPa).

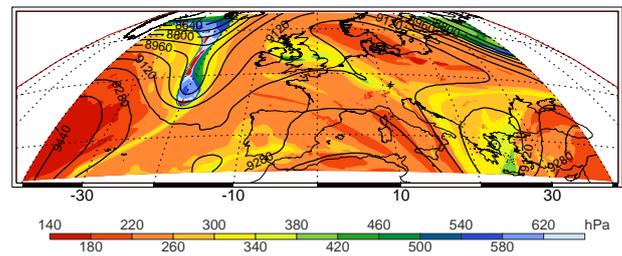


Abbildung 6.6: Tropopausenhöhe, bestimmt mit 2-PVU-Schwellenwert für 18:00 Uhr UTC, entspricht 9100 m (320 hPa).

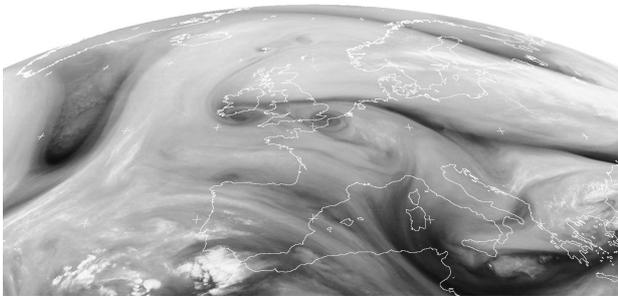


Abbildung 6.7: Satellitenbild, IR-Kanal (5,35-7,15 µm), 18.04.2011, 06:00 Uhr UTC (von NERC Satellite Receiving Station, Dundee University, Scotland, <http://www.sat.dundee.ac.uk>).

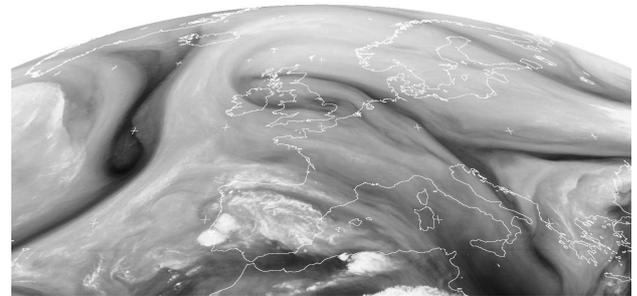


Abbildung 6.8: Satellitenbild, IR-Kanal (5,35-7,15 µm), 18.04.2011, 18:00 Uhr UTC (von NERC Satellite Receiving Station, Dundee University, Scotland, <http://www.sat.dundee.ac.uk>).

Da die Sonde morgens aufgestiegen war und die WALES-UV-DIAL-Messung abends durchgeführt wurde, ist eine zeitlich Änderung der Tropopausenhöhe nicht auszuschließen. Abb. 6.5 und 6.6 zeigen die Tropopausenhöhe sowie das Geopotential in 300 hPa der ECMWF-Analysefelder um 06:00 und 18:00 Uhr UTC. Über Europa befindet sich das großräumige Hochdruckgebiet mit Tropopausehöhen von ~ 200 hPa. Über dem Atlantik liegt ein Höhentrog mit niedrigen Tropopausehöhen (~ 550 hPa). Weiterhin ist ein kleinräumiges Höhentief über Großbritannien erkennbar, das etwas niedrigere Tropopausehöhen (~ 300 hPa) aufweist. Diese Struktur verändert sich während der 12 Stunden zwischen Abb. 6.5 und 6.6, so, dass die Tropopause an den Messstandorten von 200 hPa (12,8 km) um 06:00 Uhr UTC auf etwa 320 hPa (9,1 km) um 18:00 Uhr UTC absinkt. Die zeitlich variierende Tropopausehöhe ist ein wahrscheinlicher Grund für die Abweichung zwischen der Sonde und dem WALES UV DIAL. Diese Annahme wird unterstützt durch die METEOSAT-Satellitenbilder für dieselben Uhrzeiten. Der von Nordosten hereinziehende dunklere Bereich, der auf eine niedrigere Tropopause hindeutet, befindet sich um 18:00 Uhr UTC über dem Münchner Raum.

Diese Messung zeigt, dass es mit dem WALES UV DIAL möglich ist, eine zeitlich veränderliche Tropopausehöhe zu beobachten. Diese Tatsache ist insbesondere für die Untersuchung von Austauschprozessen durch die Tropopause wichtig, da es sich dabei in der Regel um dynamische Prozesse handelt.

6.3.2 Messung # 2 (20.04.2011)

Das sich während Messung # 1 über Zentraleuropa befindliche Hochdruckgebiet sorgte auch am 20.04.2011 noch für eine wolkenfreie Atmosphäre über beiden Messstandorten. Im Gegensatz zur Messung # 1 gelang in diesem Fall eine gleichzeitige Messung mit allen Instrumenten.

In Abb. 6.9 ist das mit dem WALES UV DIAL ermittelte Ozonmischungsverhältnis dargestellt. Hierbei wurde über einen Zeitraum von 10 min und 45 s und über einen vertikalen Höhenbereich von 750 m gemittelt. Im Vergleich zur vorherigen Messung # 1 wurde hier der Mittelungszeitraum und Mittelungshöhenbereich verkleinert, um die gute Übereinstimmung der drei Instrumente im Bereich der UTLS selbst bei kleiner Auflösung der WALES-UV-DIAL-Messung aufzuzeigen. Durch die solare Hintergrundstrahlung erhöht sich das SNR nach Sonnenaufgang, was an der Zunahme des Rauschens zu erkennen ist. Die weißen Flecken in der oberen rechten Ecke aus Abb. 6.9 rühren vom starken Rauschen her. Das Rauschen könnte durch ein dynamisches Mittelungsverfahren, bei dem der Mittelungsbereich mit zunehmendem Abstand wächst, reduziert werden. Jedoch liegt, mit dem hier verwendeten statischen Mittelungsverfahren, die Genauigkeit der WALES-UV-DIAL-Messung im Bereich der UTLS bei $\sim 20\%$ und ist damit für die Validierung ausreichend.

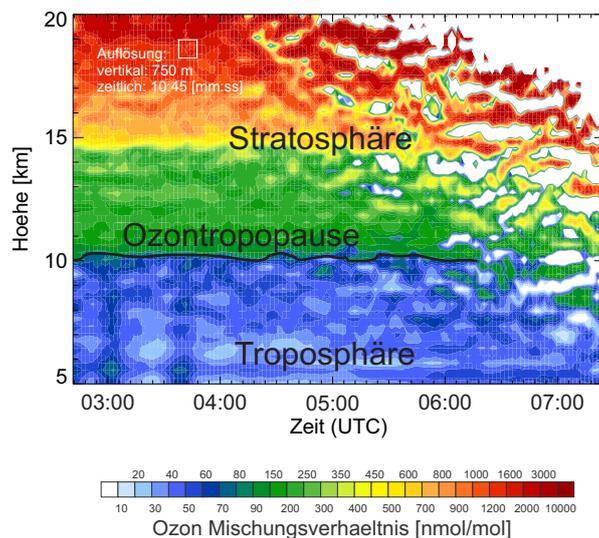


Abbildung 6.9: Zweidimensionales Ozonmischungsverhältnis aufgetragen in nmol/mol. Die Höhe der Ozontropopause ist in schwarz dargestellt. Das weiße Rechteck entspricht der für die Berechnung der Ozonprofile verwendeten Auflösung.

In Abb. 6.10 ist die gemessene Ozonzahldichte der drei Instrumente aufgetragen. Dafür wurde das Ozonprofil aus Abb. 6.9 für den Mittelwert von 03:35 Uhr UTC verwendet. Im Rahmen der Messgenauigkeit stimmt das mit dem WALES UV DIAL gemessene Profil mit dem Profil der Ozonsonde und dem Profil des Hohenpeißenberger DIAL (bis auf die Abweichung in 17 km Höhe) überein. In Abb. 6.11 ist die Abweichung der beiden Hohenpeißenberger Messinstrumente zu dem WALES UV DIAL aufgetragen. Im Mittel beträgt die Abweichung zum Hohenpeißenberger DIAL 8,1 %, mit einer Standardabweichung von 26,5 %. Zur Ozonsonde ist die Abweichung im Mittel -0,7 %, mit einer Standardabweichung von 18,9 %. Zusätzlich ist die über einen Bereich von 4500 m gemittelte Abweichung zur Sonde aufgetragen. Diese Kurve steht repräsentativ für die höhenabhängige systematische Abweichung zwischen der Ozonsonde und dem WALES UV DIAL. Die systematische Abweichung ist für alle Höhen kleiner 10 %.

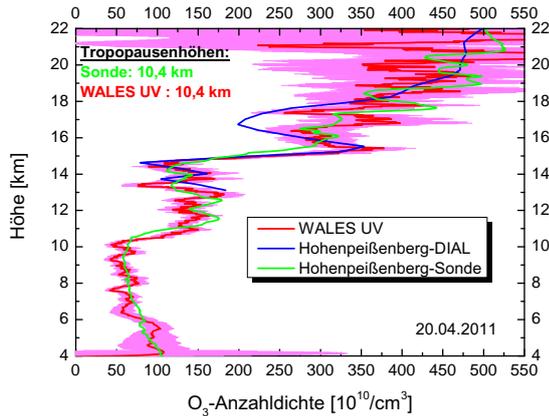


Abbildung 6.10: Vergleich der gemessenen Anzahl-dichte der drei Messinstrumente. In lila ist der statistische Fehler der WALES-UV-DIAL-Messung aufgetragen.

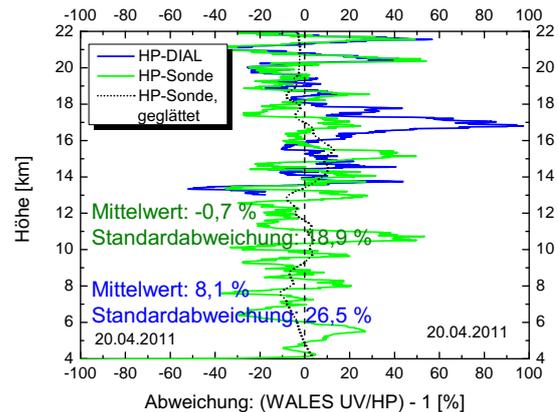


Abbildung 6.11: Abweichung des WALES UV DIAL zu den beiden Messinstrumenten des Hohenpeißenbergs.

Die von der Ozonsonde gemessenen Strukturen werden auch durch das WALES UV DIAL wiedergegeben. Den Ergebnissen des Sondenaufstiegs zufolge liegt die Höhe der thermischen Tropopause bei 10,8 km und die Höhe der Ozontropopause bei 10,4 km. Dem WALES UV DIAL zufolge liegt die Ozontropopause ebenfalls bei 10,4 km Höhe. Somit gibt das neue DIAL nicht nur die Strukturen des Ozonprofils wieder, sondern eignet sich auch zur Bestimmung der Tropopausenhöhe. In der ersten Messung lagen die Messzeiten der Sonde und des WALES UV DIAL zu weit auseinander, was bei der zweiten Messung vermieden wurde. Daher ist auch die Übereinstimmung zwischen dem Ozonprofil der Sonde und dem Ozonprofil des WALES UV DIAL besser.

6.3.3 Messung # 3 (04.05.2011)

Im Anschluss an die beiden vorgestellten Validierungsmessungen wurde in dieser Messung der dynamische Verlauf einer sich verändernden Tropopausenhöhe aufgezeichnet.

Dazu wurde die synoptische Situation eines in der Nacht vom 03.05.2011 auf den 04.05.2011 über den Münchner Raum hinwegziehenden Tiefdruckgebietes ausgenutzt. Was diese Messung erschwerte, war die Bewölkung, die innerhalb des Tiefdruckgebietes aufgetreten ist.

Einerseits ist die optische Dicke der Wolken größtenteils so hoch, dass aufgrund ihrer Extinktion kein Ozon oberhalb der Wolken berechnet werden konnte. Andererseits führen Wolken zu starker Rückstreuung, sodass die Empfindlichkeit des Photodetektors ständig überwacht und nachgeregelt werden musste, um den Detektor nicht zu überlasten. Für einige Zeitbereiche ist es jedoch möglich gewesen, Wolkenlücken auszunutzen bzw., bei nicht zu hoher optischer Dicke, durch die Wolken hindurch zu messen.

In Abb. 6.12 ist das Ozonmischungsverhältnis für eine Mittelungszeit von 8 min und 10 s und eine vertikale Mittelung von 1200 m aufgetragen. Dargestellt ist der Bereich zwischen 8 km und 11 km, in welchem sich die Tropopause befindet. Die Farbskala ist so gewählt, dass der Übergang zwischen blau und grün bei 80 nmol/mol liegt, der damit das notwendige Kriterium für die Ozontropopause darstellt. Der etwaige Verlauf der Tropopausenhöhe ist mit der schwarz durchgezogenen Linie dargestellt. Für die Uhrzeiten der eingezeichneten Pfeile sind in Abb. 6.13 die entsprechenden

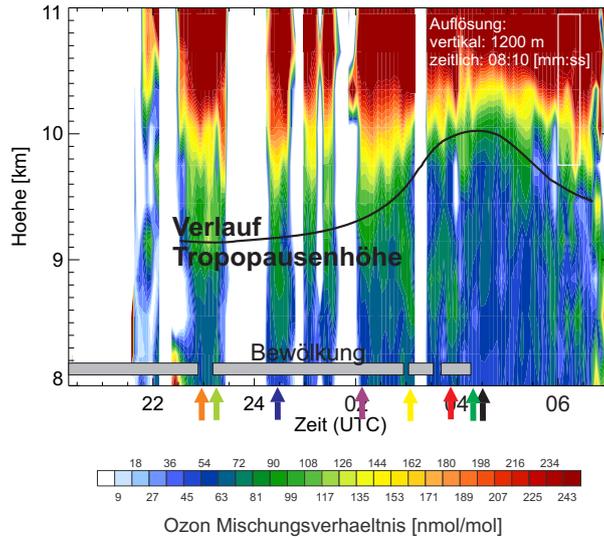


Abbildung 6.12: Zweidimensionales Ozonmischungsverhältnis aufgetragen in nmol/mol. Die Höhe der Ozontropopause ist in schwarz dargestellt. Das weiße Rechteck entspricht der für die Berechnung der Ozonprofile verwendeten Auflösung. Die eingezeichneten grauen Balken geben die Zeiträume an, in denen Wolken die Messung beeinträchtigten.

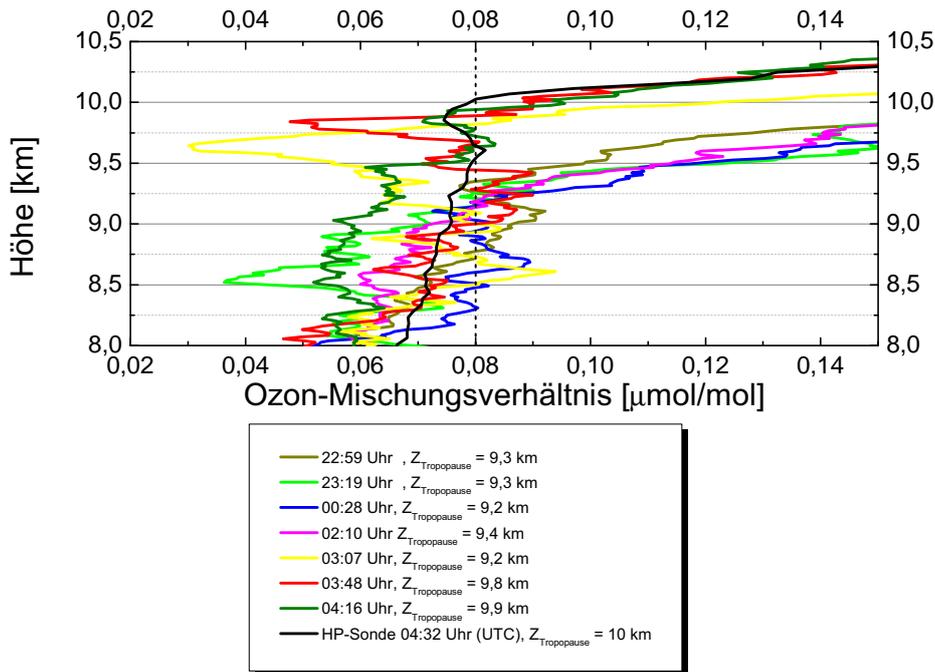


Abbildung 6.13: Graphische Darstellung der Ozonprofile verschiedener Zeiten im Mischungsverhältnis.

