

# **Entwicklung, Aufbau und Messungen eines schnellen Eiskeimzählers**

Dissertation zu Erlangung des Grades  
„Doktor der Naturwissenschaften“  
am Fachbereich Physik, Mathematik und Informatik  
der Johannes Gutenberg – Universität  
in Mainz

Björn Nillius  
geboren in Groß-Gerau

Mainz 2008

Erster Berichtstatter:

Zweiter Berichtstatter:

Tag der mündlichen Prüfung: 05.11.2008

## Inhaltsverzeichnis

<b>Inhaltsverzeichnis.....</b>	<b>1</b>
<b>1. Einleitung .....</b>	<b>3</b>
<b>2. Theoretischer Hintergrund des Messprinzips .....</b>	<b>6</b>
2.1. Kondensationsprozesse, Gefrierprozesse und Mischung.....	6
<b>3. Eiskeime.....</b>	<b>14</b>
3.1. Historische Entwicklung von Eiskeimzählern.....	14
3.2. IN Anzahlkonzentrationen ( $N_{IN}$ ).....	18
3.3. Eigenschaften von Eiskeimen .....	24
3.4. Rolle der Eiskeime in der Troposphäre .....	25
<b>4. Entwicklung eines schnellen Eiskeimzählers.....</b>	<b>28</b>
4.1. Ansatz der kontinuierlichen Expansion .....	28
4.1.1. FLUENT-Berechnungen .....	30
4.2. Ansatz der Mischung (FINCH).....	44
4.2.1. FLUENT - Berechnungen .....	45
4.2.2. Aufbau und Funktionsweise von FINCH .....	59
4.2.3. Der instrumentelle Aufbau im Detail.....	62
4.2.3.1. Datenerfassung und Steuerung .....	63
4.2.3.2. Aerosoleinlass / Konditionierung der Flüsse .....	65
4.2.3.3. Wachstumskammer.....	70
4.2.3.4. Temperatur- und Feuchtemessung .....	72
4.2.3.5. Virtueller Impaktor .....	74
4.2.3.6. Optischer Sensor .....	78
<b>5. Messungen .....</b>	<b>87</b>
5.1. Labormessungen.....	93
5.2. CLACE 6 .....	99
5.2.1. Messungen am Totalen Einlass.....	102
5.2.2. Messungen am Eis-CVI Einlass.....	107
5.3. The International Workshop on Comparing Ice Nucleation Measuring Systems (ICIS 2007) .....	111
5.3.1. Arizona Test Dust ATD.....	116

5.3.2. GfG Ruß.....	121
5.3.3. Sahara Dust .....	125
5.3.4. SNOWMAX .....	128
5.3.5. Vergleich der normierten Aktivierungskurven $N_{IN}/N_{CN}$ der verschiedenen Aerosoltypen .....	130
5.3.6. Atmosphärische Vergleichsmessung mit FRIDGE.....	131
<b>6. Zusammenfassung.....</b>	<b>134</b>
Fazit .....	136
Ausblick.....	136
<b>Literaturverzeichnis .....</b>	<b>137</b>
<b>A Anhang .....</b>	<b>146</b>
A.1 Berechnung des Fehlers bei der Messung des Sättigungsverhältnisses ...	146
A.2 Berechnung der Diffusionsverlustrate in Aerosolleitungen .....	147
A.3 Fehlerabschätzung der Messungen.....	149
<b>B Verzeichnisse.....</b>	<b>153</b>
B.1 Abbildungsverzeichnis .....	153
B.2 Tabellenverzeichnis.....	161
B.3 Abkürzungen und Symbole.....	162
B.4 Akronyme .....	164
<b>C Übersicht .....</b>	<b>166</b>
<b>D Abstract .....</b>	<b>167</b>
<b>Erklärung der Selbständigkeit .....</b>	<b>168</b>
<b>Veröffentlichungen in Verbindung mit der vorliegenden Arbeit.....</b>	<b>169</b>
<b>Danksagungen .....</b>	<b>178</b>
<b>Curriculum vitae .....</b>	<b>179</b>

### 1. Einleitung

Die Troposphäre ist die unterste Schicht der die Erde umhüllenden Gasschicht. Die Prozesse in dieser sind zum größten Teil für das Wettergeschehen verantwortlich.

Hierbei sind Wolken von zentraler Bedeutung für das Klima und den Wasserkreislauf der Erde. So reflektieren sie das Sonnenlicht und reduzieren die langwellige Ausstrahlung von der Erde. Sehr großen Einfluss auf deren Entstehung und Entwicklung hat dabei das atmosphärische Aerosol. Als Aerosol-Partikel (AP) werden flüssige und feste Schwebeteilchen in der Luft mit einem Durchmesser von  $0.001\ \mu\text{m}$  bis mehr als  $100\ \mu\text{m}$  bezeichnet. Sie können sowohl natürlichen Ursprungs sein, zum Beispiel von Vulkanausbrüchen, Aufwirbelung von Wassertröpfchen (Meersalzaerosol) oder Staub, als auch anthropogene Quellen haben wie Verbrennungsprozesse, Straßenabrieb oder Landwirtschaft.

Für die Bildung jedes Wolkentropfens wird ein Aerosolpartikel als Keim, der so genannte Wolkenkondensationskern (Cloud Condensation Nucleus, CCN) benötigt. Ob ein AP auch als CCN aktiv ist, hängt sowohl von dessen Größe und chemischen Zusammensetzung, als auch von der ihn umgebenden Temperatur und Übersättigung ab. Ein anthropogener Eintrag von Aerosol kann für eine Umverteilung von Niederschlägen und eine Veränderung des globalen Strahlungsantriebes sorgen.

Abbildung 1.1 [IPCC-Reports, (2007)] zeigt den anthropogenen Strahlungsantrieb für  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{NO}_2$  und Aerosol, sowie andere wichtige Faktoren und Mechanismen. Das Aerosol kann den Strahlungsantrieb (radiative forcing) durch einen direkten und indirekten Effekt beeinflussen. Durch eine Änderung der Anzahlkonzentrationen, Größenverteilung und chemischen Zusammensetzung kann sich beim direkten Aerosoleffekt die Streuung und Absorption des Sonnenlichts durch die Aerosolpartikeln verändern. Beim indirekten Aerosoleffekt hat dies Einfluss auf die Wolkenalbedo [Twomey et al., (1984)] und die Lebensdauer der Wolken und somit indirekt auf den Strahlungshaushalt.

Das Aerosol hat somit einen globalen Einfluss auf das Klima der Erde. Das wissenschaftliche Verständnis dieser Effekte hingegen wird momentan noch als gering eingestuft.

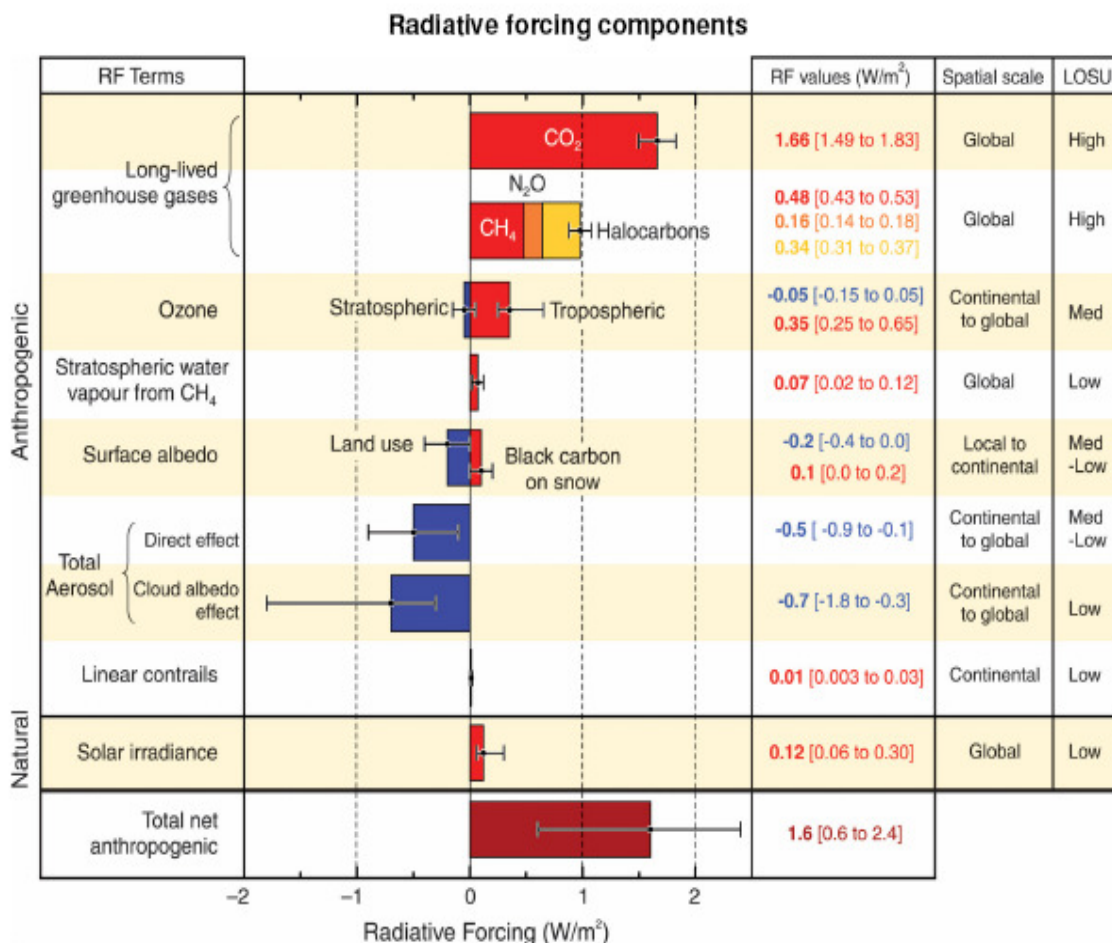
Besonders komplex wird die Betrachtung von Wolken bei Temperaturen unter  $0^\circ\text{C}$ .

So können gewöhnlich Aerosolpartikel unter bestimmten, relativ moderaten Bedingungen von Übersättigungen oder Unterkühlung Eis bilden. Diese werden als Eiskeime (IN) bezeichnet [Vali, (1985)].

In den mittleren Breiten sind Eiskeime für Vereisung von Wolken und Niederschlagsentstehung von zentraler Bedeutung.

So kann eine Änderung der IN-Anzahlkonzentration zu einer Änderung von Niederschlagsintensität und -verteilung führen.

Obwohl der Einfluss auf das Wettergeschehen der Eiskeime sehr groß sein kann, ist ihre Anzahlkonzentration mit bis zu  $100\ \text{l}^{-1}$  im Vergleich zu den CCN und CN (condensation nucleus) mit bis zu einige  $100\ \text{cm}^{-3}$  bzw. mehreren  $10000\ \text{cm}^{-3}$  in der Atmosphäre sehr gering.



**Abbildung 1.1:** Globaler mittlerer Strahlungsantrieb (RF) in  $W/m^2$  für 2005 (beste Abschätzung und 5-95% Unsicherheitsbereich) in Bezug auf das Jahr 1750 für CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O und andere wichtige Faktoren und Mechanismen, zusammen mit der typischen räumliche Ausdehnung und der geschätzten Güte des wissenschaftlichen Verständnisses (LOSU) [IPCC, (2007)].

Des weitern können Eiskeime in vier unterschiedlichen Modi aktiv sein (Depositionsgefrieren, Immersionsgefrieren, Kondensationsgefrieren und Kontaktgefrieren, s. Kapitel 2.1)

All diese Faktoren machen die Messung der IN-Anzahlkonzentration sehr schwierig.

Besonders die sehr geringe Anzahlkonzentration und eine große zeitliche Variabilität der IN erfordern daher eine Messung mit einem schnellen Eiskeimzähler.

Bisher entwickelte Eiskeimzähler arbeiten mit einem Probenfluss mit einem Liter pro Minute, was bei der geringen Anzahlkonzentration zu einer sehr schlechten zeitlichen und bei Flugzeugmessungen zu einer schlechten räumlichen Auflösung führt. Auch die Aktivierungsübersättigung und -temperatur bei der die Anzahlkonzentrationen bestimmt werden, lassen sich nur sehr langsam ändern.

Dies zeigt die zwingende Notwendigkeit einer Entwicklung eines Eiskeimzählers mit hohem Sammelfluss (ca. 10 l/min) und der Möglichkeit der raschen Änderung von Aktivierungsübersättigung und -temperatur.

Eine weitere Anforderung sollte die Möglichkeit der Einzelteilchendetektion von Eiskristallen und damit von IN sein.

Im Rahmen des Sonderforschungsbereich SFB 641“ Die troposphärische Eisphase“ Teilprojekt A1 sollte ein schneller Eiskeimzähler mit diesen Eigenschaften entwickelt werden.

Zunächst waren zwei parallele Entwicklungen von Eiskeimzählern mit einem hohen Sammelfluss vorgesehen, zum einen an der Universität Frankfurt, zum anderen an der Universität Mainz. Auf Grund von nicht lösbareren Entwicklungsproblemen wurde die Entwicklung in Mainz eingestellt und ein gemeinsamer Eiskeimzähler an der Universität Frankfurt entwickelt.

Gründe für das Scheitern des Ansatzes in Mainz, sowie die Neuentwicklung in Frankfurt werden in der vorliegenden Arbeit aufgezeigt.

Diese gliedert sich im Wesentlichen in zwei Teile. Der Entwicklung eines schnellen Eiskeimzählers. Zu Beginn der Arbeit wurde das Prinzip der kontinuierlichen Expansion verfolgt. Mit dieser sollte eine Übersättigung bei Temperaturen unter 0°C zur Aktivierung von Eiskeimen, Anwachsen zu Eiskristallen bis hin zur anschließenden Detektion erreicht werden. Numerische Simulationen werden zeigen, dass die Entwicklung eines Eiskeimzählers mit dem Prinzip der kontinuierlichen Expansion nicht realisierbar ist.

Im weiteren Verlauf der Arbeit werden numerische Simulationen, Entwicklung und der Aufbau von FINCH (Fast Ice Nucleus CHamber) aufgezeigt. In diesem Ansatz werden die benötigten Bedingungen zur Messung von IN-Anzahlkonzentrationen durch eine Mischung unterschiedlicher Luftströme erzeugt.

Im zweiten Teil werden Messungen mit FINCH in Laborexperimenten, der Feldmesskampagne CLACE 6 (Cloud and Aerosol Characterization Experiment) auf dem Jungfraujoch, bei dem Vergleichsworkshop ICIS 2007 (The International Workshop on Comparing Ice Nucleation Measuring Systems) an der AIDA (Aerosol-Interaktion und Dynamik in der Atmosphäre) und Vergleichsmessungen von atmosphärischer Luft mit FRIDGE (Frankfurt Ice Deposition freezinG Experiment) vorgestellt, sowie mit Messungen aus der Literatur verglichen.

## 2. Theoretischer Hintergrund des Messprinzips

Im Fall von FINCH wird durch das Prinzip der Mischung verschiedener Gasflüsse unterschiedlicher Temperaturen und Feuchten eine Übersättigung in Bezug auf Wasser bzw. Eis bei Temperaturen unter 0 °C erzeugt. Dadurch wird eine Aktivierung und ein Anwachsen von CCN und IN zu Tropfen und Eiskristalle von mehreren Mikrometern erreicht. Im folgenden Abschnitt wird ein Einblick in den theoretischen Hintergrund der Mischung zur Erzeugung der Übersättigung, sowie der Kondensationsprozesse bei CCN und den Gefrierprozessen bei IN gegeben.

### 2.1. Kondensationsprozesse, Gefrierprozesse und Mischung

Das Anwachsen von Aerosolpartikeln durch Kondensation ist in der Atmosphäre der Massentransferprozess zwischen Gasphase und flüssiger oder fester Phase. Dieser Prozess benötigt normalerweise einen übersättigten Dampf und das Vorhandensein kleiner Partikel, den so genannten Kondensationskernen CN. In diesem Fall spricht man von heterogener Nukleation. Sie ist der einzige Mechanismus zur Entstehung von Wasserwolken in der Atmosphäre. Die als Kondensationskern in Wolken aktiven Partikel werden Wolkenkondensationskern (Cloud Condensation Nucleus, CCN) bezeichnet. Die dazu nötigen Übersättigungen von nur einigen zehntel bis wenigen Prozent entstehen durch Abkühlung gesättigter Luft, durch Mischung oder durch adiabatische Expansion. Im Fall von löslichen Kondensationskernen kann Kondensation auch bei untersättigten Bedingungen auftreten und größenstabile Tropfen können entstehen.

Treten diese Kondensationsprozesse in der Atmosphäre auf und es entstehen nur Wassertröpfchen, so spricht man von einer *flüssigen Wolke*.

Bei Temperaturen unter 0 °C können *Mischwolken* auftreten. Diese Wolke besteht dann sowohl aus unterkühlten Wassertropfen als auch Eiskristallen. Bei einer dritten Form, der *Eiswolke*, bestehen alle Wolkenpartikel aus Eiskristallen.

In der Atmosphäre würden Tropfen erst bei Temperaturen  $< -38$  °C frieren, wenn keine IN vorhanden wären. In diesem Fall spricht man von *homogenem Gefrieren*. Durch das Vorhandensein von IN können Eiskristalle auch schon bei Temperaturen  $> -38$  °C entstehen. Dies wird als *heterogenes Gefrieren* bezeichnet.

Beim heterogenen Gefrieren können die IN auf unterschiedliche Weise zum Entstehen eines Eiskristalls beitragen. Man unterscheidet dabei vier Eisnukleationsmodi (Abbildung 2.1).

Beim ersten Mode, dem *Depositionsgefrieren* lagert sich bei Temperaturen  $< 0$  °C und Übersättigung in Bezug auf Eis, Wasserdampf direkt als Eis auf dem IN an, was zum Anwachsen zu einem Eiskristall führt.

Beim *Immersionsgefrieren* verhält sich der Eiskeim zunächst wie ein CCN und bildet bei Übersättigung in Bezug auf Wasser und Temperaturen über 0 °C einen Tropfen.

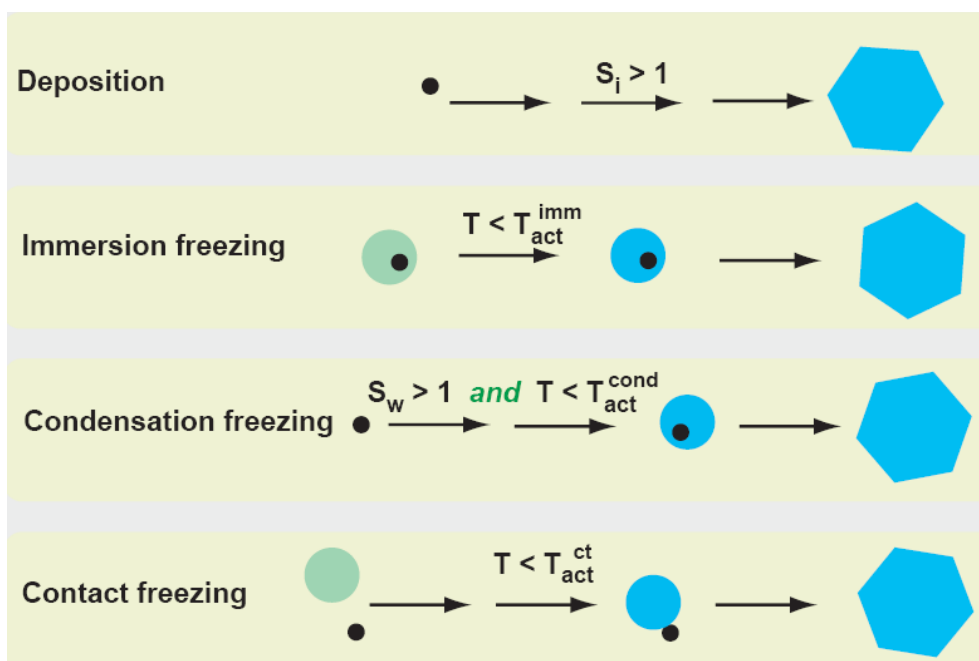


Wenn nun die Temperatur unter den Gefrierpunkt fällt und eine ausreichende Temperatur unterschreitet, beginnt der Tropfen zu Eis zu frieren.

Im dritten Fall dem *Kondensationsgefrieren* wird bei Temperaturen unter 0 °C wieder durch ein CCN ein Tropfen gebildet, dieser ist jedoch auch als IN aktiv, so dass der Tropfen bei Erreichen der IN Aktivierungsbedingungen zu Eis gefriert.

Im vierten Mode, dem *Kontaktgefrieren* friert ein unterkühlter Wassertropfen beim Kontakt mit einem Eiskeim zu Eis [Vali, (1985)], hierbei kann es sich sowohl um einen Eiskeim handeln, der von außen mit Wassertropfen in Kontakt kommt, als auch um einen in einem Tropfen befindlichen Eiskeim, der auf Grund von Brown'scher Bewegung von innen die Hülle des Eiskeims berührt<sup>1</sup>.

Heterogenes und homogenes Gefrieren werden auch als primäre Eisbildung bezeichnet.



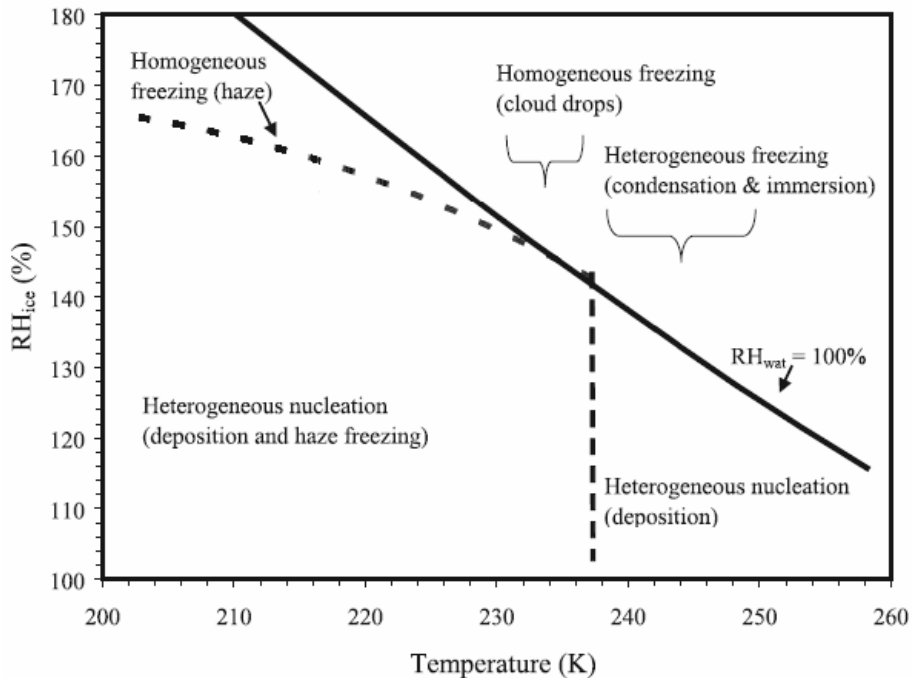
**Abbildung 2.1:** Die vier möglichen Modi zur Aktivierung eines Eiskeimes zum Anwachsen zum Eiskristall, bei unterschiedlichen Temperaturen  $T$  und Sättigungsverhältnissen  $S_{Eis}$  und  $S_w$ . Die Temperaturen  $T_{act}$  geben jeweils die Temperatur an, bei der das Tropfenwachstum stattfindet. [Vali, (2004)]

In Abbildung 2.2 sind die verschiedenen Gefrierprozesse als Funktion von Temperatur und relativer Feuchte mit Bezug auf Eis gezeigt.

Bei allen Prozessen, sowohl bei der Kondensation als auch bei den Gefrierprozessen ist in der Regel eine Übersättigung in Bezug auf Wasser bzw. Eis nötig.

<sup>1</sup> Shaw, R.: Ice formation by surface crystallization, Seminarvortrag im Rahmen des Meteorologischen Kolloquiums am 10.01.2008

Dies ist der Fall, wenn der Wasserdampfpartialdruck  $p_w$  bzw. Eisdampfpartialdruck  $p_E$  größer ist als der Sättigungsdampfdruck über einer Wasseroberfläche  $p_{\text{sat,w}}$  bzw. über einer Eisoberfläche  $p_{\text{sat,Eis}}$ . Bei  $p_w = p_{\text{sat,w}}$  bzw.  $p_{\text{sat,Eis}}$  herrscht Sättigung und bei  $p_w < p_{\text{sat,w}}$  bzw.  $p_{\text{sat,Eis}}$  Untersättigung.



**Abbildung 2.2:** Verschiedene Gefrierregime für homogenes Gefrieren und heterogene Nukleation als Funktion von Temperatur und relative Feuchte im Bezug auf Eis. Die schwarze, durchgezogene Linie zeigt die 100% relative Feuchte im Bezug auf Wasser an. [Prenni et al., (2007), mit leichten Veränderungen]

Der Sättigungsdampfdruck von Wasser  $p_{\text{sat,w}}$  in hPa lässt sich mit der Parametrisierung von Sonntag (1994) wie folgt bestimmen.

$$p_{\text{sat,w}}(T) = \exp \left[ a + \frac{b}{T} + c \cdot T + d \cdot T^2 + e \cdot \ln T \right] \quad 2-1$$

Mit:

- $a = 16.635794$  in  $\ln(\text{hPa})$ ,
- $b = -6096.9385$  in  $\ln(\text{hPa}) \cdot ^\circ\text{C}$ ,
- $c = 0.02711193$  in  $\ln(\text{hPa}) \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$ ,
- $d = 1.67395 \cdot 10^{-5}$  in  $\ln(\text{hPa}) \cdot ^\circ\text{C}^{-2}$ ,
- $e = 2.433502$  in  $\ln(\text{hPa}) / \ln(^{\circ}\text{C})$ .

Für den Sättigungsdampfdruck von Eis  $p_{\text{sat,Eis}}$  in hPa ändern sich lediglich die Konstanten zu:

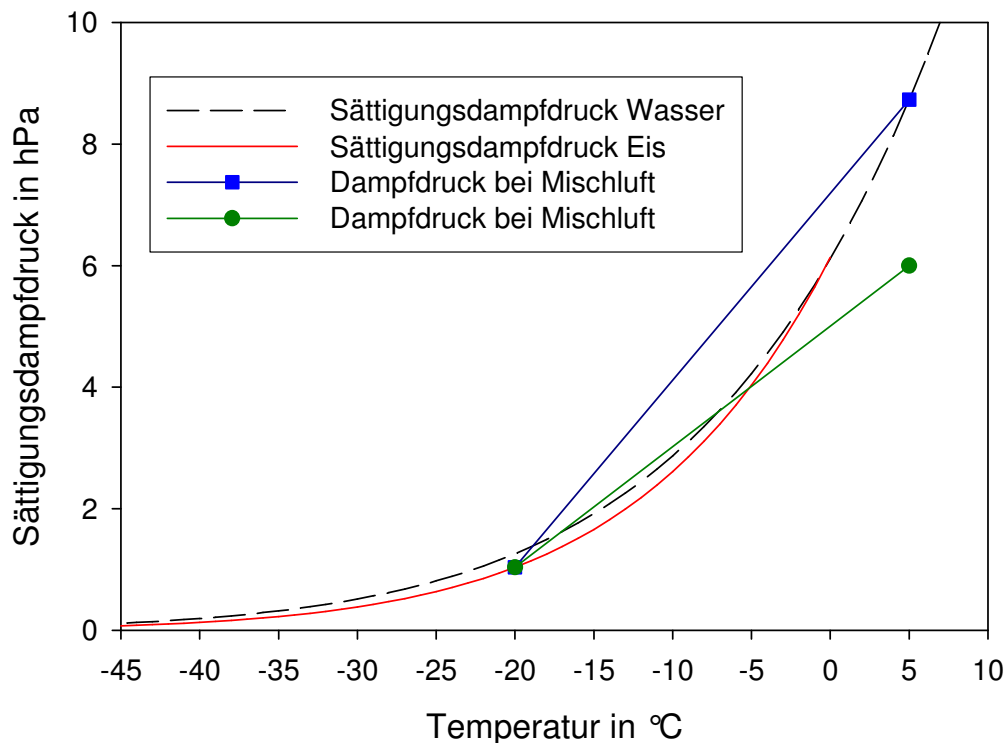
$$\begin{aligned} a &= 24.7219 \text{ in } \ln(\text{hPa}), \\ b &= -6024.5282 \text{ in } \ln(\text{hPa}) \text{ } ^\circ\text{C}, \\ c &= 0.010613868 \text{ in } \ln(\text{hPa}) \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}, \\ d &= 1.3198825 \cdot 10^{-5} \text{ in } \ln(\text{hPa}) \text{ } ^\circ\text{C}^{-2}, \\ e &= -0.4932577 \text{ in } \ln(\text{hPa}) / \ln(^\circ\text{C}). \end{aligned}$$

Das Sättigungsverhältnis für Wasser bzw. Eis ist durch  $S_w$  bzw.  $S_{\text{Eis}}$ :

$$S_w = \frac{p_w}{p_{\text{sat,w}}} \text{ bzw. } S_{\text{Eis}} = \frac{p_E}{p_{\text{sat,Eis}}} \quad 2-2$$

definiert. Bei  $S = 1$  herrscht Sättigung, bei  $S < 1$  Untersättigung und bei  $S > 1$  Übersättigung.

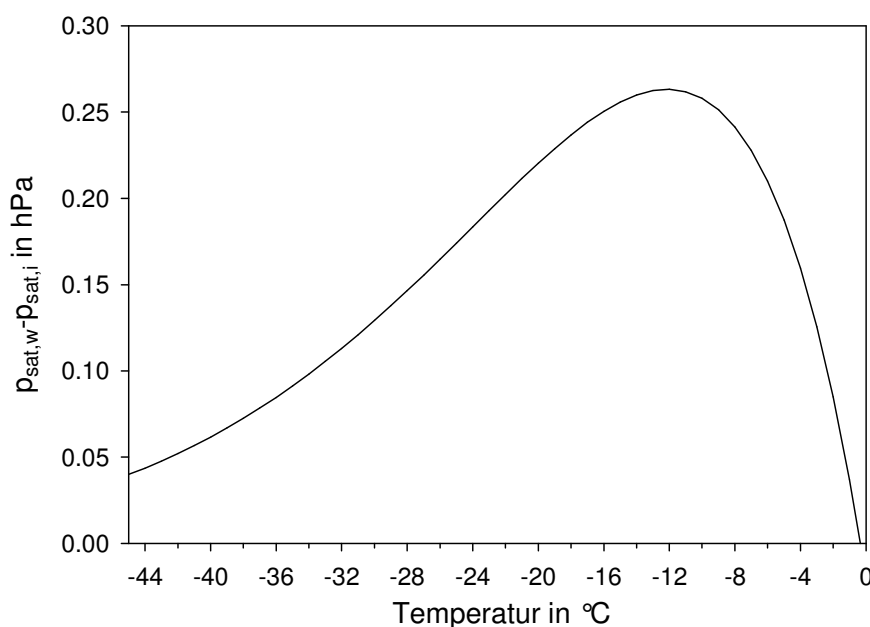
Multipliziert man das Sättigungsverhältnis mit dem Faktor 100, so erhält man die relative Feuchte für Wasser bzw. Eis in %.



**Abbildung 2.3:** Sättigungsdampfdruck in Bezug auf Wasser (schwarze, gestrichelt Linie) und Sättigungsdampfdruck in Bezug auf Eis (rote Linie) als Funktion der Temperatur. Die blaue Linie zeigt den Dampfdruck für eine Mischung zweier gesättigter Luftmassen je nach Mischungsverhältnis und die grüne Linie für eine gesättigte und eine ungesättigte Luftmasse.

Betrachtet man sich nun den Sättigungsdampfdruck in Bezug auf Wasser und Eis als Funktion der Temperatur, so erkennt man, dass  $p_{\text{sat,w}} > p_{\text{sat,Eis}}$  für Temperaturen unter  $0^\circ\text{C}$  ist (Abbildung 2.3). Dies sorgt dafür, dass bei Temperaturen unter  $0^\circ\text{C}$  bei einem bestimmten Wasserdampfdruck  $p$  das Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis größer ist als im Bezug auf Wasser. So kann in Bezug auf Eis bereits Übersättigung, aber in Bezug auf Wasser noch Untersättigung herrschen. Eine Aktivierung von IN des Depositionsmodes ist somit bereits bei Untersättigungen in Bezug auf Wasser möglich, ohne dass dies für IN aus den anderen Modi der Fall ist. Diese benötigen alle eine Übersättigung in Bezug auf Wasser.

In Abbildung 2.4 ist die Änderung von  $p_{\text{sat,w}} - p_{\text{sat,Eis}}$  als Funktion der Temperatur dargestellt. Man erkennt einen maximalen Unterschied bei einer Temperatur von  $-12^\circ\text{C}$ .



**Abbildung 2.4:** Änderung von  $p_{\text{sat,w}} - p_{\text{sat,Eis}}$  als Funktion der Temperatur.

Die nötige Übersättigung zur Aktivierung von CCN und IN wird in FINCH, wie bereits erwähnt, durch das Prinzip der Mischung hergestellt. In Abbildung 2.3 ist ebenfalls der Dampfdruck in Form einer Mischungslinie (blaue Linie) für eine Mischung von zwei gesättigten Luftströmen (blaue Quadrate), zum einen in Bezug auf Eis bei  $-20^\circ\text{C}$ , zum anderen in Bezug auf Wasser bei  $5^\circ\text{C}$  gezeigt. Je nach Mischungsverhältnis der beiden Luftströme verschieben sich die Temperatur und der Wasserdampfdruck entlang der Mischungslinie (blauen Geraden). Unter Einbezug der Gleichung 2-2, erkennt man, dass über den gesamten Bereich Übersättigung in Bezug auf Eis herrscht. Durch Mischung mit einem nicht gesättigten Luftstrom von  $5^\circ\text{C}$  (grüner Punkt) ist es möglich bei gleicher Mischtemperatur einen anderen Dampfdruck zu erzeugen (grüne Linie). Dies führt zu einem anderen Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis bzw. Wasser.

Allein durch Änderung der Feuchte eines Flusses und der Änderung des Mischungsverhältnisses ist es somit möglich einen weiten Bereich von Übersättigungen und Temperaturen einzustellen. Dieses Beispiel soll das Prinzip der Mischung nur veranschaulichen. Im späteren Aufbau von FINCH werden der Aerosolfluss, ein kalter trockener Fluss und ein warmer feuchter Fluss gemischt. Um den Aerosolstrahl zu fokussieren und Wandeffekte zu minimieren werden die drei Flüsse noch von einem Mantelfluss umgeben. Um eine Abschätzung der einzelnen Flussraten, Temperaturen und Sättigungsverhältnisse der einzelnen Flüsse zu bekommen, um Eiskeime zu aktivieren, wurde die Mischung mit einer Strömungssimulationssoftware berechnet. (siehe 4.2.1)

Der Zusammenhang der Mischtemperatur  $T_M$  für die einzelnen Flüsse mit unterschiedlicher Temperatur ist wie folgt gegeben:

$$T_M = \frac{\sum_{i=1}^n m_i T_i}{\sum_{i=1}^n m_i}, \quad 2-3$$

mit  $m_i$  den Massen und  $T_i$  den Temperaturen der einzelnen Luftströmungen bei gleicher spezifischer Wärmekapazität [Stöcker, 1998].

Der Dampfdruck  $p_M$  für die Mischung einzelner Flüsse mit unterschiedlichem Dampfdruck lässt sich analog zur Mischtemperatur berechnen:

$$p_M = \frac{\sum_{i=1}^n m_i p_i}{\sum_{i=1}^n m_i}. \quad 2-4$$

Sind die Bedingungen für eine Aktivierung von Eiskeimen und dem anschließenden Anwachsen zu Eiskristallen gegeben, so lässt sich die Änderung der Masse  $m$  des Eiskristalls wie folgt beschreiben [Pruppacher und Klett, (1997)]:

$$\left( \frac{\partial m}{\partial t} \right) = \frac{2\pi \cdot D_{\text{Eis}} \cdot S_i}{\frac{R \cdot T}{p_{\text{sat,Eis}} \cdot D_v \cdot M_w} + \frac{L_s}{K_a \cdot T} \left( \frac{L_s \cdot M_w}{R \cdot T} - 1 \right)}, \quad 2-5$$

mit

$T$ : Temperatur in K

$S_i$ : Übersättigung in Bezug auf eine Eisoberfläche, ( $S_i = S_{\text{Eis}} - 1$ )

$D_v$ : Diffusionskoeffizient in  $\text{cm}^2 \text{s}^{-1}$

$D_{\text{Eis}}$ : Durchmesser der Eiskristalle in  $\mu\text{m}$

- $p_{\text{sat,Eis}}$ : Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis in hPa  
 $R$ : universelle Gaskonstante,  $8,31447 \text{ J K}^{-1} \text{ mol}^{-1}$   
 $M_w$ : Molekulargewicht für Wasser in  $\text{g mol}^{-1}$   
 $L_s$ : Latente Wärme für Sublimation in  $\text{J g}^{-1}$   
 $K_a$ : Wärmeleitfähigkeit von Luft in  $\text{J s}^{-1}$

Wird nun die Annahme gemacht, dass sich um kugelförmige Eisteilchen handelt, so ergibt sich durch einsetzen der Gleichung  $m = 8D^3\pi\rho_T$  ( $\rho_T$  = Dichte des Eisteilchens) und Integration folgende Formel für das Wachstum des Durchmessers:

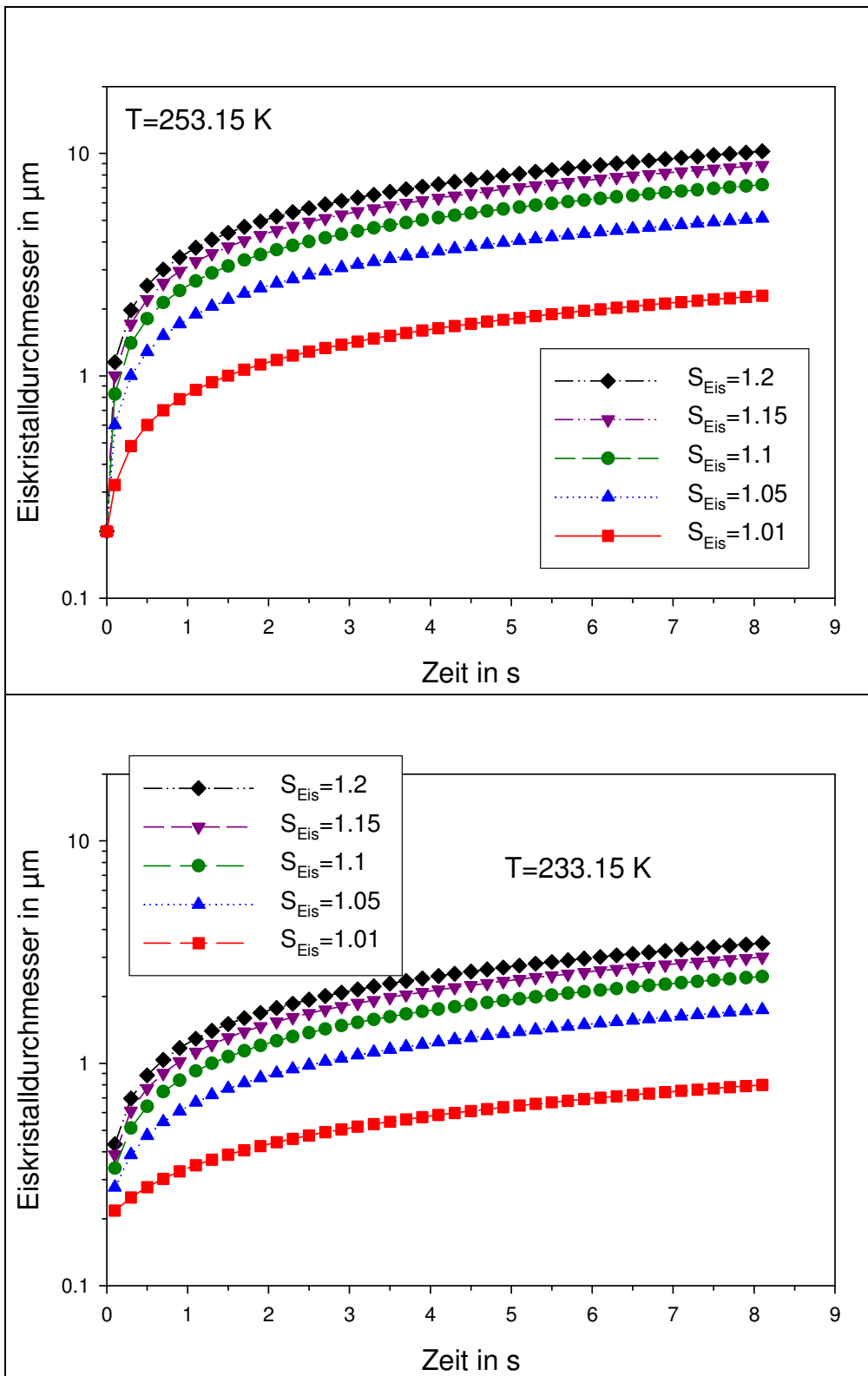
$$D_{\text{Eis}}^2 = \frac{4 \cdot (S_{\text{Eis}} - 1)}{\rho_T \left( \frac{R \cdot T}{p_{\text{sat,Eis}} \cdot D_v \cdot M_w} + \frac{L_s}{K_a \cdot T} \left( \frac{L_s \cdot M_w}{R \cdot T} - 1 \right) \right)} \cdot t + 4 \cdot D_0^2 \quad 2-6$$

mit

- $t$ : Wachstumszeit in s  
 $D_0$ : Anfangsdurchmesser des Aerosolpartikels in  $\mu\text{m}$

Durch Einsetzen der Zahlenwerte ( $D_0 = 0.2 \mu\text{m}$ ;  $D_v = 0.1817 (T = 253.15 \text{ K}) \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$  bzw.  $= 0.1544 (T = 233.15 \text{ K}) \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ ;  $M_w = 18 \text{ g mol}^{-1}$ ;  $L_s = 2553 \text{ J g}^{-1}$ ;  $K_a = 2.61 \text{ J s}^{-1}$ ;  $\rho_T = 0.9168 \text{ g cm}^{-3}$ ) und  $p_{\text{sat,Eis}}$  nach Gleichung 2-2 erhält man die in Abbildung 2.5 (oben) dargestellten Werte für  $T_1 = 253.15 \text{ K}$  und für  $T_2 = 233.15 \text{ K}$  (unten) als Funktion der Zeit und für unterschiedliche Sättigungsverhältnisse  $S_{\text{Eis}}$ .

Es ist deutlich zu erkennen, dass bei höheren Temperaturen (oben) die Eiskristalle schneller anwachsen, als bei geringeren Temperaturen. Ebenso erkennt man ein schnelleres Wachstum bei höheren Sättigungsverhältnissen  $S_{\text{Eis}}$ .



**Abbildung 2.5:** Änderung der Eiskristalldurchmesser als Funktion der Zeit für unterschiedliche  $S_{Eis}$  und für  $T = 253.15 \text{ K}$  (oben) bzw.  $T = 233.15 \text{ K}$  (unten), bei einem Anfangsdurchmesser  $D_0 = 0.2 \mu\text{m}$ .

### 3. Eiskeime

Wie bereits erwähnt sind Eiskeime (Ice Nucleus, IN) Bestandteil des atmosphärischen Aerosols. Sie können auf vier verschiedenen Arten als Eiskeim aktiv sein, *Depositionsgefrieren*, *Immersionsgefrieren*, *Kondensationsgefrieren*, *Kontaktgefrieren*. In den folgenden Abschnitten soll zunächst die Entwicklungsgeschichte der Eiskeimzähler bis zum aktuellen Stand beschrieben werden. Im weiteren Verlauf wird auf die Anzahlkonzentrationen, Quellen und chemische Eigenschaften von Eiskeimen eingegangen.

#### 3.1. Historische Entwicklung von Eiskeimzählern

Im folgenden Kapitel sollen verschiedene Methoden und Messgeräte zur Bestimmung der IN Anzahlkonzentrationen  $N_{IN}$  vorgestellt werden, die in der Vergangenheit bzw. in der Gegenwart verwendet wurden und werden. Hierbei muss grundsätzlich zwischen zwei Methoden der Messung unterschieden werden.

Zum einen der Sammlung von Aerosolteilchen auf Filtern, die dann Temperaturen unter  $0^{\circ}\text{C}$  und Übersättigung ausgesetzt und auf dem Filter sich bildenden Eiskristalle ausgezählt werden [Bigg, (1962)]. Bei den filtergetragenen Messmethoden konnte jedoch nie ausgeräumt werden, inwieweit der Untergrund und der Kontakt der IN mit dem Untergrund das Ergebnis beeinflussen.

Zum anderen der luftgetragenen, in-situ Methode, bei der die AP einem Bereich durchströmen, in dem kalte Temperaturen und Übersättigung zur Aktivierung der IN und zum Anwachsen zu Eiskristallen vorherrschen. Die Eiskristalle werden dann auf unterschiedliche Weise ausgezählt.

Da es sich bei FINCH um einen Eiskeimzähler handelt, der mit der in-situ Methode arbeitet, beschränkt sich der Überblick auf Eiskeimzähler mit dieser Methode und endet mit dem aktuellen Stand der Gerätetechnik.

Im Jahre 1944 verwendeten Findeisen und Schulz eine  $2\text{ m}^3$  große Kammer, in der mittels langsamer Expansion Übersättigung bei kalten Temperaturen erzeugt wird. Es gelang ihnen einige Eiskristalle bei Wasserübersättigung und  $T < -30^{\circ}\text{C}$  nachzuweisen. [Vali, (2004)]

1947 wurde von Cwilong [Zitat nach Langer, (1973)b] ein Eiskeimdetektor vorgestellt, der ebenfalls mit dem Prinzip der Expansion arbeitet. In einer kleinen, von außen gekühlten Kammer wird durch Expansion Übersättigung erzeugt. Die aktivierten IN fallen als Eiskristalle in ein sich am Boden der Kammer befindliches unterkühltes Wasserbad. Dieses beginnt bei Kontakt mit Eiskristallen zu frieren.

Nachteil dieser Methode ist, dass lediglich die Grenztemperatur, bei der IN aktiviert werden gemessen werden konnte, aber nicht die Anzahlkonzentration [Bigg, (1956)].



Die Bestimmung von IN-Anzahlkonzentrationen wurde mit der Weiterentwicklung des Gerätes von Cwilong durch Bigg (1956) möglich. Zum einen wurde die Kammer vergrößert und zum anderen eine feste Zuckerlösung verwendet, auf die die Eiskristalle fallen. Vorteil dieser Methode war, dass nicht die gesamte Lösung einfriert, sondern nur ein kleiner Bereich um die Eiskristalle. So können die Eiskristalle auf der Zuckerlösung weiter anwachsen, um sie anschließend leichter nachweisen und auszählen zu können. Bei Temperaturen  $T > -15\text{ °C}$  war auch die Selbstnukleation durch die Zuckerlösung zu vernachlässigen.

Ein ähnliches Gerät wurde von Warner (1957) aufgebaut, so dass diese Kammer auch als Bigg-Warner-Kammer bezeichnet wird.

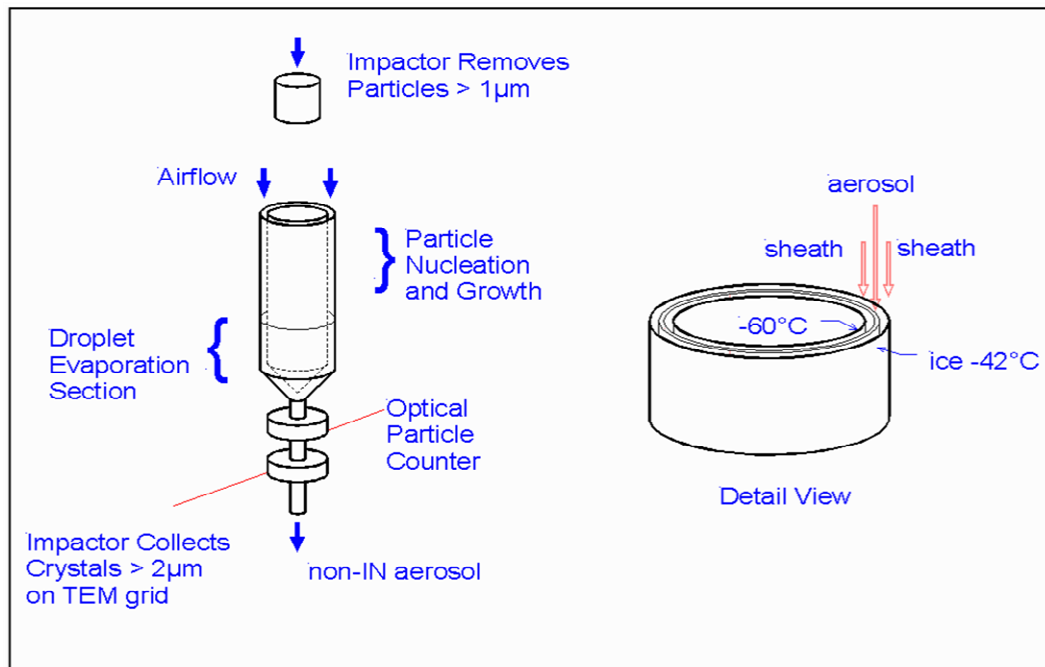
Der Aufbau einer Diffusions-Wolkenkammer wird 1970 von Klaar beschrieben, bei der in einer Kammer eisbedeckte Wände auf unterschiedliche Temperaturen gebracht wurden. Dadurch bildet sich ein Bereich aus in dem Übersättigung vorliegt und das eingebrachte Aerosol zu Eiskristallen heranwachsen konnte. Diese konnten durch eine Glasscheibe mit einem Beobachtungsfernrohr beobachtet werden.

Die isotherme Wolkenkammer ist eine Entwicklung von Ohtake (1971). Hierbei ist ein feuchter Schwamm am Deckel einer Kammer befestigt und wird auf  $50\text{ °C}$  erwärmt, nachdem die Kammer mit dem Aerosol gefüllt wurde. Der untere Teil der Kammer wird von außen mit einer Kühlschleife gekühlt. Die warme, durch den Schwamm gesättigte Luft diffundiert in den kälteren Bereich der Kammer und erzeugen dabei eine bestimmte Übersättigung, was zur Kondensation auf CCN und IN führt. Die entstandenen Eiskristalle fallen zu Boden, wo sie wiederum durch eine Zuckerlösung aufgefangen werden und diese anschließend ausgezählt werden.

Eine Art Mischkammer wurde 1973 von Langer vorgestellt. Hierbei wird zunächst angefeuchtete und partikelfreie Luft mit dem Aerosol gemischt. Diese wird dann in eine gekühlte Kammer geleitet, wo sie durch die kalten Wände abkühlt und somit übersättigt wird. Die IN wachsen dann zu Eiskristallen an und werden mit einem akustischen Sensor detektiert, [Langer, (1973)a]. Diese Entwicklung wird oft als Mischkammer bezeichnet, jedoch handelt es sich eher um Thermodiffusion von der kalten Wand zur wärmeren Luft, als um eine wirkliche Mischung. Entscheidender Unterschied dieser Entwicklung zu vorherigen ist, dass mit einem kontinuierlichen Probenfluss gemessen werden kann.

Dem Prinzip des kontinuierlichen Flusses bedient sich auch die Continuous Flow Diffusion Chamber CFDC von Rogers (1988). Diese zählt zu den bekanntesten IN-Zählern und ist das heute noch am meisten verbreitete Gerät. Bei diesem Gerät bilden zwei ineinander geschobene Zylinder eine innere und äußere Wand. Diese werden auf jeweils unterschiedliche Temperaturen gebracht und anschließend mit Eis bedeckt. Im Zwischenraum der Zylinder bildet sich so ein Temperaturgradient aus. Dieser führt zu einem Wasserdampfstrom zur kälteren Wand und somit zu einem Bereich in dem Übersättigung vorliegt. Das Aerosol durchquert, umgeben von einer Mantelluft, diesen Bereich und CCN und IN werden aktiviert und können anschließend auf einer etwa 1m langen Entwicklungsstrecke zu Tropfen und Eiskristallen heranwachsen. Nach einem Bereich, in dem die Tropfen wieder verdampft werden, kann anhand der Größe mit einem optischen Detektor zwischen Eiskristallen und nicht komplett verdampften, sehr

kleinen Wassertropfen unterschieden werden. Die Eiskristalle  $> 2 \mu\text{m}$  können anschließend durch einen Impaktor gesammelt und deren Residuen in einem transmission electron microscope (TEM) untersucht werden. In Abbildung 3.1 ist der schematische Aufbau des CFDC gezeigt.



**Abbildung 3.1:** Schematischer Aufbau der von Rogers (1988) entwickelten Continuous Flow Diffusion Chamber CFDC. In einem Vorimpaktor werden alle Partikel mit einem Durchmesser  $d > 1 \mu\text{m}$  entfernt, die übrigen Partikel können anschließend in einem Aktivierungs- und Wachstumsbereich, zu Eiskristallen und Tropfen heranwachsen. Die entstanden Tropfen werden anschließend in einer beheizten Sektion der Kammer wieder verdampft und Eiskristalle und Aerosolpartikel mit einem optischen Partikelzähler (OPC) gezählt. Eiskristalle werden anschließend mit einem Impaktor gesammelt und mit einem transmission electron microscope (TEM) analysiert.

Neben der Entwicklung von Rogers existieren noch weitere Ausführungen von CFDC's. So werden einige mit planparallelen Platten anstatt Zylindern betrieben, andere unterscheiden sich durch ihre Ausrichtung. So gibt es Geräte, in denen der Verlauf des Partikelflusses horizontal, bei anderen wiederum vertikal angeordnet ist.

Ein IN-Zähler mit planparallelen Platten ist der an der ETH Zürich entwickelte ZINC (The Zurich Ice Nucleation Chamber), [Stetzer et al., (2008)].

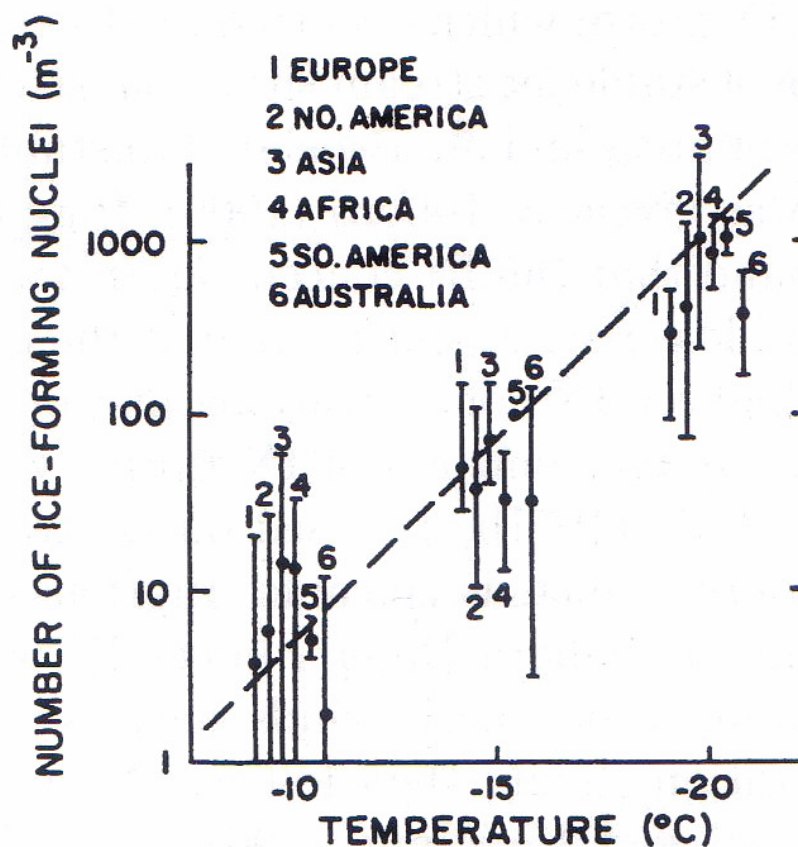
Dieser Überblick zeigt, dass zwar bereits vor 60 Jahren mit der Entwicklung von Eiskeimzählern begonnen wurde, sich die Anzahl der verschiedenen Geräte jedoch im überschaubaren Rahmen hält. Neben der geringen Anzahl von IN-Zählern wurde bei einem Internationalen Workshop für Kondensations- und Eiskeime 1970 ein weiteres Problem deutlich. So haben Vergleichsmessungen zum Teil große Unterschiede gezeigt. Besonders große Unterschiede zeigten sich bei Vergleichen von IN-

Anzahlkonzentration der hier vorgestellten in-situ Instrumente und von IN Messungen bei denen das Aerosol zunächst auf Filtern gesammelt und in späteren Laboruntersuchungen ausgewertet wird. Hierbei lagen die mit der Filtermethode gemessenen Anzahlkonzentrationen bis zu zwei Größenordnungen unter denen der in-situ Messungen [Langer, (1973) b]. Auf die Anzahlkonzentrationen von IN in der Atmosphäre und die Problematik bei der Bestimmung wird im Folgenden eingegangen.

### 3.2. IN-Anzahlkonzentrationen ( $N_{IN}$ )

Die Anzahlkonzentration in der Troposphäre von Eiskeimen ist im Vergleich zu AP, (mehrere  $10000 \text{ cm}^{-3}$ ) und CCN (einige  $100 \text{ cm}^{-3}$ ) nur sehr gering. Aus diesem Grund werden sie in  $\text{l}^{-1}$  oder in  $\text{m}^{-3}$  angegeben. So liegen die atmosphärische Konzentrationen in einem Bereich von  $< 0.1$  bis  $100 \text{ l}^{-1}$ .

In Abbildung 3.2 sind die mittleren IN-Anzahlkonzentrationen  $N_{IN}$  für verschiedene Regionen der Erde und deren Aktivierungstemperatur gezeigt.



**Abbildung 3.2:** Bandbreite der mittleren Anzahlkonzentration von IN in  $\text{m}^{-3}$  als Funktion der Temperatur für unterschiedliche geographische Orte. Die gestrichelte Linie zeigt die Funktion von Fletcher, (1962).

Man erkennt deutlich einen logarithmischen Anstieg der IN-Anzahlkonzentration bei abnehmender Temperatur, was zur folgenden Formel von Fletcher (1962) führt, mit Hilfe derer die IN-Anzahlkonzentration als Funktion der Temperatur abgeschätzt werden kann.

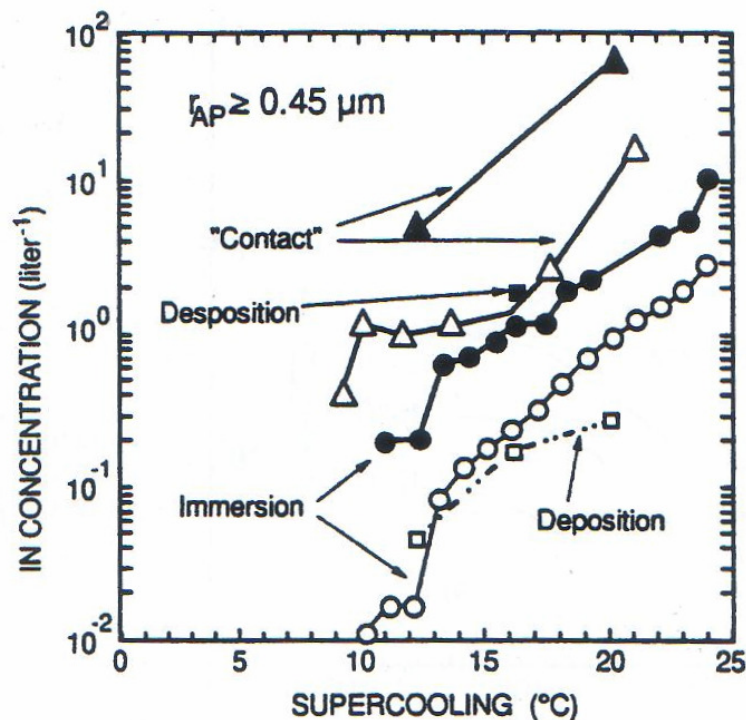
$$N_{\text{IN}} = A \cdot \exp[\beta T], \quad 3-1$$

mit  $\beta = 0.6 \text{ K}^{-1}$ ,  $A = 10^{-5} \text{ l}^{-1}$  und  $N_{\text{IN}}$  der Anzahl an IN pro Liter, aktiviert bei der Temperatur  $T$ .

In Abbildung 3.2 handelt es sich jedoch um gemittelte Werte. Bei einem Vergleich von einzelnen Messungen an unterschiedlichen Orten, können zum Teil sehr große Unterschiede der IN-Anzahlkonzentration beobachtet werden. Dies ist aber bei unterschiedlichen Anzahlkonzentrationen von Aerosolpartikel, sowie unterschiedlichen Quellen und damit unterschiedlichen chemische Zusammensetzungen zu erwarten.

In der Vergangenheit wurden auch immer wieder so genannte IN „Stürme“ beobachtet, bei denen die IN-Anzahlkonzentration  $N_{\text{IN}}$  innerhalb von einem Tag oder weniger um mehrere Größenordnungen im Vergleich zum typischen Mittelwert anstieg und in den folgenden Tagen mit gleicher Geschwindigkeit wieder abnahm [Pruppacher und Klett (1997)]. Die  $N_{\text{IN}}$  können somit in einen kurzen Zeitraum sehr starken Schwankungen unterliegen.

Aber auch parallele Messungen zeigen zum Teil große Unterschiede, was, wie bereits angesprochen, eine Folge der Sammelmethode sein kann. So liefern zum Beispiel Messungen, die mit Hilfe eines Filters gemacht wurden, bis zu 2 Größenordnungen geringere Werte, wie Geräte bei denen die IN in-situ aktiviert werden [Langer, (1973)b]. Ebenso ist es momentan nicht möglich, mit einem Instrument alle vier Gefriermodi zu messen. Betrachtet man sich die Messungen in Abbildung 3.3 bei der mit verschiedenen Geräten alle Modi gemessen wurden, so wird deutlich, dass nicht alle Modi im gleichen Maße zur Gesamtanzahlkonzentration der IN beitragen. Man erkennt, dass mehr Aerosolpartikel im Mode des Kontaktgefrieren als IN aktiv sind, als im Depositions- oder Immersionsgefrieren. Es ist jedoch bei allen Modi ein Anstieg der IN-Anzahlkonzentration bei geringeren Temperaturen zu erkennen. In Abbildung 3.3 werden die Temperaturen unter  $0^\circ\text{C}$  als supercooling bezeichnet und werden somit positiv angeben.



**Abbildung 3.3:** Einfluss des Eisnukleationsmodes auf die IN-Anzahlkonzentration in  $l^{-1}$  als Funktion der Temperatur unter  $0^{\circ}C$  für Aerosolpartikel mit einem Radius  $r_{AP} \geq 0.45 \mu m$ . Offene Symbole zeigen Beobachtungen im Winter in Laramie (Wyoming); Gefüllte Symbole Beobachtungen auf dem Berg Elk (3400m, Wyoming). (Pruppacher und Klett, 1997, nach Cooper, 1980)

So ist bei Vergleichen der IN-Anzahlkonzentrationen immer darauf zu achten in welchen Mode die IN gemessen wurden.

Ein weiterer Einflussfaktor der neben der Temperatur bei der Bestimmung von  $N_{IN}$  zu beachten ist, ist die relative Feuchte bzw. Übersättigung. So wurde von Schaller und Fukuta (1979) gezeigt, dass bereits bei relativen Feuchten unter 100% in Bezug auf Wasser Eisnukleation einsetzen kann, wenn Übersättigung in Bezug auf Eis vorherrscht. Die IN-Anzahlkonzentration steigt bei einer festen Temperatur mit Zunahme der Eisübersättigung mit folgender Beziehung an:

$$N_{IN} = C \cdot s_{v,i}^b \quad 3-2$$

Hierbei ist  $N_{IN}$  die Anzahl an IN pro Liter,  $s_{v,i}$ , die relative Feuchte in Bezug auf Eis in % und C und b sind Konstanten für eine bestimmte Luftmasse ( $3 \leq b \leq 8$ ). Unterhalb von Wassersättigung werden die IN durch Depositionsgefrieren aktiviert. Andernfalls können sie sowohl durch Depositionsgefrieren als auch durch Kondensationsgefrieren aktiviert werden [Pruppacher und Klett, (1997)].

Betrachtet man Daten der Continuous Flow Diffusion Chamber CFDC, so ergibt sich folgender Zusammenhang für  $N_{IN}$  und Übersättigung (Meyers, 1992):

$$N_{\text{IN}} = \exp(A + B \cdot s_{v,i}) \quad 3-3$$

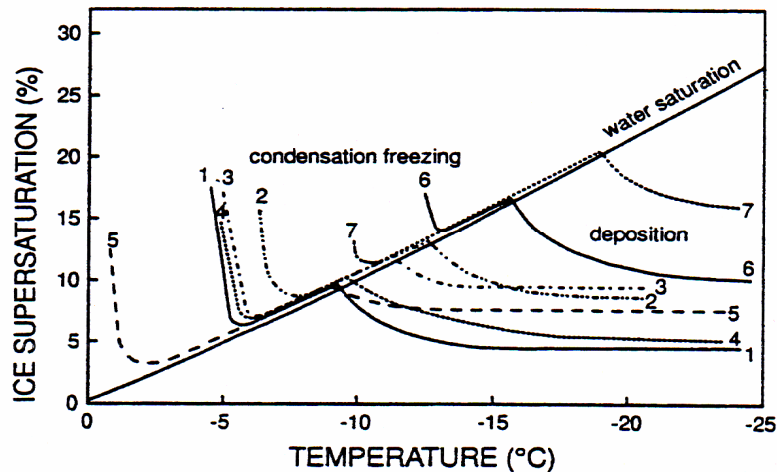
mit  $N_{\text{IN}}$  in  $l^{-1}$  und  $A = -0.639$  und  $B = 0.1296$ , für die Anzahl von IN im Depositions- und Kondensationsmode.

Zur Charakterisierung, bei welchen Temperatur- und Feuchtebedingungen ein bestimmtes Aerosolpartikel im einen oder im anderen Mode aktiviert wird, haben Schaller und Fukuta (1979) in ihrer Diffusionskammer Messungen durchgeführt. So werden Aerosolpartikel mit einer bestimmten chemischen Zusammensetzung im Depositionsmode erst dann aktiviert, wenn die Lufttemperatur unter einen bestimmten Wert fällt. Die Abbildung 3.4 zeigt, dass oberhalb von  $-9\text{ °C}$  AgI als Eiskeime im Kondensationsgefrieren aktiviert werden, d.h. bei Wasserübersättigung. Liegt jedoch nur Übersättigung in Bezug auf Eis vor, so muss bei Temperaturen unter  $-9\text{ °C}$  liegen und eine kritische Eisübersättigung überschritten werden, um sie im Depositionsmode zu aktivieren. Andere in der Abbildung 3.4 gezeigte Aerosole werden erst bei geringeren Temperaturen bzw. höheren Eisübersättigungen aktiviert.

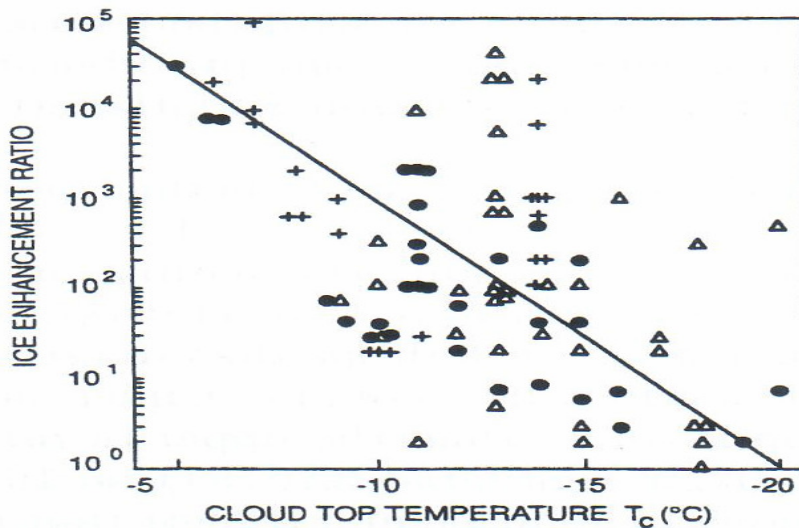
Messungen haben jedoch auch gezeigt, dass die Anzahlkonzentrationen von Eiskristallen um mehrer Größenordnungen höher liegen können, als dies durch die heterogenen Eisbildungsprozesse allein möglich ist. So gibt es neben diesen Prozessen noch weitere Eisbildungsprozesse (sekundäre Eisbildung).

Bei Riming, dem Zusammenfrieren von Eiskristallen kann es zwischen  $-3\text{ °C}$  und  $-8\text{ °C}$  zur Splitterbildung kommen [Hallett and Mossop, (1974)], zu mechanischem Zerbrechen der Eiskristalle während des Verdampfens, [Dong et al. (1994)], und Erzeugung von Eisfragmenten bei der Kollision von Eiskristallen, [Vardiman, (1978)].

In Abbildung 3.5 ist das Eisanreicherungsverhältnis  $R_M$ , definiert als das Verhältnis von Eiskristallanzahl und IN Anzahlkonzentration in verschiedenen Kumuluswolken als Funktion der Temperatur am Wolkenoberrand gezeigt.



**Abbildung 3.4:** Einsetzen von Eiskernung als Funktion von Temperatur und Eisübersättigung für unterschiedliche Komponenten. Bedingungen für Kondensationsgefrieren und Depositionskernung sind aufgezeigt. Eiskernung tritt oberhalb der angezeigten Linien auf; (1) AgI, (2) PbI, (3) Dihydroxynaphthalen, (4) Phloroglucinol, (5) Methaldehyd, (6) Erdboden, (7) Kaolinit, [Pruppacher und Klett, (1997)].



**Abbildung 3.5:** Eisanreicherungsverhältnis,  $R_M$ , als Funktion der Temperatur am Wolkenoberrand bestimmt in der Aufwindregion von Wolken über Miles City (Montana). (●) Kleine Kumuluswolken, (Δ) Komplexe Kumuluswolken, (+) eingeschlossene Kumuluswolken; die Linie ist gegeben durch:  $\log R_M = 5.9 + 0.295 T_C$ , mit  $T_C$  der Temperatur am der Wolkenoberrand in °C, [Hobbs et al, (1980)].



Man erkennt, dass die sekundären Eisbildungsprozesse besonders stark bei höheren Temperaturen die Eiskristallanzahlkonzentration erhöhen. So kann  $R_M$  bei  $-5\text{ °C}$  bei  $10^4$  bis  $10^5$  liegen.

Diese Prozesse reichen jedoch ebenfalls nicht aus, um die gesamte Eiskristallkonzentration in manchen Wolken zu erklären. So müssen weitere primäre bzw. sekundäre Eisbildungsprozesse existieren, die bisher nicht bekannt sind.

### 3.3. Eigenschaften von Eiskeimen

Wie bereits erwähnt ist die Anzahlkonzentration von IN im Vergleich zu CCN und erst recht zu CN sehr klein. Grund hierfür sind die unterschiedlichen Eigenschaften, die Aerosolpartikel aufweisen müssen, um als IN aktiv zu sein.

Im Gegensatz zu CCN, handelt es sich bei IN meist um unlösliche Partikel, wie verschiedene Mineralsstäube, Ruß und biologisches Material. [Levin and Yankofsky, (1983); Diehl et al., (2001); Gorbunov et al., (2001)].

So können diese aber auch ihre Aktivierbarkeit verlieren, wenn Fremdgase, wie Schwefeldioxid  $\text{SO}_2$  oder Ammonium  $\text{NH}_3$  aufnehmen [Pruppacher und Klett, (1997)].

Messungen in der Mitte der Vereinigten Staaten (Kansas) haben gezeigt, dass sich AP mit einem geometrischen Durchmesser von  $0.1 \mu\text{m} - 1 \mu\text{m}$ , mit einem Maximum bei  $0.2 \mu\text{m}$  sehr gut als IN eignen, jedoch bei AP kleiner  $0.1 \mu\text{m}$  eine sehr starke Abnahme zu verzeichnen ist [Chen, (1998)].

Ebenso zeigen Experimente, dass die Art und Stärke der chemischen Bindungen an der Oberfläche eines AP das Eisnukleationsverhalten beeinflussen. Berücksichtigt man, dass das Eisgitter aus Wasserstoffbindungen einer bestimmten Stärke und Polarität besteht, so wird klar, dass Aerosolpartikel, die die gleichen Wasserstoffbindungen besitzen, sehr gut als Eiskeim geeignet sind. Zusätzlich wurde von Fukuta (1966) entdeckt, dass das Wasserstoffbindungsmolekül an der Oberfläche des Eiskeims rotationssymmetrisch sein sollte.

In Hinblick auf Bindungsanforderungen wurde für bestimmte organische Verbindungen eine besonders gute Eiskeimfähigkeit bereits bei Temperaturen knapp unter  $0^\circ\text{C}$  entdeckt (z.B. Metaldehyde ( $\text{CH}_3\text{CHO}$ ), Cholesterol ( $\text{C}_{27}\text{H}_{46}\text{O}\cdot\text{H}_2\text{O}$ )), [Fukuta und Manson, (1963); Fukuta, (1963)].

Des Weiteren ist oft die geometrische Anordnung der Verbindungen auf der Partikeloberfläche genauso wichtig oder wichtiger als ihr chemischer Ursprung [Pruppacher und Klett, (1997)].

All diese Punkte zeigen, dass es sich bei heterogener Eisnukleation um einen sehr komplexen Prozess handelt. Auch die Kenntnis vom Durchmesser, chemischer Zusammensetzung, Oberflächeneigenschaften, sowie chemischer Bindungen des Aerosolpartikels machen eine exakte Vorhersage, ob oder bei welcher Temperatur, Übersättigung und in welchem Mode dieser als Eiskeim aktiv ist zur Zeit unmöglich<sup>2</sup>.

Ein Grund für dieses unregelmäßige Verhalten ist, wie Experimente gezeigt haben, dass Eisnukleation ein sehr lokales Phänomen ist, das sich auf eine bestimmte aktive Stelle „Active Site“ auf der Oberfläche der Aerosolteilchen beschränkt [Pruppacher und Klett, (1997)].

Diese Betrachtung zeigt, dass es selbst beim grundlegenden Verständnis, ob ein Aerosolpartikel und wie es als Eiskeim aktiv ist Forschungsbedarf besteht. Nicht nur aus diesem Grund ist die Auswirkungen der IN-Anzahlkonzentrationen in der Atmosphäre auf Wetter und Klima nahezu ungeklärt.

---

<sup>2</sup> Shaw, R.: *Ice formation by surface crystallization*, Seminarvortrag im Rahmen des Meteorologischen Kolloquiums am 10.01.2008

### 3.4. Rolle der Eiskeime in der Troposphäre

Die geringe Anzahlkonzentration und die Abhängigkeit von vielen Parametern (Aktivierungsmodus, Übersättigung, Temperatur, Größe und chemische Zusammensetzung), die zur Aktivierung von IN führen, machen Messungen besonders in der Atmosphäre sehr schwierig.

Mischwolken besitzen im Vergleich zu Wasserwolken eine unterschiedliche Mikrophysik (z.B. Größenverteilung) und unterscheiden sich somit stark in ihren optischen Eigenschaften (z.B. optische Dicke). Hierbei spielen besonders die IN eine wichtige Rolle, da ihre Anzahl und Eigenschaften die Bildung von Eiskristallen in der Wolke beeinflussen und einen Einfluss auf folgenden Faktoren haben:

- Wolkenpartikelphase, -größe und -konzentration
- Lebensdauer der Wolke
- Eiswassergehalt
- Wolkenbedeckung und räumlich Verteilung
- Optische und Strahlungs-Eigenschaften der Wolke
- Niederschlagsentwicklung
- Aufnahme und Entfernung von Gasen und Partikel [Rogers et al., (2008)].

Ein Beispiel für den Einfluss von IN in Mischwolken ist der Bergeron-Findeisen-Prozess [Bergeron, (1935)]. In Abbildung 3.6 ist die Entwicklung einer Mischwolke gezeigt. Sind sowohl Wassertropfen als auch Eiskristalle in einer Wolke enthalten, so diffundiert Wasserdampf verstärkt von den Tropfen hin zu den Eiskristallen. Diese wachsen folglich auf Kosten der Wassertropfen an.

Grund hierfür ist der geringere Sättigungsdampfdruck über Eis im Vergleich zu Wasser bei Temperaturen unter 0 °C.

Im weiteren Verlauf kommt es zu Koagulation und Koaleszenz von Eiskristalle untereinander, aber auch Wassertropfen, was zu einer Bildung von größeren Agglomeraten führt, die dann auf Grund ihres Gewichts aus der Wolke heraus sedimentieren und als Schnee bzw. als Regen den Erdboden erreichen können.



Simulationen von Teller und Levin (2006) zeigen hingegen, dass verschmutzte und von einer höheren IN-Anzahlkonzentration beeinflusste Wolken einen mehr ausgebreiteten Wolkenamboss aufweisen.

Die Ergebnisse zeigen deutlich, dass Eiskeime auf das Wettergeschehen in der Atmosphäre einen wichtigen Einfluss haben. Durch die Unterschiede der Ergebnisse wird jedoch auch deutlich, dass die einzelnen Prozesse bisher nur unzureichend verstanden sind.

Messungen der chemischen Zusammensetzung von Eiskristallresiduen in der Atmosphäre, z.B. aus orographischen Wolken über Skandinavien ergeben einen hohen Anteil mineralischen Staub in Form von Eisen (24.1%) und Aluminiumsilikaten (19.5%), gefolgt von organischem und biologischem Aerosol (23.3%) und Seesalz (6.7%). Eine genaue Bestimmung des organischen und biologischen Aerosols ist auf Grund der Analysemethoden nicht möglich [Targino et al., (2006)].

Dass besonders Wüstenstaub sehr gut als Eiskeim geeignet ist, zeigten auch Flugzeugmessungen über Florida, während eines Saharastaubwolkenereignisses, als Saharastaub über den Atlantik in das Messgebiet transportiert wurde [DeMott et al., (2003); Sassen et al., (2003); Cziczo et al., (2004)].

Twohy und Poellot (2005) erforschten die Art von Eiskristallresiduen in Ambossen bei Temperaturen zwischen  $-21\text{ °C}$  und  $-56\text{ °C}$ . Dabei wurden mehr unlösliche (Boden und metallische) Partikel bei höheren Temperaturen entdeckt, während bei geringeren Temperaturen mehr lösliche Salze und Sulfate nachgewiesen wurden.