Profile aufgetragen, aus welchen sich die Tropopausenhöhen berechnen lassen. Bis etwa 02:00 Uhr UTC lag die Tropopause in einer Höhe zwischen 9,2-9,4 km. Danach stieg die Tropopause um etwa 500 m an, sodass sie bei etwa 04:00 Uhr UTC bei 9,9 km Höhe lag. Zusätzlich ist das Profil der Ozonsonde in schwarz dargestellt. Die Ozontropopausenhöhe der Ozonsonde stimmt bis auf 100 m genau mit dem zeitlich nächstliegenden Profil (dunkelgrün) überein.

Am 04.05.2011 zeigen die Analysefelder des ECMWF in Abb. 6.14 und 6.15 Tiefdruckgebiete über dem Atlantik sowie über der Ostsee, die tiefe Tropopausenhöhen aufweisen. Zwischen beiden

Tiefdruckgebieten und nördlich des Höhenrückens erstrecken sich filamentartige Strukturen mit leicht niedrigerer Tropopause, die in der Nacht und am Vormittag über den Messstandort ziehen. Daraus ergibt sich die Höhe der dynamischen Tropopause um 00:00 Uhr zu ~ 280 hPa, was 10,2 km entspricht, und die Höhe der dynamischen Tropopause um 06:00 Uhr UTC zu ~ 240 hPa, was 11,4 km entspricht. Obwohl die dynamische Tropopause für beide Zeitpunkte leicht höher liegt, wird die Anhebung zu den Morgenstunden deutlich wiedergegeben.

Auf dem Satellitenbild 6.16 von 00:00 Uhr UTC sieht man ein dunkleres Filament, welches sich von Norden nach Südosten erstreckt. Um 06:00 Uhr UTC (vgl. Abb. 6.17) ist eine eher niedrigere Tropopause in breiten Filament zu erkennen. Es lassen sich weitere, noch feinere Strukturen erkennen, die für die kurzweilige Anhebung der Tropopause sorgten.

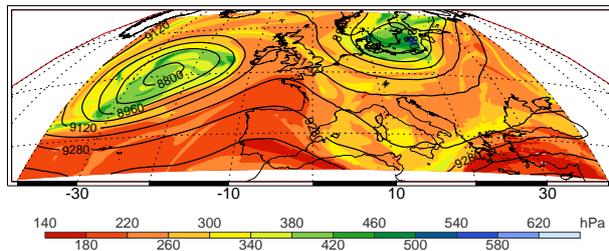


Abbildung 6.14: Tropopausenhöhe um 00:00 Uhr UTC, bestimmt mit 2-PVU-Schwellwert. Dynamische Tropopause über Oberpfaffenhofen liegt bei ~ 280 hPa (10,2 km).

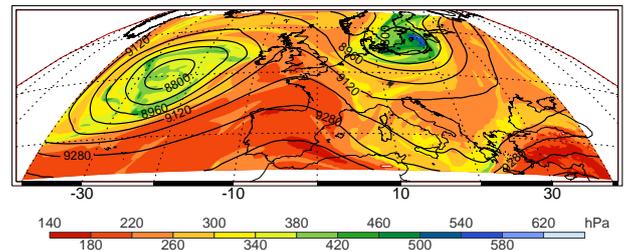


Abbildung 6.15: Tropopausenhöhe um 06:00 Uhr UTC, bestimmt mit 2-PVU-Schwellwert. Dynamische Tropopause über Oberpfaffenhofen liegt bei ~ 240 hPa (11,4 km).

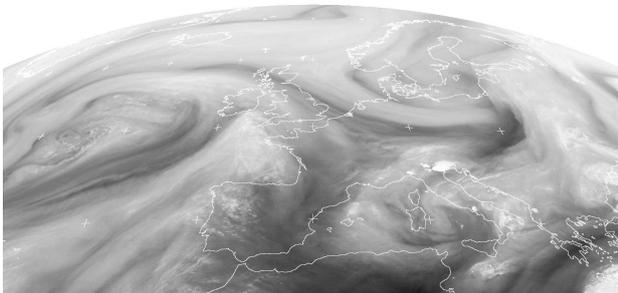


Abbildung 6.16: Satellitenbild, IR-Kanal (5,35-7,15 μm), 20.04.2011, 00:00 Uhr UTC (von NERC Satellite Receiving Station, Dundee University, Scotland, <http://www.sat.dundee.ac.uk>).

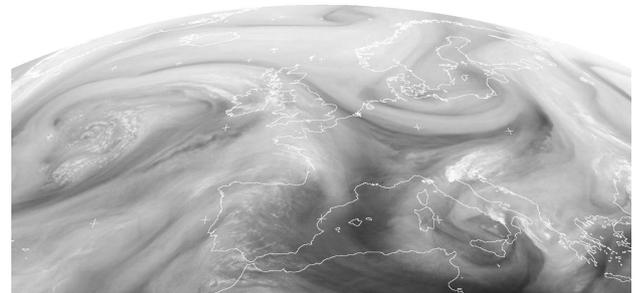


Abbildung 6.17: Satellitenbild, IR-Kanal (5,35-7,15 μm), 20.04.2011, 06:00 Uhr UTC (von NERC Satellite Receiving Station, Dundee University, Scotland, <http://www.sat.dundee.ac.uk>).

Anhand dieser Messung konnte gezeigt werden, dass das im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Ozon-DIAL in der Lage ist, dynamische Prozesse im Bereich der Tropopause aufzuzeichnen. Die durch tiefliegende Wolken bedingten Schwierigkeiten würden im Flugzeugeinsatz nicht auftreten, da überhalb der Wolken geflogen werden könnte.

6.3.4 Messung # 4 (29.06.2011)

Nachdem die vorangegangenen Messungen der Validation des Systems dienten, sollte im weiteren Verlauf der Frage nachgegangen werden, welche Messmethode in einer stark aerosolbelasteten Atmosphäre mit dem betreffenden Ozonlidar zu einem geringeren aerosolbedingten systematischen Messfehler führt. Dazu steht die in Kap. 2.2 eingeführte Drei-Wellenlängen Methode nach

Wang et al. (1997) und das in DIAL-Systemen standardmäßig verwendete Aerosolkorrekturverfahren durch Inversion nach Klett (1985) zur Verfügung. Ziel war es, die Vor- und Nachteile beider Methoden speziell für dieses Messsystem herauszuarbeiten, um während einer Feldmesskampagne, im Falle eines aerosolbelasteten Messvolumens, die geeignetste Methode zu verwenden. Zunächst wurden beide Methoden im Falle von Zirruswolken untersucht. Jedoch konnten die durch Zirren bedingten systematischen Ozonmessfehler mit keiner der beiden Methoden behoben werden. Die mögliche Ursache dafür wird in der Fehleranalyse am Ende von Kap. 7.1.6 diskutiert. Um dennoch einen Vergleich der beiden Methoden vornehmen zu können, sollte im Folgenden Wüstenstaub aus der Sahara untersucht werden.

Dem Wüstenstaub-Vorhersagemodell DREAM⁷ (Nickovic et al., 2001) zufolge sollte die Atmosphäre über Deutschland am 29.06.2011 mit Aerosol aus der Sahara belastet sein. Wie in Abb. 6.18 zu sehen ist, liegt Oberpfaffenhofen um 00:00 Uhr UTC am Rande der farblich gekennzeichneten Aerosolbelastung. Trotz geringer Aussicht auf ein durch Wüstenstaubaerosol belastetes Messvolumen, wurde eine Lidarmessung vorgenommen. Bei der Auswertung konnte jedoch keine Einlagerung von

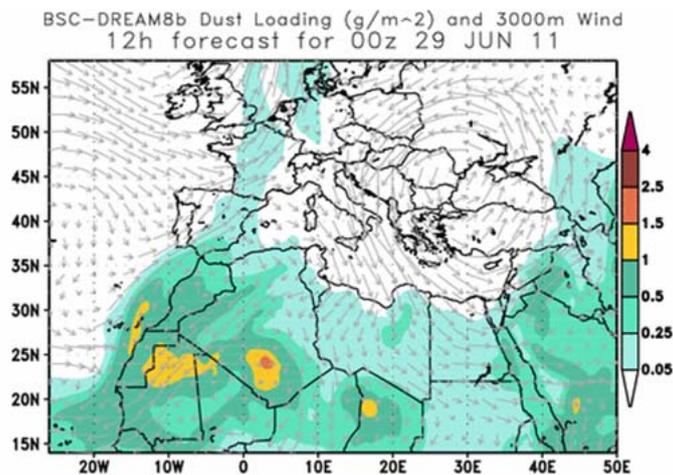


Abbildung 6.18: Verteilung des Wüstenstaubs in 3000 m Höhe über Europa (Quelle: <http://www.bsc.es/projects/earthscience/DREAM>).

Wüstenstaubaerosol beobachtet werden. Gleichzeitig zur Messung mit dem Ozonlidar standen auch Daten des POLIS-Systems zur Verfügung. POLIS⁸ ist ein Depolarisationslidar zur Vermessung von Aerosol des MIM⁹, mit dem ebenfalls in dieser Nacht in Oberpfaffenhofen Messungen durchgeführt wurden. In dieser Nacht wurde von POLIS bei 355 nm Wellenlänge ein Extinktionskoeffizient von weniger als 0,01 /km gemessen (V. Freudenthaler, LMU/Meteorologisches Institut/Lehrstuhl Experimentelle Meteorologie, persönliche Mitteilung). Dieser Wert entspricht dem natürlichen Hintergrundaerosol, welcher die Ozon-DIAL-Messung nur unwesentlich beeinflusst. Eine Wettersituation mit einer durch Saharastaub belasteten Atmosphäre trat im Zeitraum, der für die Validierungsmessungen zur Verfügung stand, nicht mehr auf.

Obwohl in der WALES-UV-Messung in dieser Nacht kein aerosolbedingter systematischer Fehler auftrat, belegt diese Messung experimentell, dass der im Rahmen dieser Arbeit entwickelte UV-Transmitter in der Lage ist, im Drei-Wellenlängen-Betrieb zu arbeiten. Somit kann das Dual-DIAL-Verfahren mit dem entwickelten Ozon-Lidar prinzipiell angewendet werden. Mit einer Zeitdifferenz von 4 h zur Ozonsonde stellt diese Messung darüberhinaus einen weiteren Vergleich mit den Instrumenten des DWD-Observatoriums Hohenpeißenberg dar. Aus den genannten Gründen

⁷Dust REgional Atmospheric Modeling

⁸Portable Lidar System

⁹Meteorologisches Institut an der Universität München

wird die Messung in dieser Arbeit vorgestellt.

In Abb. 6.19 ist das mit dem Standard-DIAL-Verfahren aus der „Online“- und der „Offline“-Strahlung berechnete Ozonmischungsverhältnis für eine zeitliche Mittelung von 85 min und eine vertikale Mittelung von 1000 m dargestellt. Es lässt sich ein zeitlich relativ konstantes Ozonprofil erkennen.

Für den Zeitpunkt 23:00 Uhr UTC sind die Ozonprofile in Anzahldichte für das Standard-DIAL und das Dual-DIAL-Verfahren in Abb. 6.20 aufgetragen.

Im Rahmen der Messgenauigkeit stimmen die Ergebnisse beider Methoden, bis auf die Ausreißer in 6, 8 und 10 km Höhe, in denen mit dem Dual-DIAL-Verfahren eine höhere Ozondichte als mit dem Standard-DIAL gemessen wurde, überein. Zum Vergleich sind die Ozonprofile der beiden Messinstrumente des Hohenpeißenbergs dargestellt.

In Abb. 6.21 ist die Abweichung der beiden Verfahren zum Ergebnis der Ozonsonde dargestellt. Die Abweichung des Standard-DIAL-Verfahrens zur Sonde beträgt im Mittel -7,8 %, mit einer Standardabweichung von 12,6 %. Die Abweichung des Profils, errechnet mit dem Dual-DIAL-Verfahren, liegt im Mittel bei 9,1 %, mit einer Standardabweichung von 28,8 %. Die beiden ermittelten Standardabweichungen liegen analog zu Messung # 2 in der Größenordnung des statistischen Fehlers der Lidarmessung. Für die deutlich unterschiedlichen mittleren Abweichungen, welche der systematischen Messabweichung zwischen den Instrumenten entspricht, konnte keine Ursache ermittelt werden.

Zusätzlich ist hier die Abweichung zur Sonde über einen gemittelten Bereich von 4,5 km sowohl für das Standard-Verfahren als auch für das Dual-DIAL-Verfahren aufgetragen. Die geglättete Abweichung entspricht der höhenabhängigen systematischen Abweichung. Diese Abweichung bewegt sich bei der DIAL-Methode im Bereich zwischen ± 10 % und bei der Dual-DIAL-Methode im Bereich zwischen -10 und $+20$ %. Eine Ursache dafür, dass mit dem Standard-DIAL-Verfahren systematisch eine ~ 10 % geringere Ozondichte gemessen wurde, konnte jedoch nicht geklärt werden. Eine systematische Abweichung ist der Theorie nach nicht zu erwarten.

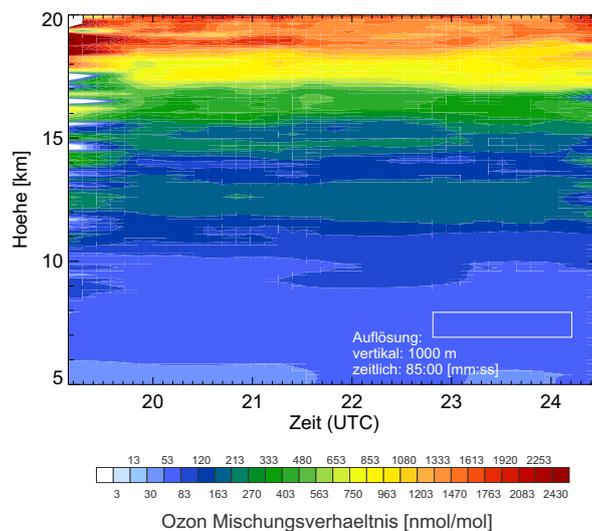


Abbildung 6.19: Zweidimensionales Ozonmischungsverhältnis aufgetragen in nmol/mol. Das weiße Rechteck entspricht der für die Berechnung der Ozonprofile verwendeten Auflösung.

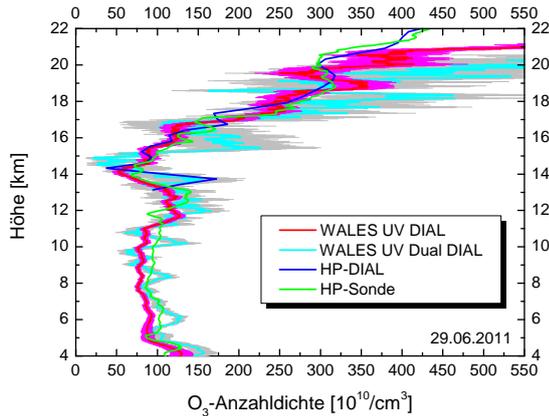


Abbildung 6.20: Vergleich der gemessenen Anzahl-dichten mit HP-DIAL, HP-Sonde, WALES UV DIAL und WALES UV Dual DIAL. Die Messgenauigkeit der WALES-UV-DIAL- und der WALES-UV-Dual-DIAL-Messung ist in magenta und grau aufgetragen.

Anhand dieser Messung ist jedoch bewiesen, dass mit dem entwickelten UV-Transmitter das Dual-DIAL-Verfahren prinzipiell angewendet werden kann. Wie gut dies einen aerosolbedingten systematischen Fehler im Vergleich zum Klett-Verfahren unterdrückt, konnte jedoch aufgrund der zu geringen Konzentration von Aerosolen nicht ermittelt werden.

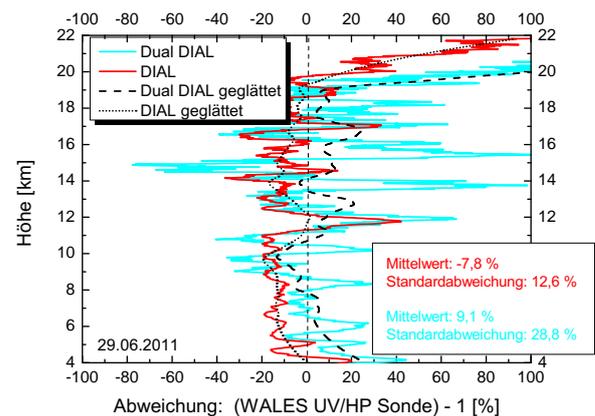


Abbildung 6.21: Abweichung des WALES-UV-DIAL- und des WALES-UV-Dual-DIAL-Ozonprofils zu dem Profil der Ozonsonde.

In diesem Kapitel wurden die ersten Messungen des im Rahmen dieser Doktorarbeit entwickelten Ozon-DIAL vorgestellt. Dabei wurde das System mittels der beiden Ozonprofilmessinstrumente des meteorologischen Observatoriums Hohenpeißenberg, trotz der Nachteile einer bodengebundenen Messung, validiert. Unter optimalen Bedingungen, also wolkenfreiem Himmel und zeitlich überlappenden Messungen (vgl. Messung # 2), konnte mit einer vertikalen Mittelung von 750 m und einer zeitlichen Mittelung von 10 min und 45 s eine statistische Abweichung von 20 % und eine systematische Abweichung von -0,7 % zur Ozonsonde erreicht werden (siehe Abb. 6.10). Damit liegt die Genauigkeit des im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Ozon-DIAL-Systems im Bereich der Genauigkeit bestehender bodengebundener Ozon-DIAL-Systeme wie beispielsweise des Hohenpeißenberger DIAL, welches im 15 km Höhe etwa über eine Genauigkeit von 25 % verfügt. Somit erfüllt das Lidar die in Kap. 3 Tab. 3.1 gestellten Grenzanforderungen für die Vermessung von Ozon im Tropopausenbereich in Bezug auf Genauigkeit und Präzision sogar vom Boden aus. Neben der hohen Genauigkeit und der Reichweite von bis über 20 km Höhe vom Boden aus wurde zusätzlich gezeigt, dass das System in der Lage ist, dynamische Prozesse im Bereich der Tropopause zu vermessen.

Des Weiteren konnte gezeigt werden, dass der in dieser Arbeit entwickelte Lasertransmitter technisch problemlos in der Lage ist, im Drei-Wellenlängen-Betrieb zu arbeiten. Jedoch konnte das Dual-DIAL-Verfahren nicht unter für diese Messung günstigen Bedingungen eingesetzt werden. Mit günstigen Bedingungen ist hier die Anwesenheit eines Aerosoltyps innerhalb des Messvolumens gemeint, welcher über einen wellenlängenunabhängigen Angström-Exponenten verfügt. Erklärungen für diese Hypothese finden sich am Ende von Kap. 7.1.6.

Kapitel 7

Fehlerdiskussion

Wie jeder Messvorgang sind auch Lidarmessungen nicht frei von Fehlern. Im Allgemeinen wird zwischen systematischen und statistischen Fehlern unterschieden. Während systematische Fehler durch geeignete Annahmen minimiert werden, lassen sich statistische Fehler nur durch die Mittelung über möglichst viele unabhängige Messungen reduzieren. In diesem Kapitel werden die Messfehler aufgezeigt und ihr Einfluss auf das Messergebnis abgeschätzt.

7.1 Systematische Fehler

Die Quellen systematischer Fehler sind entweder intrinsischer oder extrinsischer Natur. Die intrinsischen Fehlerquellen sind durch das Messsystem bedingt und lauten:

- Nichtlinearität der DIAL-Gleichung
- spektroskopische Datenbasis
- Genauigkeit der Wellenlängenbestimmung.

Unter extrinsische systematische Fehler fallen diejenigen, welche durch die Atmosphäre bedingt sind. Diese lauten:

- Temperatureinfluss auf den differentiellen Absorptionsquerschnitt
- Querinterferenz zu anderen Spurengasen
- Auswirkung von Aerosol auf die Messung.

7.1.1 Nichtlinearität der DIAL-Gleichung

Der natürliche Logarithmus $\ln\left(\frac{P_{off}(r)}{P_{on}(r)}\right)$ in der DIAL-Gleichung (vgl. Gl. 2.11) enthält die empfangenen Leistungen als Argumente. Durch das Logarithmieren kommt es zu einer nichtlinearen Gewichtung des in den Signalen enthaltenen symmetrischen Rauschens. In Wirth et al. (2001) wird der Einfluss der Nichtlinearität der DIAL-Gleichung auf die Bestimmung der Ozondichte unter der Verwendung typischer DIAL-Kenngrößen auf $\leq 0,25$ % abgeschätzt.

7.1.2 Spektroskopische Datenbasis

Die Ozonabsorptionsquerschnitte wurden der Datenbank Nölle et al. (1998) entnommen. Für die Ozonmessung wurden die dort enthaltenen Absorptionsspektren von Malicet et al. (1995) und Daumont et al. (1992) verwendet, welche mit einer Genauigkeit ≤ 2 % angegeben sind. Daraus

lässt sich mit einer Größtfehlerabschätzung über die DIAL-Gleichung und den in diesen Messungen verwendeten Wellenlängen eine Genauigkeit in der Bestimmung der Ozondichte von $\leq 2,54\%$ ableiten.

7.1.3 Wellenlängengenauigkeit

Die genaue Kenntnis über die Wellenlängen ist in einem DIAL-System von besonderer Wichtigkeit, da über die Wellenlängen die in der DIAL-Gleichung 2.11 auftretende differentielle Absorption bestimmt wird. Daher wurde die OPO-Signalwellenlänge während der Lidarmessungen permanent überwacht. Mit der Signalwellenlänge kann über die Energieerhaltung in der Summenfrequenzmischung die UV-Wellenlänge berechnet werden.

Im Gegensatz zum UV-Wellenlängenbereich lässt sich der Signalwellenlängenbereich einfach und genau mittels Gitterspektrometer vermessen. Die Bandbreite der Pumpstrahlung ist im Vergleich zur Bandbreite der Signalstrahlung so klein, dass sie vernachlässigt werden kann. Die Verschiebung der UV-Wellenlänge folgt der Variation der Signalwellenlänge proportional. Eine obere Abschätzung des Proportionalitätsfaktors kann berechnet werden, wenn man davon ausgeht, dass alle in der Signalstrahlung enthaltenen Frequenzen in Frequenzen der UV-Strahlung konvertiert werden. Demnach folgt aus der Energieerhaltung, dass die Bandbreite der Signalstrahlung der Bandbreite der UV-Strahlung entspricht

$$\Delta\nu_{Signal} = \Delta\nu_{UV} \quad . \quad (7.1)$$

Über den Zusammenhang aus der Zentralwellenlänge (λ), der Variation der Wellenlänge ($\Delta\lambda$) und der Bandbreite ($\Delta\nu$) einer Strahlung ergibt sich mit der Lichtgeschwindigkeit (c)

$$\frac{c \cdot \Delta\lambda_{UV}}{\lambda_{UV}^2} = \Delta\nu_{UV} = \Delta\nu_{Signal} = \frac{c \cdot \Delta\lambda_{Signal}}{\lambda_{Signal}^2} \quad . \quad (7.2)$$

Daraus kann der Proportionalitätsfaktor ermittelt werden:

$$\Delta\lambda_{UV} = \Delta\lambda_{Signal} \cdot \left(\frac{\lambda_{UV}}{\lambda_{Signal}} \right)^2 \quad . \quad (7.3)$$

Die Proportionalität ist abhängig von der Zentralwellenlänge der Signal- und UV-Strahlung und bewegt sich für die hier verwendete SFM zwischen 0,16 und 0,2. Demnach hat eine Variation der Signalwellenlänge um 1 nm eine Auswirkung in der UV-Wellenlänge um maximal 0,2 nm.

Beim Spektrometer handelt es sich um ein Gitterspektrometer der Marke Ocean Optics vom Typ HR 4000. Das eingebaute CCD-Array verfügt über 3648 Pixel und das Spektrometer besitzt eine Auflösung von 0,11 nm. Was die Bestimmung der UV-Wellenlänge angeht, führt dies zu einem Auflösungsvermögen von besser als 0,022 nm.

Zur Überprüfung der Absolutgenauigkeit des Spektrometers wurde das von uns gemessene Spektrum einer Argon-Kalibrierlampe der Marke LOT Oriel mit den Sollangaben des Herstellers der Lampe verglichen. Nach Kalibrierung des Spektrometers ergibt sich die Signalwellenlänge im Mittel mit einer Abweichung von 0,004 nm zum Sollwert. Die gemessene Abweichung ist viel kleiner als das theoretische Auflösungsvermögen und ist deshalb zu vernachlässigen. Das bedeutet, dass die während der Lidarmessungen gemessenen Signalwellenlängen und daraus errechneten UV-Messwellenlängen sehr zuverlässig bestimmt werden konnten.

Mit dem theoretischen Auflösungsvermögen des Spektrometers von 0,11 nm beträgt der Fehler bei der Bestimmung der Ozondichte $\leq 0,39\%$ (vgl. Kap. 4.11.4).

Neben der Bestimmung der Zentralwellenlänge der UV-Strahlung beeinflusst die Bandbreite der Laserstrahlung die Ozonmessung. In Kap. 4.11 wurde dieser Einfluss bereits abgeschätzt. Mit einer UV-Bandbreite von 0,05 nm ist das Ozonprofil mit einem Fehler von 0,93 % versehen.

7.1.4 Temperatureinfluss

Gerade bei Messungen, die sich, wie in diesem Fall, über einen Höhenbereich von etwa 15 km erstrecken, ist der Temperatureinfluss auf die Messgenauigkeit nicht zu vernachlässigen. Aus den Standardmodellen ergibt sich, dass sich die Temperatur von etwa 0° C in 5 km Höhe bis zu -60° C am Ort der Tropopause ändert. Diese große Temperaturdifferenz beeinflusst den Ozon-Absorptionsquerschnitt nicht unwesentlich.

Zur Abschätzung des Messfehlers werden o.B.d.A. die DIAL-Wellenlängen aus Messung # 2 vom 20.04.2011 verwendet. Mit $\lambda_{on} = 304,14$ nm und $\lambda_{off} = 314,8$ nm ergibt sich für eine Temperatur von $T = -55,15^\circ$ C ein differentieller Absorptionsquerschnitt von $\Delta\sigma_{218K} = 16,45e-24$ m² und für eine Temperatur von $T = 0^\circ$ C ein differentieller Absorptionsquerschnitt von $\Delta\sigma_{273K} = 17,13e-24$ m² (Malicet et al., 1995; Daumont et al., 1992). Ohne Berücksichtigung der Temperaturabhängigkeit des Ozonabsorptionsquerschnittes ergibt sich für diese Temperaturdifferenz bei der Bestimmung der Ozonkonzentration ein Fehler von 3,97 %.

Um den Fehler zu reduzieren, muss die Temperaturabhängigkeit in der Auswertung berücksichtigt werden. Dazu wurden die Temperaturprofile aus den Radiosondenaufstiegen des Hohenpeißenbergs benutzt. Die Ozonabsorptionsquerschnitte für die Temperaturen 218 K, 228 K, 243 K, 250 K, 273 K und 298 K wurden aus Nölle et al. (1998) entnommen. Für jedes Höhenintervall können mit entsprechender Temperatur die Absorptionsquerschnitte durch Interpolieren aus den sechs Temperaturstützstellen berechnet werden. Auf diese Weise erhält man ein temperaturkorrigiertes Ozon-Absorptionsquerschnittprofil, mit welchem der Einfluss der Temperatur auf die Bestimmung der Ozonkonzentration reduziert werden kann. In Tab. 6.3 finden sich daher nur die entsprechenden Absorptionsquerschnitte für die Höhe 6 km aufgetragen. In Kiemle et al. (2011) wird für die Standardabweichung des ECMWF-Fehlers der Temperatur bis 100 hPa Höhe ein Wert von 1 K angegeben. Unter der damit zulässigen Annahme einer Genauigkeit in der Temperaturprofil von 2 K ergibt sich daraus eine Genauigkeit in der Bestimmung der Ozonkonzentration von 0,34 %.

7.1.5 Querempfindlichkeit

Spurenstoffe, die ebenfalls auf den verwendeten DIAL-Wellenlängen absorbieren und innerhalb des Messvolumens vorhanden sind, können die Ozon-DIAL-Messung verfälschen. Nach Gl. 2.15 ergibt sich der dadurch entstehende relative Fehler aus dem Verhältnis der differentiellen Extinktion eines betroffenen Gases i zur differentiellen Extinktion von Ozon:

$$\frac{\Delta N^{O_3}}{N^{O_3}} = \frac{N^i(r) \cdot \Delta\sigma^i}{N^{O_3}(r) \cdot \Delta\sigma^{O_3}} \quad (7.4)$$

Nach Proffitt und Langford (1997) weisen SO₂, NO₂, HNO₃, CH₂O, O₂ und H₂O Absorptionen in der Hartley- und Huggins-Bande des Ozonabsorptionsspektrums (siehe Abb. 3.3) auf. Davon verfügen nur SO₂ und NO₂ über eine genügend hohe differentielle Extinktion, um eine Querempfindlichkeit zu Ozon zu bewirken. Die anderen Spurenstoffe sind vernachlässigbar. Im Folgenden werden zur Abschätzung der Querempfindlichkeit wieder o.B.d.A. die Wellenlängen des Messtages # 2 vom 20.04.2011 gewählt.

Der größte durch Querempfindlichkeit bedingte systematische Fehler ergibt sich aus der Höhe, in welcher die Ozonkonzentration am geringsten und die Dichte des interferierenden Gases am größten ist. Fiedler (2007) und Heland et al. (2002) zufolge sind die Konzentrationen von SO₂ und NO₂ in der unteren Troposphäre am höchsten und nehmen mit zunehmender Höhe ab. Für die Abschätzung eines größtmöglichen Fehlers wurde daher die Höhe 6 km gewählt. Die für diese Höhe relevanten Parameter der drei Gase sind Tab. 7.2 zu entnehmen. Aus den Angaben von Fiedler (2007) und Heland et al. (2002) wurden in dieser Höhe für die Konzentrationen der interferierenden Spurenstoffe 0,3 nmol/mol SO₂ und 1 nmol/mol NO₂ in dieser Höhe angesetzt. Diese Mischungsverhältnisse sind

typische Werte für urbane Gebiete an heißen Sommertagen in Bodennähe und werden hier als maximal nur denkbare Fehlerobergrenze angesetzt.

Tabelle 7.1: Differentielle Extinktion von O_3 , SO_2 und NO_2 in 6 km Höhe. Für die Abschätzung eines maximalen Fehlers wurden in dieser Höhe 0,3 nmol/mol SO_2 und 1 nmol/mol NO_2 angesetzt.

Gas	σ_{on} [m ²]	σ_{on} [m ²]	$\Delta\sigma$ [m ²]	N [1/m ³]	$N \cdot \Delta\sigma$ [1/m]
O ₃	21,6e-24	4,49e-24	17,1e-24	8,24e17	1,41e-5
SO ₂	65,6e-24	11,99e-24	53,36e-24	4,13e15	2,22e-7
NO ₂	15,95e-24	22,29e-24	-6,34e-24	1,38e16	-8,73e-8

Daraus berechnet sich der durch SO_2 bedingte relative Fehler zu 1,57 % und der durch NO_2 bedingte relative Fehler zu -0,62 %.