Sowohl die Möglichkeit, dass atmosphärischer Aerosolstaub sehr weit von ihrer Quelle entfernt zur Eisnukleation beitragen kann [DeMott et al., (2003) und Richardson et al., (2007)] und somit einen globalen Einfluss hat, als auch die Erkenntnis, dass besonders das Wissen über das biologische Aerosol (Zellen, Bakterien, Pflanzenbruchstücke usw.), die ebenfalls sehr gut als Eiskeim aktiv sind, sehr begrenzt ist [Jaenicke et al., (2005)], zeigen die Notwendigkeit von genaueren Messungen der IN-Anzahlkonzentrationen, deren chemischen Zusammensetzung, Größenverteilung, Aktivierungstemperatur und -übersättigung.

## 4. Entwicklung eines schnellen Eiskeimzählers

Ziel des Teilprojekts A1 im Rahmen des Sonderforschungsbereichs SFB641 „Die troposphärische Eisphase“ war die Entwicklung eines kontinuierlichen Eiskeimzählers. Die Neuerung im Vergleich zu anderen Eiskeimzählern sollte der hohe Sammelfluss von etwa 10 l/min und die Möglichkeit der schnellen Änderung der Aktivierungsübersättigung und -temperatur sein. Dies sorgt für besser zeitlich aufgelöste Messergebnisse. Des Weiteren sollte der Nachweis der Eiskeimanzahlkonzentration über eine Einzeleiskristalldetektion erfolgen. Dazu wurden im Teilprojekt A1 parallel zwei Ansätze verfolgt.

Zum einen die Entwicklung eines Expansionseiskeimzählers an der Johannes Gutenberg-Universität Mainz im Institut für Physik der Atmosphäre. Durch eine kontinuierliche Expansion sollte eine Temperaturabnahme erzeugt werden, die bei gesättigter Luft und geringen Temperaturen unter 0 °C zur Übersättigung und Aktivierung von IN führt. Nach Anwachsen zu Eiskristallen sollten sie in einem optischen Sensor detektiert werden.

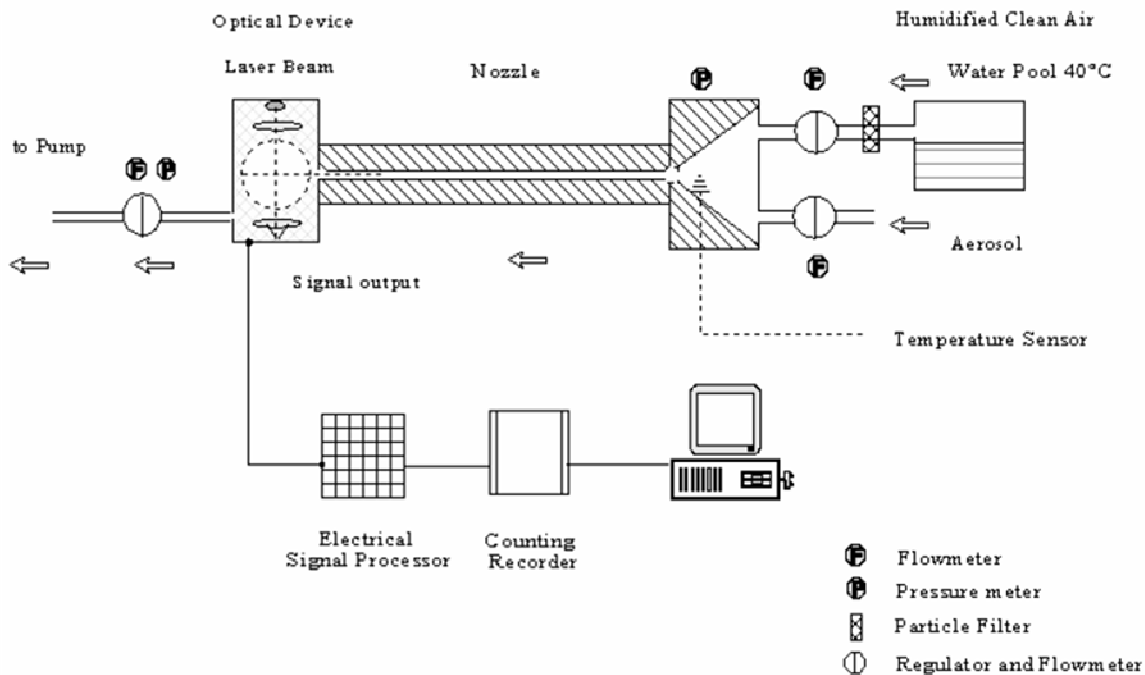
Zum anderen die Entwicklung an der Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt am Institut für Atmosphäre und Umwelt, bei der durch Mischung verschiedener Flüsse, Übersättigungen bei geringen Temperaturen zum Anwachsen von IN zu Eiskristallen führt und diese anschließend selektiv detektiert werden

### 4.1. Ansatz der kontinuierlichen Expansion

Beim ersten Ansatz zur Entwicklung eines Eiskeimzählers, handelt es sich um eine geplante Weiterentwicklung des CN-Counter Aufbaus von Yang (Abbildung 4.1).

Bei diesem wird partikelfreie Luft über ein 40 °C warmes Wasserbad geleitet, zur Sättigung gebracht und dann mit der zu messenden Probenluft gemischt. Anschließend gelangt der Gesamtfluss aus partikelfreier, gesättigter Luft und Probenluft in eine sich von 12 mm auf 1 mm Durchmesser verjüngende Düse. Die Länge der Düse beträgt 30 mm. Die Düse ist mit einem 120 mm langen Rohr mit einem Durchmesser von 1mm verbunden.

Die Verjüngung sorgt für eine kontinuierliche Expansion, was zu einer Temperaturabnahme und daraus resultierenden Übersättigung führt. Somit können die Aerosolpartikel aktiviert werden und entlang des Rohrs zu Tropfen anwachsen und dann durch einen optischen Detektor gezählt werden.



**Abbildung 4.1:** Schematischer Aufbau des von Yang (1999) entwickelten kontinuierlichen, Expansion-CN-Counter.

Für die Entwicklung des neuen Eiskeimzählers sollte das Prinzip von Yang als Basis übernommen werden. Bei geringeren Temperaturen sollten so IN aktiviert werden und anschließend unter nahezu konstanten Bedingungen anwachsen.

Im Folgenden werden nun zunächst die von Yang durchgeführte Modellrechnung für diesen Aufbau reproduziert und weiterführende Rechnungen zur Entwicklung eines Eiskeimzählers gemacht.

Das Resultat wird zeigen, dass es mit dem Prinzip der kontinuierlichen Expansion nicht möglich ist, einen Eiskeimzähler zu entwickeln, in dem über länger Zeit konstant Bedingungen von Temperatur und Feuchte vorherrschen, um Eiskeime zu aktivieren und diese zu detektierbaren Größen, von  $> 3 \mu\text{m}$  anwachsen zu lassen.

### 4.1.1. FLUENT-Berechnungen

Von Yang (1999) wurden in seiner Arbeit Modellrechnungen von Temperatur, Druck, Flussgeschwindigkeit und Sättigungsverhältnis in der Düse durchgeführt. Um die Möglichkeit einer Weiterentwicklung zu einem Eiskeimzähler zu prüfen wurden Rechnungen mit der Strömungssoftware FLUENT durchgeführt. Die Software dient zur numerischen Modellierung von Strömungen und zur Darstellung und Analyse der erhaltenen Simulationsergebnisse. Zunächst sollten die Ergebnisse von Yang reproduziert werden.

Die Abbildung 4.2 (links) zeigt die Geometrie der Düse für die von Yang durchgeführten Rechnungen, die ebenfalls für die aktuellen FLUENT Berechnungen benutzt wurden. Mit der Geometrie-Software GAMBIT wurde das für die FLUENT Rechnungen verwendete Gitter erzeugt (Abbildung 4.2 (rechts)).

GAMBIT dient zur Erstellung und Vernetzung von Geometrien, die als Grundlage für Strömungssimulationen genutzt werden. Es gibt hierbei zwei Möglichkeiten das Gitter für die anschließenden Berechnungen zu erstellen. Bei dem sogenannte "Bottom-Up" Verfahren, werden definierte Punkte mit Kanten verbunden. Aus diesem werden Flächen erzeugt, die wiederum als Grundlage für Volumen dienen. Im Gegensatz dazu steht das "Top-Down"-Verfahren, hierbei kann aus vorgegeben Geometrien, die angepasst und verbunden werden können, eine gewünschte Gesamtgeometrie konstruiert werden. In beiden Fällen werden dann Rechengitter erzeugt, die dann in FLUENT exportiert werden. Bei dem Aufbau des Rechengitters ist darauf zu achten, dass nicht zu wenig Gitterpunkte verwendet werden, da dies das Ergebnis der numerischen Simulation verfälschen kann oder es nicht zu einer konvergierenden Lösung kommt [GAMBIT Dokumentation].

Für die Berechnungen wurde die Geometrie der Düse in  $60 \times 150$  Gitterpunkte unterteilt.

Wie auch bei den Berechnungen von Yang (1999) mit dem CFX-FLOW3D Algorithmus wurde ein „ $\kappa$ - $\epsilon$ -Modell“ verwendet ( $20 \times 150$  Maschen). Hier das Standard „ $\kappa$ - $\epsilon$ -Modell“ von FLUENT [FLUENT Dokumentation]. Beim  $\kappa$ - $\epsilon$ -Modell handelt es sich um ein Zwei-Gleichungs-Modell. Es werden zwei zusätzliche Transportgleichungen für die kinetische Energie  $\kappa$  und die Dissipationsrate  $\epsilon$  gelöst. Die gesuchte turbulente Viskosität  $\mu_t$  wird anschließend als Funktion von  $\kappa$  und  $\epsilon$  berechnet. In [FLUENT Dokumentation] werden die Transportgleichungen und Modellkonstanten genau erläutert. Dabei wird sowohl auf das Standard- $\kappa$ - $\epsilon$ -Modell als auch auf das darauf basierende RNG- $\kappa$ - $\epsilon$ -Modell eingegangen. Aus dem Einsatz sogenannter „renormalization group“ (RNG)-Methoden resultiert dieses Modell mit vom Standard- $\kappa$ - $\epsilon$ -Modell abweichenden Modellkonstanten und zusätzlichen Termen in den beiden Transportgleichungen.

Der Rechenaufwand bei Einsatz eines Zwei-Gleichungs-Modells ist höher als bei Verwendung eines Ein-Gleichungs-Modells.  $\kappa$ - $\epsilon$ -Modelle sind weit verbreitet, ihre Eigenschaften gut dokumentiert. Sie werden als robust und als für den Einsatz in



verschiedensten Gebieten der Strömungssimulation geeignet beschrieben [FLUENT Kursmaterial].

Hier wurde als strömendes Fluid der in FLUENT vorgegebene Materialtyp „air“ gewählt und dessen Vorgaben verändert:

Für die Luft wurde angenommen, dass es sich um ein ideales Gas handelt. Die Berechnung der Dichte erfolgt mittels des idealen Gasgesetzes:

$$\rho = \frac{p}{\frac{R}{M_w} T} \quad 4-1$$

Dabei ist

$\rho$ : Dichte in  $\text{kg m}^{-3}$

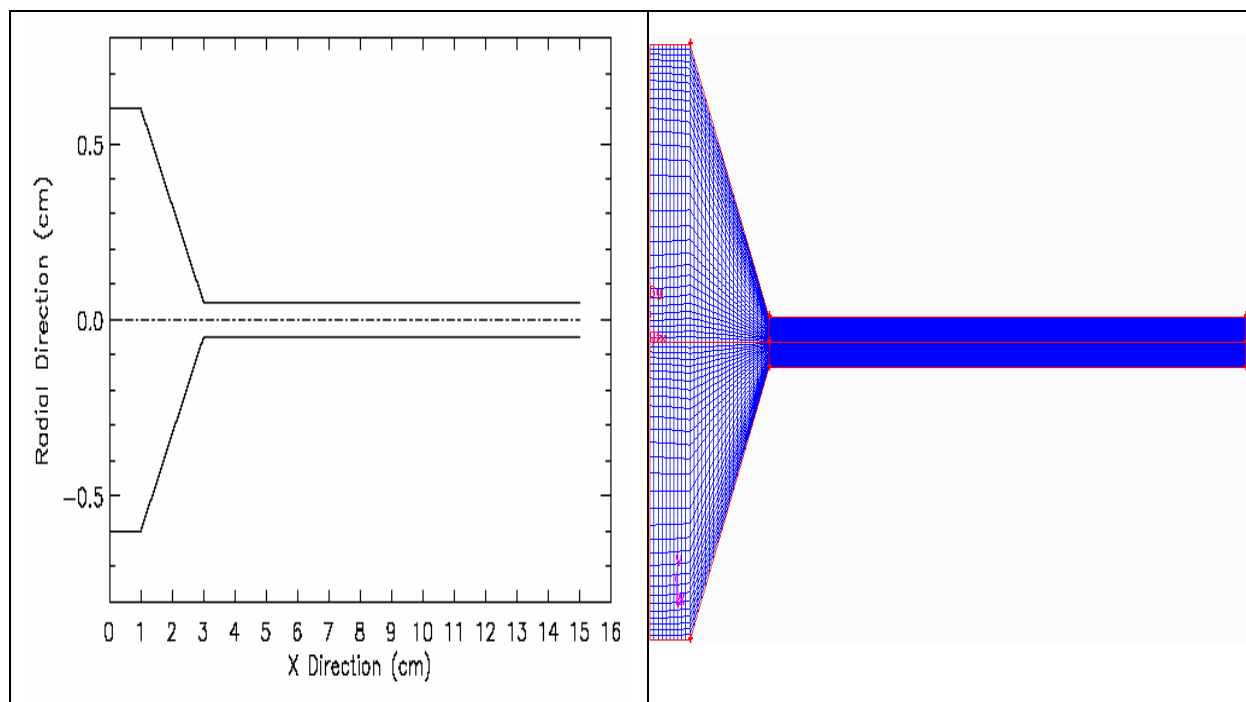
$p$ : Druck in Pa

$R$ : universelle Gaskonstante,  $8.31447 \text{ J K}^{-1} \text{ mol}^{-1}$

$M_w$ : Molekulargewicht in  $\text{kg mol}^{-1}$

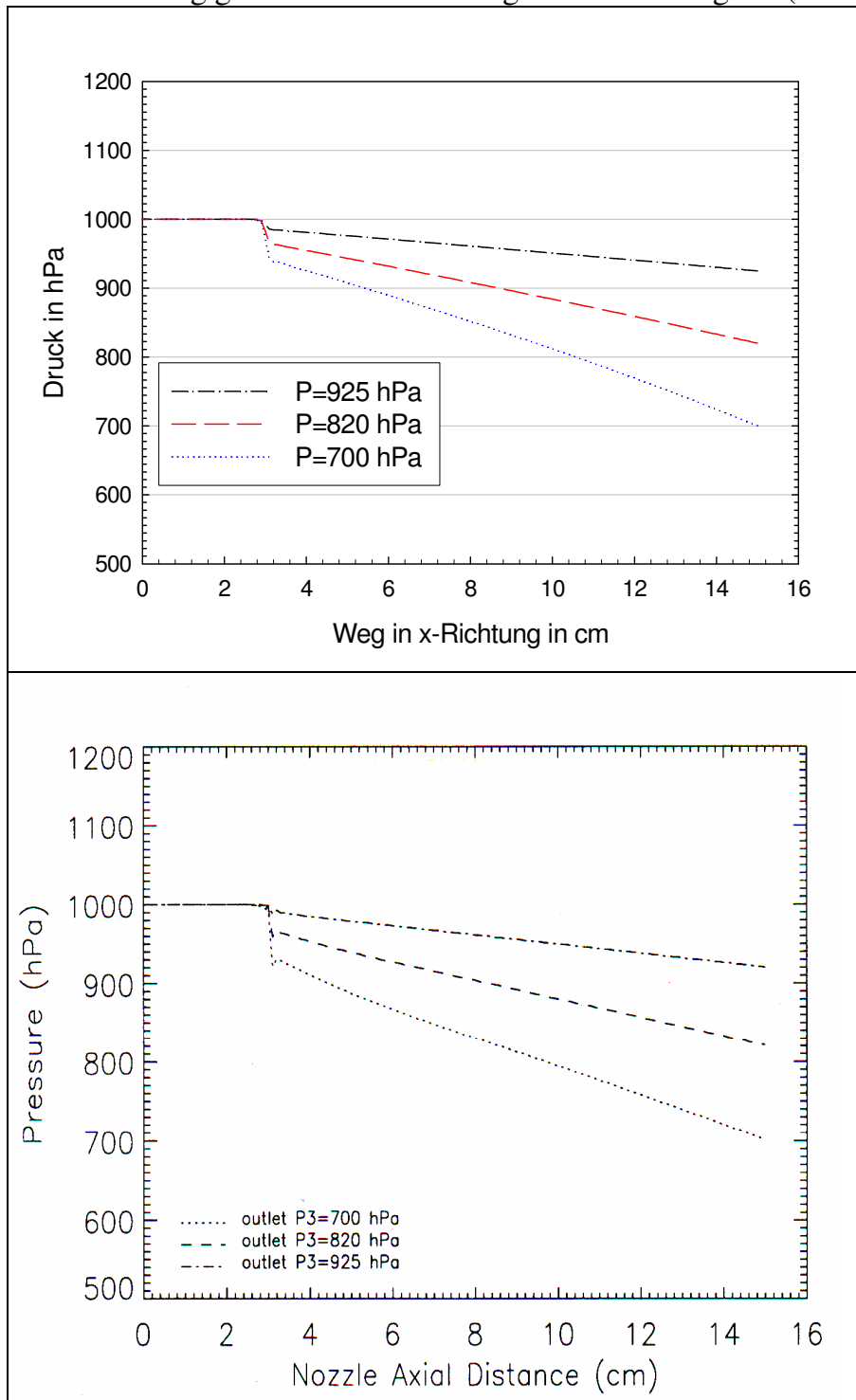
$T$ : Temperatur in K.

Als Randbedingungen am Einlass und Auslass wurde jeweils ein fester Druck vorgegeben. Für die Strömung durch die Düse wurde am Düseneingang ein Druck von  $p = 1000 \text{ hPa}$  und eine Temperatur von  $T = 301 \text{ K}$  angesetzt.



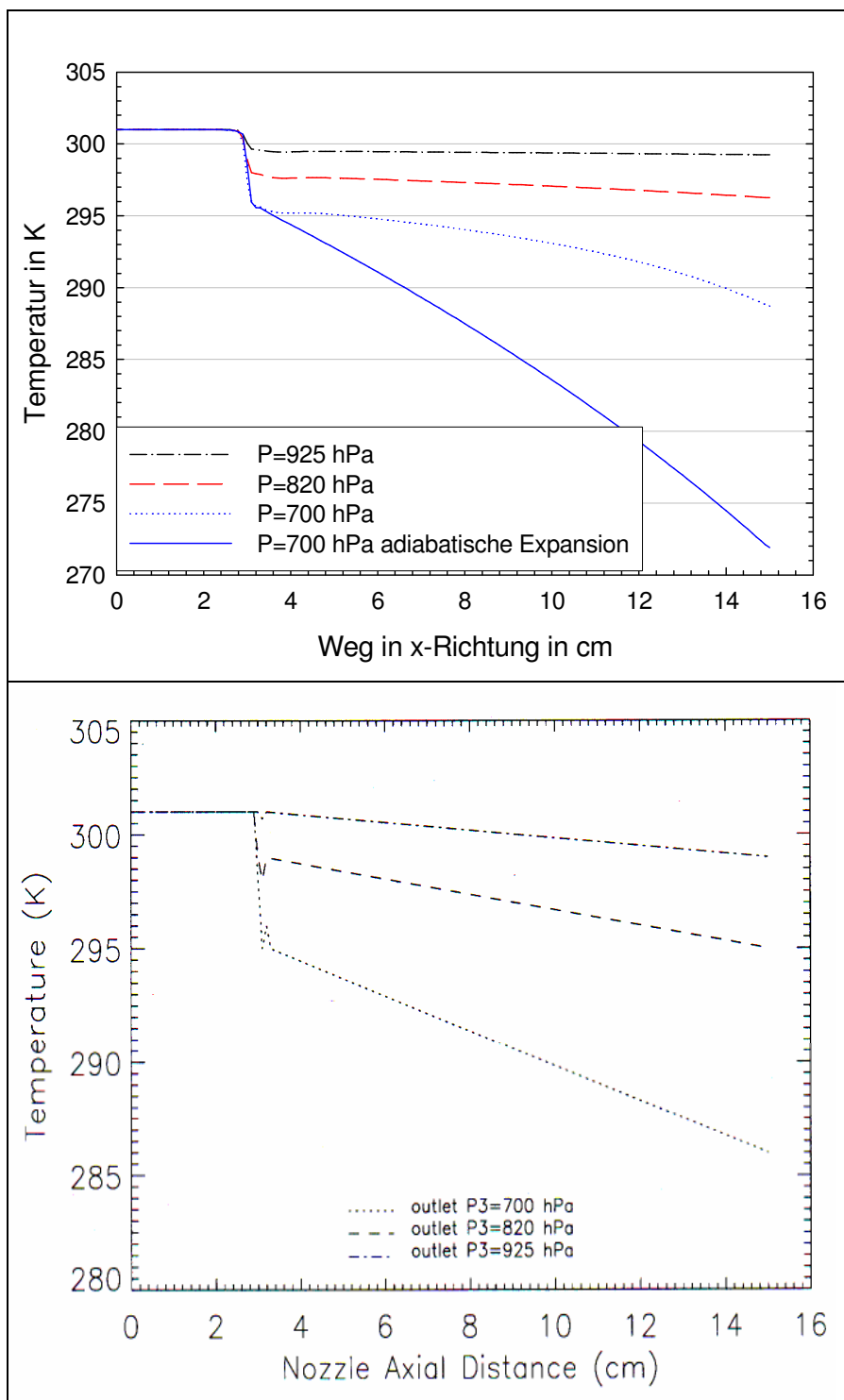
**Abbildung 4.2:** Geometrie der Düse für die Berechnungen von Yang und den FLUENT Berechnungen (links), sowie das Gitter der Geometrie für die FLUENT Berechnungen (rechts).

In Abbildung 4.3 (oben) ist der Druckverlauf in der Düse entlang der x-Achse für die FLUENT-Berechnungen mit drei unterschiedlichen Enddrücken gezeigt. Diese stimmen sehr gut mit den von Yang gemachten Berechnungen in Abbildung 4.3 (unten) überein.



**Abbildung 4.3:** Druckverlauf entlang der x-Achse der Düse für drei unterschiedliche Drücke am Ende der Düse ((oben) FLUENT-Berechnungen, (unten) von Yang (1999)).

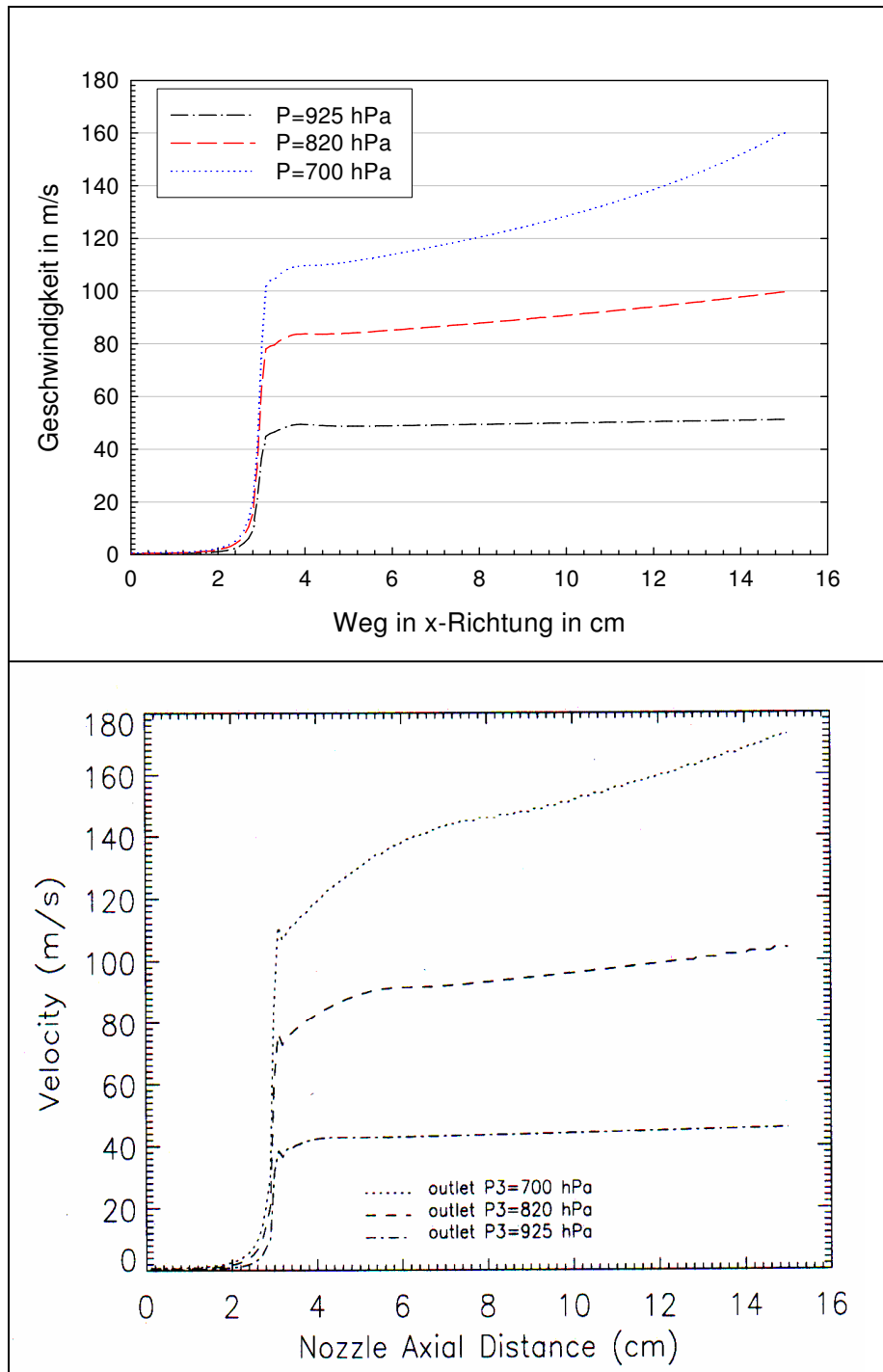
In Abbildung 4.4 sind die dazugehörigen Temperaturverläufe dargestellt. Man sieht, dass mit fallendem Druck am Auslass der Düse, die Temperaturabnahme bei den Berechnungen von Yang und den FLUENT-Berechnungen größer wird. Es zeigt sich jedoch, dass die Temperaturabnahme an der minimalen Verjüngung der Düse bei den FLUENT-Berechnungen bei einem Druck  $p = 925$  hPa und  $p = 820$  hPa etwas stärker ausfällt als bei den Berechnungen von Yang. Für  $p = 700$  hPa ist eine nicht so lineare Abnahme und eine etwas höhere Temperatur bei den aktuellen Berechnungen zu beobachten.



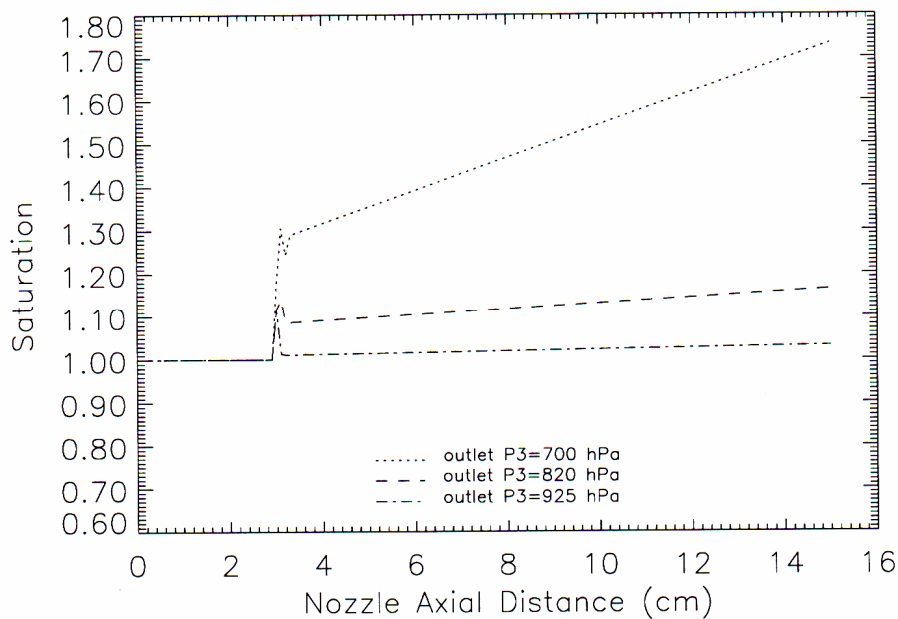
**Abbildung 4.4:** Temperaturverlauf entlang der x-Achse der Düse für drei unterschiedliche Drücke am Ende der Düse ((oben) FLUENT-Berechnungen, (unten) von Yang(1999)).

Die Geschwindigkeiten in der Düse für die unterschiedlichen Drücke ist in Abbildung 4.5 (oben) für die FLUENT-Berechnungen und in Abbildung 4.5 (unten) für

die Yang-Berechnungen gezeigt. Hier zeigen sich wie auch bei den Druckverläufen sehr gute Übereinstimmungen, mit leichten Abweichungen für  $p = 700$  hPa.



**Abbildung 4.5:** Geschwindigkeitsverlauf entlang der x-Achse der Düse für drei unterschiedliche Drücke am Ende der Düse ((oben) FLUENT-Berechnungen, (unten) von Yang (1999)).



**Abbildung 4.6:** Sättigungsverhältnis in Bezug auf Wasser entlang der x-Achse der Düse für drei unterschiedliche Drücke am Ende der Düse von Yang (1999).

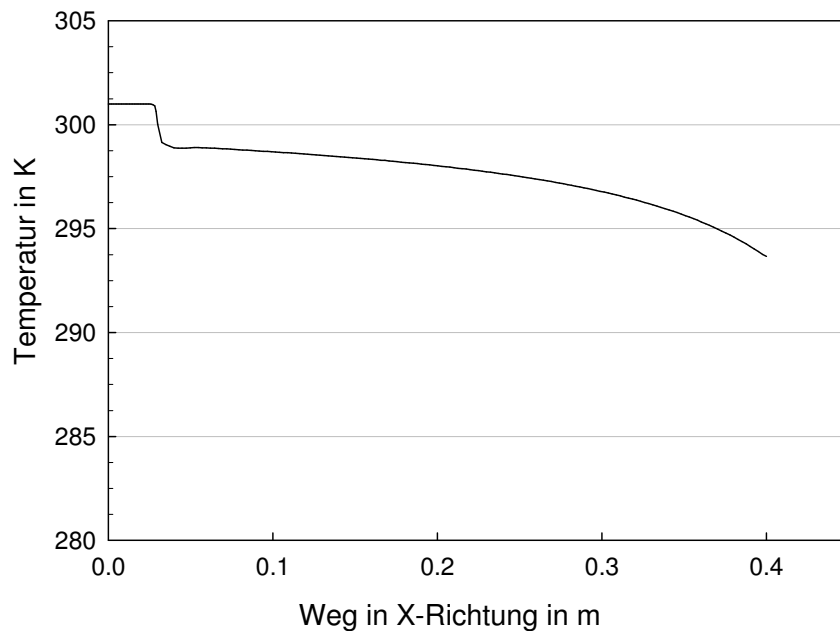
Betrachtet man sich nun noch das von Yang berechnete Sättigungsverhältnis entlang der Düse (Abbildung 4.6), so erkennt man, dass lediglich für  $p = 925$  hPa eine nahezu konstante Übersättigung nach der Verjüngung gegeben ist, diese jedoch sehr gering ausfällt. Würde hingegen in einem Eiskeimzähler Bedingungen, wie es bei den Berechnungen für  $p = 820$  hPa und  $p = 700$  hPa vorherrschen, so wäre es nicht möglich eine genaue Übersättigung zu bestimmen, bei der die IN aktiviert wurden.

Eine nahezu konstante Temperatur und Übersättigung ist somit lediglich bei  $p = 925$  hPa gegeben. Betrachtet man die Geschwindigkeit, so ist diese trotz der nur sehr geringen Temperaturabnahme und Sättigungsverhältniszunahme mit  $\sim 50$  m/s bereits sehr hoch. Dies führt zu einer sehr kurzen Verweilzeit der IN und CCN in der Düse, von  $\sim 2.4$  ms. Die Berechnungen von Yang für das Tropfenwachstum zeigen, dass selbst bei einem Sättigungsverhältnis von 1.5 die Partikel  $\sim 5$  ms benötigen, um von einem Radius von  $0.1 \mu\text{m}$  auf Tropfen mit einem Radius von  $0.3 \mu\text{m}$  anzuwachsen. Auch Messungen mit einem Expansions-Aerosolkernzählers bei einem Sättigungsverhältnis von  $\sim 1.9$  und einer Temperatur von  $13^\circ\text{C}$  nach der Expansion zeigten, dass für das Anwachsen eines Tropfens von  $1 \mu\text{m}$  auf  $3 \mu\text{m}$  eine Zeit von 80 ms benötigt wird [Nillius, (2003)].

Das entspricht dem benötigten Durchmesser, um in einem späteren Gerät Eiskristalle und Wassertropfen voneinander unterscheiden zu können. Wird nun berücksichtigt, dass sich bei kälteren Temperaturen und geringeren Übersättigungen auf Grund des weniger zu Verfügung stehenden Wasserdampfes diese Zeit wesentlich erhöht, so ist es mit einer Düse von 12 cm Länge nicht möglich IN zu Eiskristallen von detektierbaren Größe heranwachsen zu lassen.

Die Berechnungen für ein konstantes Sättigungsverhältnis  $S_{\text{Eis}} = 1.2$  und einer Temperatur von  $T = -20 \text{ °C}$  bzw.  $T = -40 \text{ °C}$  nach Gleichung 2-6 ergeben, dass die IN mit einem Durchmesser von  $0.2 \text{ }\mu\text{m}$  der Übersättigung 0.7 Sekunden bei  $T = -20 \text{ °C}$  bzw. 6.1 Sekunden bei  $T = -40 \text{ °C}$  ausgesetzt sein müssen, um zu Eiskristallen mit einem Durchmesser von  $3 \text{ }\mu\text{m}$  heranzuwachsen (Abbildung 2.5).

Aus diesem Grund wurden weitere Berechnungen mit anderen Düsengeometrien durchgeführt. Die Abbildung 4.7 zeigt die Berechnung für eine  $0.4 \text{ m}$  lange Düse mit dem gleichen Durchmesser, wie die zuvor berechnete Düse.



**Abbildung 4.7:** FLUENT-Berechnung des Temperaturverlaufs entlang der x-Achse einer  $40 \text{ cm}$  langen Düse mit einem Druck von  $500 \text{ hPa}$  am Ende der Düse.

Der Temperaturverlauf zeigt eine Verschiebung der eigentlichen Temperaturabnahme hin zum Auslass, so dass sich wiederum keine konstante Temperatur entlang der gesamten Düse einstellt. Die Düse scheidet somit ebenfalls für die Entwicklung für einen Eiskeimzähler aus.

In der nun folgenden theoretischen Betrachtung wird deutlich, dass eine Herstellung von konstanten Temperaturen und Übersättigungen über eine längere Zeit, die nötig sind, um IN zu detektierbaren Eiskristallen heranwachsen zu lassen, mit einer Düse nicht realisierbar ist.

Für die in der Abbildung 4.2 gezeigte Düse und Expansion aus einem Druckbehälter in den freien Raum existiert ein kritisches Druckverhältnis  $p_a/p_i$ , das wie folgt definiert ist:

$$\left( \frac{p_a}{p_i} \right)_{\text{krit}} = \left( \frac{2}{\chi + 1} \right)^{\frac{\chi}{\chi - 1}}, \quad 4-2$$

hierbei ist  $p_i$  der Druck im Inneren eines Druckbehälters bzw. am Eingang der Düse und  $p_a$  der Druck am Auslass des Druckbehälters bzw. am Ende der Düse.

Für  $\chi = 1.4$ , den dimensionsloser Adiabatenkoeffizient, für Luft erhält man ein kritisches Druckverhältnis (auch Laval-Druckverhältnis genannt) von 0.528.

Durch Einsetzen der Gleichung 4-1 und 4-2 in folgende Gleichung für die Austrittsgeschwindigkeit  $\omega'_a$  der Luft aus einem Druckbehälter

$$\omega'_a = \sqrt{2 \cdot \frac{\chi}{\chi - 1} \cdot \frac{p_i}{\rho_i} \cdot \left[ 1 - \left( \frac{p_a}{p_i} \right)^{\frac{\chi-1}{\chi}} \right]}, \quad 4-3$$

mit  $\rho_i$  der Dichte der Luft im Druckbehälter und der allgemeinen Zustandsgleichung für ideale Gase erhält eine kritische Geschwindigkeit  $\omega_{\text{krit}}$  am Auslass des Druckbehälters bzw. am Ende der Düse:

$$\omega_{\text{krit}} = a = \sqrt{\chi \cdot R \cdot T_a}, \quad 4-4$$

mit  $T_a$  einer angenommenen Temperatur und  $R$  der universalen Gaskonstante für Luft. Die kritische Geschwindigkeit entspricht der Schallgeschwindigkeit  $a$  und ist die maximale Geschwindigkeit eines gas- oder dampfförmigen Mediums, die beim Ausströmen aus einem Druckbehälter erreicht werden kann. Man bezeichnet diese Maximalgeschwindigkeit auch als Lavalgeschwindigkeit.

Für  $\chi = 1.4$  und einer angenommen  $T_a = 273.16$  K erhält man  $a = 333$  m/s.

Aus dem kritischen Druckverhältnis ergibt sich des Weiteren eine maximale Temperaturabnahme bei verlustfreier adiabatischer Expansion.

Die Temperatur  $T_1$  nach der Expansion lässt sich wie folgt berechnen:

$$T_1 = T_0 \cdot \left( \frac{p_a}{p_i} \right)_{\text{krit}}^{\frac{\chi-1}{\chi}} \quad 4-5$$

Für eine Temperatur am Einlass von  $T_0 = 300$  K erhält man eine minimale Temperatur von  $T_1 = 250$  K. Dies bedeutet eine Abkühlung von 50 K. Der Temperaturverlauf für eine verlustfreie Expansion ist in Abbildung 4.4 (oben, blaue Linie) gezeigt.

Dies würde bedeuten, dass die Luft sich mit Schallgeschwindigkeit bewegen müsste. Um nur eine Verweilzeit von Partikeln in der Düse von 20 ms zu erhalten, müsste die Düse bereits über 6 m lang sein. Das Problem, das hierbei jedoch auftritt ist, dass entlang der 6 m ebenfalls ein extremer Druckabfall entsteht, so dass der Druckabfall an der Verjüngung der Düse und die damit verbundene Temperaturabnahme sehr gering ausfällt, was auch die FLUENT-Berechnung der 40 cm langen Düse in Abbildung 4.7 gezeigt hat. Des Weiteren ist hier die entstehende Reibungswärme noch nicht berücksichtigt.