Tabelle 7.2: Zusammenfassung der maximalen systematischen Fehler.

Fehler	%
Nichtlinearität der DIAL-Gleichung	0,25
Spektroskopische Datenbasis	2,54
Wellenlängengenauigkeit	0,93
Temperatureinfluss	0,34
Querempfindlichkeit	1,57

7.1.6 Einfluss von Aerosolen

In der bisherigen DIAL-Auswertung wurde nur Rayleigh-Streuung, also die Streuung an Molekülen betrachtet. Die daraus gewonnenen Ozonprofile sind in Kap. 6 präsentiert. Für eine Atmosphäre, die in der Höhe zwischen 5 km und 20 km nur mit dem Hintergrundaerosol belastet ist, wie es in Kap. 3.4 beschrieben ist, ergibt sich dadurch ein durch Partikelstreuung hervorgerufener Fehler, der bei kleiner 1 % liegt. Ein wichtiger Vorteil der Lidarmessung besteht jedoch darin, dass an den Messsignalen erkannt werden kann, ob im Messvolumen Aerosolschichten vorhanden sind.

Ob die Atmosphäre nur mit dem gewöhnlichen Hintergrundaerosol oder durch zusätzlich eingelagerte Aerosolschichten wie z. B. urbane Verschmutzung, Vulkanasche- oder Waldbrandfahnen, Zirruswolken etc. belastet ist, kann in der Auswertung an drei Indizien ausgemacht werden. Die Indizien lauten:

- lokale Maxima in den abstands- und rayleighkorrigierten Rückstreusignalen
- charakteristische Über- und Unterschwingung des Ozonprofils
- lokale Maxima in den Rückstreuverhältnissen.

Alle drei Indizien sind hinreichende Bedingungen für verstärkte Rückstreuung durch die Anwesenheit von Aerosolen. Die einfachste Analyseverfahren ist dabei die Untersuchung der Rückstreusignale. Die durch Betrachtung von reiner Rayleigh-Streuung gewonnenen Ozonprofile weisen die in Kap. 3.4 beschriebene charakteristische Über- und Unterschwingung in stärker aerosolbelasteten Höhenbereichen auf. Quantifiziert werden kann die Stärke des Aerosoleinflusses durch das Rückstreuverhältnis $R(r)$ aus Gl. 2.18. Gilt $R(r) \sim 1$, so ist die aerosole Rückstreuung gegenüber der molekularen Rückstreuung zu vernachlässigen. Gilt $R(r) > 1$, so befindet sich eine nicht zu vernachlässigende Aerosolschicht in der entsprechenden Höhe. Das Rückstreuverhältnis kann durch Inversion des „Offline“-Signals analog zu der in Kap. 2.2 beschriebenen Klett-Methode gewonnen werden.

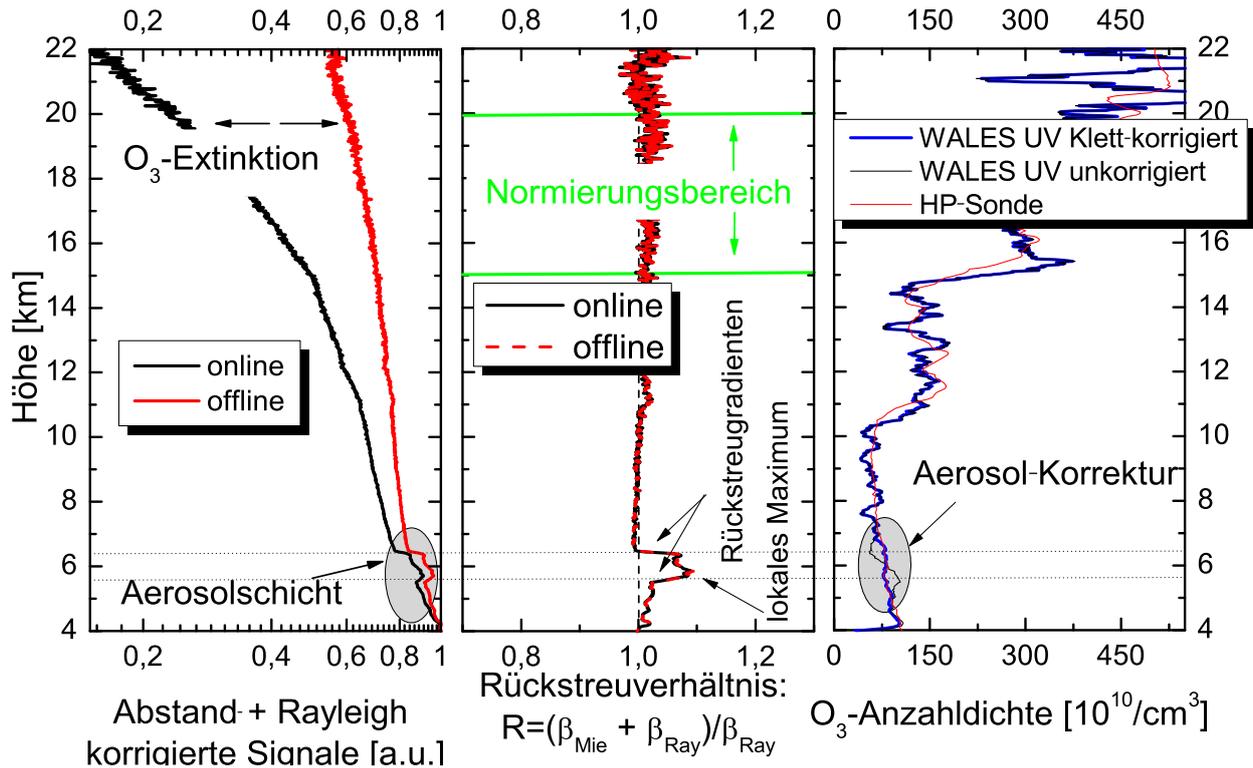


Abbildung 7.1: Zwischen- und Endergebnisse der Aerosolkorrektur mittels Klett-Verfahren (20.04.2011). Links: Abstands- und rayleighkorrigierte Signale. Mitte: Durch Inversion und Angström-Exponenten ermittelte Rückstreuverhältnisse. Rechts: Korrigiertes Ozondichteprofil mit den Parametern $R_{17,5\text{km}} = 1,02$, $S = 17$ sr und $\delta = 2,3$ im Vergleich zum unkorrigierten Profil und dem Profil der Sonde.

Der aerosolbedingte systematische Fehler tritt nur in dem Höhenbereich auf, in welchem sich die Aerosolschicht befindet. Das heißt, unter Verwendung der drei Indizien können die fehlerbehafteten Teilbereiche des Ozonprofils lokalisiert und eine der beiden folgenden Strategien verfolgt werden. Entweder wird der betroffene Teilbereich des Profils verworfen, um ein fehlerfreies aber lückenhaftes Ozonprofil zu erhalten, oder es wird versucht den Fehler mit Hilfe der Klett-Inversion (siehe Kap. 2.2) zu korrigieren. Letztere Strategie wird im Folgenden angewendet.

Zunächst wurden die vier Messungen unter Verwendung der drei Indizien untersucht. Die Messungen # 1 (18.04.2011) und # 4 (29.06.2011) sind demnach frei von zusätzlich zum Hintergrund eingelagerten Aerosol und können daher unter Berücksichtigung von reiner Rayleigh-Streuung ausgewertet werden. Messung # 3 (04.05.2011) ist in dem betrachteten Höhenbereich von 8-11 km Höhe ebenfalls nicht von zusätzlichem Aerosol belastet, sodass auch in diesem Fall das Ozonprofil unter Berücksichtigung von reiner Rayleigh-Streuung ausgewertet werden kann.

Nur Messung # 2 (20.04.2011) ist in einer Höhe von 5,5-6,5 km durch eine leichte Aerosolschicht belastet. Dies könnte an der charakteristischen Über- und Unterschwingung des Profils in Abb. 6.10 erkannt werden. Einen eindeutigeren Hinweis liefern die lokalen Maxima beider DIAL-Signale der abstands- und rayleighkorrigierten Signale aus Abb. 7.1 (links). Demnach befindet sich eine Aerosolschicht in einer Höhe von 6 km. Aus der Inversion des „Offline“-Signals kann das Rückstreuverhältnis gewonnen werden. Das Maximum der Rückstreuung liegt bei 1,08 (siehe Abb.7.1 (Mitte)). Durch Optimieren der Parameter R_m , S und δ können die Über- und Unterschwingen des Profils behoben werden. Das Ergebnis ist in Abb.7.1 (rechts) dargestellt. Die optimalen Werte sind $R_{17,5\text{km}} = 1,02$, $S = 17$ sr und $\delta = 2,3$. Für den Normierungsabstand von 17,5 km wurde das Rückstreuverhältnis auf größer 1 festgelegt, da sonst das Rückstreuverhältnis in kleineren Höhen kleiner 1 wird. Dies wäre

physikalisch nicht sinnvoll.

Es wurde also versucht, mittels Klett-Inversion das Ozonprofil vom Aerosoleinfluss zu bereinigen. Die damit ermittelten optischen Streueigenschaften (S und δ) ermöglichen es jedoch nicht, daraus auf einen bestimmten Aerosoltyp schließen zu können. Jedoch ist es gelungen, unter Verwendung physikalisch plausibler Parameter (R_m , S und δ) das gemessene Profil der Ozonsonde zu reproduzieren (siehe Abb. 7.1 (rechts)).

Zusätzlich wurde versucht, in Zirruswolken einen Vergleich zwischen der Klettinversion und dem Dual-DIAL-Verfahren vorzunehmen. An diesem Aerosoltyp scheiterten jedoch beide Methoden. Die möglichen Ursachen werden im Folgenden diskutiert. Bei der Klettkorrektur wird vorausgesetzt, dass der Angström-Exponent eine Konstante ist und keine Höhenabhängigkeit aufweist. Diese Bedingung ist in Zirren nicht notwendigerweise erfüllt ($\delta = \delta(r)$), sodass die Klettinversion aus diesem Grund keine Lösung liefert. Dem Kenntnisstand des Autors zufolge existieren auch keine Veröffentlichungen, in welchen mittels DIAL-Verfahren Ozon innerhalb von Zirren gemessen wurde. Obwohl gerade das Dual-DIAL-Verfahren unempfindlich gegenüber einem selbst höhenabhängigen Angström-Exponenten ist, ist es auch mit diesem Verfahren nicht gelungen, die durch Aerosolschichten hervorgerufenen charakteristischen Über- und Unterschwinger zu eliminieren. In der Dual-DIAL Gleichung 2.21 sind, bei geeigneter DIAL Konstante C (siehe Kap. 2.2), der Extinktions- und Rückstreuoeffizient $B' \approx 0$ und $E' \approx 0$ vernachlässigbar (Wang et al., 1997). Voraussetzend dafür ist jedoch ein wellenlängenunabhängiger Angström-Exponent. Ist diese Voraussetzung nicht erfüllt, sind die Extinktions- und Rückstreu-Koeffizienten in der Dual-DIAL-Gleichung nicht zwangsweise vernachlässigbar und der systematische Fehler hebt sich nicht auf sondern kann im schlechtesten Fall sogar noch größer werden. Daher wird für das Versagen der Drei-Wellenlängen-Methode ein wellenlängenabhängiger Angström-Exponent im Fall von Zirrusbewölkung vermutet ($\delta = \delta(\lambda)$). Den Kalkulationen von Völger et al. (1996) zufolge ist ein negativer Angström-Exponent nur für Wellenlängen ≥ 350 nm zutreffend. „Für eine detaillierte Betrachtung des Wellenlängenbereichs 250-320 nm muss die relative Feuchte der Luft in Betracht gezogen werden. Beispielsweise sind einige Aerosole hygroskopisch und bilden somit bei zunehmender Luftfeuchtigkeit eine zunehmend sphärische Oberfläche aus, womit sich auch der Rückstreuoeffizient ändert. Für eine Luftfeuchtigkeit im Bereich um 90 % ist die Wellenlängenabhängigkeit des Aerosolrückstreuoeffizienten β_{Mie} nahezu konstant und deshalb am besten durch λ^0 charakterisiert. Hingegen ist im Standardfall einer Luftfeuchtigkeit um die 70 % die Abhängigkeit eher proportional zu λ^{+1} “ (Meister, 2005). Was den Bereich von 250-320 nm betrifft, gibt es allerdings auch sehr wenige Untersuchungen dazu (Völger et al., 1996). Somit ist eine Wellenlängenabhängigkeit des Angström-Exponenten in diesem Bereich nicht auszuschließen, was das Versagen der Dual-DIAL-Methode erklären könnte.

Unterstützt wird die Hypothese eines wellenlängenabhängigen Angström-Exponenten durch die Messung, welche am 06.05.2011 mit fünf Wellenlängen (V: 303,96 nm, IV: 306,9 nm, III: 309,13 nm, II: 311,57 nm und I: 314,66 nm) durchgeführt wurde. Während dieser Messung lag eine Zirruswolke in 8-13 km Höhe vor. In Abb. 7.2 sind die Ozonprofile aufgetragen, wie sie sich für verschiedene Kombinationen aus den fünf Wellenlängen mit der vereinfachten DIAL-Gleichung (vgl. Gleichung 2.11) ergeben. Entscheidend sind hier die Vorzeichen der Über- und Unterschwinger für verschiedene Wellenlängenkombinationen. Würde es sich um einen wellenlängenunabhängigen Angström-Exponenten handeln, so würden die Vorzeichen für unterschiedliche Wellenlängenpaare identisch sein. Da die Vorzeichen für die DIAL-Wellenlängenpaare V-IV und IV-III (8-10 km: positiv, 10-12 km: negativ) entgegengesetzt zu denen für III-II und II-I (8-10 km: negativ, 10-12 km: positiv) sind, lässt dies auf einen wellenlängenabhängigen Angström-Exponenten schließen. Für die Kombinationen V-I und IV-II sind die Schwinger abgeschwächt, was darauf schließen lässt, dass die aerosolen

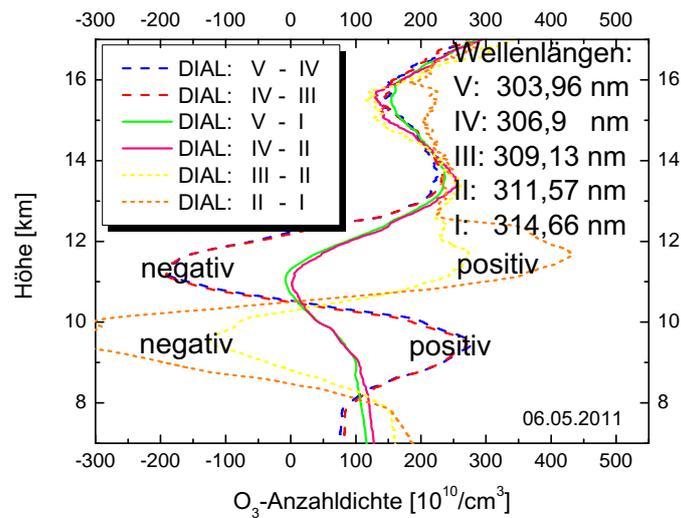


Abbildung 7.2: Ozon-DIAL-Messung (06.05.2011) mit fünf Wellenlängen zur Unterstützung der Hypothese eines wellenlängenabhängigen Angström-Exponenten. Die Zirruswolke befand sich in 8-13 km Höhe.

Rückstreukoeffizienten für diese Wellenlängenkombinationen nahezu gleich groß sind. Diese Messung unterstützt demnach die Hypothese eines wellenlängenabhängigen Angströmexponenten im Fall von Zirrusbewölkung. Daher hat die Dual-DIAL Methode im Fall von Zirruswolken versagt.