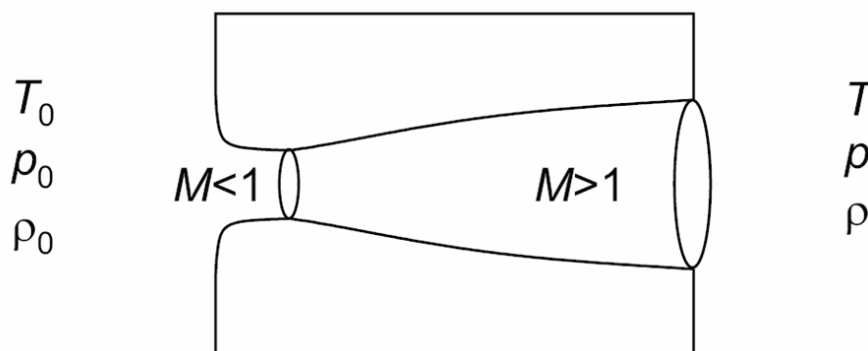


Bei einem einfachen Ausströmen aus einem Druckbehälter in dem 6000 hPa herrschen und die Luft über ein Ventil entweicht verringert sich die Temperaturabnahme auf Grund der Reibungswärme um 14 K [Bohl, (1982)].

Bei den hier gemachten Betrachtungen handelt es sich um Betrachtungen im Bereich von unterkritischen Druckverhältnissen.

Soll die Expansion über das kritische Druckverhältnis hinaus weiter gehen und die Geschwindigkeit größer als die Schallgeschwindigkeit sein, so muss die Düse nicht als einfache, konvergierende Düse, sondern als erweiterte Düse ausgeführt werden, als sogenannte Laval - Düse.

Mit der Laval-Düse (Abbildung 4.8) ist es möglich sehr hohe Abkühlungen auf Temperaturen bis  $-265\text{ °C}$  zu erreichen.



**Abbildung 4.8:** Geometrie einer Laval-Düse mit dem Druck  $p$ , der Temperatur  $T$  und der Dichte  $\rho$  vor der Düse mit dem Index 0 und nach der Düse ohne Index. Die Machgeschwindigkeit  $M$  ist vor dem minimalen Durchmesser der Düse  $M < 1$  und nach der Düse  $M > 1$ .

Die Temperatur  $T$  ergibt sich aus folgender Formel:

$$T_1 = T_0 \left( 1 + \frac{\chi - 1}{2} M^2 \right)^{-1}, \quad 4-6$$

$T_0$  und  $T_1$  der Temperatur vor bzw. nach der Düse und der Machgeschwindigkeit  $M$ . Auf Grund der sehr hohen Geschwindigkeiten scheidet eine Laval-Düse für unsere Zwecke jedoch aus, da auch hier eine theoretische Länge über 6 m nötig wäre, um eine ausreichende Verweilzeit der IN in der Düse zu erhalten. Das wiederum führt zu einem hohen Druckabfall entlang der Düse und einem nur sehr schwachen Druckabfall an der eigentlichen Laval-Düse. Ein Erreichen des kritischen Druckverhältnisses ist somit nicht möglich. Die Länge einer Laval-Düse ist des Weiteren begrenzt auf etwa das zehnfache ihres minimalen Durchmessers.

Zwar ist es möglich Kondensation von Wasserdampf in dieser durch homogene Nukleation zu erzeugen, jedoch reichen hierbei die Sättigungsverhältnisse von  $26 \leq S_w \leq 864$ . Dies führt zu einer sehr schnellen Tropfenbildung unter 1 ms

[Wegener und Pouring, (1964)]. Diese Tropfenbildung ist ebenfalls bei Düsenjet-Flugzeugen zu beobachten. Beim Überschreiten der Schallgeschwindigkeit kommt es zu einer Expansion, die für eine sehr hohe Übersättigung in der Umgebung des Flugzeugs sorgt. Dies führt zur Ausbildung einer kegelförmigen Wolke (Abbildung 4.9).

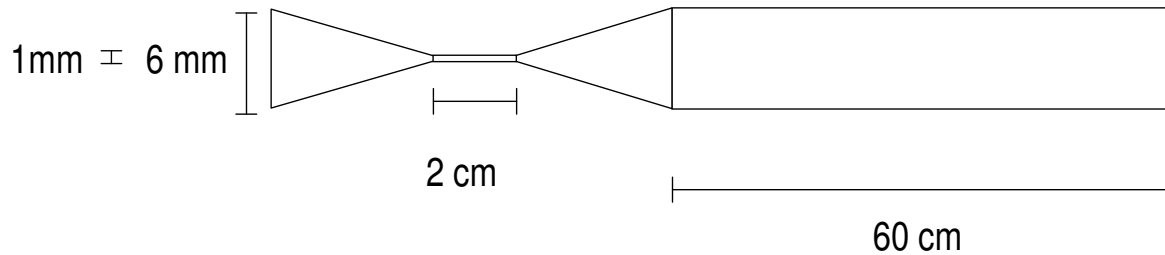


**Abbildung 4.9:** *Entstehung einer kegelförmigen Wolke am Heck und der Pilotenkanzel eines Düsenjet-Flugzeug durch Expansion und damit adiabatischer Abkühlung der Luft beim Überschreiten der Schallgeschwindigkeit [Universität München, (2008)].*

Die für den IN-Counter angestrebten Sättigungsverhältnisse liegen jedoch bei 1.0 - 1.5, so dass hier die Wachstumsgeschwindigkeiten von IN bzw. CCN zu Tropfen und Eiskristallen wesentlich geringer ausfallen (siehe Abbildung 2.5).

Die aufgeführten Punkte zeigen, dass die Nutzung der Laval-Düse für die Entwicklung eines Eiskeimzählers ebenfalls ausscheidet.

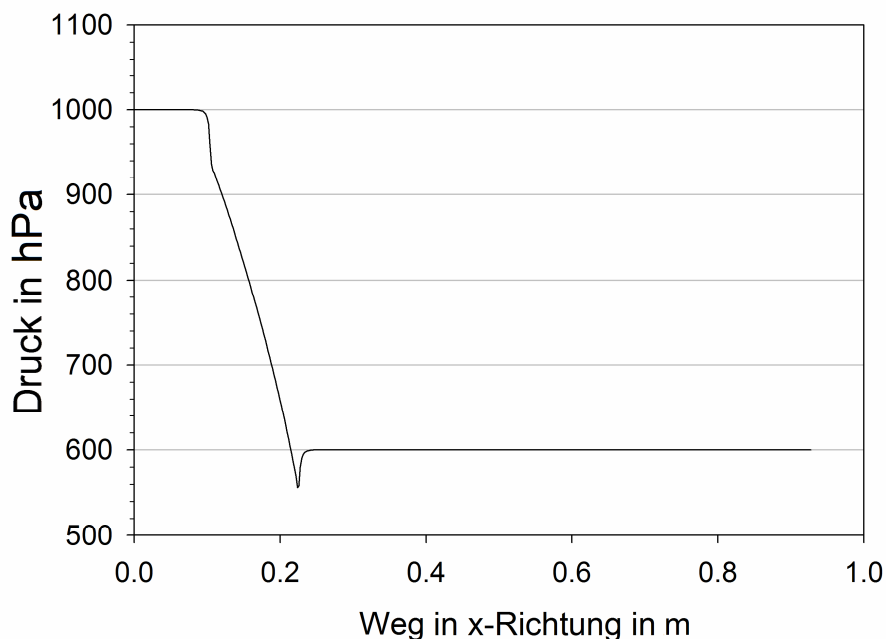
Bei einem weiteren Ansatz wurde eine sich von 6 mm auf 1 mm verjüngende Düse verwendet. Nach einer Strecke von 2 cm erweitert sich die Düse wieder auf ihren Ausgangsdurchmesser von 6mm, welcher über eine Länge von 60 cm konstant bleibt (Abbildung 4.10).



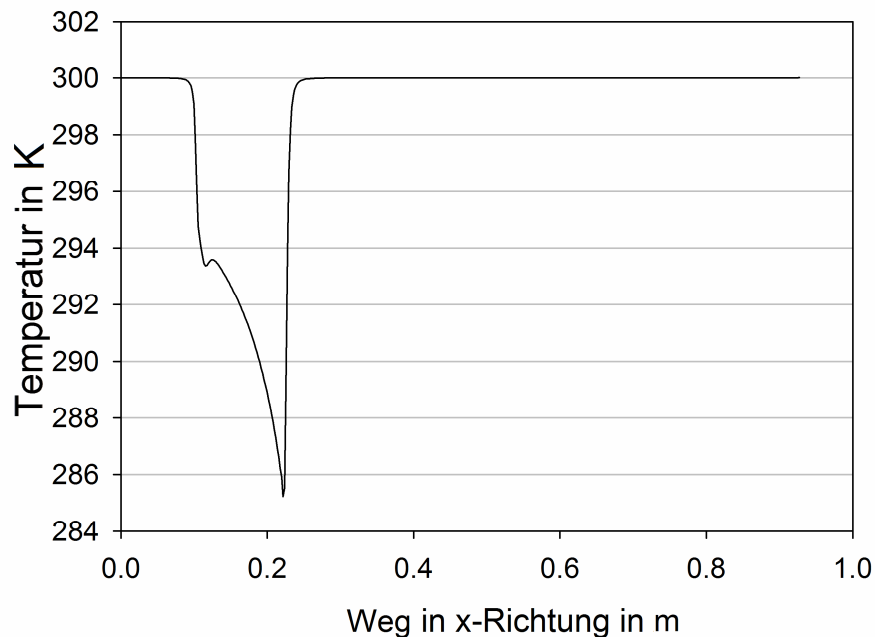
**Abbildung 4.10:** Geometrie einer sich von 6 mm auf 1 mm verjüngende Düse, die nach 2 cm sich wieder auf ihren Ausgangsdurchmesser aufweitet.

Der aus der FLUENT-Berechnung resultierende Druckverlauf in Abbildung 4.11 und der Temperaturverlauf in Abbildung 4.12 für die Geometrie aus Abbildung 4.10 und einen Druck von 600 hPa am Ende des Rohrs gezeigt. Die Temperatur fällt im Bereich der Verjüngung sehr stark ab und steigt danach wieder nahezu auf ihr Ausgangsniveau an, obwohl der Druck abgenommen hat.

Somit scheidet diese Geometrie für den Fall einer kontinuierlichen und adiabatischen Abkühlung ebenfalls aus, was die folgende theoretische Betrachtung zeigen wird.



**Abbildung 4.11:** Druckverlauf entlang der in Abbildung 4.10 gezeigten Geometrie für einen Druck am Ende der Düse von 600 hPa.



**Abbildung 4.12:** Temperaturverlauf entlang der in Abbildung 4.10 gezeigten Geometrie für einen Druck am Ende der Düse von 600 hPa.

Bei der in Abbildung 4.10 gezeigten Geometrie des Rohres spricht man in der Strömungsdynamik von dem Fall der Drosselung.

Unter einer Drosselung versteht man eine stationär verlaufende Expansion eines Gas- oder Dampfstroms durch einen in einer Rohrleitung eingebauten Widerstand ohne Arbeitsleistung und ohne äußere Wärmezufuhr- oder abfuhr.

Bei der Drosselstelle kann es sich im Betrieb um ein Stellglied, wie z.B. Schieber, Ventil, Hahn, Drosselklappe, oder um eine Messstelle, wie z.B. Blende, Düse, Venturirohr handeln. Auch die Einlass- und Regelventile von Dampfturbinen stellen Drosselstellen dar [Bohl, (1982)].

Der an der Drosselstelle in Folge von Reibung und Verwirbelung auftretende Druckabfall  $\Delta p$  berechnet sich wie folgt:

$$\Delta p = \zeta \cdot \rho \cdot \frac{\omega^2}{2}, \quad 4-7$$

mit  $\rho$  der Dichte der Luft, wobei  $\omega$  je nach Art der Drosselstelle und Definition vom Widerstandsbeiwert  $\zeta$ ,  $\omega_1$  die Geschwindigkeit vor oder  $\omega_2$  die Geschwindigkeit nach der Drosselung sein kann.

Der Reibungsverlust wird in Wärme umgewandelt, die jedoch nicht nach außen abgegeben wird. Würde man anstelle des Drosselwiderstands eine Kraftmaschine, z.B. Turbine, in die Rohrleitung einbauen, so würde diese eine dem Druckabfall entsprechende Nutzarbeit nach außen abgeben. Da nach außen weder Wärme zu- noch

abgeführt werden soll, d.h.  $dq = 0$  ist und auch keine Arbeitsabgabe oder -aufnahme vorliegt, kann für das Energiegleichgewicht

$$h_1 + \frac{\omega_1^2}{2} = h_2 + \frac{\omega_2^2}{2}, \quad 4-8$$

angesetzt werden, mit  $h$  der Enthalpie. Der Index „1“ bzw. „2“ bezeichnet die Variablen „vor“ bzw. „nach“ der Drosselstelle.

Nimmt man, wie im vorliegenden Fall an, dass die Geschwindigkeiten vor und nach der Drosselstelle ungefähr gleich groß sind bzw. dass gilt:

$$0 \approx \frac{\omega_2^2 - \omega_1^2}{2} \ll h_1 - h_2, \quad 4-9$$

so ergibt sich aus Gleichung 4-8 für die Zustandsänderung der Drosselung

$$h_1 = h_2 = \text{konst.} \quad 4-10$$

Bei der Drosselung bleibt die Enthalpie konstant, weshalb man diese Zustandsänderung als Isenthalpe bezeichnet.

Bei idealen Gasen und Dämpfen ist die Enthalpieänderung wie folgt definiert:

$$dh = c_p \cdot dT, \quad 4-11$$

Wenn die Enthalpie  $h$  konstant bleibt, folgt  $dh = 0$  und damit auch  $dT = 0$ , da ja  $c_p$ , die spezifische Wärmekapazität der Luft, ungleich Null ist.

Bei idealen Gasen und Dämpfen bleibt also die Temperatur bei einer Drosselung konstant. Bei realen Gasen und Dämpfen bleibt die Temperatur bei einer Drosselung nicht konstant. Bei relativ kleinen Drücken und Temperaturen kühlt sich das Medium durch die Drosselung ab (positiver Joule-Thomson-Effekt).

Die Temperaturabnahme beträgt für Stickstoff  $N_2$   $3.537 \cdot 10^{-4} \text{ K hPa}^{-1}$ . Ist somit für die oben betrachtete Rohrströmung vernachlässigbar gering [Bohl, (1982)].

Alle Berechnungen und theoretischen Betrachtungen haben gezeigt, dass es mit einer kontinuierlichen Strömung nicht möglich ist durch Expansion eine Temperaturabnahme und Übersättigung zu erzeugen, die über eine längere Strecke bzw. Zeit konstant ist, um IN und CCN zu detektierbaren Größen anwachsen zu lassen.

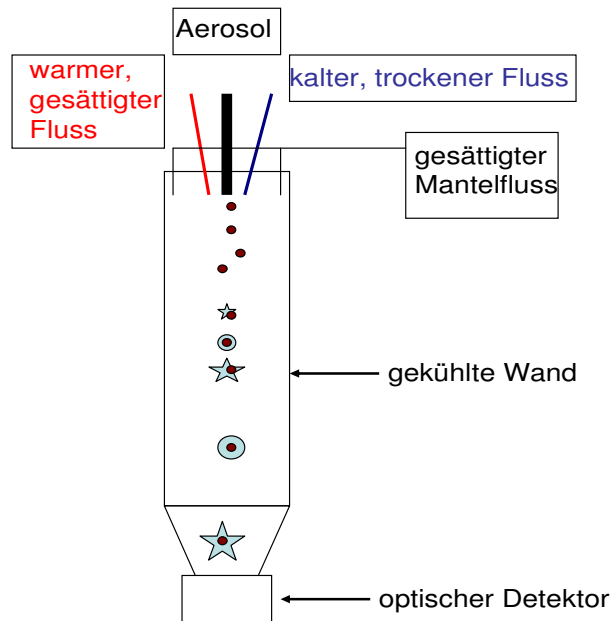
### 4.2. Ansatz der Mischung (FINCH)

Auf Grund der Unlösbarkeit der Probleme zur Entwicklung eines schnellen Eiskeimzählers mit dem Prinzip der kontinuierlichen Expansion, wurde dieses Projekt eingestellt.

Parallel zu der geplanten Entwicklung von Mainz im Rahmen des SFB 641, Teilprojekt A1, sollte in Frankfurt im gleichen Teilprojekt ebenfalls ein schneller Eiskeimzähler, jedoch auf dem Prinzip der Mischung aufgebaut werden. Da nach der ersten Antragsphase geplant war, sich für die funktionellere der beiden Entwicklungen zum Ausbau für eine Flugzeugversion zu entscheiden, wurde die Entscheidung vorgezogen und eine gemeinsame Entwicklung des in Frankfurt gemachten Ansatzes der Mischung angestrebt. Im Anschluss werden die durchgeführten Arbeiten und Ergebnisse präsentiert.

In Abbildung 4.13 ist das Grundprinzip des Gerätes gezeigt. Hierbei wird die benötigte Übersättigung und die kalte Temperatur zur Aktivierung von IN durch Mischung von drei verschiedenen Gasflüssen erzeugt (einem kalten trockenen, einem warmen gesättigten und dem Aerosolfluss). Diese drei Flüsse werden von einem gesättigten Mantelfluss umgeben, um das Aerosol in dem sich anschließenden Rohr zu fokussieren. Danach kann das aktivierte Aerosol zu Tropfen und Eiskristallen in der 1.35 m langen und gekühlten Wachstumskammer (-rohr) anwachsen. Diese gelangen von dort in einen optischen Detektor und die Anzahl von Tropfen und Eiskristallen wird gezählt. Das Gerät wird im Folgenden als FINCH (Fast IN CHamber counter) bezeichnet. Der Grund für die Bezeichnung „Fast“ ist der relativ hohe Sammelfluss von 1-10 l/min, im Vergleich zu anderen IN-Countern [Rogers, (1988); Stetzer, (2008)] mit einem maximalen Sammelfluss von 1 l/min. Ebenso ist es möglich die Übersättigung und Temperatur bei der die IN aktiviert werden sehr schnell zu ändern.

Um eine Abschätzung der Flussraten, Temperaturen und relativen Feuchten der einzelnen Flüsse, sowie der Strömung in FINCH zu bekommen, wurden zunächst 3-dimensionale Rechnungen mit FLUENT durchgeführt.



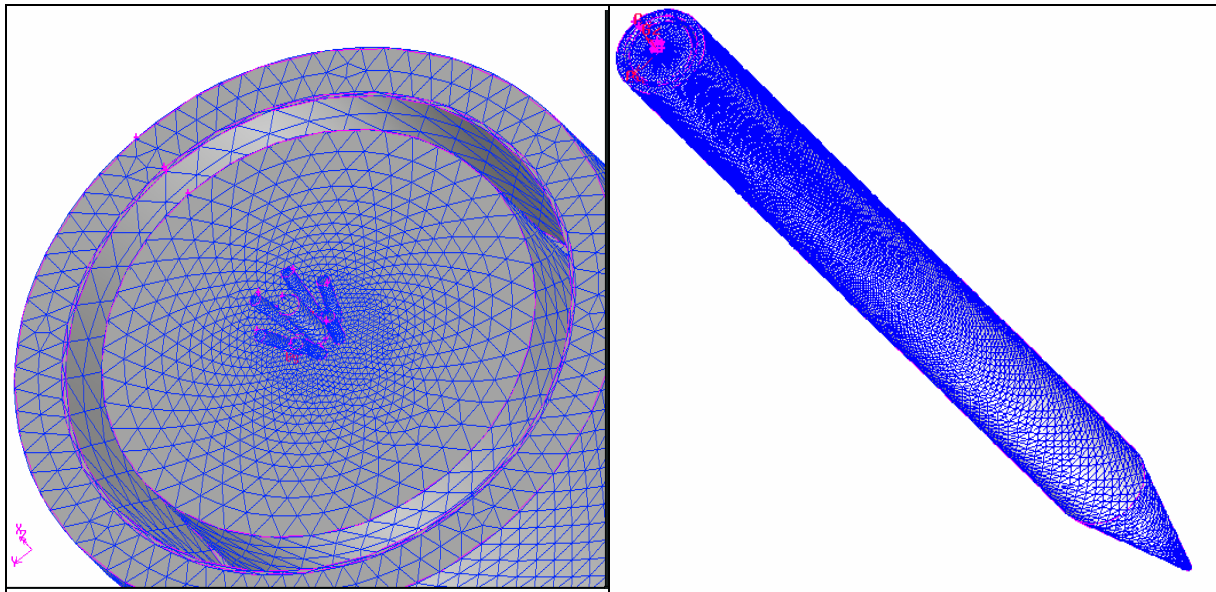
**Abbildung 4.13:** Grundprinzip des Fast IN Chamber counter (FINCH) mit den verschiedenen Gasflüssen, der gekühlten Wachstumskammer und dem optischen Sensor.

### 4.2.1. FLUENT - Berechnungen

Wie bereits für die geplante Entwicklung eines schnellen Eiskeimzählers mit kontinuierlicher Expansion, wurden ebenfalls FLUENT Berechnungen für FINCH durchgeführt. Hierbei handelt es jedoch um dreidimensionale Rechnungen. In Abbildung 4.14 (links) ist die Geometrie des Einlassbereichs mit dem dazugehörigen Rechengitter gezeigt. Im Zentrum befindet sich der Aerosoleinlass mit einem Durchmesser von 3 mm. Um den Einlass befinden sich sechs Rohre mit einem Durchmesser von 0.32 cm, die um  $15^\circ$  zum Zentrum der Wachstumskammer geneigt sind und 3 cm wie auch der Aerosoleinlass in diese hineinragen. Dies sind die Einlässe für den warmen, feuchten und den trockenen, kalten Fluss, die sich jeweils abwechseln. Diese wiederum sind umgeben von einem Luftleitblech mit einem Durchmesser von 6 cm, welches 5 cm in die Wachstumskammer hineinragt. Um das Luftleitblech befindet sich ein schmaler Schlitz mit einer Breite von 0.05 mm durch den die Mantelluft in die Wachstumskammer strömt. Hierbei handelt es sich um eine vereinfachte Annahme. Im eigentlichen Aufbau von FINCH strömt die Mantelluft durch 100 Düsen mit einem Durchmesser von 0.25 mm. Jedoch war es mit den sehr kleinen Düsen nicht möglich ein geeignetes Gitter in Gambit zu erzeugen.

Der Durchmesser der gesamten Wachstumskammer beträgt 8.4 cm. In Abbildung 4.14 (rechts) ist die gesamte Geometrie und das verwendete Rechengitter der Kammer gezeigt. Die Wachstumskammer hat in den Berechnungen eine Länge von 100 cm, ihr

schließt sich ein Kegelstumpf von 20 cm an, so dass sich der Durchmesser auf 18 mm verjüngt.



**Abbildung 4.14:** Geometrie des Einlassbereiches mit dem dazugehörigen Gitter für die FLUENT-Berechnungen (links) und die gesamte Geometrie der Kammer und dazugehöriges Gitter (rechts).

Für die Berechnungen wurde wieder das Standard „k-ε Modell“ von FLUENT verwendet. Für die Luft wurde die Annahme gemacht, dass es sich um ein ideales Gas handelt. Um die relative Feuchte in der Kammer berechnen zu können, wurde das sogenannte „species transport“ Modell verwendet.

Dabei wird die Erhaltungsgleichung für chemische Spezies, also auch für H<sub>2</sub>O gelöst. Um die Erhaltungsgleichung lösen zu können, muss für jede Spezies *i* der örtliche Massenanteil *Y<sub>i</sub>* berechnet werden. Allgemein lautet die Erhaltungsgleichung:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho Y_i) + \nabla \cdot (\rho \vec{v} Y_i) = -\nabla \cdot \vec{J}_i + R_i + B_i \quad 4-12$$

Dabei ist  $\rho$  die Dichte der Spezies in kg m<sup>-3</sup>,  $\vec{v}$  Geschwindigkeit des Massevolumens in m s<sup>-1</sup>,  $J_i$  der Diffusionsfluss in kg m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>,  $R_i$  die Nettoproduktionsrate der Spezies *i* in kg m<sup>-3</sup>, und  $B_i$  die Bildungsrate durch die disperse Phase sowie andere nutzungsbedingte Quellen in kg m<sup>-3</sup>.

Diese Gleichungen müssen für *N*-1 Spezies gelöst werden, wobei *N* die Gesamtzahl der Spezies in der Fluidphase darstellt. Die letzte Phase wird dann als Rest zu 1 berechnet.

Die Rechnungen sollten zunächst ein ungefähres Bild der Strömungsbedingungen im Entwicklungsrohr wiedergeben. In Abbildung 4.15 sind die Stromlinien des Aerosolflusses am Anfang der Entwicklungskammer und am Ende der Kammer für eine

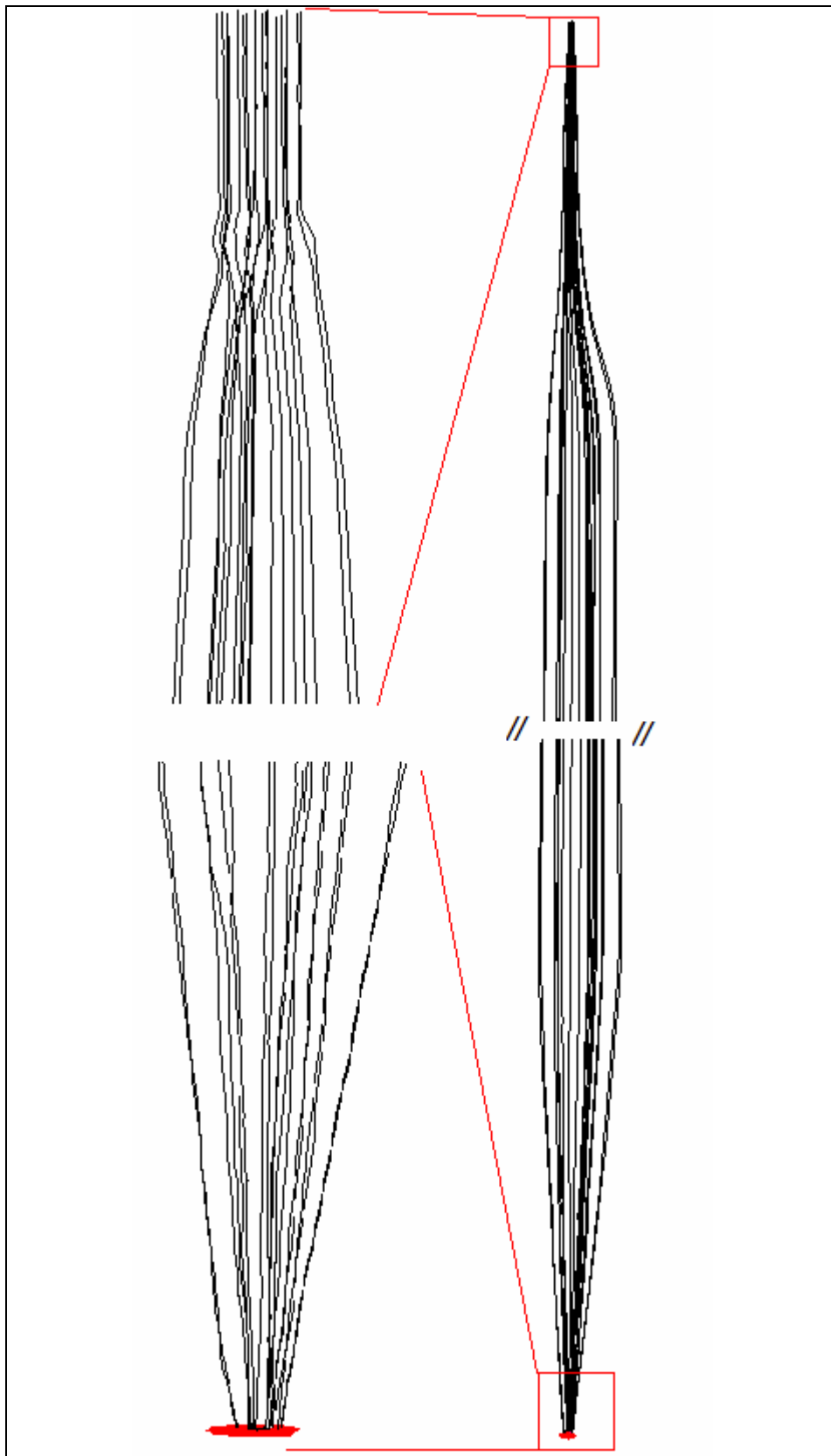


Berechnung mit einem Aerosolfluss und einem warmen Fluss von 10 l/min und einem Mantelfluss und kalten Fluss von jeweils 20 l/min dargestellt.

Es ist zu erkennen, dass in den ersten 10 cm die Stromlinien der Probenluft sehr nah beieinander liegen und im Anschluss leicht aufweiten, jedoch immer noch ein zentraler Verlauf entlang der Wachstumskammer gegeben ist. Im Bereich des Kegelstumpfs werden die Stromlinien auf Grund der Geometrie wiederum fokussiert und erreichen alle den Auslass der Kammer (rot).

Die Berechnungen der Reynoldszahl  $Re$  entlang der Stromlinien der Probenluft zeigen einen sehr scharfen Anstieg auf  $Re = 250$  1.5 cm nach dem Verlassen des Einlassrohres mit anschließendem scharfen Abfall. Nach 5 cm liegen die Werte bei  $Re=1$ , entlang der Entwicklungskammer steigt der Wert auf  $Re = 20$  an. Am Ende des Kegelstumpfs liegt die Reynoldszahl bei  $Re = 100$ .

Es kann somit angenommen, dass eine schnelle Mischung der Luft in den ersten 5 cm der Entwicklungskammer stattfindet und im Anschluss die Luft laminar strömt.

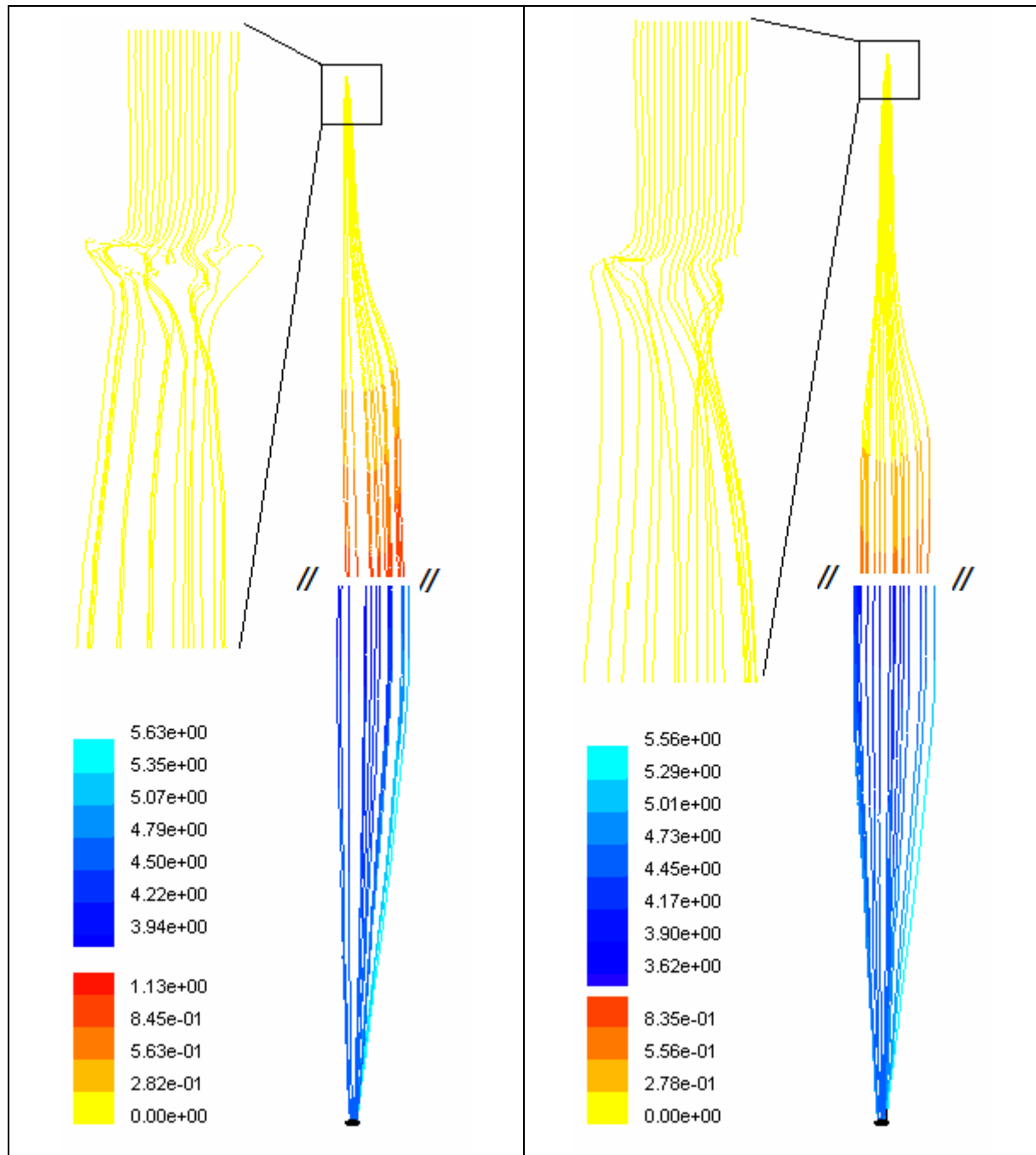


**Abbildung 4.15:** FLUENT-Berechnungen der Stromlinien der Probenluft am Anfang und Ende der Wachstumskammer mit dem Auslass der Kammer in rot. Die rot umrandeten Bereiche sind nochmals vergrößert dargestellt.

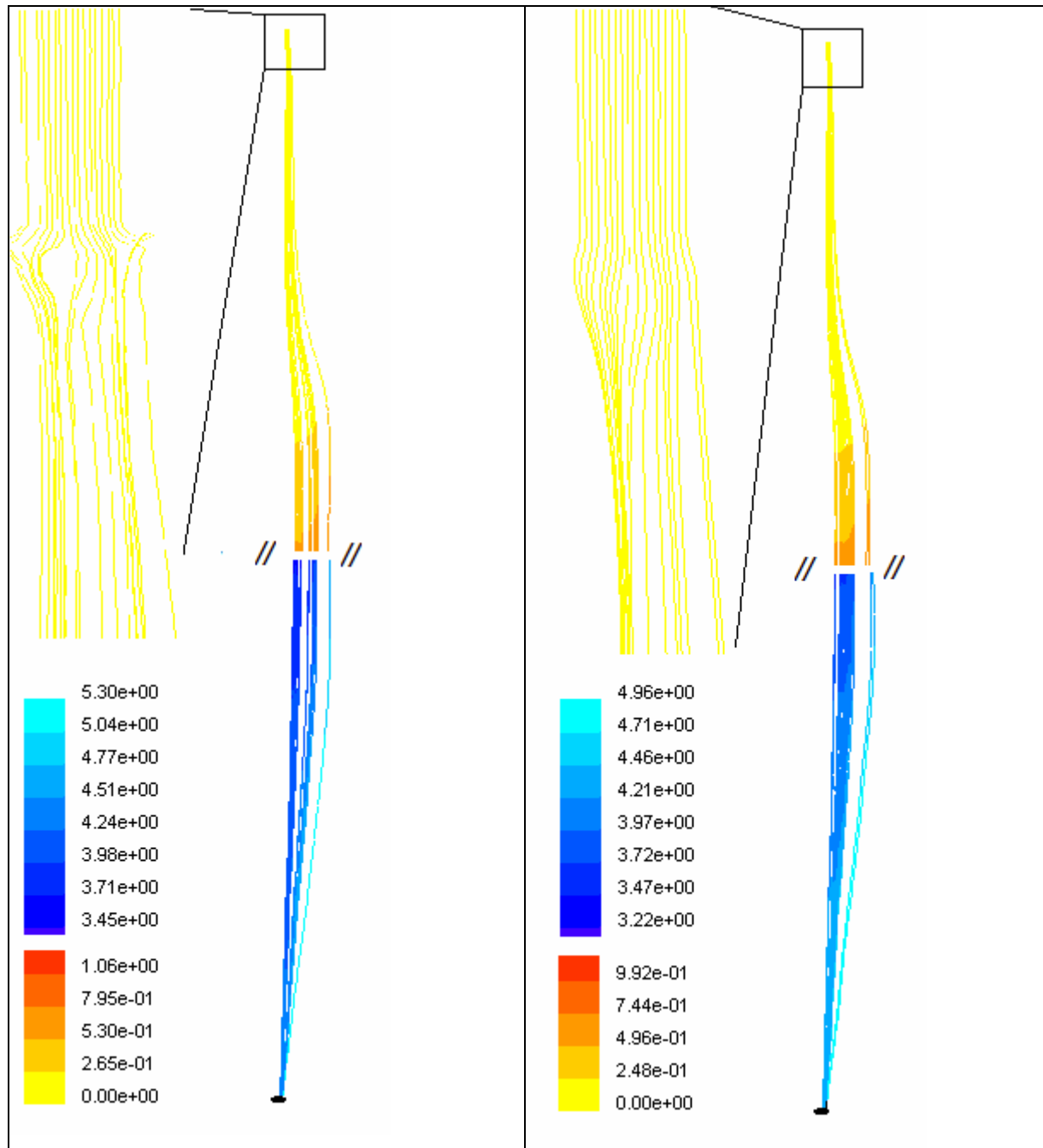
Um Partikelverluste ausschließen zu können, wurden Partikeltrajektorien für Wassertropfen mit unterschiedlichem Durchmesser (0.1  $\mu\text{m}$ , 1  $\mu\text{m}$ , 2  $\mu\text{m}$ , 4  $\mu\text{m}$ , 6  $\mu\text{m}$ , 8  $\mu\text{m}$  und 10  $\mu\text{m}$ ) bei drei unterschiedlichen Aerosolflussraten (1 l/min, 5 l/min und 10 l/min) durchgeführt. Die übrigen Flussraten blieben konstant. Hierbei sollten die Wassertropfen mit einem Durchmesser von 0.1  $\mu\text{m}$ , 1  $\mu\text{m}$  und 2  $\mu\text{m}$  Aerosolpartikel vor der Aktivierung und dem Anwachsen widerspiegeln. Die größeren Durchmesser stehen für die Eiskristalle und Tropfen nach dem Anwachsen. Für jeden Durchmesser wurden 18 Partikeltrajektorien berechnet, deren Startpunkte entlang der x-Achse des Aerosoleinlasses verteilt sind.

Die Abbildungen 4.16 - 4.18 zeigen die Trajektorien für Wassertropfen mit 0.1  $\mu\text{m}$  (links) und für 10  $\mu\text{m}$  (rechts) für die unterschiedlichen Aerosolflussraten. Die Trajektorien am Aerosoleinlass sind jeweils nochmal vergrößert dargestellt.