Diese Messung stellt, dem Kenntnisstand des Autors zufolge, die erste Ozonlidarmessung mit mehr als drei Wellenlängen dar. Eine derartige Messung mit vielen Wellenlängen angewendet auf unterschiedliche Aerosoltypen, könnte neue Erkenntnisse in der Bestimmung der optischen Eigenschaften von Aerosolen hervorbringen. Daher wurde im Rahmen dieser Arbeit versucht die fünf Wellenlängenmethode auf Wüstenstaub aus der Wüste Sahara anzuwenden. Jedoch wurde für den Zeitraum der durchgeführten Lidarmessungen kein Aerosol aus der Wüste in den Münchner Raum transportiert.

7.2 Statistischer Fehler

Zusätzlich zu den systematischen Fehlern sind die ermittelten Ozonprofile mit einem statistischen Fehler belastet, welcher sich in der Varianz der Profile widerspiegelt. Der statistische Fehler setzt sich aus folgenden Quellen zusammen ((siehe z.B. Demtröder (2007))):

- Photonenrauschen
- thermischem Dunkelstrom
- Rauschen des Verstärkers.

Um den statistischen Fehler zu berechnen, muss aus der Varianz der Profile der Anteil des Instrumentenrauschens von dem Anteil der natürlichen Variation der atmosphärischen Ozonkonzentration getrennt werden. Dazu kann die von Kiemle et al. (1997) beschriebene Autokorrelationsmethode verwendet werden. Dabei wird die Autokorrelation $AKF(r)$ der für ein bestimmtes Höhenintervall ermittelten Ozondichtewerte berechnet. Das sich dabei ergebende herausragende Maximum $AKF_0(r)$ an der Stelle null entspricht der Summe aus natürlicher Varianz $\sigma_n^2(r)$ und systembedingter Varianz $\sigma_s^2(r)$, also der gesamten Varianz:

$$\sigma_s(r) = \sqrt{AKF_0(r) - \sigma_n^2(r)} \quad . \quad (7.5)$$

Die natürliche Varianz entspricht dem atmosphärischen Rauschen und wird mittels linearer Extrapolierung auf die Stelle 0 aus den kleinsten Fehlerquadraten der 3 kleinsten von 0 verschiedenen Stellen der AKF(r) (also $AKF_1(r)$, $AKF_2(r)$ und $AKF_3(r)$) gebildet. Der Quotient aus dem Mittelwert der Ozondichte $\bar{Q}(r)$ des speziellen Höhenintervalls und der systembedingten Varianz entspricht dem SNR:

$$SNR(r) = \frac{\bar{Q}(r)}{\sigma_s^2(r)} = \frac{1}{\Delta N_{O_3}(r)} \quad (7.6)$$

Der Kehrwert des SNR(r) entspricht dem relativen statistischen Fehler $\Delta N_{O_3}(r)$ der Ozondichte dieses Höhenintervalls. Aus der AKF(r)-Analyse für jedes Höhenintervall r ergibt sich das gesamte Profil des relativen statistischen Fehlers.

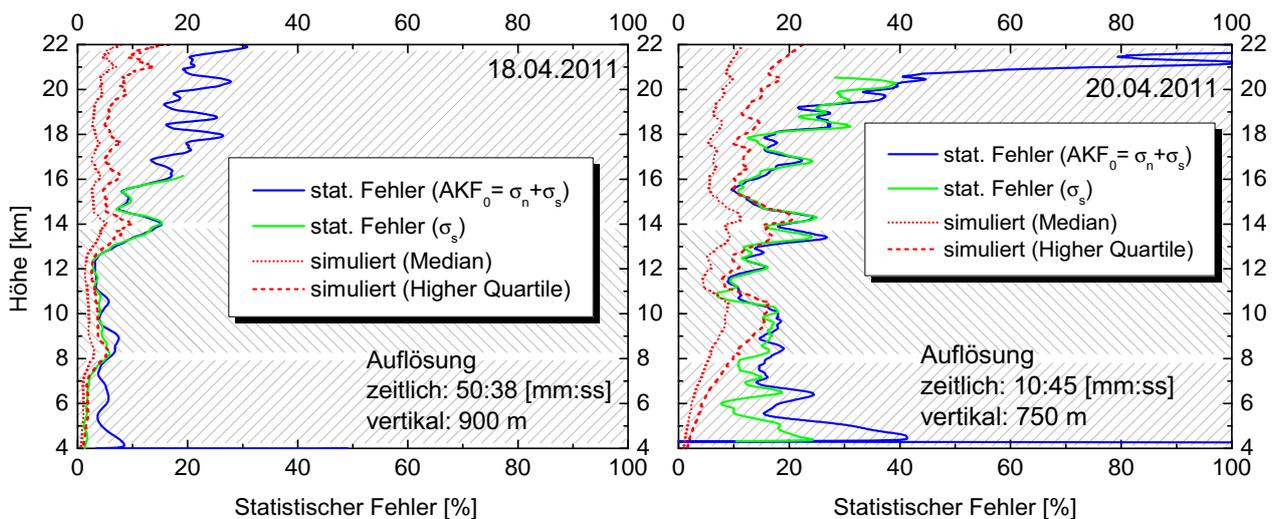


Abbildung 7.3: Aufgetragen sind die erwarteten (gestrichelt) und tatsächlichen (durchgezogen) Fehlerprofile der Messungen vom 18.04.2011 (links) und 20.04.2011 (rechts). Der tatsächliche Fehler ist berechnet aus dem reinen Instrumentenrauschen (σ_s , grün). Im Vergleich dazu ist die gesamte Varianz der Profile (AKF_0 , blau) eingezeichnet. Die erwarteten Fehlerprofile sind für mittlere (Median) und leicht stärkere (Higher Quartile) Aerosolbelastung berechnet. Die drei schraffierten Höhenbereiche entsprechen der freien Troposphäre, der Tropopause und dem stratosphärischen Bereich.

Aus den in Abb. 7.3 dargestellten Analysen lässt sich folgendes erkennen. Ab einer Höhe von ~ 8 km aufwärts ist die Autokorrelationsfunktion an der Stelle 0 näherungsweise genauso groß ist wie die systembedingte Varianz ($AKF_0 \sim \sigma_s$). Demnach gilt für den Bereich um und oberhalb der Tropopause, dass dort eine natürliche Variation der atmosphärischen Ozondichte kaum vorhanden und daher zu vernachlässigen ist. Für den Bereich der freien Troposphäre (hier 4-8 km) ist hingegen die natürliche Variation der atmosphärischen Ozondichte nicht zu vernachlässigen. Daher muss im Bereich der freien Troposphäre der Anteil des Instrumentenrauschens von dem Anteil der natürlichen Variation der atmosphärischen Ozonkonzentration mittels Autokorrelationsfunktion getrennt werden um den korrekten statistischen Fehler der Messung zu ermitteln.

Während sich die Autokorrelationsfunktion bei stark verrauschten Werten nicht mehr berechnen lässt, kann die numerische Berechnung der Varianz von Werten mit Fehlern von über 100 % noch problemlos ausgeführt werden. Da die gesamte Varianz ($AKF_0(r)$) in den Abb. 7.3 mittels Varianz und die systembedingte Varianz (σ_s) mittels AKF-Analyse berechnet wurde, liefern die statistischen Fehler, berechnet aus der gesamten Varianz, ein lückenloses Profil.

Zur Verifikation der numerischen Simulation aus Kap. 3 wurden die Ozonprofile der Ozonsonde in der Simulation eingelesen und der erwartete statistische Fehler berechnet. Dabei wurde in den unterschiedlichen Messungen die entsprechenden Messwellenlängen sowie zeitlichen und ver-

tikalen Mittelungen berücksichtigt. Die restlichen Simulationsparameter mit Ausnahme des Teleskopdurchmessers, welcher hier 0,35 m entspricht, sind Tab. 3.2 zu entnehmen. Ursprünglich wurde für die numerische Simulation in Kap. 3 aus den von Vaughan et al. (1998) vorgeschlagenen aerosolen Rückstreuprofilen, ein Profil mittlerer Aerosolbelastung (Median) ausgewählt. In den Abb. 7.3 befinden sich zusätzlich die erwarteten statistischen Fehler aufgetragen, welche mittels der aus Vaughan et al. (1998) nächststärkeren Aerosolbelastung (Higher Quartile) berechnet wurden. Mit der nächst-stärkeren Aerosolbelastung ließ sich eine bessere Übereinstimmung mit den statistischen Fehlern der Messung erzielen. Daher kann davon ausgegangen werden, dass das Aerosolprofil „Higher Quartile“ die tatsächliche Aerosolbelastung des Messvolumens besser repräsentiert als das Profil „Median“. Für den Flugzeugbetrieb spielt es keine Rolle, ob die Aerosolbelastung eher dem Profil „Median“ oder dem Profil „Higher Quartile“ entspricht, da beide im Bereich der Tropopause keinen signifikanten Einfluss auf die DIAL-Messung haben. Daher behalten die Aussagen aus Kap. 3 ihre Gültigkeit und es ist davon auszugehen, dass mit dem Ozonlidar im Flugzeugbetrieb mit einem hohen räumlichen Auflösungsvermögen von 300 m vertikal und 15 km horizontal (~ 68 s) eine Genauigkeit von nur ~ 10 % tatsächlich erreicht werden kann.

Eine Abschätzung des statistischen Fehler von Messung # 3 (04.05.2011) ist nicht möglich, da tiefliegende Wolken die Messung beeinträchtigt haben. Für eine Berücksichtigung der Bewölkung müssten sich die Wolken innerhalb des Messbereichs, also ab 4 km Höhe aufwärts, befinden, um die optische Dicke dieser zu ermitteln. Die Wolken befanden sich jedoch unterhalb dieser Höhe und können daher nicht berücksichtigt werden.

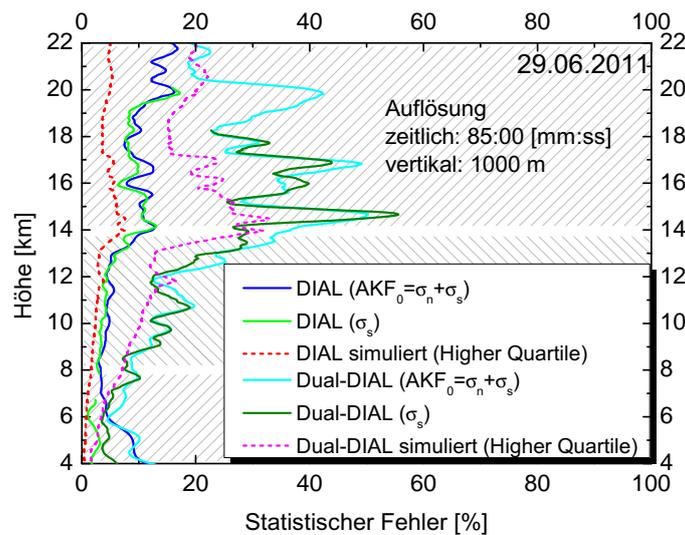


Abbildung 7.4: Aufgetragen sind die erwarteten (gestrichelt) und tatsächlichen (durchgezogen) Fehlerprofile unter Verwendung der DIAL- und der Dual-DIAL-Methode (29.06.2011). Die drei schraffierten Höhenbereiche entsprechen der freien Troposphäre, der Tropopausenregion und dem stratosphärischen Bereich.

In Abb. 7.4 sind die erwarteten und tatsächlichen Fehlerprofile der Messung # 4 vom 29.06.2011 sowohl für die DIAL- als auch die Dual-DIAL-Methode aufgetragen. Analog zu obiger Diskussion sind jeweils die tatsächlichen Fehlerprofile mit und ohne der natürlichen Variation der atmosphärischen Ozondichte des Ozonprofils berechnet. Für die Berechnung der erwarteten Fehlerprofile wurde die Aerosolbelastung „Higher Quartile“ verwendet. Ein quantitativer Vergleich zwischen den mit der Simulation berechneten und den tatsächlichen Fehlern findet sich für die in den Abb. 7.3 und 7.4 schraffierten Höhenbereiche in Tab. 7.3 angegeben. Dazu wurde der Mittelwert der statistischen Fehler innerhalb der drei Höhenbereiche kalkuliert und aus den Mittelwerten die Abweichungen zwischen Theorie und Experiment berechnet.

Tabelle 7.3: Angegeben ist die Differenz zwischen den experimentellen und theoretischen statistischen Fehlern, berechnet aus den Mittelwerten der jeweiligen Höhenbereiche in den Abb. 7.3 und 7.4. Für den Höhenbereich 4-8 km wurde die theoretisch berechneten Fehler mit den Fehlern verursacht durch das reine Instrumentenrauschen verglichen (siehe Diskussion oben).

Messung # (Datum)	4-8 km [%]	8-14 km [%]	14-22 km [%]
1 (18.04.2011)	0,1	1,7	10,8
2 (20.04.2011)	7,9	2,3	14,8
4 (04.05.2011) DIAL	1,3	1,4	6,2
4 (04.05.2011) Dual DIAL	1,2	1,62	12,3

In dem Höhenbereich zwischen 4-8 km weichen die prognostizierten Fehler von den tatsächlichen Fehlern für die Messungen # 1 (18.04.2011) und # 4 (29.06.2011) im Mittel nur weniger als 1,5 % voneinander ab. Für die Messung # 2 (20.04.2011) ist, in dem Höhenbereich 4-8 km, der experimentelle statistische Fehler im Mittel um 7,9 % größer als der erwartete. Eine Ursache dafür konnte nicht ermittelt werden.

Das Hauptaugenmerk der Lidarmessungen liegt auf dem Bereich um die Tropopause (8-14 km), für welchen das hier entwickelte Ozonlidar ausgelegt ist. In diesem Bereich ist die Abweichung zwischen den erwarteten und den gemessenen statistischen Fehlern für alle Messungen im Mittel $\leq 2,3$ %. Demnach ist in diesem Bereich für die hier durchgeführten Messungen eine hochgenaue Fehlerprognose möglich.

Dahingegen ist der experimentell ermittelte statistische Fehler für den Höhenbereich zwischen 14-22 km im Mittel ~ 10 % größer als der theoretisch zu erwartende statistische Fehler. Als Ursache für die Abweichung der statistischen Fehler in der Stratosphäre wird eine höhere Extinktion in der aerosolen Grenzschicht vermutet, als in der Theorie angenommen. Die dadurch schwächeren optischen Empfangssignale führen dazu, dass der tatsächliche statistische Fehler $\sim 3-4$ km früher stark zunimmt als theoretisch berechnet. Damit ist gemeint, dass der charakteristische U-förmige Verlauf des Fehlerprofils (vgl. Abb. 3.5) um $\sim 3-4$ km nach unten verschoben ist. Da der Messbereich der hier durchgeführten Lidarmessungen erst ab 4 km Höhe beginnt, und damit oberhalb der aerosolen Grenzschicht liegt, ist es nicht möglich die Extinktion der Grenzschicht experimentell zu ermitteln und in der Theorie zu berücksichtigen. Aus der Diskrepanz zwischen den prognostizierten und den tatsächlichen statistischen Fehlern in der Stratosphäre können daher keine Schlussfolgerungen auf die Qualität des hier entwickelten Ozon-DIAL Systems gezogen werden. Für diese Zwecke dienen die beiden unteren bereits diskutierten Höhenbereiche, in welchen eine gute Übereinstimmung nachgewiesen werden konnte.

Kapitel 8

Schlussfolgerungen und Ausblick

Zusammenfassung der Arbeit

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde ein Ozon-Differential-Absorptions-Lidar (Ozon-DIAL) entwickelt, welches auf die flugzeuggestützte Vermessung der Tropopausenregion ausgelegt ist. In dem ersten Entwicklungsschritt des Ozon-DIAL-Systems wurde eine Software entwickelt, mit welcher Ozonlidarmessungen für unterschiedliche atmosphärische Bedingungen numerisch simuliert werden können. Zweck dieser Simulation war die Festlegung der geeigneten DIAL-Wellenlängen und benötigten Ausgangsleistungen mit Hilfe der sich daraus ergebenden Messreichweite, Auflösung und Genauigkeit. Als Anforderungen an Ozonmessungen im Tropopausenbereich wurde eine vertikale Auflösung von 300 m, eine horizontale Auflösung von 15 km und eine Genauigkeit von 10 % festgelegt. Mit Priorisierung auf maximaler Reichweite ergab sich, dass die „Online“-Wellenlänge im Bereich von $300 \text{ nm} \pm 5 \text{ nm}$ und die „Offline“-Wellenlänge dazu $10 \text{ nm} \pm 5 \text{ nm}$ zu größeren Wellenlängen hin verschoben sein sollte, um den gestellten Anforderungen im Bereich der Tropopause zu genügen. Dabei ermöglicht erst eine mittlere Laserleistung von c.a. 1 Watt das für die Vermessung von Austauschprozessen durch die Tropopause notwendige hohe räumliche Auflösungsvermögen.

Auf der Grundlage dieser Erkenntnisse wurde auf der Basis eines Optisch-parametrischen-Oszillators (OPO) ein Frequenzkonverter entwickelt, welcher mit den Komponenten des WALES-Systems kompatibel ist. Dazu sollte der OPO mit der Ausgangswellenlänge von 1064 nm des Nd:YAG-WALES-Pumpmoduls betrieben werden. Theoretischen Voruntersuchungen zu Folge ist es für die flugzeuggestützte DIAL-Anwendung am Sinnvollsten, in einem ersten Konversionsschritt den OPO mit der zweiten Harmonischen (532 nm) des Nd:YAG-Lasers zu pumpen, um in einem anschließendem Konversionsschritt die im OPO erzeugte Strahlung ebenfalls mit der zweiten Harmonischen zu den gewünschten ultravioletten Wellenlängen zu mischen. Durch die experimentelle Untersuchung unterschiedlicher OPO-Resonatorgeometrien und nichtlinearer OPO-Kristallmaterialien konnte das am Besten geeignete Konzept erarbeitet werden. Dabei ist es gelungen, die Probleme, also laserinduzierte Zerstörungen der Optiken und thermische Linsen die bei den hohen mittleren Leistungen, bedingt durch die Repetitionsfrequenz von 100 Hz, auftreten, zu beheben.

Das finale UV-OPO-Konzept wurde mit dem OPO-Kristallmaterial Kaliumtitanylphosphat (KTP) realisiert. Beim OPO handelt es sich um einen planaren Vier-Spiegel-Ringresonator mit interner Summenfrequenzmischung. Zur Steigerung der Effizienz befinden sich zwei KTP-Kristalle innerhalb des OPO-Resonators. Mit diesem Konzept kann ein kontinuierlicher Durchstimmbereich von 302,3 nm bis 316,3 nm durchstimmbar abgedeckt werden und es lassen sich mittlere Ausgangsleistungen bis über 1 W erzeugen.

Das Messinstrument AMALFI wurde für das neue Forschungsflugzeug HALO entwickelt. Aufgrund von Verzögerungen im HALO-Projekt, konnte AMALFI nicht vom Flugzeug aus erprobt werden. Alternativ musste die Erprobung des Ozon-DIAL-Transmitters mit Hilfe von Bodenmessungen durchgeführt werden, obgleich das System hierfür nicht optimiert ist. Die vier beispielhaft

vorgestellten Messungen wurden mit zwei unterschiedlichen Ozonmessverfahren verglichen, die am nahegelegenen meteorologischen Observatorium auf dem Hohenpeißenberg betrieben werden. Sowohl mit dem Hohenpeißenberger Ozon-DIAL als auch mit Ozonsonden konnte, bei gutem zeitlichem Überlapp der drei Instrumente und wolkenfreier Atmosphäre, eine Übereinstimmung im Rahmen der Messgenauigkeit des hier entwickelten Ozon-DIAL nachgewiesen werden. Mit einer statistischen Abweichung von 20 % und einer systematischen Abweichung von -0,7 % zur Ozonsonde stellt die Messung # 2 vom 20.04.2011 die beste Übereinstimmung zwischen dem hier entwickelten Ozon-DIAL und der Ozonsonde dar. Mit dieser Messung wird belegt, dass das hier entwickelte Ozon-DIAL sich hervorragend zur Identifizierung und Charakterisierung der Ozontropopause eignet.

Anhand von Messung # 3 vom 04.05.2011 konnte gezeigt werden, dass das im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Ozon-DIAL in der Lage ist, dynamische Prozesse im Bereich der Tropopause aufzuzeichnen. Diese Tatsache ist insbesondere für die Untersuchung von Austauschprozessen durch die Tropopause wichtig, da es sich dabei in der Regel um dynamische Prozesse handelt.

Zusätzlich wurde anhand von Messung # 4 am 29.06.2011 gezeigt, dass der Lasertransmitter in der Lage ist, im Multiwellenlängen-Betrieb zu arbeiten. Damit besteht die Möglichkeit, die Dual-DIAL-Methode im Falle einer hoch aerosolbelasteten Atmosphäre zu verwenden.

Weiter ist anzumerken, dass das Transmittersystem einwandfrei in Betrieb genommen wurde und während des gesamten Messzeitraums von über 2 Monaten keine technischen Defekte aufgetreten sind. Gerade für den Einsatz im Flugzeug spielt diese Tatsache eine entscheidende Rolle, wenn der Erfolg einer Feldmesskampagne sichergestellt werden soll.

Die statistischen Fehler der vier Messungen stimmen, bis auf die durch tiefliegende Wolken belastete atmosphärische Situation (Messung # 3, 04.05.2011), auf einige Prozent genau mit den aus der Simulation erwarteten statistischen Fehlern überein. Damit konnte die Simulation verifiziert werden und die Ergebnisse aus Kap. 3 behalten ihre Gültigkeit. Demnach kann im Flugzeugbetrieb bei einer vertikalen Auflösung von 300 m und einer horizontalen Auflösung von 15 km (~ 68 s) eine Genauigkeit von 10 % tatsächlich erreicht werden. Daher ist davon auszugehen, dass die gestellten Anforderungen zur Vermessung von Ozon im Tropopausenbereich (vgl. 3.1) mit dem neuen Ozonlidar erfüllt werden, womit dessen Eignung im Rahmen der gegebenen Möglichkeiten bewiesen ist.

Vorschläge für die Weiterentwicklungen

Theoretisch ist mit dem hier entwickelten Frequenzkonverter ein Durchstimmbereich von 295 nm bis 315 nm möglich. Die Erschließung des Wellenlängenbereichs bis hinunter zu 295 nm konnte jedoch nicht ohne Zerstörung der KTP-Kristalloberflächen erreicht werden. Als Ursache hierfür wird eine leichte OH-Verunreinigung in der Kristallbeschichtung vermutet, welche beim, vom Kristallhersteller verwendeten Beschichtungsverfahren nicht vermieden werden kann. Zukünftig ist daher vorzuschlagen, dass die KTP-Kristalle von speziellen Beschichtungsunternehmen mit dem IBS- oder dem IAD-Verfahren beschichtet werden sollten, da hierdurch ein höherer Reinheitsgrad zu erwarten ist. Möglicherweise könnte dadurch die Zerstörung der Kristalloberflächen bei Wellenlängen um 300 nm vermieden werden. Dies würde die DIAL-Messungen mit einem kürzeren DIAL-Wellenlängenpaar ermöglichen, sodass mit dem damit bedingten größeren differentiellen Ozon-Absorptionsquerschnitt eine höhere Genauigkeit erzielt werden könnte. Im Rahmen dieser Arbeit konnte keine alternative Kristallbeschichtung mehr getestet werden. Mit dem zur Zeit erreichbaren Wellenlängenbereich werden außerdem die gestellten Anforderungen für Ozonmessungen im Tropopausenbereich vollständig erfüllt.

Ausblick

Neben der Vermessung von Ozon kann der hier entwickelte UV-DIAL-Transmitter auch zur Vermessung von Schwefeldioxid-haltigen Luftschichten eingesetzt werden wie beispielsweise im Falle von Vulkanschefahren. Dazu können die von Fujii et al. (2001) und Fujii et al. (2002) vorgeschlagenen Drei-Wellenlängen-Methoden verwendet werden. Das Ozonmischungsverhältnis muss dabei mitgemessen werden, um die Querempfindlichkeit von O_3 auf die SO_2 -Messung herausrechnen zu können. Aufgrund der Durchstimmbarkeit kann, im Gegensatz zu den in der Literatur vorgeschlagenen Messwellenlängen, mit dem hier entwickelten Transmitter ein, für die Ozonmessung notwendiger, großer Abstand zur „Offline“-Wellenlänge verwendet werden. Mit den drei Wellenlängen 304,22 nm, 305,5 nm und 314,8 nm können beispielsweise gleichzeitig Ozon- und Schwefeldioxid vermessen werden. Eine Abschätzung unter Zuhilfenahme der Absorptionsquerschnitte von SO_2 und der experimentell bestimmten Systemparameter ergibt sich ab einem SO_2 -Mischungsverhältnis von größer 0,2 nmol/mol eine Messgenauigkeit von kleiner 10 %.

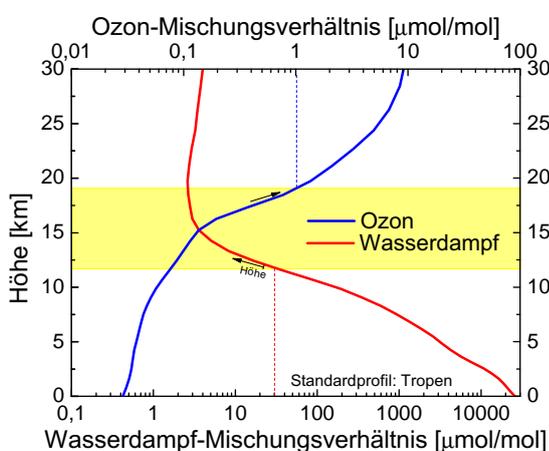


Abbildung 8.1: Dargestellt sind die von der ESA (Wirth et al., 2001) bereitgestellten Mischungsverhältnisse von Ozon und Wasserdampf eines Standardprofils in den Tropen.

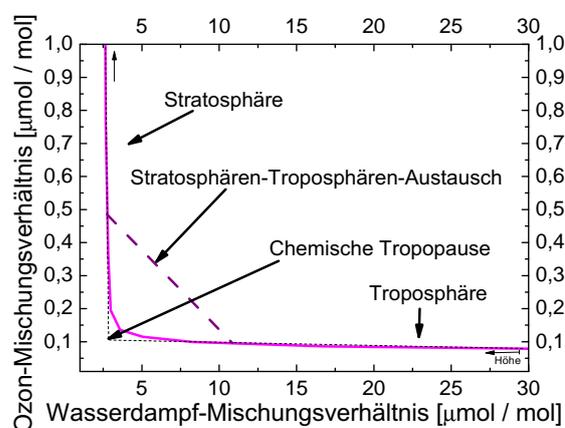


Abbildung 8.2: Darstellung der komplementären Tracer-Mischungsverhältnisse im Tracer-Tracer-Raum.

Die Kompatibilität zwischen dem neuen Ozon-DIAL-Transmitter und den Komponenten von WALES erlaubt eine unkomplizierte Modifizierung von dem Wasserdampf-DIAL WALES zu dem Ozon- und Wasserdampf-DIAL AMALFI. In Kombination mit HALO steht mit AMALFI in der STE-Forschung ein neuartiges und einzigartiges Messinstrument mit einer Messabdeckung in der Größenordnung von ganzen Kontinenten mit ausreichender räumlicher Auflösung und Genauigkeit zur Verfügung. Es können nun gezielt Tracer-basierte Tropopausenanalysen durchgeführt werden. Zur Veranschaulichung Tracer-basierter Analysen sind die Mischungsverhältnisse von Ozon und Wasserdampf in Abb. 8.1 dargestellt. Die beiden komplementären Tracer ergeben ein „L“ im sogenannten Tracer-Tracer-Raum (siehe Abb. 8.2). Die Form des „L“ gibt Aufschluss über die Dicke der Tropopause und der Scheitelpunkt wird als chemische Tropopause definiert, welche relativ gut mit der thermischen Tropopause übereinstimmt (Pan et al., 2004). Die Kombination aus den beiden Lidarsystemen bietet also erstmals die Möglichkeit mit aktiven Fernerkundungsmethoden die kleinskaligen Austauschprozesse im Bereich der Tropopause darzustellen. Beispielsweise könnte durch die zweidimensionale Lidarmessung von Wasserdampf und Ozon erstmals eine ganze Schar „L“-förmiger Kurven im Tracer-Tracer-Raum entlang des Flugpfades erstellt werden. Somit kann mit AMALFI eine viel höhere Informationsdichte erreicht werden als mit den bisher verwendeten flugzeuggetragenen In-situ-Instrumenten. Weiter können mit den hochaufgelösten Tracer-Messungen Abweichungen gängiger Chemie-Transport-Modelle herausdestilliert und quantifiziert werden. Somit können die

Modelle validiert und weiterentwickelt werden.

Mit dem in dieser Arbeit entwickelten Messsystem ist ein weiterer Grundstein in Richtung Analyse und Verständnis der Tropopausenregion gelegt worden.

Literaturverzeichnis

- Alvarez, R. J., C. J. Senff, R. M. Hardesty, D. D. Parrish, W. T. Luke, T. B. Watson, P. H. Daum, und N. Gillani (1998). Comparisons of Airborne Lidar Measurements of Ozone with Airborne in Situ Measurements during the 1995 Southern Oxidants Study. *J. Geophys. Res.* *103*, 31,155–31,171.
- Alvarez, R. J., C. J. Senff, A. O. Langford, A. M. Weickmann, D. C. Law, J. L. Machol, D. A. Merritt, R. D. Marchbanks, S. P. Sandberg, W. A. Brewer, R. M. Hardesty, und R. M. Banta (2011). Development and Application of a Compact, Tunable, Solid-State Airborne Ozone Lidar System for Boundary Layer Profiling. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology (early online release)*.
- Ancellet, G. und F. Ravetta (1998). Compact Airborne Lidar for Tropospheric Ozone: Description and Field Measurements. *Applied Optics* *37*, 5509–5521.
- Ansmann, A. (1985). Errors in ground-based water-vapor DIAL measurements due to Doppler-broadened Rayleigh backscattering. *Applied Optics* *24*, 3476–3480.
- Ansmann, A. und J. Bösenberg (1987). Correction scheme for spectral broadening by Rayleigh scattering in differential absorption lidar measurements of water vapor in the troposphere. *Applied Optics* *26*, 3026–3032.
- Appenzeller, C. und H. C. Davies (1992). Structure of stratospheric intrusions into the troposphere. *Nature* *358*, 570 – 572.
- Baray, J.-L., J. Leveau, J. Porteneuve, G. Ancellet, P. Keckhut, F. Posny, und S. Baldy (1999). Description and evolution of tropospheric ozone lidar implemented on an existing lidar in the southern subtropics. *Applied Optics* *38*, 6808–6817.
- Bates, D. R. (1984). Rayleigh scattering by air. *Planetary and Space Science* *32*, 785–790.
- Bethan, S., G. Vaughan, und S. J. Reid (1996). A comparison of ozone and thermal tropopause heights and the impact of tropopause definition on quantifying the ozone content of the troposphere. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* *122*, 929–944.
- Bhar, G. C., A. M. Rudra, A. K. Chaudhary, T. Sasaki, und Y. Mori (1996). Highly efficient difference-frequency generation in KTP. *Applied Physics B* *63*, 141–144.
- Bierlein, J. und H. Vanherzeele (1989). *J. Opt. Soc. Am. B6*, 622–633.
- Bjorkholm, J. (1971). Some effects of spatially nonuniform pumping in pulsed optical parametric oscillators. *IEEE Journal of Quantum Electronics* *7*, 109–118.
- Boulanger, B., M. M. Fejer, R. Blachman, und P. F. Bordui (1994). Study of KTiOPO_4 gray-tracking at 1064, 532, and 355 nm. *Applied Physics Letters* *65*, 2401–2403.