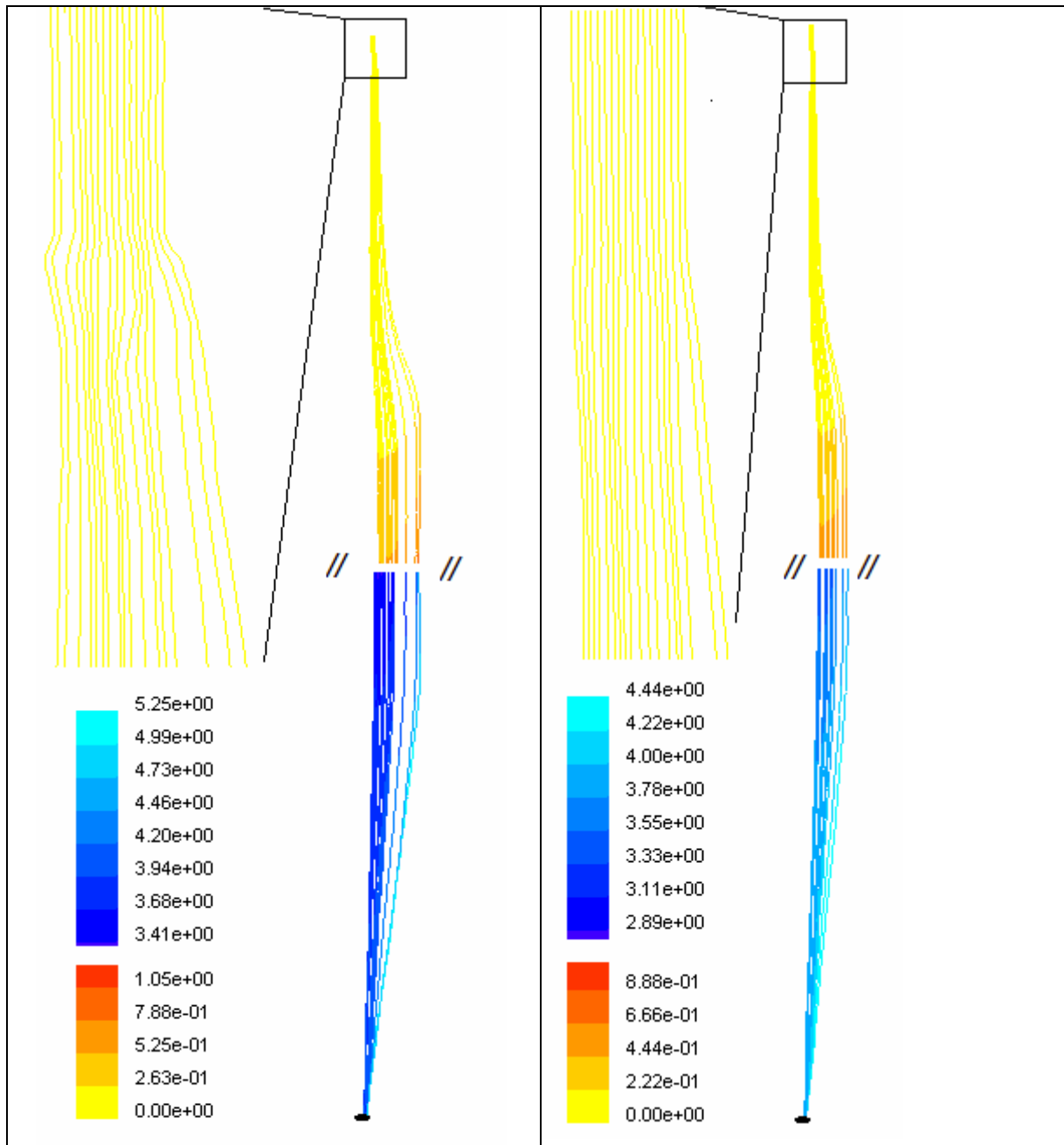
Man erkennt, dass bei allen Aerosolflussraten sowohl bei den kleinen 0.1  $\mu\text{m}$  als auch bei den 10  $\mu\text{m}$  großen Wassertropfen keine Verluste im Einlassbereich der Kammer, entlang der Wachstumskammer und im Verlauf des Kegelstumpfs zu verzeichnen sind. Alle Trajektorien erreichen den Auslass der Kammer (schwarz). Lediglich bei der geringsten Aerosolflussrate von 1 l/min ist ein etwas weiteres Aufweiten der Trajektorien im Vergleich zu den höheren Flussraten zu erkennen, was jedoch keinen Einfluss auf spätere Messungen haben sollte.



**Abbildung 4.16:** FLUENT-Berechnungen der Trajektorien für Wassertropfen mit einem Durchmesser von  $0.1 \mu\text{m}$  (links) und  $10 \mu\text{m}$  (rechts) entlang der Wachstumskammer bei einer Aerosolflussrate von  $1 \text{ l/min}$ . Der Farbcode der Trajektorien zeigt die verstrichene Zeit in Sekunden nach Eintritt des betrachteten Partikel in die Kammer an. Der Trajektorienverlauf ist für den oberen umrandeten Bereich nochmals vergrößert dargestellt.



**Abbildung 4.17:** FLUENT-Berechnungen der Trajektorien für Wassertropfen mit einem Durchmesser von  $0.1 \mu\text{m}$  (links) und  $10 \mu\text{m}$  (rechts) entlang der Wachstumskammer bei einer Aerosolflussrate von  $5 \text{ l/min}$ . Der Farbcode der Trajektorien zeigt die verstrichene Zeit in Sekunden nach Eintritt des betrachteten Partikel in die Kammer an. Der Trajektorienverlauf ist für den oberen umrandeten Bereich nochmals vergrößert dargestellt.



**Abbildung 4.18:** FLUENT-Berechnungen der Trajektorien für Wassertropfen mit einem Durchmesser von 0.1 µm (links) und 10 µm (rechts) entlang der Wachstumskammer bei einer Aerosolflussrate von 10 l/min. Der Farbcode der Trajektorien zeigt die verstrichene Zeit in Sekunden nach Eintritt des betrachteten Partikel in die Kammer an. Der Trajektorienverlauf ist für den oberen umrandeten Bereich nochmals vergrößert dargestellt.

An Hand der Färbung ist die Verweilzeit der einzelnen Tropfen in der Kammer zu erkennen (gelb: kurze Verweilzeit; blau: lange Verweilzeit). Für diese Berechnung betragen die Verweilzeiten je nach Aerosolflussrate und Tropfendurchmesser 4.4 - 5.6 Sekunden.

Weitere Berechnungen bei Gesamtflussraten von 40 - 80 l/min haben gezeigt, dass die Strömungsbedingungen sich nur geringfügig verändern und die Verweilzeiten bei 3 - 6.5 Sekunden liegen.

Die folgenden Berechnungen zeigen, dass es möglich ist durch Veränderung der Temperatur, der Flussrate der verschiedenen Flüsse und der Feuchte des warmen Flusses nahezu konstante Temperaturen zwischen 0 und  $-40$  °C und Eisübersättigung entlang der Wachstumskammer zu erzeugen.

In Abbildung 4.19 ist die Berechnung für das Sättigungsverhältnis bzw. die Temperatur für die Stromlinie des Aerosolflusses entlang des Zentrums der Kammer für die in Tabelle 1 aufgeführten Parameter der einzelnen Flüsse gezeigt. Für den warmen Fluss wurde die Berechnung für zwei unterschiedliche Sättigungsverhältnisse  $S_{\text{Eis}}$ , durchgeführt. Der Einfluss der Wandtemperatur wurde in diesen Berechnungen zunächst ausgeschaltet.

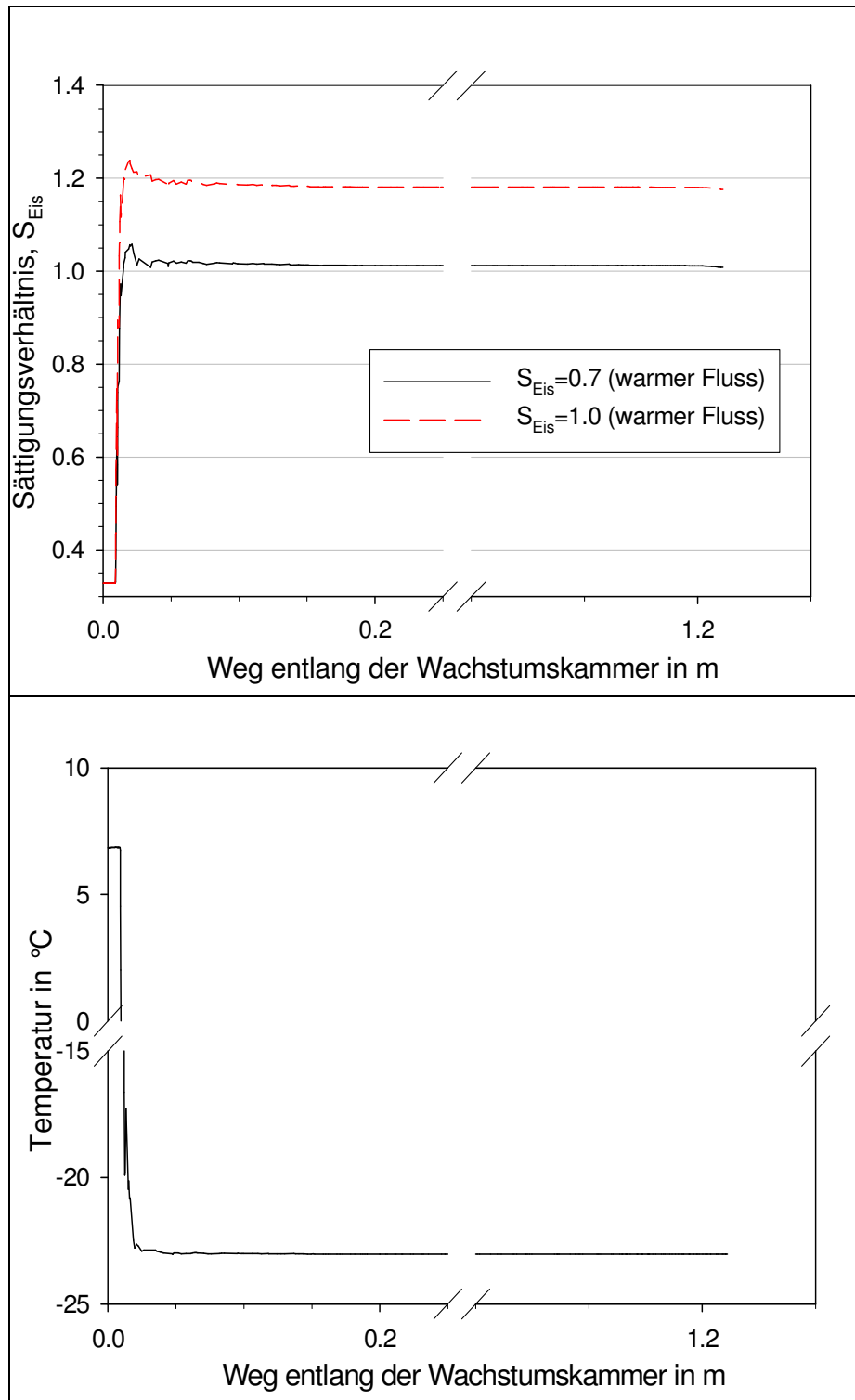
	<b>Aerosolfluss</b>	<b>Kalter Fluss</b>	<b>Mantelfluss</b>	<b>Warmer Fluss</b>
<b>Flussrate in l/min</b>	4.5	16	16	4.5
<b>T in °C</b>	7	-35	-23	-3
<b><math>S_{\text{Eis}}</math></b>	0.28	0.77	1.0	0.7/1.0

**Tabelle 1:** Flussraten, Temperaturen und  $S_{\text{Eis}}$  der verschiedenen Flüsse (Aerosol-, kalter, warmer und Mantelfluss) für die FLUENT-Berechnungen.

Es ist zu erkennen, dass durch die Mischung die Temperatur ab- und  $S_{\text{Eis}}$  zunimmt und danach über die gesamte Länge der Kammer nahezu konstant sind.

Durch eine stärkere Anfeuchtung des warmen Flusses ( $S_{\text{Eis}} = 1$ ) ist es möglich  $S_{\text{Eis}}$  von 1.0 auf 1.2 bei gleich bleibender Temperatur zu erhöhen.

Lediglich im Bereich der Mischung, die in den ersten 10 cm stattfindet, ergibt sich eine höhere Übersättigung von etwa 3 % über eine Strecke von einem Zentimeter. Da im Bereich der höheren Übersättigung die Luftgeschwindigkeit bei circa 15 m/s liegt, bedeutet dies eine nur sehr geringe Verweilzeit von 0.667 ms. Ebenso ist die minimale Temperatur der Luft an dieser Stelle noch nicht erreicht, so dass eine nicht erwünschte Aktivierung der IN im Depositionsmode bei höheren Übersättigungen als sie im weiteren Verlauf der Kammer vorliegt, auszuschließen ist.



**Abbildung 4.19:** Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (oben) und Temperatur (unten) für zwei FLUENT-Berechnungen entlang der Wachstumskammer mit einem unterschiedlichen  $S_{Eis}$  von 0.7 und 1.0 des warmen Flusses und den in Tabelle 1 aufgelisteten Parameter der einzelnen Flüsse.



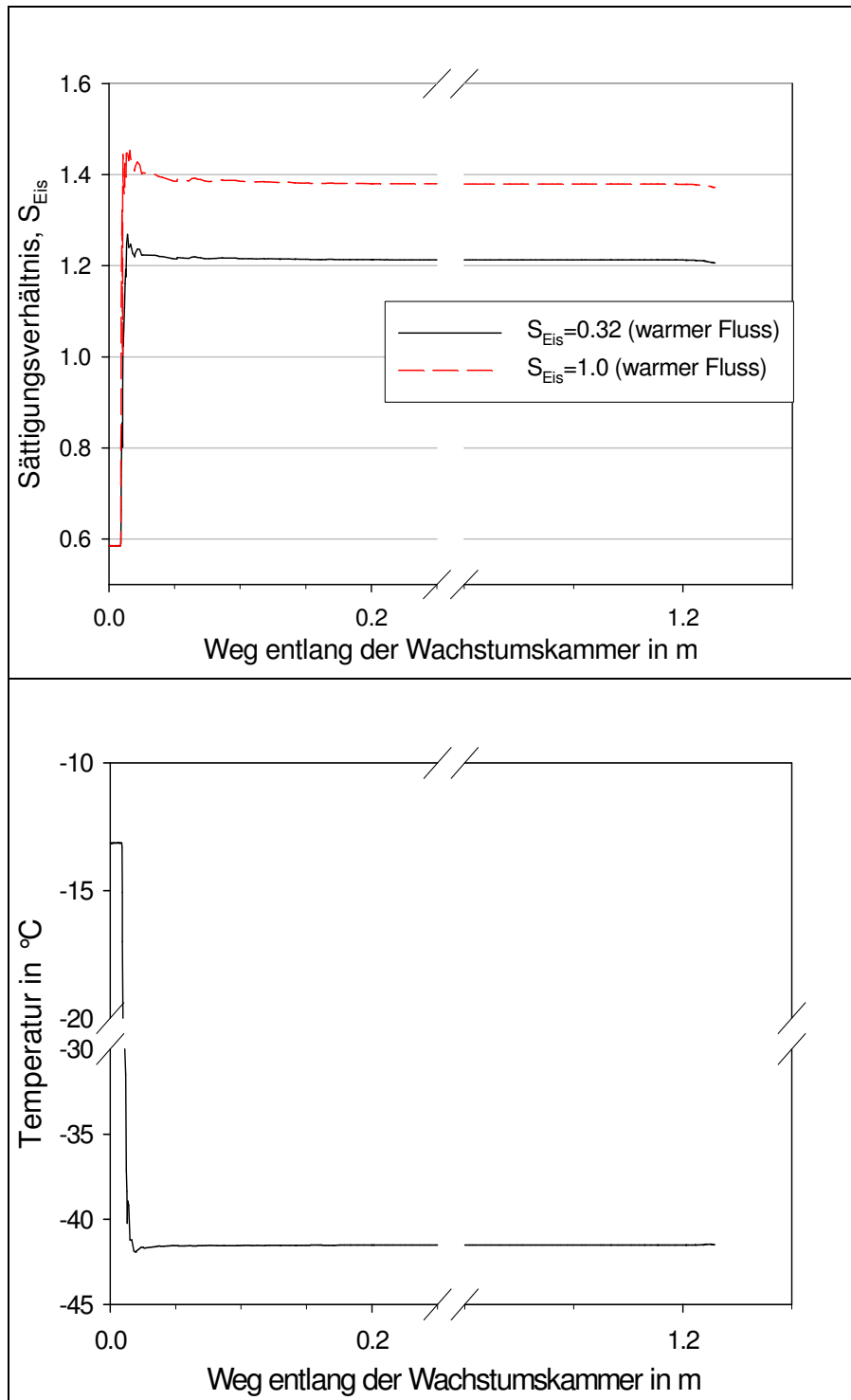
Um die Bedingungen bei einer Mischtemperatur um  $-40\text{ °C}$  zu simulieren, wurde eine zweite FLUENT-Berechnung mit folgenden Parametern der einzelnen Flüsse durchgeführt:

	<b>Aerosolfluss</b>	<b>Kalter Fluss</b>	<b>Mantelfluss</b>	<b>Warmer Fluss</b>
<b>Flussrate in l/min</b>	4.5	30	15	0.5
<b>T in °C</b>	-13	-47	-40	-5
<b>S<sub>Eis</sub></b>	0.58	0.20	1.0	0.32/1.0

**Tabelle 2:** Flussraten, Temperaturen und  $S_{Eis}$  der verschiedenen Flüsse (Aerosol-, kalter, warmer und Mantelfluss) für die FLUENT-Berechnungen.

Dazu wurden die Temperaturen aller Gasflüsse verringert, um die gewünschte Mischtemperatur zu erreichen. Um eine zu starke Anfeuchtung zu vermeiden, wurde der warme Fluss auf 0.5 l/min reduziert. Eine weitere Quelle für Wasserdampf ist der Aerosolfluss. Aus diesem Grund wurde eine Temperatur von  $-13\text{ °C}$  gewählt, um so den absoluten Anteil von Wasserdampf zu reduzieren. In der Realität muss dies durch eine Vorkühlung realisiert werden, was zum einen zu einer Temperaturabnahme und zum anderen zu einem Ausfrieren von Wasserdampf aus dem Probenfluss führt.

Die Ergebnisse in Abbildung 4.20 ergeben einen ähnlichen Verlauf von Temperatur und  $S_{Eis}$  wie in der vorherigen Modellierung, lediglich bei niedrigeren Temperaturen. Auch hier ist wieder ein starker Anstieg von  $S_{Eis}$  durch die Mischung zu beobachten mit einer Spitzenübersättigung in einem Bereich von 1 cm zu Beginn der Mischung. Im weiteren Verlauf bleibt  $S_{Eis}$  nahezu konstant. Auch hier lässt sich die Eisübersättigung wieder durch die Feuchte des warmen Flusses regeln.



**Abbildung 4.20:** Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (oben) und Temperatur (unten) für zwei FLUENT-Berechnungen entlang der Wachstumskammer mit einem unterschiedlichen  $S_{Eis}$  von 0.32 und 1.0 des warmen Flusses und den in Tabelle 2 aufgelisteten Parameter der einzelnen Flüsse.

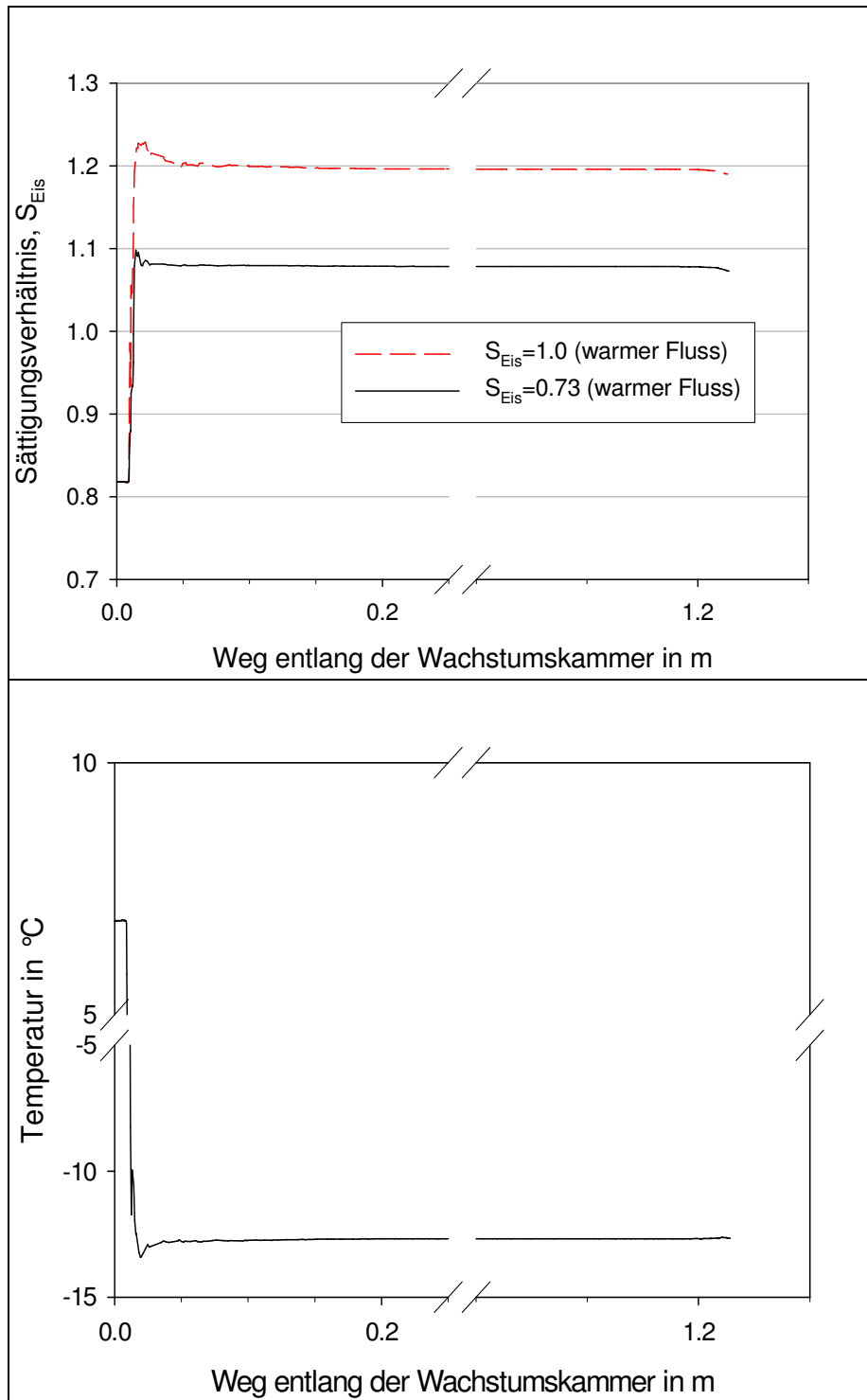
Die Modellierung der einzelnen Flüsse mit den in Tabelle 3 aufgeführten Parametern führt zu einer höheren Mischtemperatur von  $-13\text{ °C}$ . Auch hier ist wiederum durch Änderung von  $S_{\text{Eis}}$  der warmen Luft,  $S_{\text{Eis}}$  der Mischluft regelbar (Abbildung 4.21).

	<b>Aerosolfluss</b>	<b>Kalter Fluss</b>	<b>Mantelfluss</b>	<b>Warmer Fluss</b>
<b>Flussrate in l/min</b>	4.5	20	15	4.6
<b>T in °C</b>	7	-22	-11	5
<b><math>S_{\text{Eis}}</math></b>	0.82	0.10	1.0	0.73/1.0

**Tabelle 3:** Flussraten, Temperaturen und  $S_{\text{Eis}}$  der verschiedenen Flüsse (Aerosol-, kalter, warmer und Mantelfluss) für die FLUENT-Berechnungen.

Die FLUENT-Modellierungen haben gezeigt, dass es durch Mischung von Probenluft, einem kalten trockenen Fluss und einem feuchten warmen Fluss, die von einem gesättigten Mantelfluss umgeben sind, möglich ist, die nötigen Temperaturen und Eisübersättigungen zur Aktivierung von IN zu erzeugen und diese Bedingungen über eine Strecke von etwa 1m nahezu konstant zu halten. Ebenso ergibt sich aus den Berechnungen, dass eine Änderung der Temperatur und Eisübersättigung sehr schnell durch Änderung der Flussparameter zu erzeugen ist.

Weitere Modellierungen zeigten, dass auch höhere Aerosolflussraten bis zu 10 l/min kein Problem darstellen.



**Abbildung 4.21:** Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (oben) und Temperatur (unten) für zwei FLUENT-Berechnungen entlang der Wachstumskammer mit einem unterschiedlichen  $S_{Eis}$  von 0.73 und 1.0 des warmen Flusses und den in Tabelle 3 aufgelisteten Parameter der einzelnen Flüsse.

### 4.2.2. Aufbau und Funktionsweise von FINCH

Wie bereits erwähnt wird bei FINCH durch Mischung verschiedener Gasflüsse eine definierte Übersättigung bei einer bestimmten Temperatur erzeugt, um IN im Depositionsmodus  $IN_{Dep}$  und CCN zu aktivieren.

Der Gesamtaufbau FINCH hat eine Höhe von 200 cm, eine Breite von 130 cm und eine Tiefe von 60 cm. Der Verlauf der einzelnen Gasflüsse ist in Abbildung 4.22 mit durchgezogenen Linien dargestellt (rot, warme, feuchte Luft; blau, kalte trockene Luft; grün, gesättigte Mantelluft und schwarz, Probenluft). Der Gesamtfluss von 40 - 80 l/min wird in einem geschlossenen Kreislauf von einer Pumpe<sup>3</sup> erzeugt. Hierzu wurde eine sehr leistungsstarke Pumpe benötigt, um die hohen Flussraten zu erzeugen. Der Großteil der durch die Pumpe sehr stark erwärmten Gases wird zunächst zur Trocknung durch einen mit Silikagel gefüllten Plexiglaszylinder und ein auf etwa  $-20\text{ °C}$  gekühltes Edelstahlrohr geleitet. Die nun gekühlte Luft wird durch Filterwatte und einen HEPA-Filter (High Efficiency-Particulate Airfilter) geleitet und gelangt von dort zu vier Massenflussregler (MFC), bei denen die Flussraten der verschiedenen Flüsse eingestellt werden können. Für den warmen, feuchten Fluss stehen zwei MFC zur Verfügung. Ein Teilfluss wird über eine Wasseroberfläche geleitet und somit angefeuchtet. Über das Verhältnis der beiden Flussraten ist es möglich die Feuchte des warmen Flusses zu regulieren.

Die Flussrate der Probenluft von 0 - 10 l/min kann über einen fünften MFC geregelt werden. Dieser Fluss verlässt das geschlossene Flusssystem über einen Auslass. Auf Grund der Massenerhaltung strömt gleich viel Luft über den Probenlufteinlass in die Kammer hinein.

Bevor die übrigen Flüsse in die Wachstumskammer gelangen werden sie erneut gefiltert und dann durch Wärmetauscher auf eine gewünschte Temperatur gebracht (4.2.3.2). Kalte und Mantelluft strömen zuvor nochmals durch ein von außen gekühltes Rohr und werden vorgekühlt. Anschließend gelangen kalte und warme Luft durch sechs Düsen in die Kammer, die abwechselnd und um  $15^\circ$  zur dessen Mittelachse geneigt, angebracht sind (Abbildung 4.23).

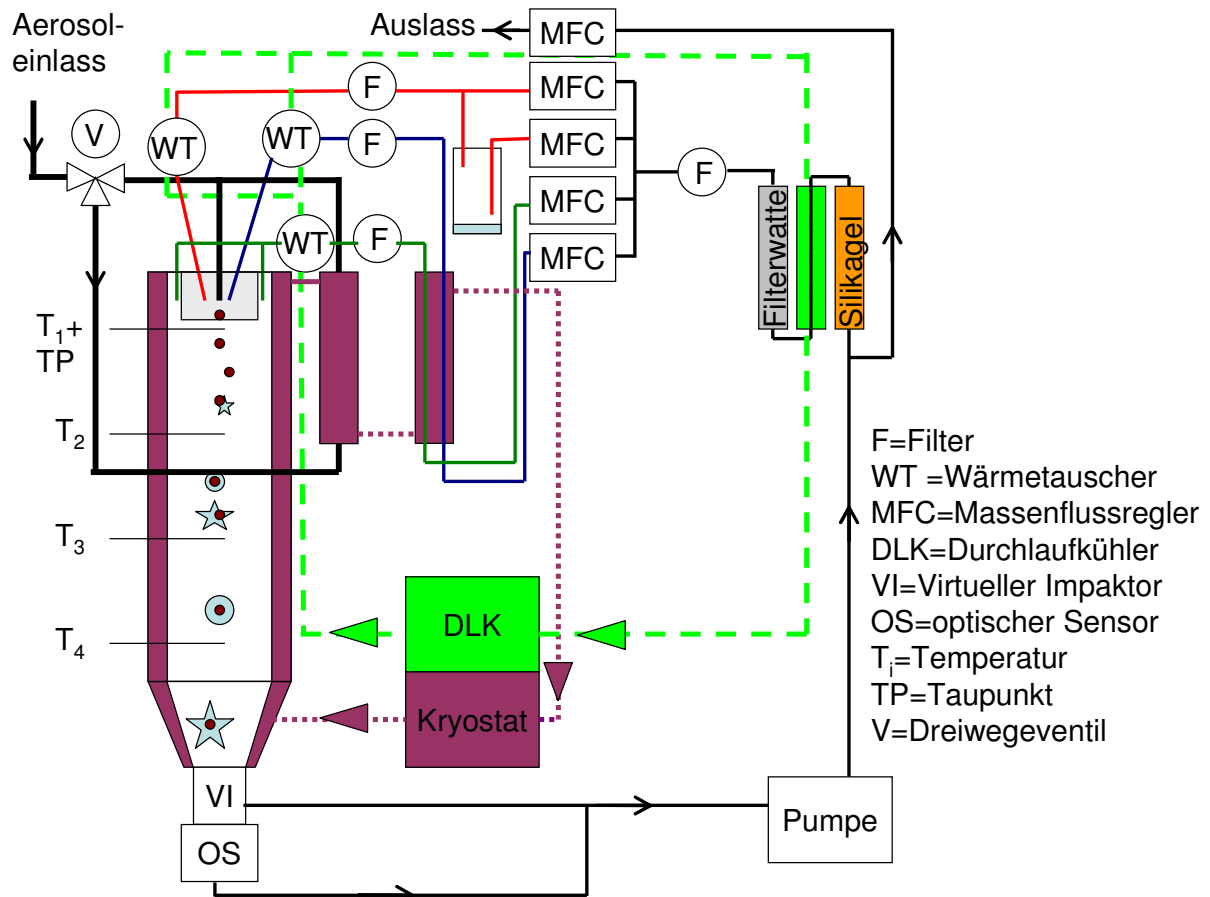
Die Probenluft gelangt über ein 25 cm langes Rohr mit einem Innendurchmesser von 1.1 cm, das sich mit einem Gefälle von  $7^\circ$  auf 0.3 cm verjüngt in die Wachstumskammer. Das Ende des Einlasses befindet sich in der Mitte der anderen Düsen. Die Probenluft wird nun mit den beiden anderen Flüssen gemischt. Über ein Dreiwegeventil ist es möglich die Probenluft zur Vorkühlung und Trocknung zunächst über ein gekühltes 1 Meter langes Rohr zu leiten. Der Innendurchmesser des Rohres beträgt ist ebenfalls 1.1 cm.

Die in die Kammer einströmende kalte, warme und Probenluft ist im Mischungsbereich von einem Luftleitblech umgeben. Danach wird die gemischte Luft von der Mantelluft umströmt. Die Mantelluft fokussiert das Aerosol und verringert mögliche Einflüsse durch die Wand. Die Wand wird mit einem Kryostaten auf eine gewünschte Temperatur

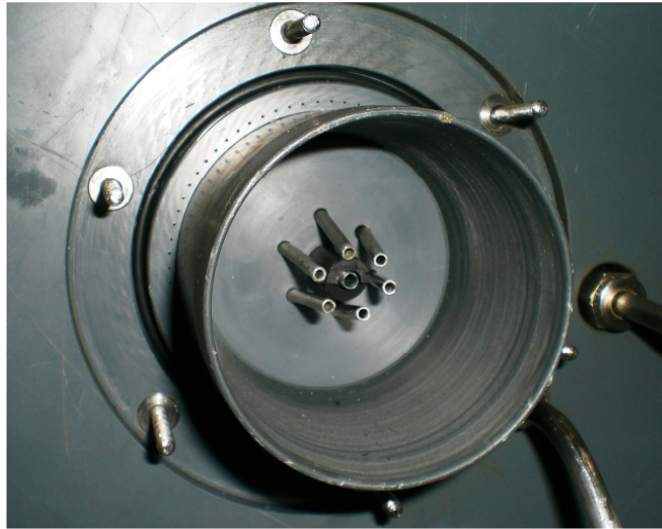
---

<sup>3</sup> KNF Neuberger Pumpe N 0150.1.2.ANE (Betriebsspannung: 220V, Leistungsaufnahme: 0.95 kW)

gebracht (lila, gestrichelte Linie). Der Rücklauf der Wandkühlung wird zur Vorkühlung der verschiedenen Flüsse verwendet.



**Abbildung 4.22:** Schematischer Aufbau von FINCH mit dem Verlauf der einzelnen Flüsse (*wärmer, feuchter, kalter trockener, gesättigte Mantelluft*, sowie Probenluft). In lila und grün sind die Kühlkreisläufe des Kryostaten und des Durchlaufkühlers (DLK) zur Kühlung der Kammerwand und der Wärmetauscher sowie zur Vorkühlung der verschiedenen Flüsse dargestellt.



**Abbildung 4.23:** Foto des Einlassbereichs mit den um  $15^\circ$  zur Mittelachse der Kammer geneigten Düsen für den kalten und warmen Fluss. Im Zentrum gelangt die Probenluft in die Kammer. Die Düsen sind von einem Luftleitblech umgeben. Durch weitere 100 Düsen um das Luftleitblech strömt die Mantelluft.

In der aus Edelstahl bestehenden Wachstumskammer mit einer Gesamtlänge von 135 cm (115 cm Zylinder + 20 cm Kegelstumpf) können die durch die Übersättigung und geringe Temperatur aktivierten IN und CCN zu Eiskristalle bzw. Wassertropfen anwachsen. Mit vier Pt 100 ( $T_1$ - $T_4$ ) wird die Gastemperatur entlang der Kammer aufgezeichnet, sowie mit einem Taupunktsensor die relative Feuchte in Bezug auf Wasser bzw. Eis bestimmt. In einem sich anschließenden virtuellen Impaktor (4.2.3.5) werden aktiviert Hydrometeore aufkonzentriert, um die Verweilzeit in dem darauf folgenden optischen Sensor (4.2.3.6) zu erhöhen. In diesem kann zwischen unterkühlten Wassertropfen und Eiskristallen unterschieden werden.

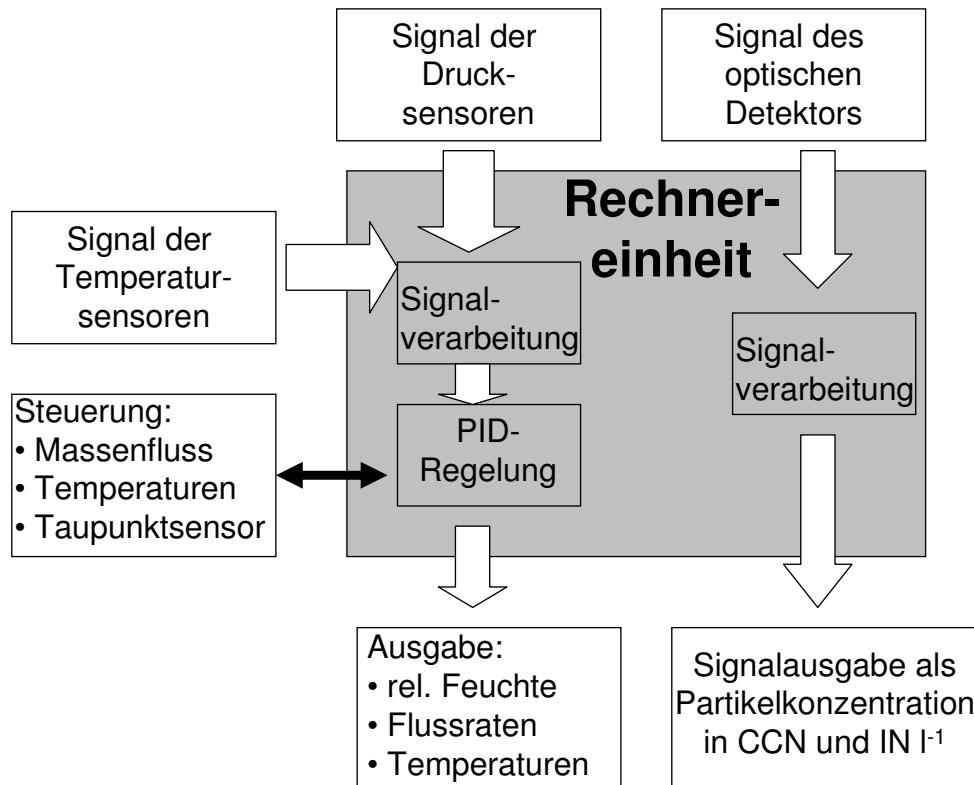
Der Großteil des Gesamtflusses bleibt anschließend dem System erhalten und wird erneut nach Konditionierung der einzelnen Flüsse gefiltert in die Kammer gepumpt. Lediglich der Anteil des Aerosolflusses verlässt den Kreislauf und wird durch ein kontinuierliches Nachströmen der Probenluft auf Grund der Massenerhaltung ersetzt.

Der Vorteil des geschlossenen Kreislaufs ist eine längere Messzeit. Bei ständigen Nachströmen neuer, relativ warmer und feuchter Umgebungsluft würde dies zu einer sehr schnellen Vereisung der Vorkühlung bzw. der Wärmetauscher führen.

Durch ein Leck im System wird die Massenbilanz verändert. So kann der reale Probenfluss vom erwarteten abweichen. Um ein Leck zu erkennen wird der Probenfluss mit einem Rotameter vor jeder Messung kontrolliert.

### 4.2.3. Der instrumentelle Aufbau im Detail

Im vorherigen Abschnitt wurde die prinzipielle Arbeitsweise von FINCH vorgestellt. Im Folgenden wird die Steuerung des Geräts besprochen und technische Details näher erklärt. In Abbildung 4.24 sind die Verknüpfungen zwischen dem Messrechner und den verschiedenen Sensoren dargestellt.



**Abbildung 4.24:** Schema der Signalverknüpfung von FINCH mit dem Eingang der verschiedenen Signale, Verarbeitung, Ausgabe von Regelparametern zu Steuerung und Ausgabe der Messergebnisse..

Zu sehen sind die Signale aus Daten der Temperatursensoren, Drucksensoren, Taupunktsensoren, MFCs und des optischen Detektors zum Rechner hin und die von dort ausgehenden Steuersignale für Massenfluss, Flusstemperaturen und Taupunktsensor, ebenso wie die Ausgabe der Anzahlkonzentration von CCN und IN in l<sup>-1</sup>. Die Steuerung erfolgt durch eine automatische PID-Regelung (Proportional, Integral, Differential-Regler).



### 4.2.3.1. Datenerfassung und Steuerung

Zur Datenerfassung, Verarbeitung und Steuerung von FINCH wurde LabVIEW, ein graphisches Programmiersystem, verwendet. Das Akronym steht für „Laboratory Virtual Instrumentation Engineering Workbench“.

Haupt-Anwendungsgebiet von LabVIEW sind die Mess- und Automatisierungstechnik. Die Programmierung erfolgt mit einer graphischen Programmiersprache genannt „G“, nach dem Datenfluss-Modell. Durch diese Besonderheit eignet sich LabVIEW besonders gut zur Datenerfassung, Verarbeitung und Steuerung.

LabVIEW-Programme werden als Virtuelle Instrumente oder einfach VIs bezeichnet. Sie bestehen aus zwei Komponenten: das Frontpanel (Abbildung 4.25 (oben)) enthält die Benutzerschnittstelle, das Blockdiagramm (Abbildung 4.25 (unten)) den graphischen Programmcode.