- Bromley, L. J., A. Guy, und D. C. Hanna (1988). *Optics Communications* 67, 316–320.
- Brosnan, S. J. und R. L. Byer (1979). Optical parametric oscillator threshold and linewidth studies. *IEEE Journal of Quantum Electronics QE-15*, 415–431.
- Browell, E., S. Ismail, und W. Grant (1998). Differential absorption lidar (DIAL) measurements from air and space. *Applied Physics B: Lasers and Optics* 67, 399–410.
- Browell, E. V., S. Ismail, und S. T. Shipley (1985). Ultraviolet DIAL measurements of O₃ profiles in regions of spatially inhomogeneous aerosols. *Applied Optics* 24, 2827–2836.
- Bruneau, D., P. Quaglia, C. Flamant, M. Meissonnier, und J. Pelon (2001). Airborne lidar LE-ANDRE II for water-vapor profiling in the troposphere. I. System description. *Applied Optics* 40, 3450–3461.
- Bösenberg, W. R., L. K. Cheng, und J. D. Bierlein (1994). Optical parametric frequency conversion properties of KTiOPO₄. *Applied Physics Letters* 65, 2765–2767.
- Bösenberg, W. R., W. S. Pelouch, und C. L. Tang (1989). High-efficiency and narrow-linewidth operation of a two-crystal β -BaB₂O₄ optical parametric oscillator. *Applied Physics Letters* 55, 1952–1954.
- Bucholtz, A. (1995). Rayleigh-scattering calculations for the terrestrial atmosphere. *Applied Optics* 34, 2765–2773.
- Byer, R. L. (1974). Nonlinear optical Phenomena and Materials. *Annual Review of Materials Science* 4, 147–190.
- Byer, R. L. (Academic, New York, 1975). *Optical parametric oscillators*. in Quantum Electronics: A Treatise, H. Rabin and C. L. Tang, eds.
- Chen, C., B. Wu, A. Jiang, und G. You (1985). *Scientia Sinica B* 28, 235–243.
- Daumont, D., J. Brion, J. Charbronner, und J. Malicet (1992). Ozone UV spectroscopy I: Absorption cross section at room temperature II: Absorption cross sections and temperature dependence. *J. Atmos. Chem.* 15, 145–155 , 263–273.
- Demtröder, W. (2007). *Laserspektroskopie: Grundlagen und Techniken*. Springer.
- Dessler, A. E., E. J. Hints, E. M. Weinstock, J. G. Anderson, und K. R. Chan (1995). Mechanisms controlling water vapor in the lower stratosphere: “A tale of two stratospheres”. *Journal of Geophysical Research* 100, 23,167–23,172.
- Dmitriev, V. G., G. G. Gurzadyan, und D. N. Nikogosyan (1999). *Handbook of nonlinear optical crystals*. Springer, Berlin.
- Ehret, G., K. P. Hoinka, J. Stein, A. Fix, C. Kiemle, und G. Poberaj (1999). Low-stratospheric water vapor measured by an airborne DIAL. *Journal of Geophysical Research* 104, 31351–31359.
- Ehret, G. und C. Kiemle (2005). Requirements Definition for Future DIAL Instruments. Technical report, Institut für Physik der Atmosphäre (IPA), Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V.
- Eisele, H., H. E. Scheel, R. Sladkovic, und T. Trickl (1999). High-resolution lidar measurements of stratosphere–troposphere exchange. *Journal of the Atmospheric Sciences* 56, 319–330.

- Elsayed, K. A., S. Chen, L. B. Petway, B. L. Meadows, W. D. Marsh, W. C. Edwards, J. C. Barnes, und R. J. DeYoung (2002). High-Energy, Efficient, 30-Hz Ultraviolet Laser Sources for Airborne Ozone-Lidar Systems. *Applied Optics* 41, 2734–2739.
- Esselborn, M. (2008). *Lidar Messung der Extinktion des atmosphärischen Aerosols am Beispiel der Feldstudie SAMUM 1*. Ph. D. thesis, Ludwig Maximilians Universität München.
- Esselborn, M., M. Wirth, A. Fix, P. Mahnke, und G. Ehret (2008). In *Proceedings of the 24th International Laser Radar Conference*, ISBN 987-0-615-21489-4, pp. 357–360.
- Fiedler, V. (2007). *Atmospheric SO₂: Global Measurements using Aircraft-Based CIMS*. Ph. D. thesis, Universität Heidelberg.
- Fischer, H., F. G. Wienhold, P. Hoor, O. Bujok, C. Schiller, P. Siegmund, M. H. P. Ambaum, H. A. Scheeren, und J. Lelieveld (2000). Tracer correlations in the northern high latitude lowermost stratosphere: Influence of cross-tropopause mass exchange. *Geophysical Research Letters* 27, 97–100.
- Fischer, R. und L. A. Kulevskii (1977). Optical parametric oscillators (review). *Soviet Journal of Quantum Electronics* 7 135, Issue 2.
- Fix, A. (1994). *Untersuchung der spektralen Eigenschaften von optischen parametrischen Oszillatoren aus dem optisch nichtlinearen Material Betabariumborat*. Ph. D. thesis, Universität Kaiserslautern.
- Fix, A. und G. Ehret (1998). Intracavity frequency mixing in pulsed optical parametric oscillators for the efficient generation of continuously tunable ultraviolet radiation. *Applied Physics B* 67, 331–338.
- Fix, A., M. Wirth, M. Esselborn, A. Amediek, P. Mahnke, S. Rahm, R. Simmet, A. Schäfler, C. Kiemle, A. Dörnbrack, und G. Ehret (2008). In *Proceedings of the 24th International Laser Radar Conference*, ISBN 987-0-615-21489-4, pp. 1005–1009.
- Fix, A., M. Wirth, A. Meister, G. Ehret, M. Pesch, und D. Weidauer (2002). Tunable ultraviolet optical parametric oscillator for differential absorption lidar measurements of tropospheric ozone. *Applied Physics B: Lasers and Optics* 75, 153–163.
- Franken, P. A., A. E. Hill, C. W. Peters, und G. Weinreich (1961, aug). Generation of Optical Harmonics. *Physical Review Letters* 7, 118–119.
- Fujii, T., T. Fukuchi, N. Cao, K. Nemoto, und N. Takeuchi (2002). Trace Atmospheric SO₂ Measurement by Multiwavelength Curve-Fitting and Wavelength-Optimized Dual Differential Absorption Lidar. *Applied Optics* 41, 524–531.
- Fujii, T., T. Fukuchi, N. Goto, K. Nemoto, und N. Takeuchi (2001). Dual Differential Absorption Lidar for the Measurement of Atmospheric SO₂ of the Order of Parts in 10⁹. *Applied Optics* 40, 949–956.
- Gilge, S. und C. Plass-Dülmer (2010). Stark erhöhte SO₂-Konzentrationen an der Zugspitze infolge des Eyjafjallajökull-Ausbruchs.
- Giordmaine, J. A. und R. C. Miller (1965). Tunable Coherent Parametric Oscillation in LiNbO₃ at Optical Frequencies. *Physical Review Letters* 14, 973–976.

- Goers, U.-B. (1995). Laser remote sensing of sulfur dioxide and ozone with the mobile differential absorption lidar ARGOS. *Optical Engineering* 34, 3097–3102.
- Gordon, J. P., W. H. Louisell, und L. R. Walker (1963). Quantum Fluctuations and Noise in Parametric Processes ii. *Phys. Rev.* 129, 481–485.
- Grant, W. B., A. M. Brothers, und J. R. Bogan (1988). Differential absorption lidar signal averaging. *Applied Optics* 27, 1934–1938.
- Hair, J. W., C. Cleckner, K. Murray, D. Fratello, C. Naftel, J. Collins, A. Notari, und W. Welch (2010). Development of the Global Ozone Lidar Demonstrator (GOLD) for the Global Hawk. Technical report, NASA Langley Research Center, Hampton.
- Halldorsson, T. und J. Langerholc (1978). Geometrical form factors for the lidar function. *Applied Optics* 17, 240–244.
- Hansson, G., H. Karlsson, S. Wang, und F. Laurell (2000). Transmission Measurements in KTP and Isomorphic Compounds. *Applied Optics* 39, 5058–5069.
- Hecht, E. (2005). *Optik*. Oldenbourg Wissenschaftsverlag.
- Heland, J., H. Schlager, A. Richter, und J. P. Burrows (2002). First comparison of tropospheric NO₂ column densities retrieved from GOME measurements and in situ aircraft profile measurements. *Geophysical Research Letters* 29, 44/1–44/4.
- Hints, E. J., K. A. Boering, E. M. Weinstock, J. G. Anderson, B. L. Gary, L. Pfister, B. C. Daube, S. C. Wofsy, M. Loewenstein, J. R. Podolske, J. J. Margitan, und T. P. Bui (1998). Troposphere-to-stratosphere transport in the lowermost stratosphere from measurements of H₂O, CO₂, N₂O and O₃. *Geophysical Research Letters* 25(14), 2655–2658.
- Hoerling, M. P., T. K. Schaack, und A. J. Lenzen (1991). Global Objective Tropopause Analysis. *Monthly Weather Review* 119, 1816–1831.
- Hoinka, K. P. (1998). Statistics of the Global Tropopause Pressure. *Monthly Weather Review* 126, 3303–3325.
- Holton, J. R., P. H. Haynes, M. E. McIntyre, A. R. Douglass, R. B. Rood, und L. Pfister (1995). Stratosphere-troposphere exchange. *Reviews of Geophysics* 33, 403–439.
- Hoor, P., H. Fischer, L. Lange, J. Lelieveld, und D. Brunner (2002). Seasonal variations of a mixing layer in the lowermost stratosphere as identified by the CO-O₃ correlation from in situ measurements. *Journal of Geophysical Research* 107, 4044.
- Hoor, P., C. Gurk, D. Brunner, M. Hegglin, H. Wernli, und H. Fischer (2004). Seasonality and extent of extratropical TST derived from in-situ CO measurements during SPURT. *Atmospheric Chemistry and Physics* 4, 1427–1442.
- Hulburt, E. O. (1937). Observations of a searchlight beam to an altitude of 28 km. *Journal of the Optical Society of America A* 27, 377–382.
- Immler, F., D. Engelbart, und H. Vömel (2009). Der Lindenberger Methodenvergleich in der freien Atmosphäre (LUAMI Kampagne). *MOL-ROA aktuell*.

- IPCC (2007). *Couplings Between Changes in the Climate System and Biogeochemistry*. In: *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press.
- Ismail, S. und E. V. Browell (1989). Airborne and spaceborne lidar measurements of water vapour profiles: a sensitivity analysis. *Applied Optics* 28, No. 17.
- Jackson, J. D. (1998). *Classical Electrodynamics* (3 ed.). John Wiley & Sons.
- Johnson, E. A., R. C. Meyer, R. E. Hopkins, und W. H. Mock (1939). The Measurement of Light Scattered by the Upper Atmosphere from a Search-Light Beam. *Journal of the Optical Society of America A* 29, 512–517.
- Karpechko, A., A. Lukyanov, E. Kyro, S. Khaikin, L. Korshunov, R. Kivi, und H. Vömel (2007). The water vapour distribution in the arctic lowermost stratosphere during Lautlos campaign and related transport processes including stratosphere-troposphere exchange. *Atmospheric Chemistry and Physics* 7, 107–119.
- Kempfer, U., W. Carnuth, R. Lotz, und T. Trickl (1994). A wide-range ultraviolet lidar system for tropospheric ozone measurements: Development and application. *Review of Scientific Instruments* 65, 3145–3164.
- Kiemle, C., W. A. Brewer, G. Ehret, R. M. Hardesty, A. Fix, C. Senff, M. Wirth, G. Poberaj, und M. A. LeMone (2007). Latent Heat Flux Profiles from Collocated Airborne Water Vapor and Wind Lidars during IHOP 2002. *American Meteorological Society* 24, 627–639.
- Kiemle, C. und G. Ehret (2005). Technical Note 240: Performance Simulation of Space-based Active Optical Sensors for Pressure, Temperature and Greenhouse Gases Observations (WP 240). Technical report, DLR.
- Kiemle, C., G. Ehret, und A. Giez (1997). Estimation of boundary layer humidity fluxes and statistics from airborne differential absorption lidar (DIAL). *Journal of Geophysical Research* 102, 29,189–29,203.
- Kiemle, C., M. Quatrevalet, G. Ehret, A. Amediek, A. Fix, und M. Wirth (2011). Sensitivity studies for a space-based methane lidar mission. *Atmospheric Measurement Techniques* 4, 2195–2211.
- Kleinman, D. A. (1962). Nonlinear Dielectric Polarization in Optical Media. *American Physical Society* 126, 1977–1979.
- Klett, J. D. (1981). Stable analytical inversion solution for processing lidar returns. *Applied Optics* 20, 211–220.
- Klett, J. D. (1985). Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratios. *Applied Optics* 24, 1638–1643.
- Kley, D., J. Russell, und C. Phillips (2000). SPARC Report N°2 (2000) Upper Tropospheric and Stratospheric Water Vapour. Technical report, World Climate Research Programme (WCRP).
- Koechner, W. (November 1999). *Solid-state laser engineering*. Springer.
- Komine, H. (1988). Optical parametric oscillation in a beta-barium borate crystal pumped by an XeCl excimer laser. *Opt. Lett.* 13, 643–645.

- Kondratyuk, N. V., A. A. Shagov, K. L. Demidchik, A. M. Yurkin, und A. E. Kokh (2000). BBO-crystal optical parametric oscillator tunable over the 300 - 2340 nm range and pumped by the 4th harmonic of a Nd :YAG laser. *Quantum Electronics* 30, 253–254.
- Kung, A. (1994). *Appl. Phys. Lett.* 65, 1082–1084.
- Law, K. S., P.-H. Planevin, V. Thouret, A. Marenco, W. A. H. Asman, M. Lawrence, P. J. Crutzen, J.-F. Muller, D. A. Hauglustaine, und M. Kanakidou (2000). Comparison between global chemistry transport model results and Measurement of Ozone and Water Vapor by Airbus In-Service Aircraft (MOZAIC) data. *Journal of Geophysical Research* 105, 1503–1525.
- Lazzarotto, B., M. Frioud, G. Larcheveque, V. Mitev, P. Quaglia, V. Simeonov, A. Thompson, H. van den Bergh, und B. Calpini (2001). Ozone and water-vapor measurements by Raman lidar in the planetary boundary layer: error sources and field measurements. *Applied Optics* 40, 2985–2997.
- Louisell, W. H., A. Yariv, und A. E. Siegman (1961). Quantum Fluctuations and Noise in Parametric Processes i. *Phys. Rev.* 124, 1646–1654.
- Maiman, T. H. (1960). Stimulated Optical Radiation in Ruby. *Nature* 187, 493–494.
- Malicet, J., D. Daumont, J. Charbronnier, C. Parisse, A. Chakir, und J. Brion (1995). Ozone UV spectroscopy. II. Absorption cross-sections and temperature dependence. *Journal of Atmospheric Chemistry* 21, 263–273.
- Maxwell, J. C. (1865). A Dynamical Theory of the Electromagnetic Field. *Royal Society Transactions* 155, 459–512.
- Mayer, B. und A. Kylling (2005). Technical note: The libRadtran software package for radiative transfer calculations - description and examples of use. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions* 5, 1319–1381.
- McClung, F. J. und R. W. Hellwarth (1962). Giant Optical Pulsations from Ruby. *Journal of Applied Physics* 33, 828–829.
- McDermid, S., S. M. Godin, und L. O. Lindqvist (1990). Ground-based laser DIAL system for long-term measurements of stratospheric ozone. *Applied Optics* 29, 3603–3612.
- Megie, G., J. Y. Allain, M. L. Chanin, und J. E. Blamont (1977). Vertical profile of stratospheric ozone by lidar sounding from the ground. *Nature London* 270, 329.
- Megie, G. J., G. Ancellet, und J. Pelon (1985). Lidar measurements of ozone vertical profiles. *Applied Optics* 24, 3454–3463.
- Meister, A. (2005). *Entwicklung eines UV-Lasertransmitters und Aufbau eines flugzeuggetragenen DIAL für Ozonmessungen in der Troposphäre*. Ph. D. thesis, Universität Bayreuth.
- Middleton, W. E. K. und A. F. Spilhaus (Eds.) (1953). *Meteorological Instruments*. University of Toronto Press.
- Miles, R. B., W. R. Lempert, und J. N. Forkey (2001). Laser Rayleigh scattering. *Measurement Science and Technology* 12, R33–R51.
- Nickovic, S., G. Kallos, A. Papadopolous, und O. Kakaliagou (2001). A model for prediction of desert dust cycle in the atmosphere. *Journal of Geophysical Research* 106, 18113–18130.