Auf der Benutzeroberfläche werden die gemessenen Daten wie Temperatur,  $S_{Eis}$ ,  $S_W$ , Druck im Entwicklungsrohr, Temperatur der einzelnen Flüsse, Histogramm des Polarisationsverhältnisses, die aktuellen Photodiodensignale und die Anzahlkonzentrationen von CCN und IN ausgegeben. Ebenso können die Solltemperaturen der einzelnen Flüsse verändert und ein automatischer Scan von verschiedenen Sättigungsverhältnissen bei unterschiedlichen Mischtemperaturen durchgeführt werden.

# Entwicklung eines schnellen Eiskeimzählers

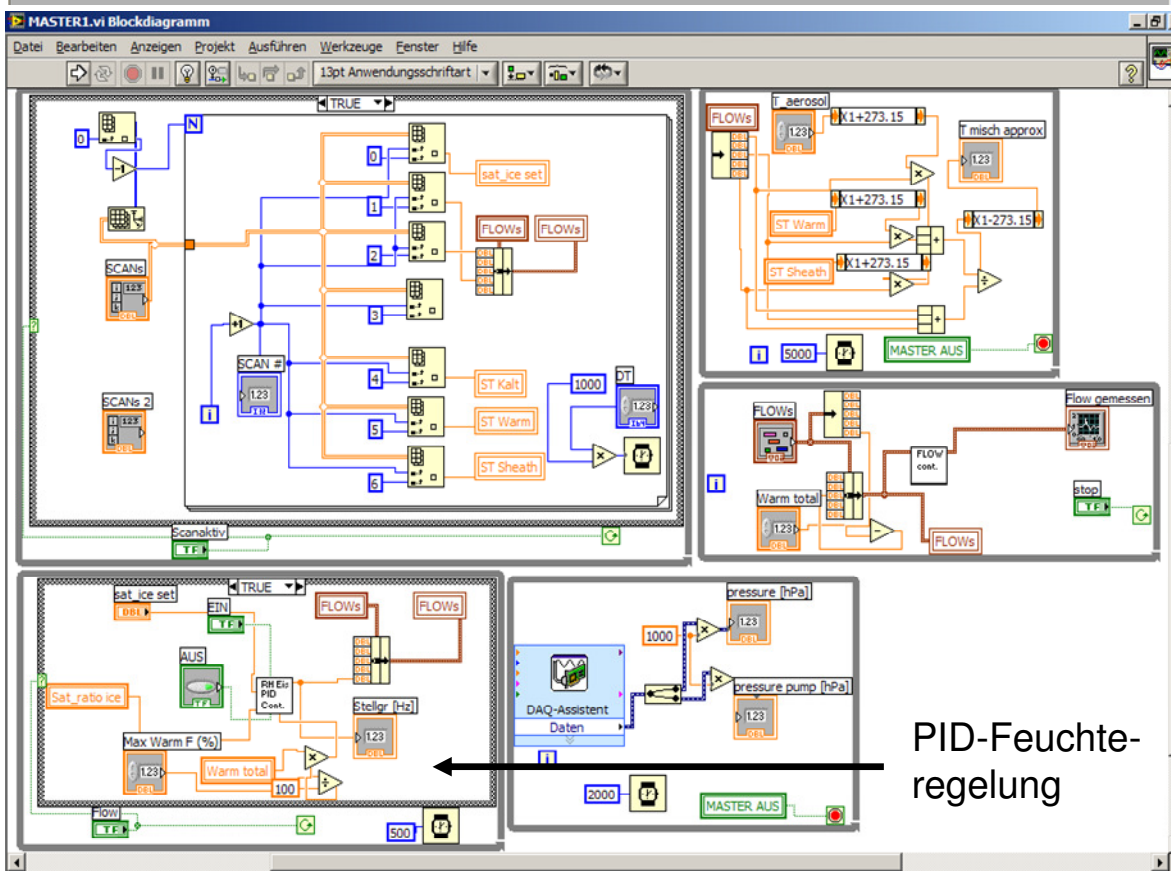
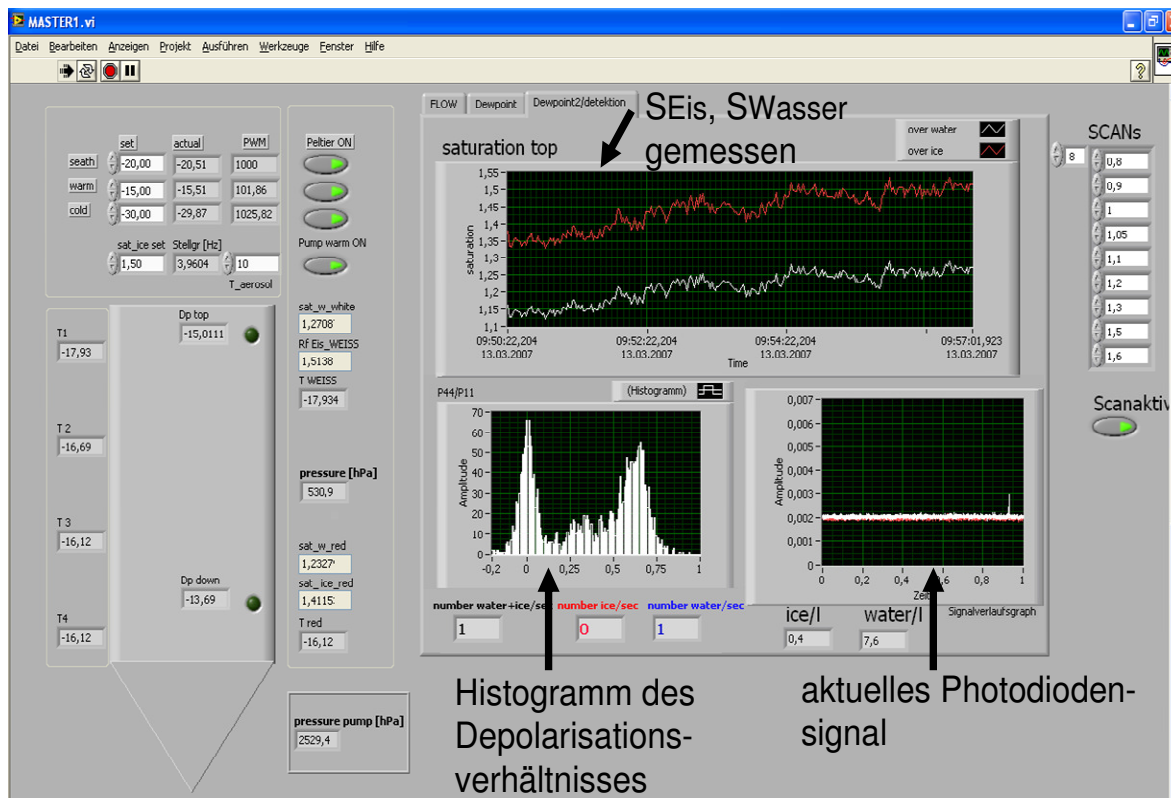


Abbildung 4.25: Benutzeroberfläche (oben), sowie ein Ausschnitt des graphischen Programmcodes (unten) von LabView zur Steuerung von FINCH.

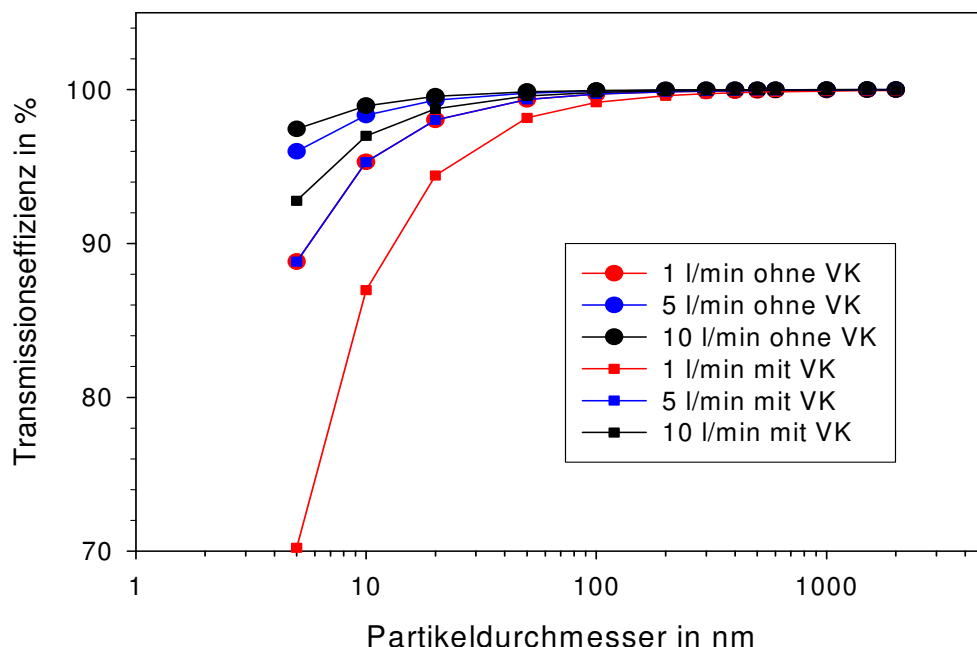
### 4.2.3.2. Aerosoleinlass / Konditionierung der Flüsse

Der Aerosoleinlass besteht aus einem 25 cm langen Rohr mit einem Innendurchmesser von 1.1 cm, das sich nach 18.5 cm mit einer Gefälle von 7° auf 0.3 cm verjüngt. Das Ende des Einlasses befindet sich in der Mitte der anderen Düsen und ragt senkrecht 3 cm in die Kammer hinein. Über ein Dreiwegeventil ist es möglich die Probenluft zunächst zur Vorkühlung und Trocknung über ein gekühltes ein Meter langes ebenfalls senkrecht angeordnetes Rohr zu leiten. Der Innendurchmesser des Rohres beträgt ebenfalls 1.1 cm.

Durch die Wahl des Aerosoleinlasses ist auch bei höheren Flussraten bis zu 10 l/min ein laminarer Fluss gegeben.

Um eine Abschätzung der Partikelverluste entlang des Rohres zu erhalten wurden die Diffusionsverluste beruhend auf den Kalkulationen nach Willeke und Baron (1993) für Partikeldurchmesser  $d = 5 - 2000$  nm, Flussraten von 1 l/min, 5 l/min und 10 l/min, eine Temperatur  $T = 273$  K und einem Druck  $p = 1013$  hPa durchgeführt (Anhang A.2). Zum einen für eine Rohrlänge von 25 cm, was dem Einlass ohne Vorkühlung VK entspricht und einer Länge von 125 cm, was der Länge des Rohres mit Vorkühlung entspricht.

Da Verluste durch gravitative Deposition auf Grund der senkrechten Anordnung der Rohrleitung kaum eine Rolle spielen, kommen hier für die relevante Größenordnung ausschließlich Diffusionsverluste zum Tragen. In Abbildung 4.26 ist die Transmissionseffizienz in % für die verschiedenen Probeflussraten mit und ohne Vorkühlung gezeigt.



**Abbildung 4.26:** Berechnete Transmissionseffizienz abhängig vom Partikeldurchmesser in nm für verschiedene Probeflussraten 1 l/min (rot), 5 l/min (blau) und 10 l/min (schwarz) für den Aerosoleinlass mit Vorkühlung VK (25 cm) und ohne Vorkühlung (125 cm).

Es ist zu erkennen, dass bei Partikeldurchmesser größer 50 nm nur sehr geringe Partikelverluste kleiner 2 % zu erwarten sind. Bei kleineren Partikeldurchmessern bis zu 5 nm ergeben sich hingegen Partikelverluste bis zu 12 % je nach Flussrate und Rohrlänge. Bei einer Flussrate von 1 l/min und verwendeter Vorkühlung bis zu 30 %.

Atmosphärenmessungen aus der Vergangenheit haben jedoch gezeigt, dass die Eiskeimanzahlkonzentration ein Maximum bei einem Partikeldurchmesser von 200 nm hat und kleiner 100 nm sehr stark abnimmt [Chen, (1998)].

Somit sollten die berechneten Partikelverluste bei Partikeldurchmesser kleiner 20 nm keinen sehr großen Einfluss auf die Messung der IN-Anzahlkonzentration haben.

Die Konditionierung der Flüsse (Temperatur und Feuchte) ist für die spätere Aktivierung der CCN und IN von großer Bedeutung. Durch Änderung der Temperatur, Feuchte und Flussrate der einzelnen Flüsse kann die Temperatur und Feuchte in der Kammer, bei der die Aktivierung der CCN und IN stattfindet, variiert werden.

Nach der Trocknung, Vorkühlung und Filterung der Luft (4.2.2) wird der Gesamtfluss aufgeteilt und verschiedenen Flussraten durch Massenflussregler (im Folgenden kurz MFC<sup>4</sup> genannt) geregelt.

Zur Regelung des kalten und des nicht angefeuchteten warmen Flusses, sowie der Mantelluft werden drei MFC mit einer einstellbaren Flussrate von 0-100 l/min verwendet, zur Regelung des warmen, angefeuchteten Flusses und des Probenflusses zwei MFC von 0 - 10 l/min.

Die Steuerung der MFCs erfolgt über das Flow-Bus-System. Die Kommunikation erfolgt über das Flow-DDE-4.54.exe Programm von Bronkhorst. Mit diesem Programm ist es möglich die MFC über LabView anzusprechen.

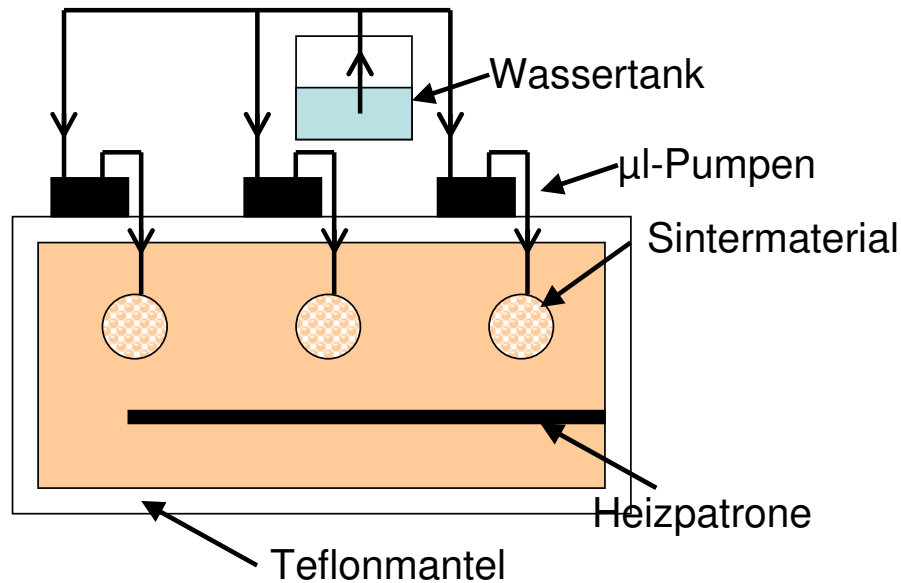
Nach Eingabe der gewünschten Flussraten der einzelnen Flüsse erfolgt eine automatische Regelung auf den Sollwert. Der Gesamtflussrate des warmen Flusses, setzt sich dabei aus dem angefeuchteten Fluss, der durch Überströmen einer warmen Wasseroberfläche zur Sättigung gebracht wird und einem nicht angefeuchteten Fluss zusammen. Die Sollwerte der beiden Teilflüsse werden dann von einem PID-Regler eingestellt, der die Übersättigung als Prozessvariable regelt. Durch die Veränderung des relativen Anteils des gesättigten warmen Flusses bei konstanten, warmen Gesamtfluss ist es möglich die Feuchte des gesamten warmen Flusses und damit die Gesamtfeuchte in der Kammer zu variieren, ohne dabei die Temperatur zu verändern.

Die gemessenen Flüsse werden zum einen als Ist-Wert ausgegeben, sowie in einem Verlaufsdiagramm dargestellt.

In einem Vorversuch wurde ein anderer Ansatz zur Anfeuchtung des warmen Flusses realisiert. Dieser ist in Abbildung 4.27 dargestellt. Zu sehen sind drei kleine, schwarze µl-Pumpen, die mit einem teflonummantelten Messingblock verbunden sind. In diesem befinden sich drei Bohrungen, die mit Sintermaterial gefüllt sind, was eine Anfeuchtung von drei separaten Flüssen ermöglicht.

---

<sup>4</sup> Mass Flow Controller (MFCs: Betriebsspannung: 20V, Stromaufnahme aller MFCs: 1,4 A)



**Abbildung 4.27:** Ehemaliger Aufbau zur Anfeuchtung der verschiedenen Flüsse mit drei  $\mu\text{l}$ -Pumpen in schwarz, die in einen mit Sintermaterial gefüllten teflonummantelten Messingblock, Wasser pumpen. Das Sintermaterial wird mit Heizpatronen auf  $90\text{ }^{\circ}\text{C}$  erwärmt, was zum Verdampfen des Wassers und zur Anfeuchtung der Flüsse führt. Der Grad der Anfeuchtung lässt sich über die Pumpenfrequenz der einzelnen Pumpen steuern.

Mit den kleinen  $\mu\text{l}$ -Pumpen kann Wasser auf das Sintermaterial gepumpt werden, das mit Heizpatronen auf etwa  $90\text{ }^{\circ}\text{C}$  geregelt wird. Die durch das Sintermaterial strömende Luft des warmen Flusses wird dabei durch das verdampfende Wasser angefeuchtet. Der Grad der Anfeuchtung kann durch die Pumpleistung der Pumpen variiert werden. Zunächst war die Anfeuchtung für den warmen, kalten und Mantelfluss vorgesehen, es zeigt sich jedoch, dass eine Anfeuchtung des kalten und Mantelflusses nicht nötig ist, da genügend Restfeuchte im System vorhanden ist.

Für den Dauerbetrieb waren die Pumpen jedoch nicht geeignet. Auf Grund des Ein- und Ausschaltens der KNF-Pumpe zur Erzeugung des Flusses kommt es in FINCH zu kurzen, aber starken Druckschwankungen, die sehr schnell zur Zerstörung der empfindlichen Membran der  $\mu\text{l}$ -Pumpen führen. Aus diesem Grund wurde die bereits erwähnte Anfeuchtung durch Mischung eines warmen und warmen, feuchten Flusses zur Erzeugung eines warmen Flusses dessen Feuchte veränderbar ist entwickelt.

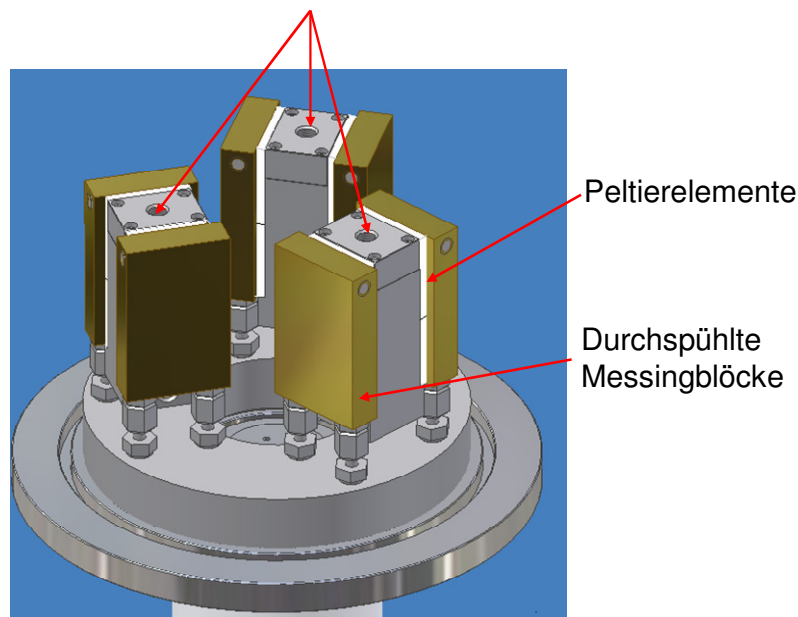
Um kalten, warmen und Mantelfluss auf eine gewünschte Temperatur zu temperieren, durchströmen sie nach der Flussregelung jeweils einen Wärmetauscher (Abbildung 4.28). Der Wärmetauscher besteht aus einem Messingblock, der im Inneren mit Sintermaterial gefüllt ist. Der Messingblock wird an zwei Seiten durch zwei übereinander angeordnete Peltierelemente gekühlt bzw. geheizt, indem die Spannungsversorgung umgepolt wird. Die Peltierelemente werden mit einer Spannung von  $20\text{V}$  betrieben. Diese arbeiten bei dieser Spannung am effizientesten. Die

Spannungsversorgung erfolgt durch ein Schaltnetzteil<sup>5</sup>. Hierbei musste ein Netzteil ausgewählt werden das hohe Ströme liefern kann. Die Gesamtstromaufnahme der Peltierelemente bei Vollast liegt bei ~24 A. Des Weiteren liefert es ebenfalls die Spannung für die MFCs und die Temperaturmessung.

Auf Grund der sehr großen Oberfläche des Sintermaterials kann die Luft sehr schnell die Temperatur des Sintermaterials annehmen. Mit einem Thermistor wird auf der Unterseite des Messingblocks die Temperatur des Gases gemessen. Die Steuerung der Temperatur erfolgt ebenfalls über einen PID-Regler. Durch Abgleich der gemessenen Temperatur und der gewünschten Solltemperatur wird die Leistung von Kühlen bzw. Heizen der Peltiers über Pulsweitenmodulation (PWM) geregelt.

Die Temperatur der einzelnen Flüsse ist in einem Bereich von  $-40\text{ °C}$  -  $+15\text{ °C}$  einstellbar. Auf der Rückseite der Peltierelemente befindet sich jeweils ein durchbohrter Messingblock. Dieser wird mit Ethanol gespült, welches mit einem Durchlaufkühler<sup>6</sup> auf  $-50\text{ °C}$  gekühlt wird. Die entstehende Abwärme der Peltierelemente wird so abgeführt. Zwar ist der DLK mit 65 kg und einer Abmessung von B 47 x H 45 x T 55 cm sehr groß und schwer, jedoch konnte damit eine separate und zeitaufwendige Entwicklung z.B. mit Kompressoren vermieden werden. Um einen besseren Wärmeübertrag zu erreichen, wurde Wärmeleitpaste auf Vorder- und Rückseite der Peltierelemente aufgetragen.

Einlässe für die verschiedenen Flüsse



**Abbildung 4.28:** Technische Zeichnung der drei Wärmetauscher zur Temperaturregelung der verschiedenen Flüsse (warm, kalt und Mantelluft) mit den jeweils vier Peltierelementen in weiß und den mit Kühlflüssigkeit durchströmten Messingblöcken zum Abführung der Abwärme.

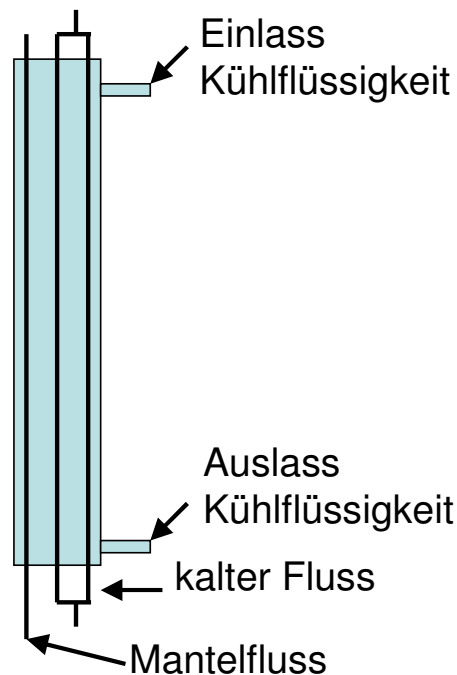
<sup>5</sup> Xantra XHR 33-33 DC Power Supply, 0-33 V, 0-33 A, (Betriebsspannung: 220 V)

<sup>6</sup> DLK 45 mit einer Bruttokühlleistung von 1.1 kW bei 20 °C der Firma Lauda (Betriebsspannung: 220 V, Leistungsaufnahme: 0.9 kW)

Der Rücklauf der Kühlflüssigkeit wird genutzt um den kalten und Mantelfluss vor den Wärmetauschern vorzukühlen und Wasserdampf aus der Luft auszufrieren. Die Solltemperatur kann dadurch bei geringerer Kühlleistung der Peltierelemente erreicht werden. Durch das Entfernen des Wasserdampfes wird ein zu schnelles Einfrieren der kleinen Poren des Sintermaterials vermieden. Dies würde den Abbruch einer Messung bedeuten und somit zu einer Verkürzung der operationellen Messdauer führen.

Zur Vorkühlung und Trocknung wird ein verschlossenes Edelstahlrohr mit einem Durchmesser von 50 mm verwendet, durch das drei Edelstahlrohre mit einem Durchmesser von 6 mm durchgeführt sind. Über einen Ein- und Auslass strömt die noch  $-15\text{ °C}$  kalte Kühlflüssigkeit aus dem Rücklauf der Wärmetauscher durch das große Edelstahlrohr (Abbildung 4.29). Somit werden die 6 mm Rohre und die durch sie strömende Luft gekühlt und Feuchtigkeit aus der Luft ausgefroren.

Für die kalte Luft werden zwei 6 mm Rohre und für den Mantelfluss ein 6 mm Rohr verwendet.



**Abbildung 4.29:** Schematischer Aufbau der Vorkühlung. Durch einen an den Enden verschweißtes Edelstahlrohr mit einem Durchmesser von 50 mm strömt über einen Ein- und Auslass Kühlflüssigkeit. Drei durchgeführte 6 mm Rohre und damit die durch sie strömende Luft werden gekühlt und Feuchtigkeit aus der Luft ausgefroren.

Nach der Konditionierung gelangen die einzelnen Flüsse in den Mischbereich von FINCH. Hier findet die eigentliche Mischung und damit die Erzeugung der Übersättigung und der kalten Mischtemperatur zur Aktivierung der IN statt. Die Geometrie des Mischbereichs entspricht der Geometrie der FLUENT-Berechnungen mit Ausnahme des Einlassbereiches für die Mantelluft, die in sehr guter Näherung durch eine flächengleiche, ringförmige Schlitzdüse modelliert wurde (s. Abschnitt 4.2.1).

Mit der Mischung der einzelnen Flüsse befindet sich die Luft bereits in die Wachstumskammer, wo die CCN und IN zu Wassertropfen und Eiskristallen heranwachsen können.

### 4.2.3.3. Wachstumskammer

Die Wachstumskammer besteht aus drei jeweils 35 cm langen doppelwandigen Edelstahlzylindern mit einem Innendurchmesser von 8.4 cm und einem Außendurchmesser von 10 cm, welche mit einem angeschweißten Flansch an der Ober- bzw. Unterseite miteinander verbunden sind. Über zwei 12 mm Ein- bzw. Auslässe am oberen und unteren Rand und deren Verbindung mit zwei kurzen 12 mm Edelstahlrohren kann Kühlflüssigkeit durch den Doppelmantel gespült werden. Am obersten Einlass wird in den Zwischenraum der inneren und äußeren Wand Kühlflüssigkeit eingeleitet, die über die einzelnen Verbindungen die gesamte Kammerwand umspült (Abbildung 4.30).

Mit dem modularen Aufbau ist es im Nachhinein möglich die Länge der Kammer zu verändern. Im Hinblick auf eine zukünftige Flugzeugversion von FINCH ist es wünschenswert einen möglichst kleinen und leichten Aufbau zu realisieren. Durch Entfernen eines Teilstücks lässt sich Gesamtlänge um 35 cm sehr schnell verringern und testen, ob die Verweilzeit der IN immer noch ausreicht, um sie zu Eiskristallen mit detektierbarer Größe heranwachsen zu lassen.

Der Wachstumskammer schließt sich ein doppelwandiger, ebenfalls mit Kühlflüssigkeit durchspülter 20 cm langer Kegelstumpf an, der den Innendurchmesser von 8.4 cm auf 1.8 cm mit einer Steigung von  $\sim 9.4^\circ$  reduziert.

Die Temperatur der Wand, durch die die Kühlflüssigkeit strömt, ist mit einem Kryostaten<sup>7</sup> manuell regelbar. Um den Energieverlust so gering wie möglich zu halten, ist die komplette Kammerwand von außen mit einer Isolierung ummantelt.

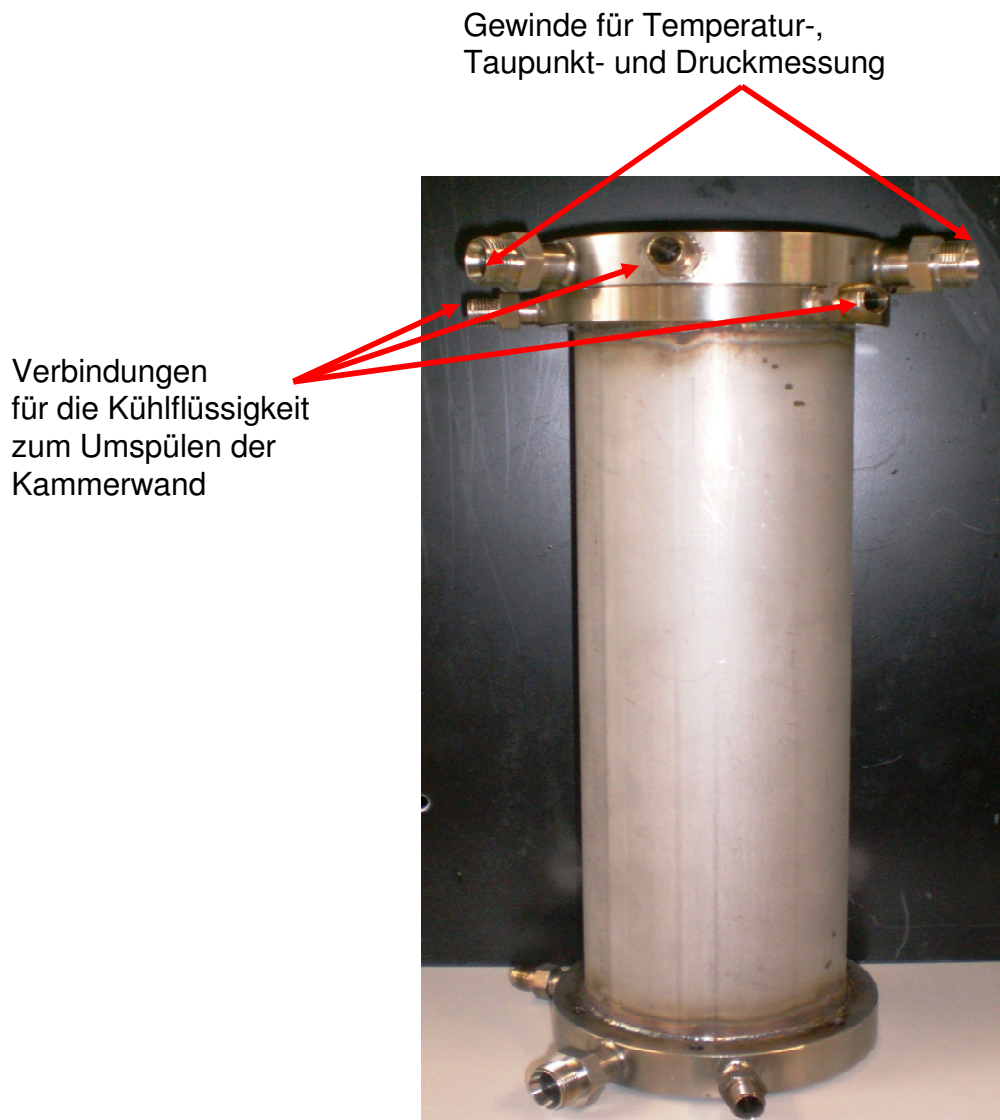
Mit dem verwendeten Kryostaten liegt die minimale erreichbare Temperatur der Wand bei  $-23^\circ\text{C}$ , somit wird auch der Arbeitsbereich von FINCH auf diese minimale Temperatur limitiert, da eine zu starke Erwärmung der Luft in der Kammer durch die Wand wieder zu einer Untersättigung führt und die zuvor entstandenen Eiskristalle und Wassertropfen wieder verdampfen. Mit einem leistungsstärkeren Kryostaten sollte sich die minimale Messtemperatur von FINCH ohne Probleme auf  $-35^\circ\text{C}$  in Zukunft reduzieren lassen.

An den einzelnen Zylinder befinden sich jeweils zwei 12 mm Bohrungen um Temperatur, Taupunkt und damit das Sättigungsverhältnis, sowie den Druck in der Wachstumskammer messen zu können. Der Taupunkt wird nach 9 cm und die Temperatur an vier Punkten der Kammer (nach 9 cm, 44 cm, 79 cm und 114 cm) gemessen.

---

<sup>7</sup> Ecoline Staredition Re 110 RE mit einer Kühlleistung von 0.5 kW bei  $20^\circ\text{C}$  der Firma Lauda (Betriebsspannung: 220 V, Leistungsaufnahme: 2.3 kW)





**Abbildung 4.30:** Foto eines der drei doppelwandigen Kammerzylinder mit den Gewinde für Temperatur-, Taupunkt- und Druckmessung, sowie den Verbindungen für die Kühlflüssigkeit zum Umspülen der gesamten Kammerwand.

### 4.2.3.4. Temperatur- und Feuchtemessung

Die Temperaturen werden mit vier Pt-1000 gemessen, die in einen Teflonzylinder (Durchmesser von 12 mm und Länge von 120 mm) eingeklebt sind und mit diesem durch die 12 mm Bohrungen in die Kammer geschoben werden. Die Temperatur kann so kontinuierlich an vier unterschiedlichen Punkten entlang der Strömungsrichtung der Luft gemessen werden.

Über eine selbst entwickelte Temperaturerfassungsschaltung wird der gemessene Widerstandswert des Pt-1000 in einen AD-Wert umgewandelt, welcher über eine RS-232 Schnittstelle zur Datenverarbeitung gelangt. Über eine Kalibrierkurve wird der jeweilige AD-Wert im LabView-Programm in eine Temperatur umgerechnet.

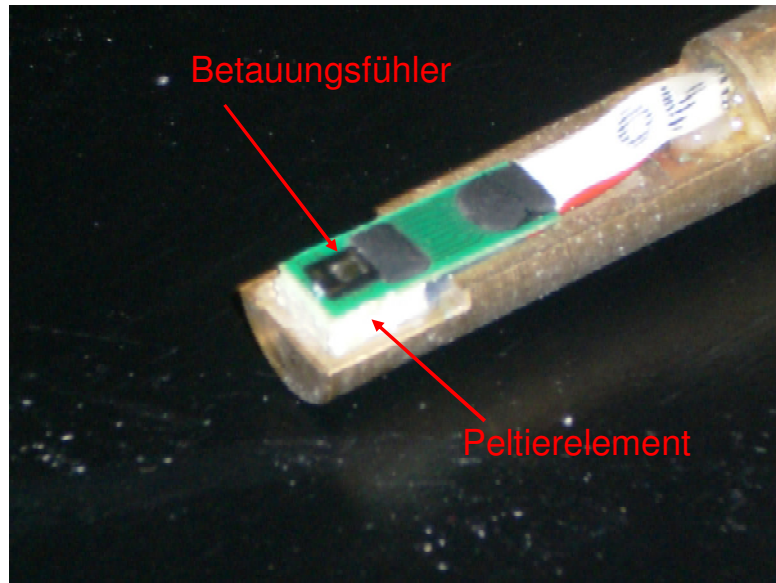
Um das Sättigungsverhältnis in der Kammer zu messen, wird ein in der Universität Frankfurt entwickelter Taupunktsensor PADDY (Passiv Airflow Dewpoint Detection Assembly) verwendet [Bundke, (2007)].

Dieser besteht aus einem kommerziellen Betauungsfühler der Firma CiS, Erfurt. Hierbei erfolgt die Bestimmung des Taupunkts nach dem CCC-Prinzip (condensate controlled capacitance nach Hinze, [Buschmann, (2000)]), wobei die Kapazitätsänderung eines Streufeldkondensators bei Wasserbedeckung bzw. Eisbedeckung als Maß für den Taupunkt bzw. Frostpunkt verwendet wird. Mit Hilfe eines Kapazitäts-Frequenz-Wandlers wird als Messgröße eine Frequenz ausgegeben.

Eine Temperaturdiode ermöglicht eine präzise Temperaturmessung direkt auf der Sensoroberfläche.

Um mit dem Betauungsfühler einen Taupunkt messen zu können, muss die Sensortemperatur so eingestellt werden, dass die Sensoroberfläche sich in einem Zustand einsetzender Betauung befindet, was zum Absinken der Messfrequenz führt. Die dazu nötige Temperatursteuerung erfolgt mit einem unter dem Sensor angeklebten Peltierelement, das je nach Polung in der Lage ist, den Sensor zu heizen oder zu kühlen. Mittels einer PID-Regelung kann somit auf die Taupunkttemperatur geregelt werden, wobei die Frequenz die Regelgröße ist und die Heiz-/Kühlleistung des Peltierelements die Stellgröße. Die Spannungsversorgung wird über ein separates  $\pm 15$  V Schaltnetzteil gewährleistet.

Um die Abwärme des Peltierelement abzuleiten, ist darunter ein Messingstab montiert, der im FINCH-Aufbau mit der gekühlten Entwicklungsrohrwand Kontakt hat und somit ständig gekühlt wird. Der Aufbau ist in Abbildung 4.31 gezeigt.



**Abbildung 4.31:** Foto des Taupunktsfühlers PADDY, mit dem eigentlichen Betauungsfühler, sowie dem Peltierelement zum Erreichen der Taupunkttemperatur und dem Messingstab zur Ableitung der Abwärme des Peltierelements.

Für die gemessene Taupunkttemperatur und der an gleicher Stelle gemessenen Temperatur mit dem Pt-1000 werden nach Gleichung 2-1 der Sättigungsdampfdrücke in Bezug auf Eis  $p_E$  für die Taupunktssensortemperatur  $T_\tau$  und  $p_{\text{Sat, Eis}}$  für die Pt-1000-Temperatur  $T_{\text{Pt}}$  berechnet.

Bildet man nun das Verhältnis nach Gleichung 2-2, so erhält man das Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis  $S_{\text{Eis}}$ :

$$S_{\text{Eis}} = \frac{p_E}{p_{\text{Sat, Eis}}}, \quad 4-13$$

Für die Temperaturmessung wird ein Fehler von  $\pm 0.1$  °C und für die Taupunkttemperaturmessung ein Fehler von  $\pm 0.2$  °C angenommen. Die Berechnung des Fehlers für das Sättigungsverhältnis ist in Anhang A.1 gezeigt.

### 4.2.3.5. Virtueller Impaktor

Ein virtueller Impaktor, der sich der Wachstumskammer anschließt, dient zur Reduzierung des Gesamtflusses von 40 - 80 l/min auf etwa 10 - 17.5 l/min, um die Verweilzeit der Eiskristalle und Tropfen in dem sich anschließenden optischen Sensor (4.2.2.6) zu verlängern. Dies führt zu einem zeitlich besser aufgelösten Detektorsignal. So wird ein Partikel beim durchqueren des Laserstrahls mit 10 Stützstellen anstatt mit 2 Stützstellen erfasst.