- Nölle, A., F. Pätzold, S. Pätzold, R. Meller, G. K. Moortgat, E. P. Röth, R. Ruhnke, und H. Keller-Rudek (1998). UV / Vis Spectra of Atmospheric Constituents Version 1. Technical report, DLR-DFD (Deutsches Fernerkundungsdatenzentrum), Oberpfaffenhofen. ISBN 3-89100-029-4 <http://www.science-softcon.de/>.
- Pan, L., S. Solomon, W. Randel, J.-F. Lamarque, P. Hess, J. Gille, E.-W. Chiou, und M. P. McCormick (1997). Hemispheric asymmetries and seasonal variations of the lowermost stratospheric water vapor and ozone derived from SAGE II data. *Journal of Geophysical Research* 102, 28,177–28,184.
- Pan, L. L., P. Konopka, und E. V. Browell (2006). Observations and model simulations of mixing near the extratropical tropopause. *Journal of Geophysical Research* 111, D05106.
- Pan, L. L., W. J. Randel, B. L. Gary, M. J. Mahoney, E. J. Hintsä, und E. Hintsä (2004). Definitions and the sharpness of the extratropical tropopause: a trace gas perspective. *Journal of Geophysical Research* 109, 11 PP.
- Pan, L. L., J. C. Wei, D. E. Kinnison, R. R. Garcia, D. J. Wuebbles, und G. P. Brasseur (2007). A set of diagnostics for evaluating chemistry-climate models in the extratropical tropopause region. *Journal of Geophysical Research* 112, D09316.
- Papayannis, A., D. Balis, P. Zanis, E. Galani, H. Wernli, C. Zerefos, A. Stohl, S. Eckhardt, und V. Amiridis (2005). Sampling of an STT event over the Eastern Mediterranean region by lidar and electrochemical sonde. *Annales Geophysicae* 23, 2039–2050.
- Papayannis, A. D., J. Porteneuve, D. Balis, C. Zerefos, und E. Galani (1999). Design of a new DIAL system for tropospheric and lower stratospheric ozone monitoring in Northern Greece. *Physics and Chemistry of the Earth, Part C: Solar, Terrestrial & Planetary Science* 24, 439–442.
- Patmore, N. und R. Toumi (2006). An entropy-based measure of mixing at the tropopause. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 132, 1949–1967.
- Paul, J., F. Fortuin, und H. Kelder (1998). An ozone climatology based on ozonesonde and satellite measurements. *Journal of Geophysical Research* 103, 709–734. <http://www.temis.nl/data/fortuin.html>.
- Peltz, M. (2004). *Charakterisierung von neuen nichtlinearen Kristallen zur Frequenzkonversion von Lichtimpulsen gütegeschalteter Festkörperlaser*. Tenea Verlag.
- Peltz, M., J. Bartschke, A. Borsutzky, R. Wallenstein, S. Vernay, T. Salva, und D. Rytz (2005). Harmonic generation in bismuth triborate (BiB₃O₆). *Applied Physics B* 81, 487–495.
- Penndorf, R. (1957). Tables of the Refractive Index for Standard Air and the Rayleigh Scattering Coefficient for the Spectral Region between 0.2 and 20.0 micro m and Their Application to Atmospheric Optics. *Journal of the Optical Society of America A* 47, 176–182.
- Piironen, P. und E. W. Eloranta (1994). Demonstration of a high-spectral-resolution lidar based on an iodine absorption filter. *Optics Letters* 19, 234–236.
- Ping, C. (1995). Isentropic cross-tropopause mass exchange in the extratropics. *Journal of Geophysical Research* 100, 16661–16674.
- Poberaj, G., A. Fix, A. Assion, M. Wirth, C. Kiemle, und G. Ehret (2002). Airborne all-solid-state DIAL for water vapour measurements in the tropopause region: system description and assessment of accuracy. *Applied Physics B: Lasers and Optics* 75, 165–172.

- Poprawe, P. D. R. (2005). *Lasertechnik für die Fertigung*. Springer-Verlag.
- Press, W. H., S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, und B. P. Flannery (2002). *Numerical Recipes in C: The Art of Scientific Computing (Second Edition)*. Cambridge University Press.
- Proffitt, M. H. und A. O. Langford (1997). Ground-based differential absorption lidar system for day or night measurements of ozone throughout the free troposphere. *Applied Optics* 36, 2568–2585.
- Ray, E. A., F. L. Moore, J. W. Elkins, G. S. Dutton, D. W. Fahey, H. Vömel, S. J. Oltmans, und K. H. Rosenlof (1999). Transport into the Northern Hemisphere lowermost stratosphere revealed by in situ tracer measurements. *Journal of Geophysical Research* 104, 26,565–26,580.
- Reider, G. A. (1997). *Photonik*. Springer.
- Remsberg, E. E. und L. L. Gordley (1978). Analysis of differential absorption lidar from the Space Shuttle. *Applied Optics* 17, 624–630.
- Rothman, L. S., D. Jacquemart, A. Barbe, D. C. Benner, M. Birk, L. R. Brown, M. R. Carleer, C. Chackerian Jr., K. Chance, L. H. Coudert, V. Dana, V. M. Devi, J.-M. Flaud, R. R. Gamache, A. Goldman, J.-M. Hartmann, K. W. Jucks, A. G. Maki, J.-Y. Mandin, S. T. Massie, J. Orphal, A. Perrin, C. P. Rinsland, M. A. H. Smith, J. Tennyson, R. N. Tolchenov, R. A. Toth, J. V. Auwera, P. Varanasi, und G. Wagner (2005). The HITRAN 2004 molecular spectroscopic database. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer* 96, 139–204.
- Ruppersberg, G. H., M. Kerschner, M. Noormohammadian, U. G. Oppel, und W. Renger (1997). The Influence of Multiple Scattering on Lidar Returns by Cirrus Clouds and an Effective Inversion Algorithm for the Extinction Coefficient. *Beiträge zur Physik der Atmosphäre* 70, 91–107.
- Savitzky, A. und M. J. E. Golay (1964). Smoothing and Differentiation of Data by Simplified Least Squares Procedures. *Analytical Chemistry* 36, 1627–1639.
- Schäfler, A., A. Dörnbrack, C. Kiemle, S. Rahm, und M. Wirth (2010). Tropospheric water vapor transport as determined from airborne lidar measurements. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 27, 2017–2030.
- Shapiro, M. A., T. Hampel, und A. J. Krueger (1987). The Arctic Tropopause Fold. *Monthly Weather Review* 115, 444–454.
- Siegman, A. E. (1991). Defining the effective radius of curvature for a nonideal optical beam. *IEEE Journal of Quantum Electronics* 27, 1146–1148.
- Simoneonov, V., B. Lazzarotto, P. Quaglia, H. van den Bergh, und B. Calpini (2000). Three-wavelength UV ozone DIAL based on a Raman cell filled with two Raman active gases.
- Smit, H. G. J. und D. Kley (1996). Jülich ozone sonde intercomparison experiment (JOSIE). Technical report, World Meteorological Organization Global Atmosphere Watch.
- Synge, E. H. (1930). XCI. A method of investigating the higher atmosphere. *Philosophical Magazine* 9, 1014 – 1020.
- Trickl, T., N. Bärtsch-Ritter, H. Eisele, M. Furger, R. Mücke, M. Sprenger, und A. Stohl (2010). High-ozone layers in the middle and upper troposphere above Central Europe: potential import from the stratosphere along the subtropical jet stream. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussion* 10, 30473–3053.

- Tuve, M. A., E. A. Johnson, und O. R. Wulf (1935). A New Experimental Method for Study of the Upper Atmosphere. *Terrestrial Magnetism and Atmospheric Electricity* 40, 452–454.
- van de Hulst, H. C. (December 1, 1981). *Light Scattering by Small Particles*. Dover Publications.
- Vanherzeele, H., J. Bierlein, und F. Zumsteg (1988). *Appl. Opt.* 27, 3314–3316.
- Vaughan, J. M., N. J. Geddes, P. H. Flamant, und C. Flesia (1998). Establishment of a backscatter coefficient and atmospheric database. *Defence Evaluation and Research Agency (part of the UK Ministry of Defence)*, 110.
- Veselovskii, I. und B. Barchunov (1999). Excimer-laser-based lidar for tropospheric ozone monitoring. *Applied Physics B* 68, 1131–1137.
- Völger, P., J. Bösenberg, und I. Schult (1996). Scattering Properties of Selected Model Aerosols Calculated at UV-Wavelengths: Implications for DIAL measurements of tropospheric ozone. *Contributions to atmospheric physics* 69, 177–187.
- Wagner, W. G. und R. W. Hellwarth (1964). Quantum Noise in a Parametric Amplifier with Lossy Modes. *Phys. Rev.* 133, A915–A920.
- Wang, Z., H. Nakane, H. Hu, und J. Zhou (1997). Three-wavelength dual differential absorption lidar method for stratospheric ozone measurements in the presence of volcanic aerosols. *Applied Optics* 36, 1245–1252.
- Weitkamp, K. (Ed.) (2005). *Lidar: Range-Resolved Optical Remote Sensing of the Atmosphere*. Springer Verlag GmbH.
- Wetter, T. (2002). *Spurengasmessungen in der Tropopausenregion zur Charakterisierung von Stratosphären-Troposphären-Austauschprozessen*. Ph. D. thesis, Johan Wolfgang Goethe-Universität in Frankfurt am Main.
- Wirth, M., A. Fix, P. Mahnke, H. Schwarzer, F. Schrandt, und G. Ehret (2009). The airborne multi-wavelength water vapor differential absorption lidar WALES: system design and performance. *Applied Physics B: Lasers and Optics* 96, 201–213.
- Wirth, M., C. Kiemle, und G. Ehret (2001). Evaluation of Spaceborne Differential Absorption Lidar for Water Vapour, Ozone and Carbon Dioxide (DIAL). Technical report, DLR mit Unterstützung von Astrium Friedrichshafen and Astrium Toulouse.
- Wirth, V. (2000). Thermal versus dynamical tropopause in upper-tropospheric balanced flow anomalies. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 126, 299–317.
- World Meteorological Organization (1957). Definition of the thermal tropopause. *WMO Bulletin of the American Meteorological Society* 6, 136–137.
- Wulfmeyer, V., A. Behrendt, H.-S. Bauer, C. Kottmeier, U. Corsmeier, A. Blyth, G. Craig, U. Schumann, M. Hagen, S. Crewell, P. di Girolamo, C. Flamant, M. Miller, A. Montani, S. Mobbs, E. Richard, M. W. Rotach, M. Arpagaus, H. Russchenberg, P. Schlüssel, M. König, V. Gärtner, R. Steinacker, M. Dorninger, D. D. Turner, T. Weckwerth, A. Hense, und C. Simmer (2008). Research campaign: the convective and orographically induced precipitation study. *Bulletin of the American Meteorological Society* 89, 1477.
- Zahn, A. und C. A. M. Brenninkmeijer (2003). New Directions: A Chemical Tropopause Defined. *Atmospheric Environment* 37, 439–440.

Zernike, F. und J. E. Midwinter (1973). *Applied Nonlinear Optics*. John Wiley & Sons.

Zhang, J. Y., J. Y. Huang, Y. R. Shen, und C. Chen (1993). *Journal of the Optical Society of America B B 10*, 1758–1764.

Zängl, G. und K. P. Hoinka (2001). The Tropopause in the Polar Regions. *Journal of Climate 14*, 3117–3139.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei all denjenigen bedanken, die auf unterschiedlichste Weise zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Besonderer Dank gilt meinem Erstgutachter Prof. Dr. Ulrich Schumann, dem Institutsleiter des IPA, meinem Zweitgutachter Prof. Dr. Eberhard Riedle von der LMU-München sowie Dr. Gerhard Ehret, dem Abteilungsleiter der Lidar-Gruppe.

Dr. Andreas Fix, mein fachlicher Betreuer, hat mich aufgrund seiner Erfahrung und Kompetenz bei wichtigen Entscheidungen immer gut beraten wodurch es ihm gelungen ist, die Arbeit in richtige Bahnen zu lenken. Er hat damit maßgeblich zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen, wofür ich ihm äußerst dankbar bin.

Weiter gilt mein Dank Dr. Martin Wirth, der viel Zeit und Mühe investiert hat, dass das von mir entwickelte Lasermodul mit dem WALES-System kompatibel ist. Darüberhinaus hat er ein Computer-gestütztes Programm geschrieben mit welchem die von mir entwickelte Hardware angesteuert werden kann. Dadurch ist mir viel Arbeit erspart geblieben.

Hans Krafczyk aus der mechanischen Werkstatt möchte ich nicht nur für die präzise und einwandfreie Fertigung der mechanischen Komponenten danken sondern auch für die Verbesserungsvorschläge meiner technischen Zeichnungen, welche sich im Laufe der Arbeit immer wieder als äußerst nützlich erwiesen haben. Außerdem möchte ich Rudolf Simmet und Philipp Roßi für die kompetente Bearbeitung zahlreicher elektronischer Problemstellungen danken. Peter Mahnke sowie Michael Fraczek danke ich für ihr Interesse an scheinbar unlösbaren Problemstellungen im Laserlabor und das Aufzeigen möglicher Ursachen und neuer Lösungsansätze. Dem Unternehmen Laseroptik GmbH danke ich für die kompetente Beratung, dem stets einwandfreien Service und die schnelle Herstellung der Resonatorspiegel die in dem Herzstück meiner Arbeit eingebaut sind. Dr. Wolfgang Steinbrecht vom meteorologischen Observatorium des DWD auf dem Hohenpeißenberg habe ich für die Bereitstellung der Lidar- und Sondendaten die für den Instrumentenvergleich benötigt wurden zu danken.

Andreas Schäfler danke ich für die Bereitschaft zur Wettervorhersage während den Lidar-Messungen und für die Bereitstellung von Wetterdaten zur besseren Interpretation meiner Messergebnisse. Nico Hannemann und Markus Hirschberger möchte ich nicht nur für die zahlreichen Diskussionen und Gespräche auf fachlicher und privater Ebene danken sondern auch für die so manchen lustigen Stunden im gemeinsamen Büro. Desweiteren möchte ich allen nichtgenannten Mitgliedern der Lidar-Gruppe für die Unterstützung und angenehme Atmosphäre danken.

Zuletzt möchte ich meinen Freunden und meiner Familie danken, ohne deren Rückhalt diese Arbeit nicht möglich wäre, und besonders gilt mein Dank Bianca, die in der Zeit, in der ich in München lebte, viel Verständnis und Geduld aufgebracht hat.

Herzlichen Dank.

Lebenslauf

Felix Karl Friedrich Steinebach
geboren am 27.09.1983 in Gießen
ledig

- 2002 Abitur am Albert-Einstein-Gymnasium, Schwalbach Ts.
- 2002 - 2007 Studium der Physik
 an der Technischen Universität Darmstadt
- 2006 - 2007 Diplomarbeit am Institut für Angewandte Physik
 der Technischen Universität Darmstadt,
 Thema: *Interferenzfilterstabilisierte Diodenlaser für Licht bei 780 nm*
- 2007 Diplom in Physik
- 2008 Promotionsstudium der Physik
 an der Ludwig-Maximilians-Universität, München
- seit 2008 Doktorand am Institut für Physik der Atmosphäre,
 Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt, Oberpfaffenhofen