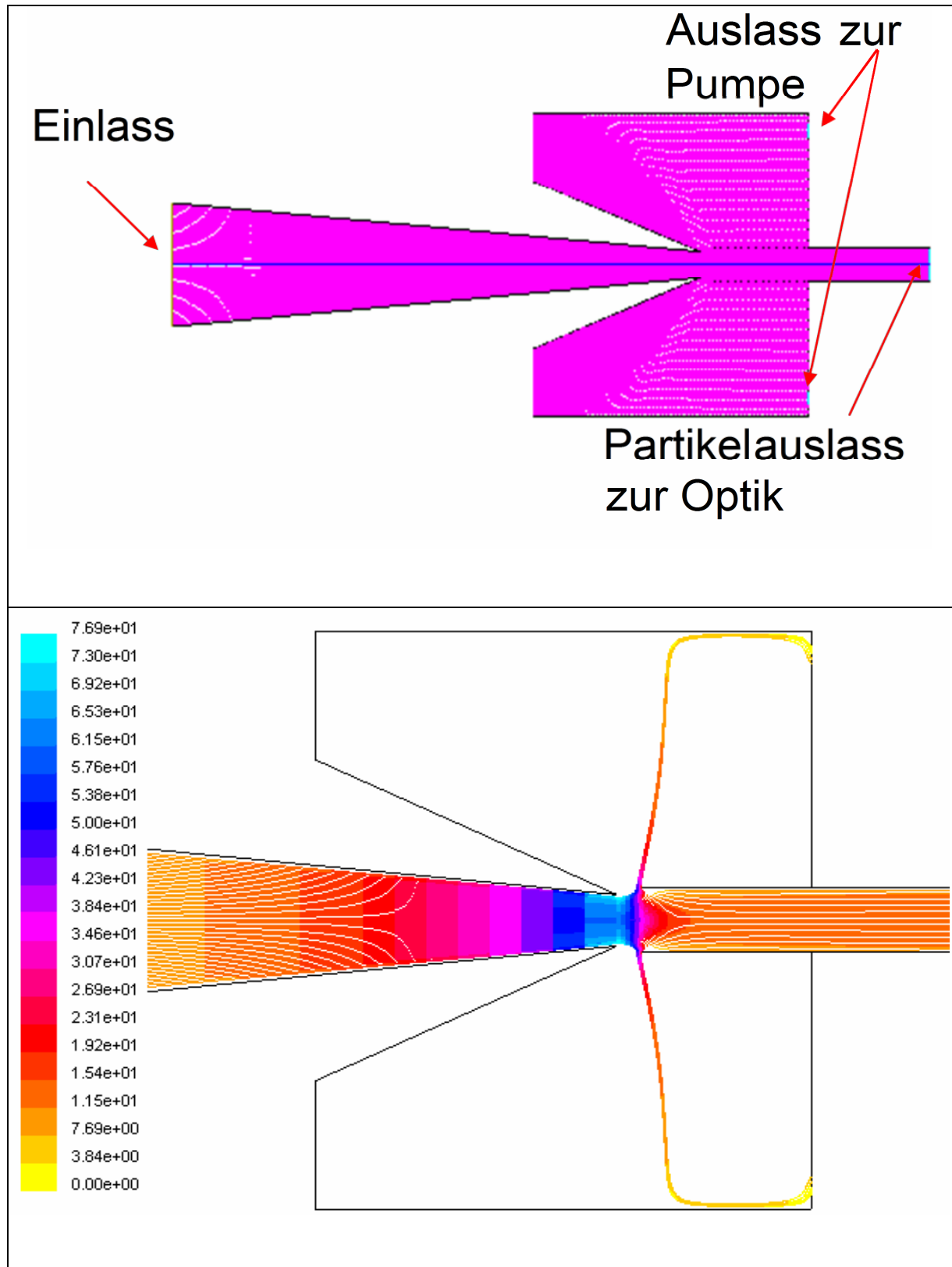
Dabei werden die Tropfen und Eiskristalle (5 - 10  $\mu\text{m}$ ) zunächst in einer sich von 1.84 cm auf 0.4 cm verjüngenden Düse sehr stark beschleunigt. Im Anschluss wird ein Großteil des Flusses um einen Winkel von  $90^\circ$  abgelenkt und direkt in die KNF-Pumpe gesaugt. Der kleinere Fluss, dessen Flussrate über einen Rotameter eingestellt werden kann, gelangt über ein sich dahinter anschließendes Rohr mit einem Durchmesser von 0.5 cm in die Optik. Der Abstand zwischen der Spitze der Düse und dem sich dahinter anschließenden Rohr beträgt 0.2 cm. Eiskristalle und Tropfen können dann auf Grund ihrer Trägheit, dem größeren Fluss nicht folgen und gelangen mit dem kleineren Fluss in die Optik.

Um den virtuellen Impaktor zu entwickeln, wurden zunächst wieder rotationssymmetrische, zweidimensionale FLUENT Rechnungen durchgeführt, um den Trenndurchmesser für den virtuellen Impaktor zu bestimmen und um somit möglich Verluste von Eiskristallen  $> 3\mu\text{m}$  minimal zu halten. Die Abbildung 4.32 (oben) zeigt den Querschnitt durch den virtuellen Impaktor mit dem verwendeten Gitter für die Berechnung. Die Abbildung 4.32 (unten) zeigt die Stromlinien entlang des virtuellen Impaktors. Die Färbung gibt die aktuelle Geschwindigkeit an.

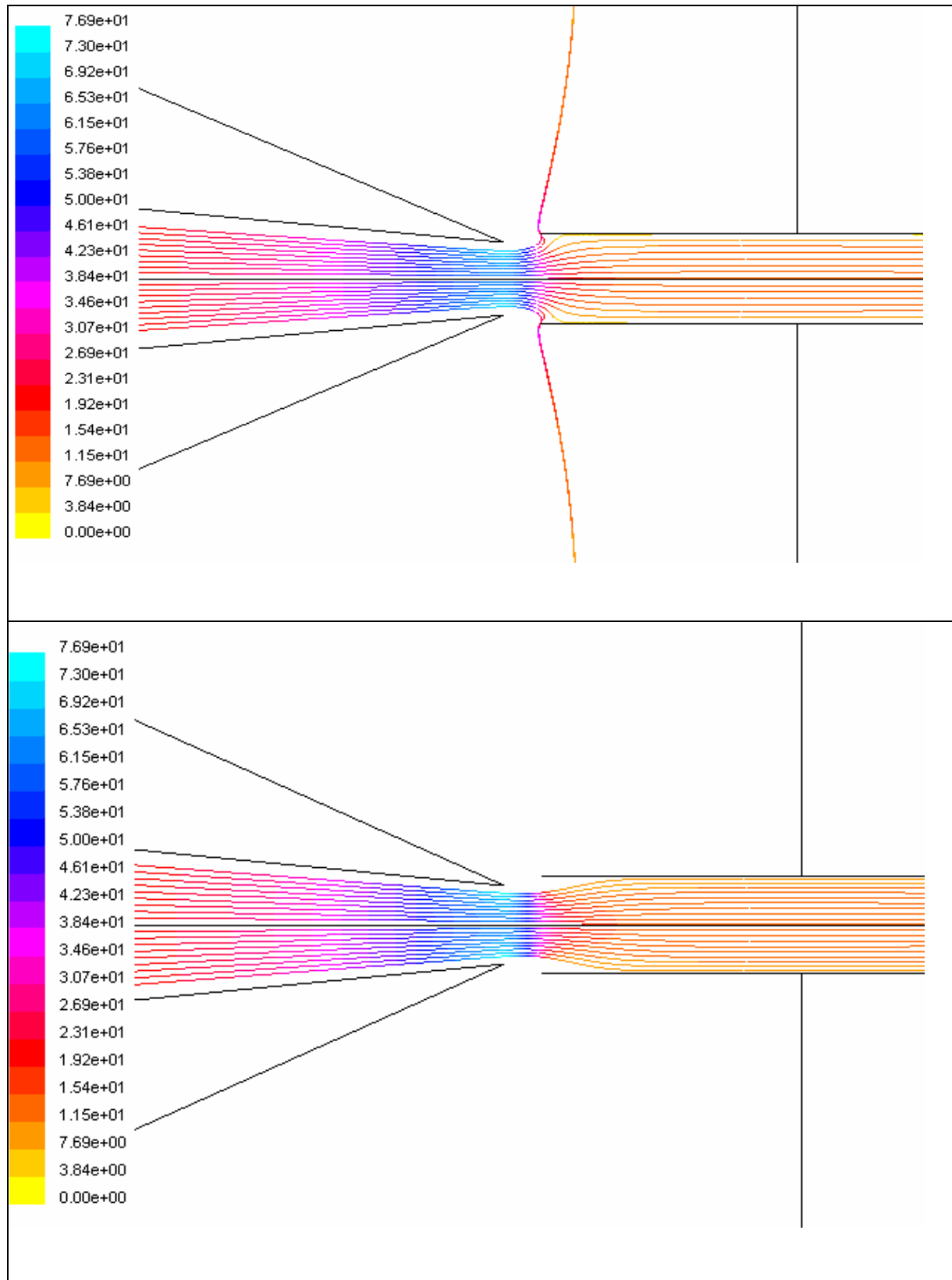
Die gezeigte Abbildung 4.33 ist das Ergebnis einer Rechnung für einen Gesamtfluss am Einlass von 50 l/min. Davon werden 37.5 l/min durch den Auslass abgesaugt, der kleiner Anteil von 12.5 l/min bzw. 25% gelangt durch den Partikelaustritt in den Detektor.

Die Abbildung 4.33 zeigt die Trajektorien für 1.5  $\mu\text{m}$  (oben) und für 3.0  $\mu\text{m}$  (unten) große Wassertropfen.

Es zeigt sich, dass bei diesen Strömungsbedingungen ein Teil der 1.5  $\mu\text{m}$  großen Tropfen auf Grund ihrer zu geringen Trägheit nicht in die Optik gelangen, da sie dem größeren Fluss noch folgen können oder entlang des geringeren Flusses an der Wand impaktieren. Bei den 3.0  $\mu\text{m}$  hingegen folgen alle Tropfen dem kleineren Fluss in die Optik.

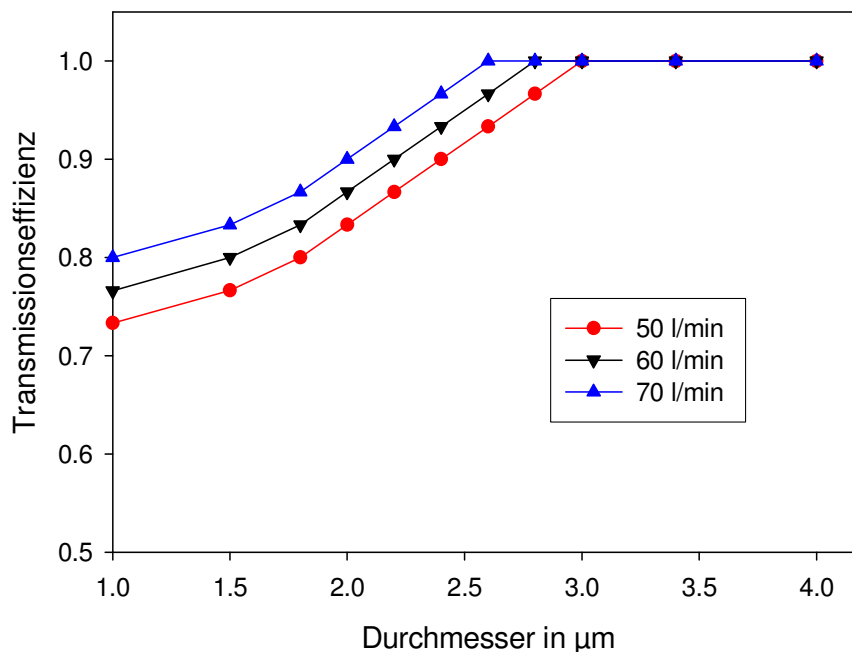


**Abbildung 4.32:** 2D Querschnitt des virtuellen Impaktors mit dem verwendeten Gitter für die FLUENT-Berechnungen (oben) und die Stromlinien entlang des virtuellen Impaktors mit der aktuellen Geschwindigkeit der Partikel in m/s im Farbcode (unten).



**Abbildung 4.33:** Partikeltrajektorien für 1.5 µm große Wassertropfen (oben) und für 3.0 µm große Wassertropfen (unten) entlang des virtuellen Impaktors. Im Farbcode zu sehen ist die aktuelle Geschwindigkeit der Partikel in m/s.

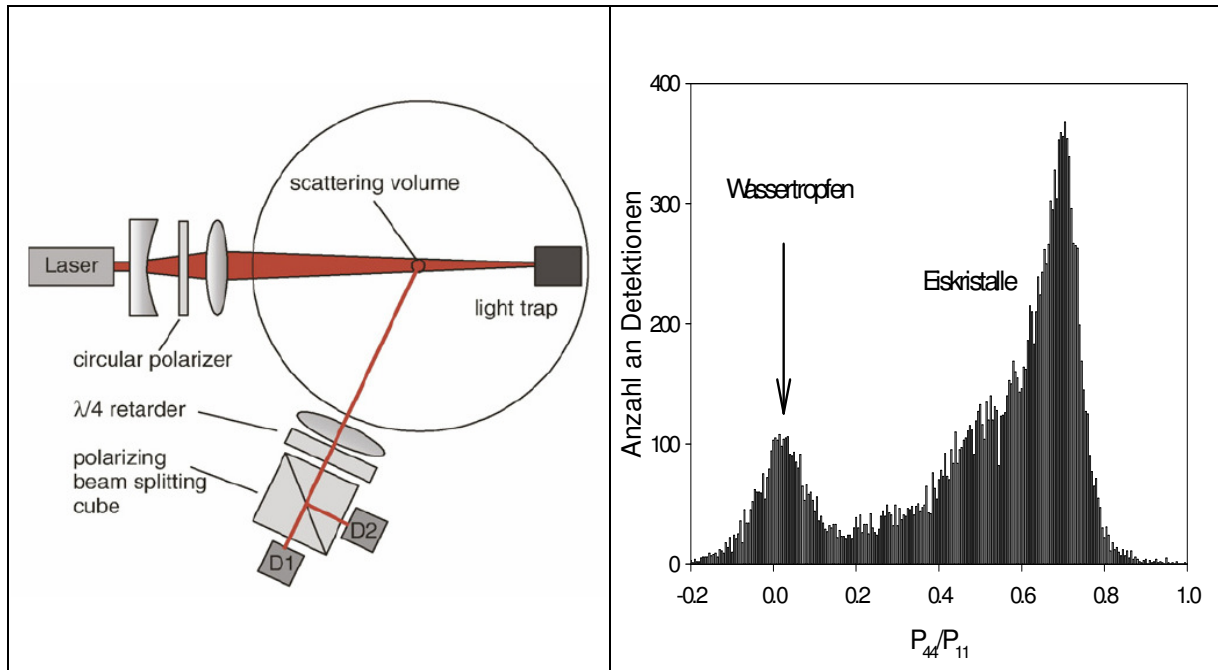
Weitere Berechnungen zeigen, dass bei einem größeren Gesamtfluss und einem Fluss durch den Partikelauflang von 25 % des Gesamtflusses sich der Trenndurchmesser zu kleineren Durchmessern verschiebt. Hierzu wurden 30 Trajektorien für unterschiedliche Tropfengrößen berechnet und die Transmissionseffizienz anhand dieser ausgezählt. In Abbildung 4.34 ist die Transmissionseffizienz für verschiedene Gesamtflüsse als Funktion des Partikeldurchmessers gezeigt. Der zum optischen Detektor strömende Fluss liegt hierbei jeweils bei 25 % des Gesamtflusses. Man erkennt, dass bei einem Durchmesser von 3  $\mu\text{m}$  die Transmissionseffizienz, für alle Gesamtflussraten bei 1 liegt und somit keine Partikelverluste oder nur sehr geringe zu erwarten sind.



**Abbildung 4.34:** Transmissionseffizienz durch den virtuellen Impaktor für Gesamtflüsse von 50, 60 und 70 l/min als Funktion des Partikeldurchmessers.

### 4.2.3.6. Optischer Sensor

Die aktivierten CCN und IN, die in der Wachstumskammer zu 5 - 10 µm großen Eiskristalle und Tropfen angewachsenen sind, gelangen nach der Reduzierung des Gesamtflusses auf 12.5 - 17.5 l/min durch den virtuellen Impaktor in den neu entwickelten optischen Detektor (Abbildung 4.35 (links)). Mit diesem ist es möglich, unterkühlte Wassertropfen und Eiskristalle zu unterscheiden und zu zählen.



**Abbildung 4.35:** Schematisches Diagramm des optischen Sensors zur Detektion und Unterscheidung von unterkühlten Tropfen und Eiskristallen (links). Der rechte Graph zeigt die Anzahl der Detektionen als Funktion des Verhältnisses  $P_{44}/P_{11}$  des gemessenen Streulichts für jedes einzelne Signal.

Die Funktionsweise des Detektors basiert auf der unterschiedlichen Depolarisation des zurückgestreuten Lichtes von Eiskristallen und Tropfen. Der Stokes-Vektor (I,Q,U,V) beschreibt den Zustand der Polarisation des gestreuten Laserlichts. Der Zustand ergibt sich aus dem Produkt der Streumatrix und dem Stokes-Vektor des einfallenden Laserstrahls ( $I_0, Q_0, U_0, V_0$ ). [Mishchenko und Sassen, (1998)]

$$\begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} P_{11} & P_{12} & 0 & 0 \\ P_{12} & P_{22} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & P_{33} & P_{34} \\ 0 & 0 & -P_{34} & P_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I_0 \\ Q_0 \\ U_0 \\ V_0 \end{pmatrix} \quad 4-14$$



Der Stokes-Vektor kann leicht durch Messung der Intensität  $P_{x,y,z}$  der Strahlung bei unterschiedlicher Polarisationsrichtung bestimmt werden. Der Index x,y beschreibt die Richtung der linearen Polarisation. Der Index x=RC und y=LC beschreiben die rechte bzw. die linke zirkulare Polarisation, sowie z den Winkel der Polarisationssebene.

$$\begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} P_{0^\circ} + P_{90^\circ} \\ P_{0^\circ} - P_{90^\circ} \\ P_{45^\circ} - P_{135^\circ} \\ P_{RC} - P_{LC} \end{pmatrix} \quad 4-15$$

Wenn nun der einfallende Laserstrahl mit der Intensität,  $I=1$ , komplett rechts zirkular polarisiert ist, dann ist der Stokesvektor  $(1,0,0,1)$ .

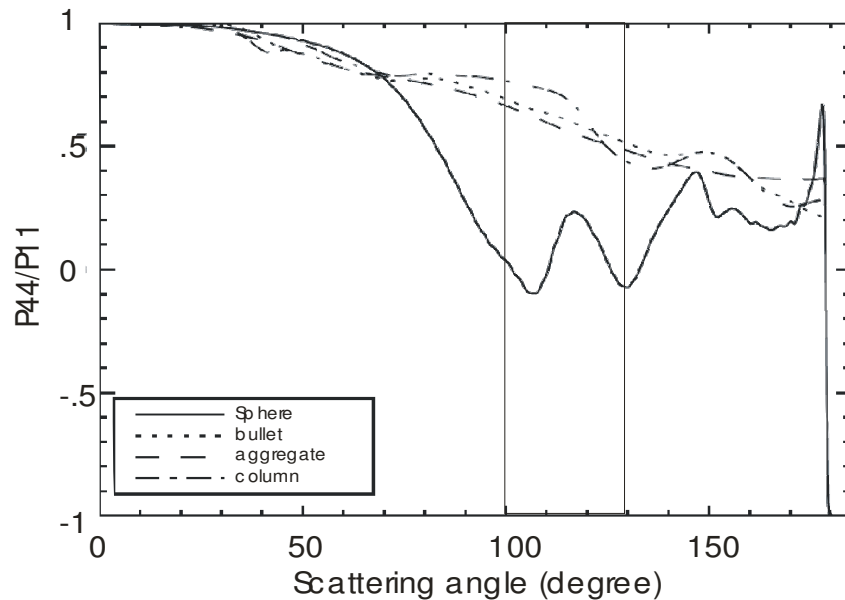
Der Stokesvektor des gestreuten Strahls lässt sich dann wie folgt schreiben:

$$\begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ P_{34}/P_{11} \\ P_{44}/P_{11} \end{pmatrix} * P_{11} = \begin{pmatrix} P_{11} & P_{12} & 0 & 0 \\ P_{12} & P_{22} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & P_{33} & P_{34} \\ 0 & 0 & -P_{34} & P_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix} \quad 4-16$$

In experimentellen Aufbau des Detektors passiert der Laserstrahl mit einer Leistung von 10 mW und einer Wellenlänge von 658 nm zunächst einen zirkularen Polarisator, bevor er das Detektionsvolumen erreicht. Der zirkular polarisierte Laser hat nun den auf die Intensität 1 normierten Stokesvektor  $(1,0,0,1)$ . Tropfen und Eiskristalle streuen den einfallenden Laserstrahl. Das gestreute Licht wird detektiert und auf zirkulare Polarisation (Komponente V des Stokesvektors) unter einem Winkel von  $115^\circ \pm 15^\circ$  Streuwinkel analysiert. Hierfür passiert das Streulicht einen  $\lambda/4$ -Retarder und einen polarisierenden Strahlteilungswürfel, um  $P_{LC}$  bzw.  $P_{RC}$  zu analysieren. Der  $\lambda/4$ -Retarder wandelt das zirkular polarisierte Licht in  $45^\circ$  bzw.  $135^\circ$  von der Hauptachse gedrehtes linear polarisiertes Licht um, abhängig von der Rotationsrichtung des einfallenden zirkular polarisierten Lasers. Dem  $\lambda/4$ -Retarder folgt ein polarisierender Strahlteilungswürfel. Dieser teilt die beiden orthogonalen Komponenten des nun linear polarisierten Lichts auf. Zwei Detektoren messen nun die zwei zueinander orthogonalen linear polarisierten Strahlen hinter dem Strahlteilungswürfel, was den Werten  $P_{LC}$  und  $P_{RC}$  entspricht. Hieraus lässt sich nun das Verhältnis  $P_{44}/P_{11}$  berechnen. Aus Gleichung 4-13 und Gleichung 4-14 folgt:

$$\frac{P_{44}}{P_{11}} = \frac{P_{LC} - P_{RC}}{P_{0^\circ} + P_{90^\circ}} \quad 4-17$$

Nach den Berechnungen von Hu et al. (2003) zeigt das Verhältnis einen maximalen Unterschied für Tropfen und verschiedene Formen von Eiskristallen als Funktion des Streuwinkels in einem Bereich von  $\pm 15^\circ$  um  $115^\circ$  Streuwinkel (Abbildung 4.36).

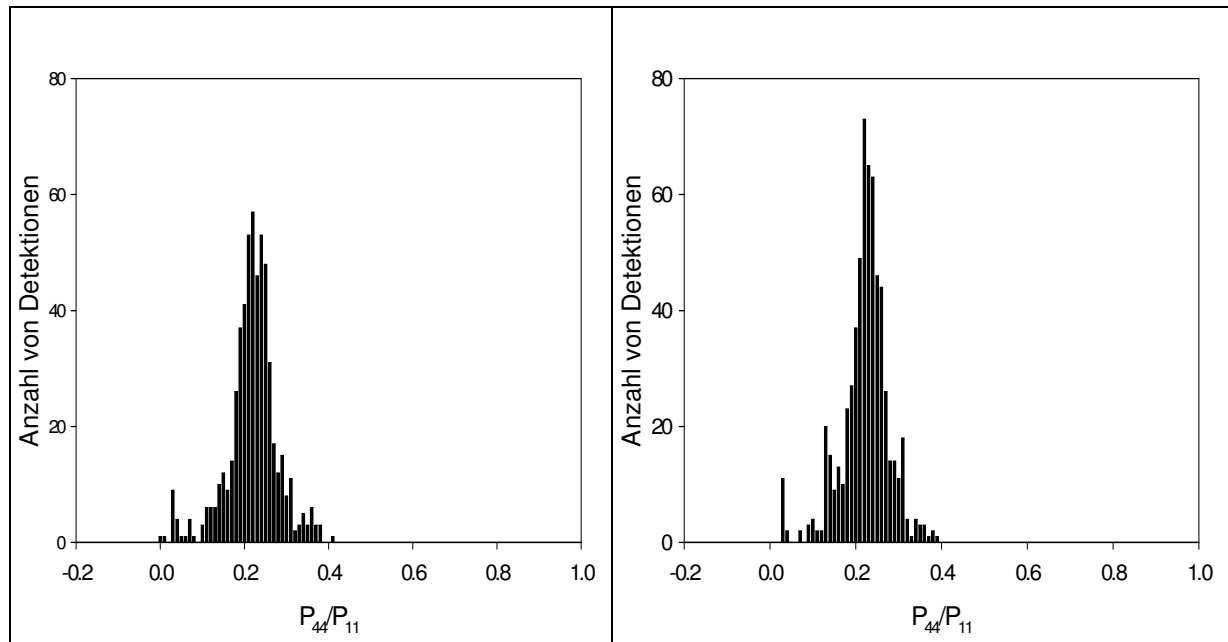


**Abbildung 4.36:** Verhältnis  $P_{44}/P_{11}$  als Funktion des Streuwinkels für verschiedene Eiskristallformen (Stäbchen, Kugeln und Agglomerate), sowie für Wassertropfen (sphärisch). Der Detektionsbereich von FINCH ist zwischen  $100^\circ$  und  $130^\circ$  Streuwinkel markiert (Abbildung modifiziert nach Hu et al., (2003)).

So liegt das Verhältnis  $P_{44}/P_{11}$  für Tropfen nahe Null und liegt für Eiskristallformen zwischen 0.4 und 0.8. Bei einem Verhältnis von 0.1 - 0.4 handelt es sich um nicht aktivierte große ( $> 3 \mu\text{m}$ ) Aerosole.

Dies haben Messungen von verschiedenen nicht aktivierten mineralischen Aerosolen wie Quarzsand, Illit, Kaolinit und Benthonit mit Durchmessern  $> 3 \mu\text{m}$  mit dem neu entwickelten Detektor gezeigt. In Abbildung 4.37 sind die Histogramme der Anzahl der Einzelpartikeldetektionen als Funktion des Polarisationsverhältnisses für Kaolinit und Illit gezeigt.

Auch bei Messungen von Volten et al. (2001) für unterschiedlich mineralische Aerosole liegt das Polarisationsverhältnis in diesem Bereich.



**Abbildung 4.37:** Anzahl der Detektionen als Funktion des Polarisationsverhältnisses  $P_{44}/P_{11}$  für Kaolinit (links) und Illit (rechts) mit einem Durchmesser  $> 3\mu\text{m}$ .

Wie die Messungen in Abbildung 4.35 zeigen, ist es nun sehr gut möglich zwischen Eiskristallen und Tropfen anhand eines  $P_{44}/P_{11}$ -Kriterium zu unterscheiden.

Um einen Nachweis zu bekommen, dass es sich bei dem Peak um das Polarisationsverhältnis 0 in Abbildung 4.35 um Wassertropfen handelt, wurde nur die Optik separat mit einer Pumpe und einem Rotameter zur Einstellung des Flusses durch die Optik zu Testzwecken betrieben. Der Fluss wurde auf 12.5 l/min eingestellt, was dem Fluss durch die Optik bei Betrieb des Gesamtaufbaus entspricht. Mit einer herkömmlichen Zerstäubersprühflasche wurden Wassertropfen oberhalb der Optik generiert und durch den Fluss in die Optik getragen. In Abbildung 4.38 ist das Histogramm der Anzahl der Einzelpartikeldetektionen als Funktion des Polarisationsverhältnisses gezeigt. Man sieht, dass alle detektierten Partikel ein Polarisationsverhältnis zwischen  $\sim 0$  und  $< 0.2$  haben und somit die Wassertropfen in der Optik auch als Wassertropfen detektiert werden.

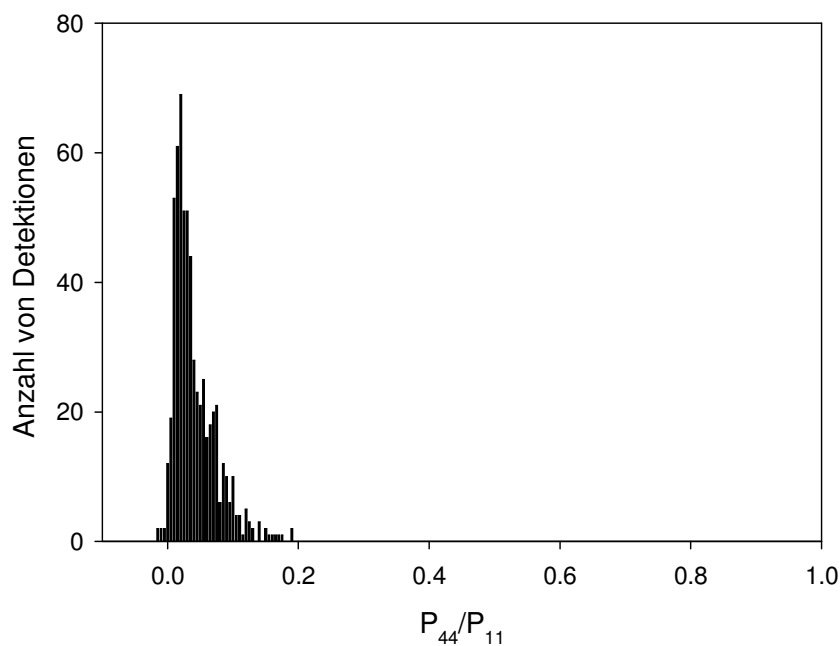
Des Weiteren ist das Polarisationsverhältnis im Bereich von einem Durchmesser von 4-10  $\mu\text{m}$  nahezu unabhängig von der Größe der Tropfen, Eiskristalle und nicht aktivierten Aerosolteilchen.

Aus der Summe der beiden Intensitäten des gestreuten Signals lässt sich eine Art Größenverteilung bestimmen. Zieht man aus der Intensität die Wurzel, so ist das Ergebnis für Partikel größer 1  $\mu\text{m}$  in sehr guter Näherung proportional zum Durchmesser  $d$  [Bohren und Huffmann, (1983)]. Die Streuintensität  $I$  ist folgend gegeben:

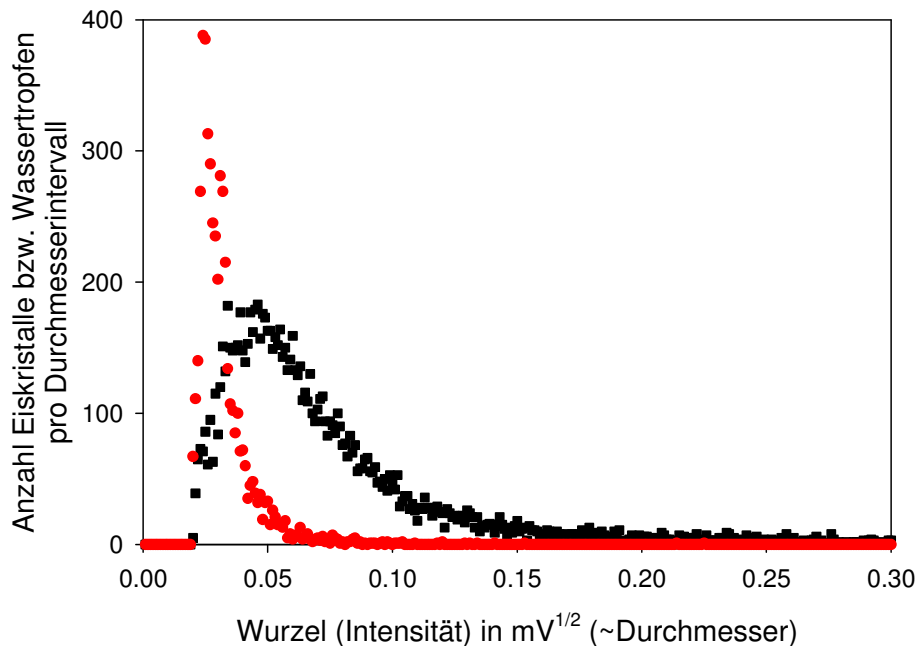
$$I = \frac{\pi \cdot Q_s \cdot I_0 \cdot d^2}{4 \cdot F}, \quad 4-18$$

mit  $Q_s$  dem dimensionslosen Streukoeffizienten,  $I_0$  der Intensität des einfallenden Strahls in  $W\ m^{-2}$  und  $F$  der vom Streulicht bestrahlten Fläche in  $m^2$ .

In Abbildung 4.39 ist sowohl die Anzahl für Wassertropfen als auch für Eiskristalle als Funktion der Wurzel der Intensität der Detektorsignale gezeigt. Bei den Eiskristallen ist jedoch zu beachten, dass die gemessene Intensität des Streulichts auch sehr stark von der Orientierung Selbiger beim Durchqueren des Laserstrahls abhängt. Dennoch ist zu erkennen, dass Eiskristalle zu größeren Durchmessern anwachsen als die Tropfen. Dies lässt sich leicht durch den niedrigeren Sättigungsdampfdruck von Eis im Vergleich zu Wasser erklären. Somit ist die Übersättigung im Bezug auf Eis größer und die Eiskristalle können schneller bzw. auf Kosten der Tropfen anwachsen (Bergeron-Findeisen-Prozess).



**Abbildung 4.38:** Anzahl der Detektionen als Funktion des Polarisationsverhältnisses für mit einer Sprühflasche generierte Wassertropfen.



**Abbildung 4.39:** Anzahl der Eiskristalle bzw. Tropfen als Funktion der Wurzel aus der Summe der gemessenen Detektorintensitäten (proportional zum Durchmesser) jedes detektierten Partikels. In rot für Wassertropfen und in schwarz für Eiskristalle.

Die Erfassung der beiden Diodensignale erfolgt simultan mit einer Abtastrate von 100 kHz<sup>8</sup>. Bei den Dioden handelt sich um IPL10530DAL der Firma Integrated Photomatrix Limited mit integriertem Verstärker. Die Dioden zeigen das geringste Rauschen bei einer angelegten Spannung von 9 V. Hierzu wurde eine kleine Platine der Diode vorgeschaltet, die sowohl eine Konstantspannung liefert, als auch das Rauschen des Diodensignals mit einem Tiefpassfilter weiter verringert.

Um Störeinflüsse von anderen elektronischen Komponenten zu vermeiden, wird die Spannung durch ein separates 15 V Netzteil geliefert. Auf dem Foto des gesamten Detektors (ohne Abdeckung und Laser) in Abbildung 4.40 sind die Diode und die Platine zu sehen.

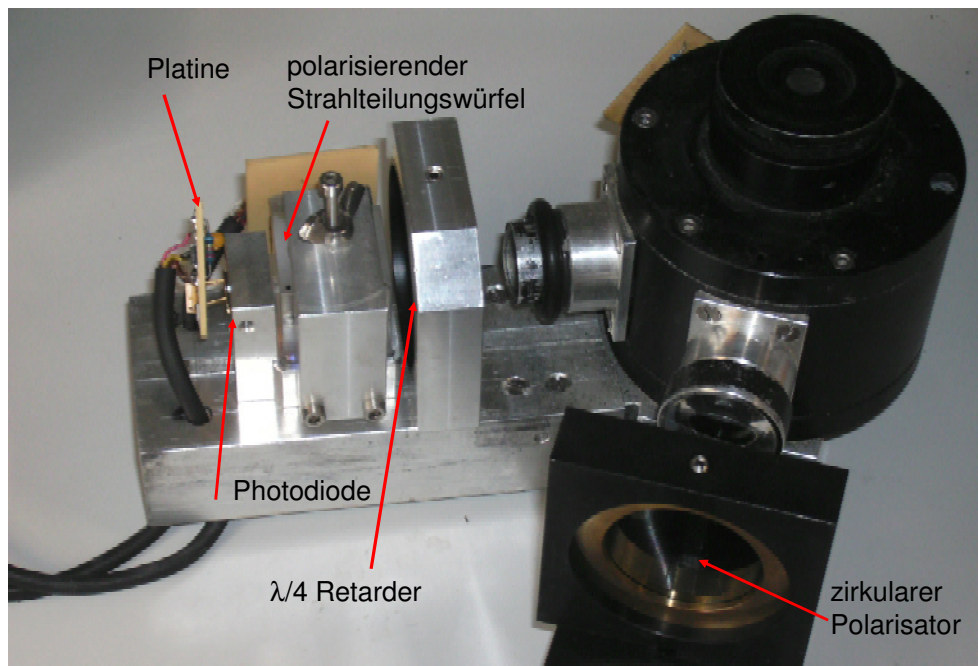
Die Auswertung und Darstellung der Signale erfolgt ebenfalls mit LabView. Für die Messung der einzelnen Signale von Eiskristallen und Tropfen wird eine automatische Peakdetektion durchgeführt. Hierzu wird jede Sekunde zunächst der gemittelte Hintergrundwert ohne Peaks vom aktuellen Signalverlauf subtrahiert und die Summe der beiden Diodensignale auf Peaks untersucht. Die Intensität der Peaks wird automatisch bestimmt. Die untere Detektionsgrenze liegt bei einer Intensität von 400  $\mu\text{V}$  für die Summe der Intensitäten der beiden Peaks. Darunter ist es nicht möglich exakt zwischen Peaks von Streulicht und dem Hintergrundrauschen zu unterscheiden.

---

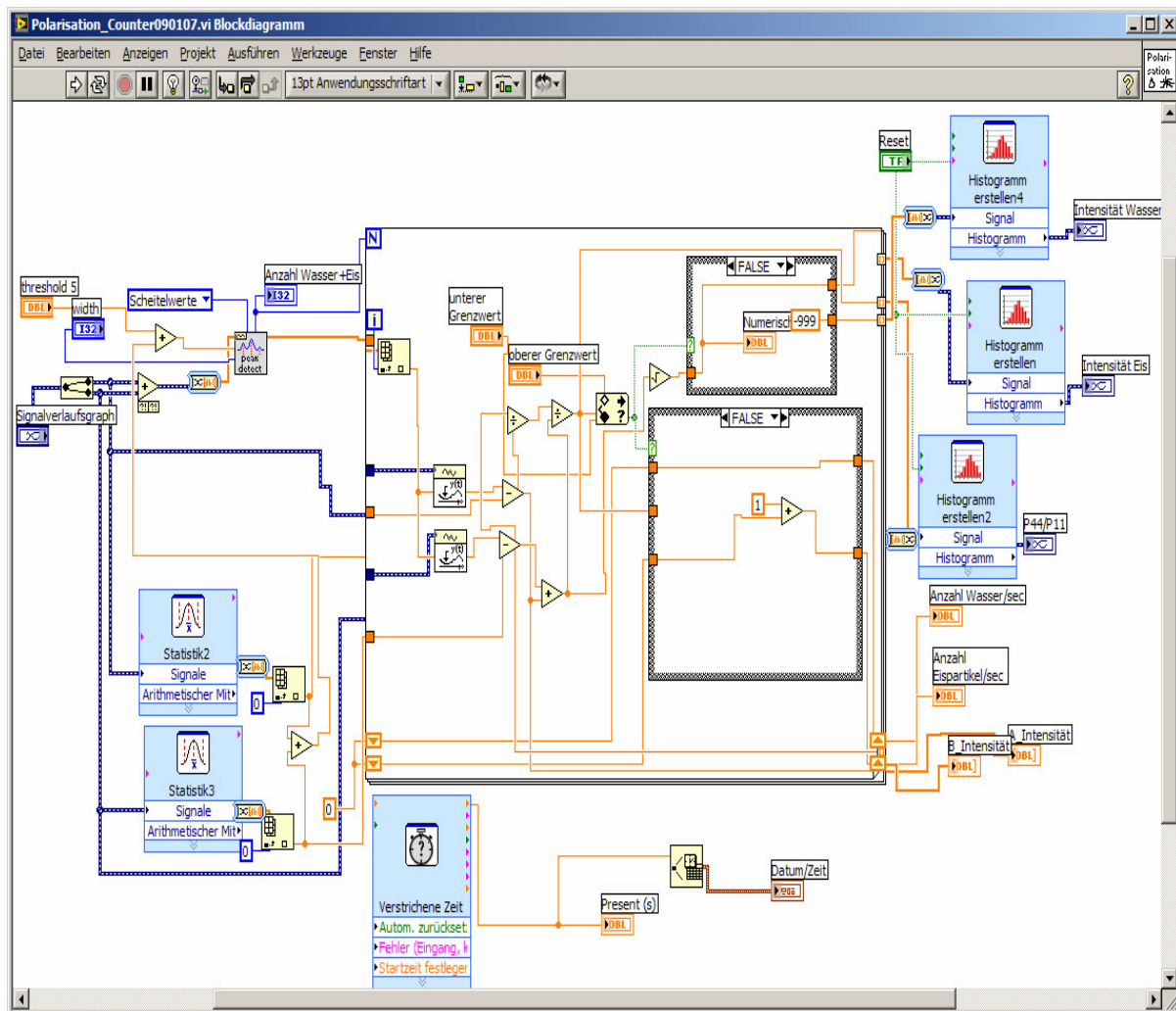
<sup>8</sup> PCI 6132 Karte von National Instruments: 4-Kanal Multifunktions-Datenerfassungsmodul für simultanes Abtasten.

Über den Zeitstempel des Peaksignals wird die Intensität der beiden Diodensignale zu einem festen Zeitpunkt bestimmt. Somit lässt sich das Polarisationsverhältnis berechnen und die IN- bzw. CCN-Anzahlkonzentration pro Sekunde werden ausgegeben.

Des Weiteren wird jede Minute die IN- bzw. CCN-Anzahlkonzentration pro Liter und die Anzahl der einzelnen Peaks als Funktion des Polarisationsverhältnisses gemittelt angegeben. Als Grenze des Polarisationsverhältnisses zu Unterscheidung zwischen Wassertropfen bzw. nicht aktivierten großen Aerosolpartikeln und Eiskristallen wird der Wert 0.4 festgelegt. Die graphische Programmierung in Labview zur Auswertung und Analyse der einzelnen Detektionspeaks ist in Abbildung 4.41 abgebildet.



**Abbildung 4.40:** Foto des optischen Sensors ohne Abdeckung, mit Strahlteilungswürfel,  $\lambda/4$ -Plättchen, zirkularem Polarisator und Photodioden.

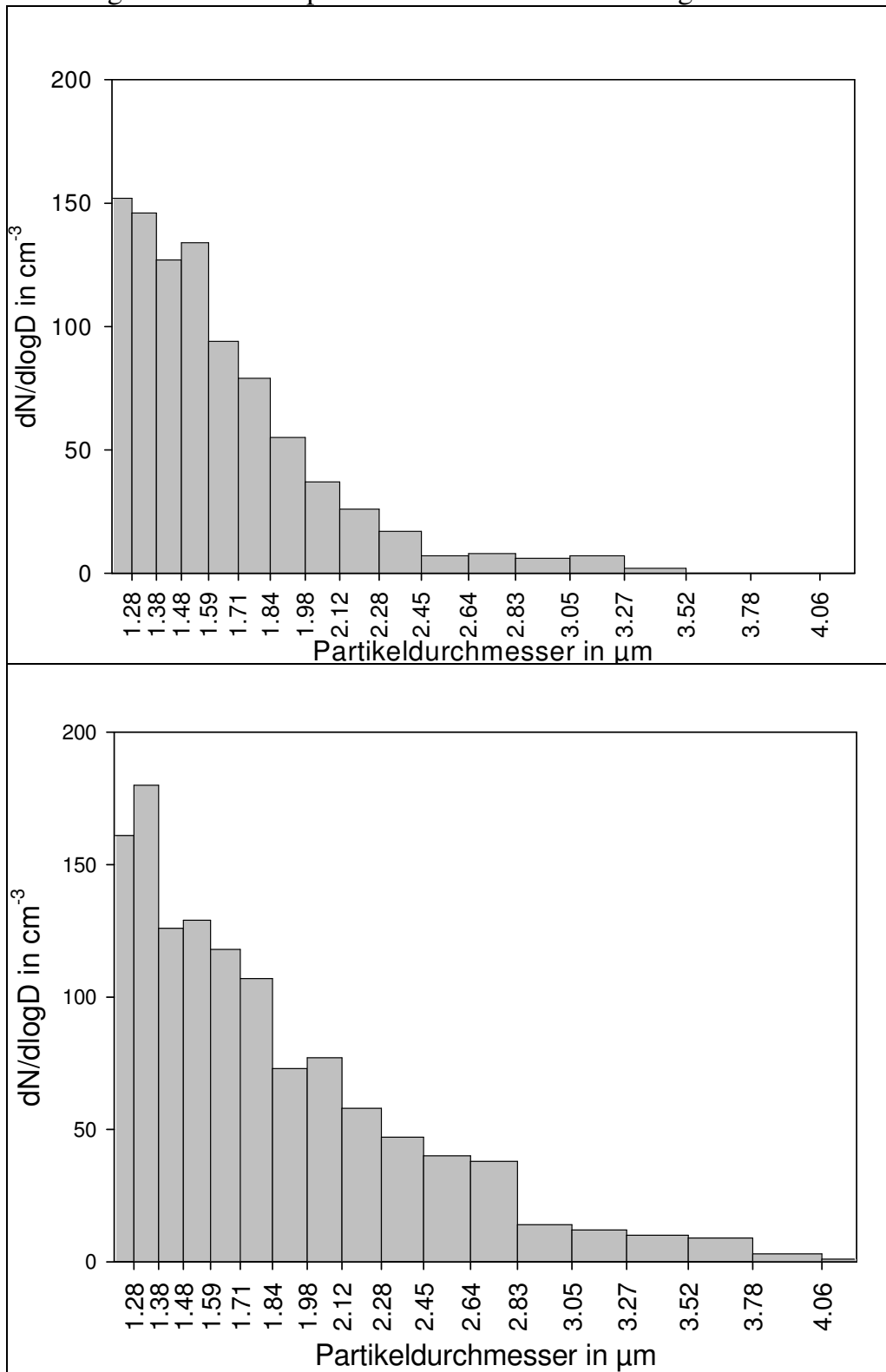


**Abbildung 4.41:** Labview-Programmierung zur Auswertung und graphischen Darstellung der Detektorsignale, der Verteilung des Polarisationsverhältnisses und der Anzahlkonzentrationen von CCN und IN.

Um das Detektionslimit für die Partikelgröße des optischen Detektors zu bestimmen wurde Quarzsand mit einem Aerosolgenerator dispergiert. Die Größenverteilung wurde mit einem APS (Aerodynamic Particle Sizer) Model 3321 der Firma TSI [TSI, (2004)] aufgezeichnet und parallel dazu direkt mit dem Detektor von FINCH die Anzahlkonzentration gemessen, ohne dass die Luft zunächst durch die Wachstumskammer und den virtuellen Impaktor strömt. Eine genaue Beschreibung der Aerosolgenerierung folgt in Kapitel 4.2

In Abbildung 4.42 sind zwei unterschiedliche, mit dem APS gemessene Größenverteilungen gezeigt. Bei der parallelen Messung mit dem optischen Sensor lag für die obere Größenverteilung die gemessene Partikelanzahlkonzentration bei  $2.5 \text{ l}^{-1}$ , für die untere bei  $500 \text{ l}^{-1}$ . Es ist somit ein starker Anstieg der gemessenen Anzahlkonzentration mit dem optischen Sensor zu beobachten, wenn der Partikeldurchmesser  $3.5 \mu\text{m}$  überschreitet, wie es in der unteren Aerosolgrößenverteilung der Abbildung 4.42 (unten) der Fall ist.

Der starke Anstieg oberhalb von  $3.5 \mu\text{m}$  lässt einen 50 % Nachweisgrenze des Detektors unterhalb von  $4 \mu\text{m}$  vermuten. Zur exakten Bestimmung der Nachweisgrenze sind derzeit Messungen mit monodispersen Partikeln in Vorbereitung.



**Abbildung 4.42:** Messung zweier unterschiedlichen Größenverteilungen für Quarzsand mit einem APS der Firma TSI.



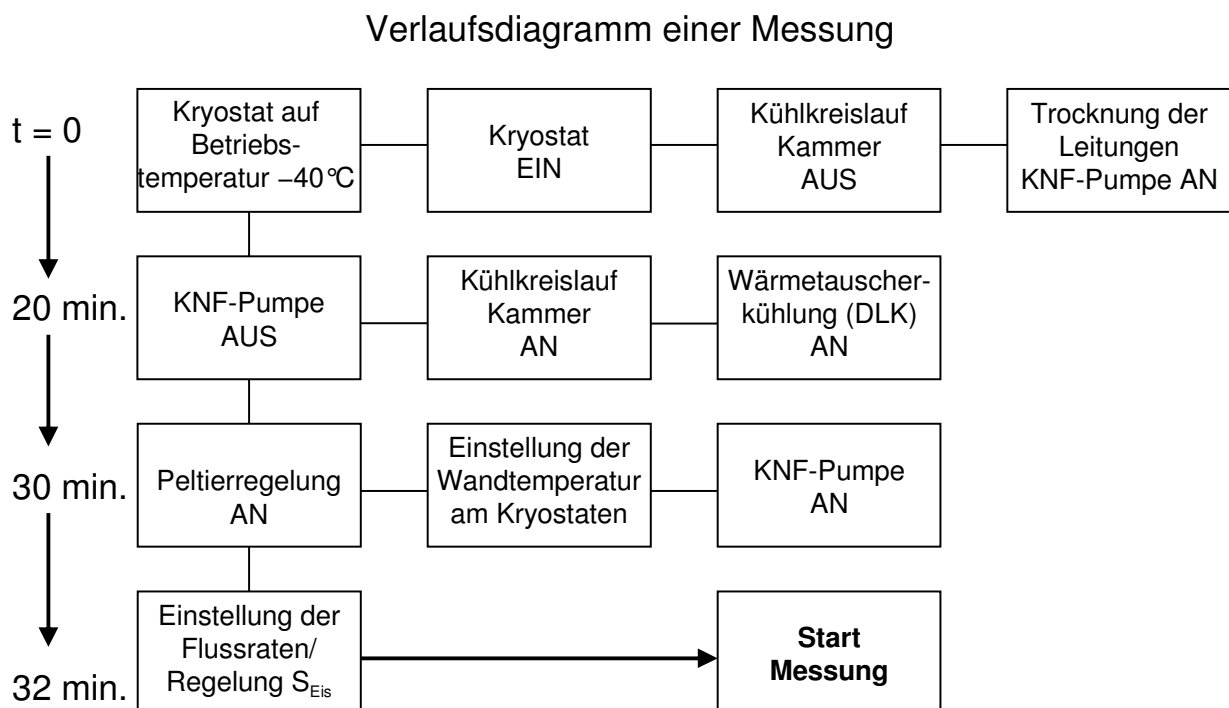
## 5. Messungen

In diesem Kapitel sollen Labor-, Atmosphären- und Messungen von einem Vergleichsworkshop mit anderen IN-Countern präsentiert werden. Zunächst wird der eigentliche Verlauf einer Messung erläutert.

In Abbildung 5.1 ist der Verlauf einer Messung schematisch dargestellt.

Vor dem Start einer Messung wird die Kühlflüssigkeit mit dem Kryostaten auf seine minimale Temperatur von  $-40\text{ °C}$  gekühlt, ohne dass die Wachstumskammer bzw. die Vorkühlung der Flüsse um- bzw. durchspült wird. Dadurch wird eine Erwärmung der Kühlflüssigkeit durch die Umgebung reduziert, was im späteren Verlauf der Messvorbereitungen zu einem schnellen Erreichen der gewünschten Wandtemperatur führt. In dieser Zeit kann parallel die KNF-Pumpe angeschaltet werden, so dass Kondenswasser, das sich bei vorherigen Messungen gebildet hat, durch das Silikagel herausgetrocknet wird. Es empfiehlt sich dabei den Aerosolfluss dazu auf etwa  $0.5\text{ l/min}$  zu minimieren, da sonst zu viel Wasserdampf aus der Umgebung in das System gelangt und zu einer unnötigen Anfeuchtung des Silikagels führt. In der Regel sollte das Silikagel nach einer Messzeit von etwa 10 Stunden gewechselt werden.

Hat der Kryostat die Zieltemperatur von  $-40\text{ °C}$  erreicht, so wird zunächst der Gasfluss in der Kammer gestoppt und die Kühlung der Wand mit der Kühlflüssigkeit gestartet, sowie der DLK zur Kühlung der Wärmetauscher und der Vorkühlung des kalten Flusses und der Mantelluft angeschaltet.



**Abbildung 5.1:** Schematisches Verlaufdiagramm der Messvorbereitungen bis zur eigentlichen Messung mit einer Zeitachse links.

Nach etwa 10 Minuten liegt die Temperatur in den Wärmetauschern bei etwa  $-20\text{ °C}$  und die Peltierregelung zur Temperierung der einzelnen Flüsse kann eingeschaltet werden.

An Hand eines Beispiels soll nun der Verlauf einer Messung dargestellt werden. In diesem Fall wird die Temperaturen des Wärmetauschers des kalten Flusses auf  $-37\text{ °C}$ , des warmen Flusses auf  $-15\text{ °C}$  und des Mantelflusses auf die gewünschte Mischtemperatur (hier  $-22\text{ °C}$ ) gestellt. Diese Temperatur wird ebenfalls am Kryostaten zur Kühlung der Kammerwand eingestellt. Bei zu niedriger Temperatur der Wand kommt es zur Diffusion von Wasserdampf zur Wand hin, was zu einer Vereisung der Wand führt. Bei einer zu hohen Wandtemperatur, erhält man eine Gastemperaturerhöhung entlang der Kammer, was zu einer Untersättigung führen kann und so Wasser und Eis von bereits aktivierten IN und CCN wieder verdampft.

Nach erneutem Anschalten der Pumpe können die Flussraten der einzelnen Flüsse, sowie die Regelung von  $S_{\text{Eis}}$  über den warmen Fluss eingestellt und mit der eigentlichen Messung begonnen werden.

In Abbildung 5.2 (links) sind die Temperaturverläufe der einzelnen Flüsse für eine Messung bei einer Mischtemperatur von etwa  $-22\text{ °C}$  und in Abbildung 5.1 (rechts) der Verlauf der Flussraten über die Zeit gezeigt.

Man erkennt für den gesamten Zeitraum eine nahezu konstante Temperatur der einzelnen Flüsse. Auch die Raten von Aerosolfluss ( $2\text{ l/min}$ ), kalten ( $23\text{ l/min}$ ) und Mantelfluss ( $15\text{ l/min}$ ) sind über den gesamten Zeitraum konstant. Lediglich das Verhältnis von warmen trockenen Fluss und warmen angefeuchtete Fluss, der über eine raumtemperierte Wasseroberfläche strömt, wird variiert. Zunächst beträgt die Rate des warmen, trockenen Flusses  $5\text{ l/min}$ . Nach etwa einhundert Sekunden wird das Verhältnis der beiden warmen Flussraten, die bereits vor der eigentlichen Mischung gemischt werden, verändert. Die Gesamtflussrate beider bleibt jedoch konstant. Dies führt zu einem feuchteren warmen Fluss. Nach etwa 60 Sekunden wird die Flussrate des warmen feuchten Flusses wieder auf  $0\text{ l/min}$  zurückgestellt.

Betrachtet man nun das mit dem Taupunktsensor gemessenen Sättigungsverhältnis im oberen Bereich der Kammer in Abbildung 5.2 (oben). So erkennt man einen unmittelbaren Anstieg des  $S_{\text{W}}$  von 0.9 auf 1.3 und  $S_{\text{Eis}}$  von etwa 1.2 auf 1.6. nach Anfeuchtung des warmen Flusses.  $S_{\text{W}}$  und  $S_{\text{Eis}}$  bleiben auch nach Abschalten des „warm-feuchten“ Flusses, nach kurzer sehr hoher Übersättigung bei hohen Werten von etwa 1.1 bzw. 1.35, da sich bei der Anfeuchtung im Wärmetauscher auf dem Sintermaterial ( $-15\text{ °C}$ ) eine Eisschicht gebildet hat, die über eine längere Zeit für eine Sättigung des warmen Flusses sorgt. Nach etwa 550 Sekunden erkennt man einen Rückgang des Sättigungsverhältnisses, da die Eisschicht auf dem Sintermaterial des warmen Flusses langsam sublimiert und so für eine geringere Feuchte bei der Mischung sorgt.

Das Beispiel in Abbildung 5.3 zeigt, dass es möglich ist sehr schnell das Sättigungsverhältnis über einen großen Bereich bei konstanter Temperatur zu ändern.

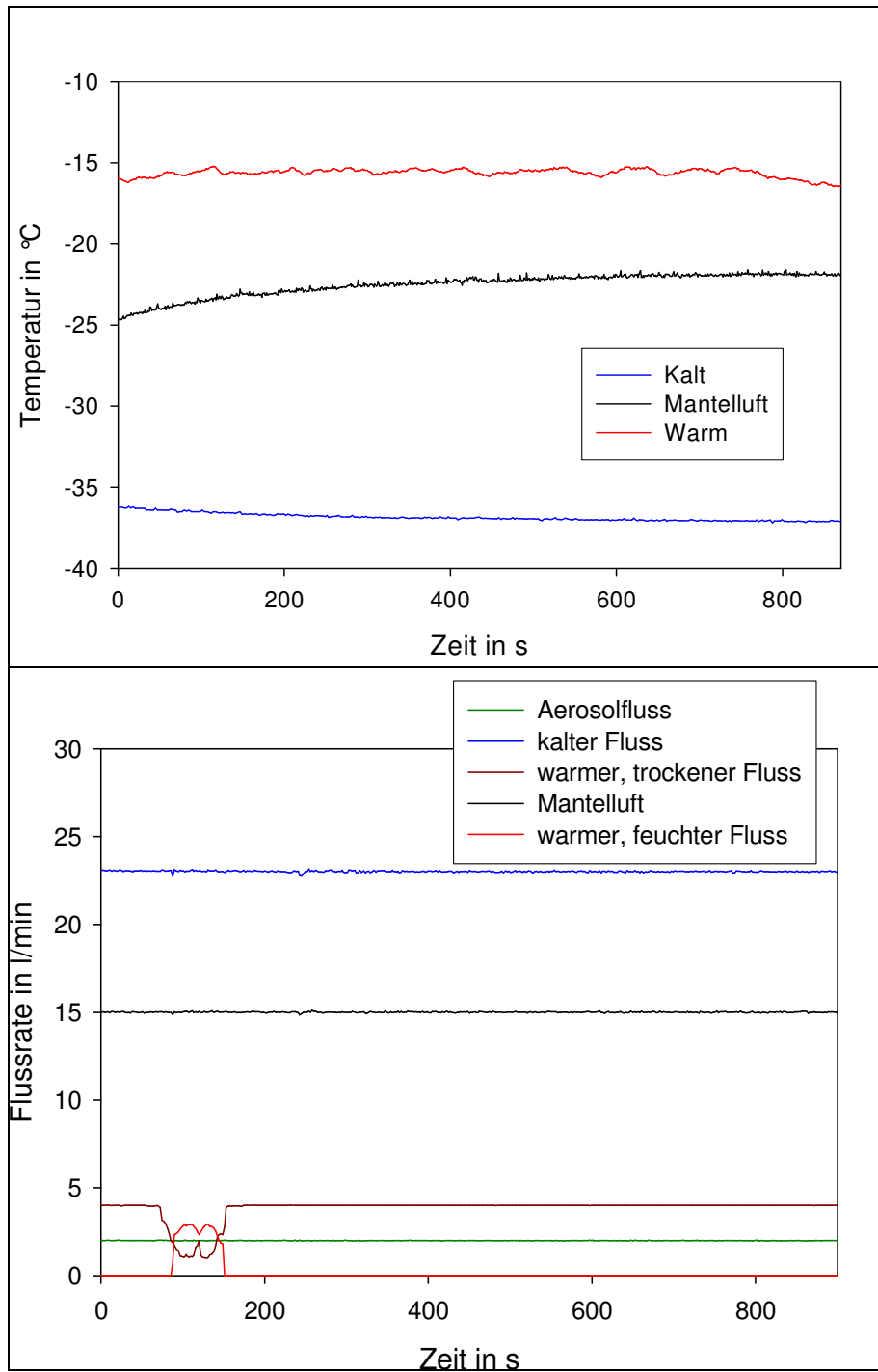
Betrachtet man nun die Anzahlkonzentrationen  $N_{\text{IN}}$  und  $N_{\text{CCN}}$  pro Liter als Minutenmittelwerte, so erkennt man einen Anstieg nach Erhöhung des

Sättigungsverhältnisses und eine Abnahme mit abnehmendem Sättigungsverhältnis (Abbildung 5.3 (unten)). Bei dem hier gemessenen Testaerosol handelte es sich um Ruß. Als Fehlerbalken für die IN-Anzahlkonzentrationen wurden hier die Standardabweichungen angegeben, die sich aus der linearen Regressionsgeraden in Abschnitt A.3 errechnen lassen.

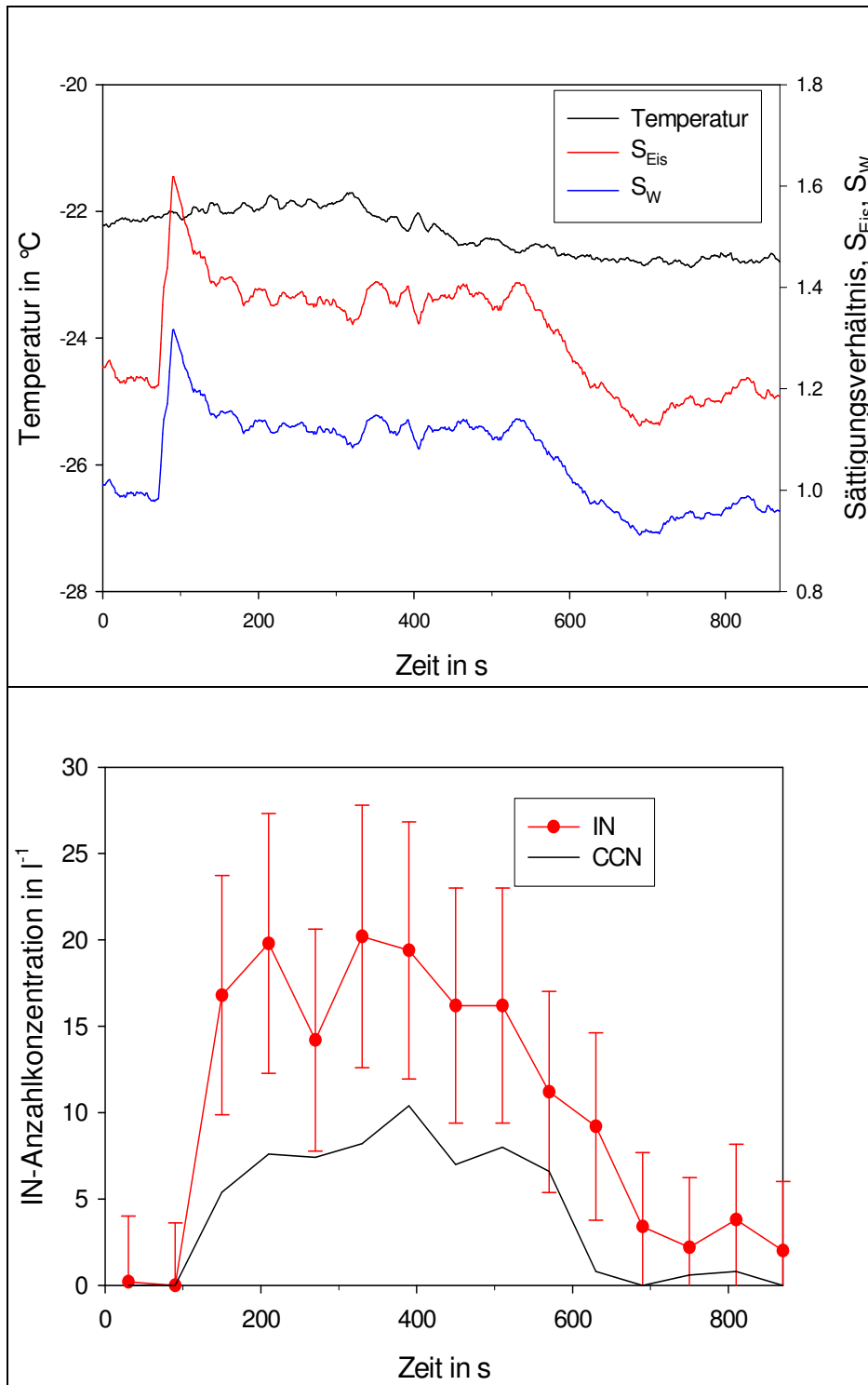
Mögliche Fehler in der IN-Anzahlkonzentrationsmessung können durch kleinere Flussschwankungen des Aerosolflusses entstehen. Ebenso besteht trotz der Berechnung der Transmissionseffizienz des virtuellen Impaktors von 1 bei Eiskristalldurchmessern  $> 3 \mu\text{m}$  die Möglichkeit, dass es zu Verlusten von Eiskristallen kommt oder diese auf Grund der Beschleunigung im Impaktor auseinander brechen. Des Weiteren können, zwei Eiskristalle gleichzeitig den Laserstrahl passieren und so lediglich als ein IN gezählt werden. Dieser Fehler sollte jedoch auf Grund der sehr geringen IN-Anzahlkonzentrationen sehr klein sein.

Für die Berechnung des hier nicht angegebenen Fehler von  $S_{\text{Eis}}$  (Abschnitt A.1) wird ein Fehler für die Messung der Temperatur von  $\Delta T = \pm 0.1 \text{ }^\circ\text{C}$  angenommen und für die Messung der Taupunkttemperatur ein  $\Delta T_p = \pm 0.2 \text{ }^\circ\text{C}$ .

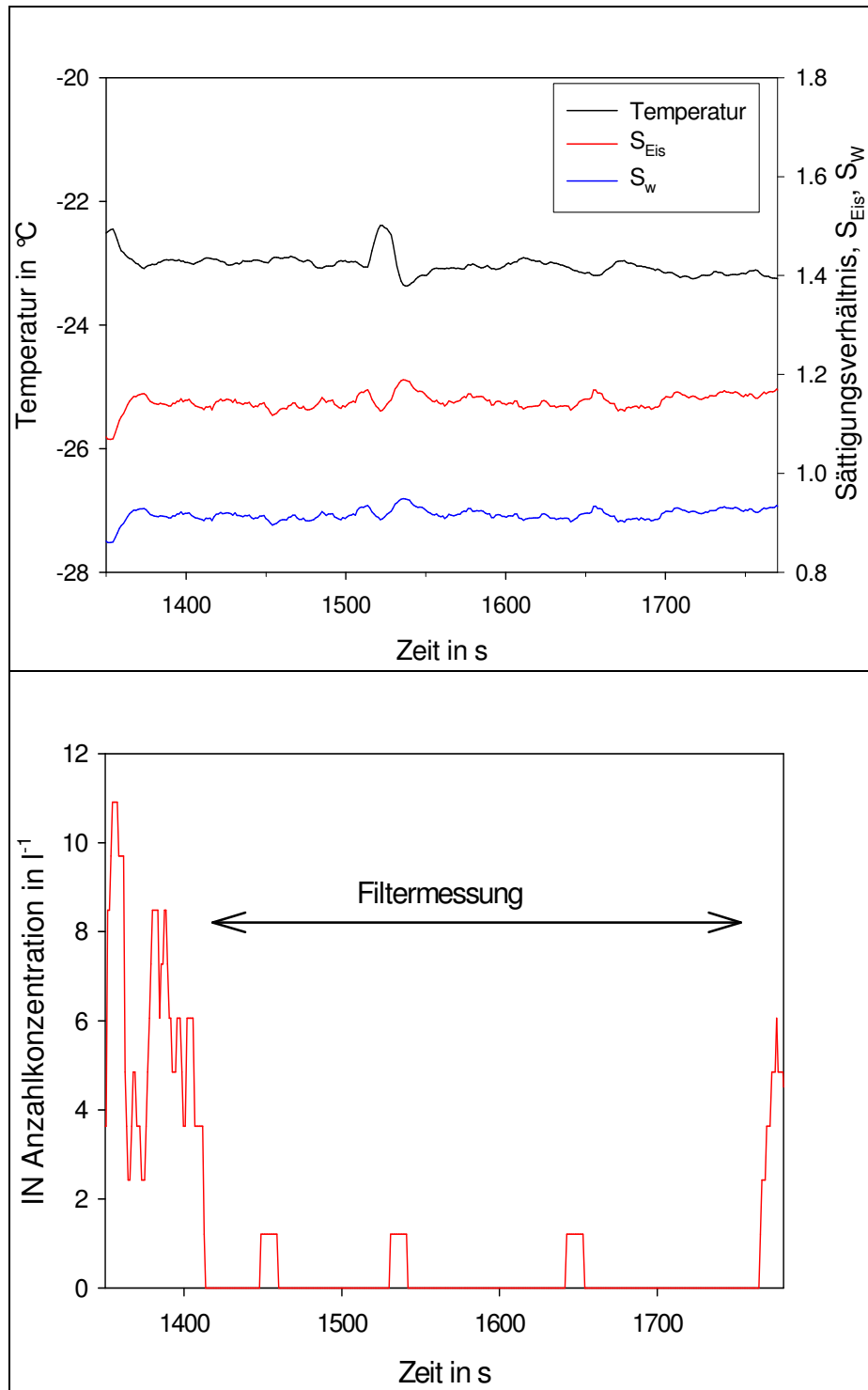
Als Kontrollexperiment wurde eine Messung ohne Partikel (HEPA-Filter vor dem Aerosoleinlass) durchgeführt, um den Blank-Wert der IN-Anzahlkonzentration zu bestimmen. In Abbildung 5.4 (oben) sind die Temperatur,  $S_{\text{Eis}}$  und  $S_w$  und unten die IN-Anzahlkonzentration (gleitender Mittelwert über 10 Sekunden) mit der Zeit dargestellt. Man erkennt nach dem Vorschalten des HEPA-Filters eine deutliche Abnahme der IN-Anzahlkonzentration. Der Zeitraum der Filtermessung ist im Graphen mit einem Pfeil gekennzeichnet. Man erkennt jedoch, dass die Werte nicht ganz auf einen Nullwert absinken. Jedoch handelt es sich hier nur um 3 IN in einem Zeitraum von 5.5 min, was bei einem Probenfluss von 4.5 l/min zu einem mittleren Hintergrundwert von 0.121 IN/l führt. Nach Wegnahme des Filters steigt die IN-Anzahlkonzentration wieder an.



**Abbildung 5.2:** Temperaturverlauf der einzelnen Flüsse in °C (oben) und Verlauf der einzelnen Flussraten in l/min (unten).



**Abbildung 5.3:** Temperatur in °C (schwarz), Sättigungsverhältnis in Bezug auf Wasser (blau) und Eis (rot), am oberen Rand der Wachstumskammer (oben) und IN (rot, mit Fehlerbalken) und CCN (blau) Anzahlkonzentrationen pro Liter (über eine Minute gemittelt) (unten) im Verlauf einer Messung mit Rußaerosol mit einer Dauer von 900 Sekunden.



**Abbildung 5.4:** Temperatur in °C (schwarz),  $S_w$  (blau) und  $S_{Eis}$  (rot), am oberen Rand der Wachstumskammer (oben) und die IN-Anzahlkonzentrationen in  $l^{-1}$  (gleitender Mittelwert über 10 Sekunden) im Verlauf einer Messung mit Rußaerosol mit einer Dauer von 420 Sekunden, mit zwischenzeitlicher Messung mit einem Filter vor dem Aerosoleinlass.

## 5.1. Labormessungen

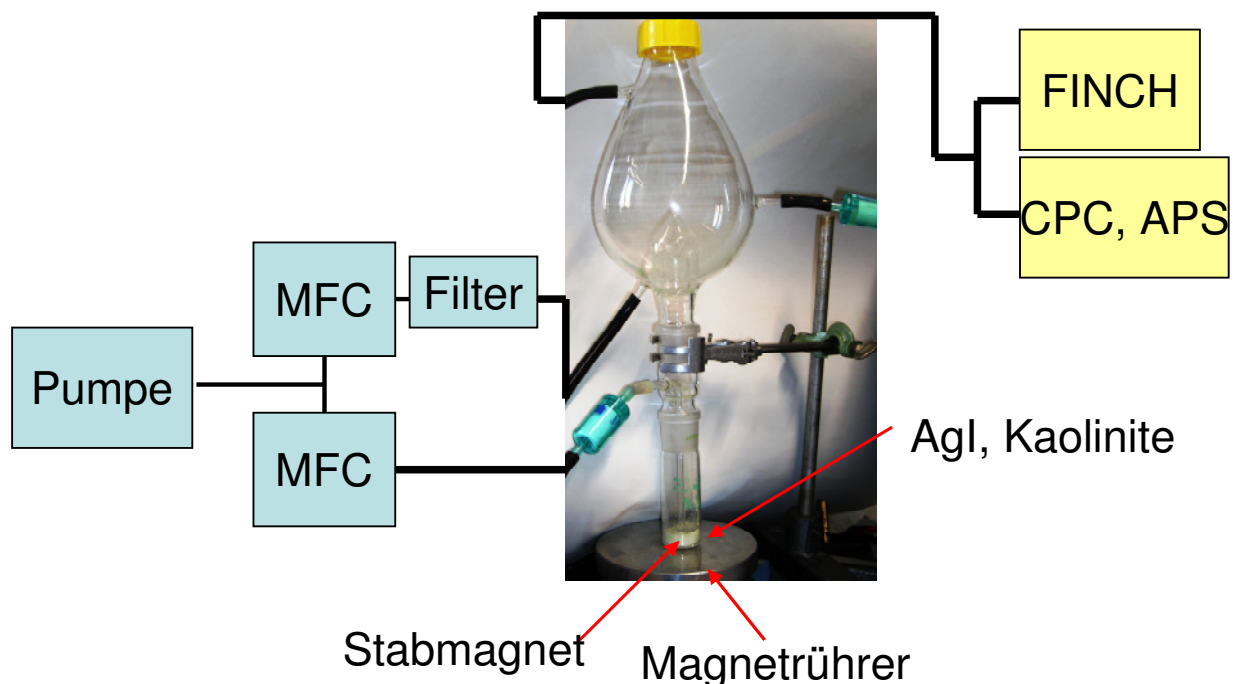
In den folgenden Labormessungen sollte untersucht werden bei welchen Temperaturen und Übersättigungen verschiedene Substanzen, die als Aerosol dispergiert wurden, als IN aktiviert werden können.

In Abbildung 5.5 ist das Flussdiagramm zur Generierung und zur Messung des Aerosols zu sehen. In einer Glasflasche befindet sich die Substanz in pulverartiger Form zusammen mit drei kleinen Stabmagneten, die durch einen Magnetrührer zur Rotation gebracht werden und die Substanz aufwirbeln. Durch einen kleinen, partikelfreien Fluss von 0.1 - 0.5 l/min wird das aufgewirbelte Aerosol nach oben in einen größeren Glaskolben transportiert und mit dem Trägergasfluss von 6 l/min gemischt und anschließend in FINCH vermessen.

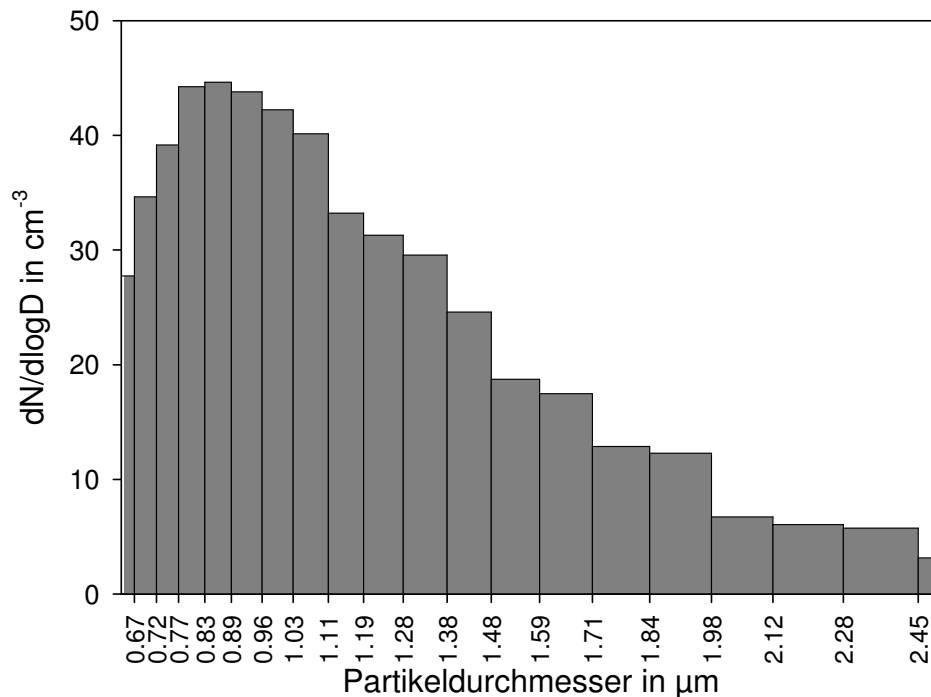
Als Kontrolle der CN-Anzahlkonzentration wird parallel mit einem CPC (Condensation Particle Counter) und mit einem APS (Aerodynamic Particle Sizer) die Größenverteilung bestimmt (Abbildung 5.6).

Durch Variation des kleineren Flusses ist es möglich, die Größenverteilung des Aerosols zu verändern. Verringert man diesen Fluss, so verschiebt sich die Größenverteilung zu kleineren Durchmessern hin und umgekehrt.

Um einen zu starken Aufbau von Über- bzw. Unterdruck im Glaskolben zu vermeiden, befindet sich an diesem eine weitere Öffnung vor die ein Partikelfilter montiert wurde.



**Abbildung 5.5:** Flussdiagramm des Laboraufbaus zur Dispergierung und Messung von verschiedenen Aerosolen. Mit Hilfe eines rotierenden Stabmagneten wird die Substanz aufgewirbelt und die Partikel mit einem partikelfreien Trägergasfluss nach oben in den Glaskolben transportiert. Von dort aus gelangen sie zu den unterschiedlichen Geräten.



**Abbildung 5.6:** CN-Anzahlkonzentration als Funktion des Durchmessers gemessen mit dem APS.

Wie in dem vorherigen Messbeispiel gezeigt, wurde auch hier bei einer konstanten Temperatur jeweils ein Übersättigungsbereich durch Variation des warmen Flusses gescannt. Die daraus bestimmten IN-Anzahlkonzentrationen bei unterschiedlichen Übersättigungen und konstanter Temperatur können dann in einer Aktivierungskurve dargestellt werden.

In Abbildung 5.7 (oben) ist die IN-Anzahlkonzentration als Funktion von  $S_{\text{Eis}}$  für Silberjodid AgI für verschiedene Temperaturen gezeigt. Man erkennt, dass bei  $S_{\text{Eis}}$  nahe 1 bei allen Temperaturen  $N_{\text{IN}}$  nahe  $0 \text{ l}^{-1}$  liegt, jedoch diese bei Übersättigungen um 5 % sehr stark ansteigen. Es zeigt sich, dass AgI bereits bei Temperaturen um  $-10 \text{ }^\circ\text{C}$  und geringen Eisübersättigungen sehr gut als IN im Depositionsmode geeignet ist, da unterhalb von Wassersättigung keine Aktivierung in anderen Modi möglich ist.

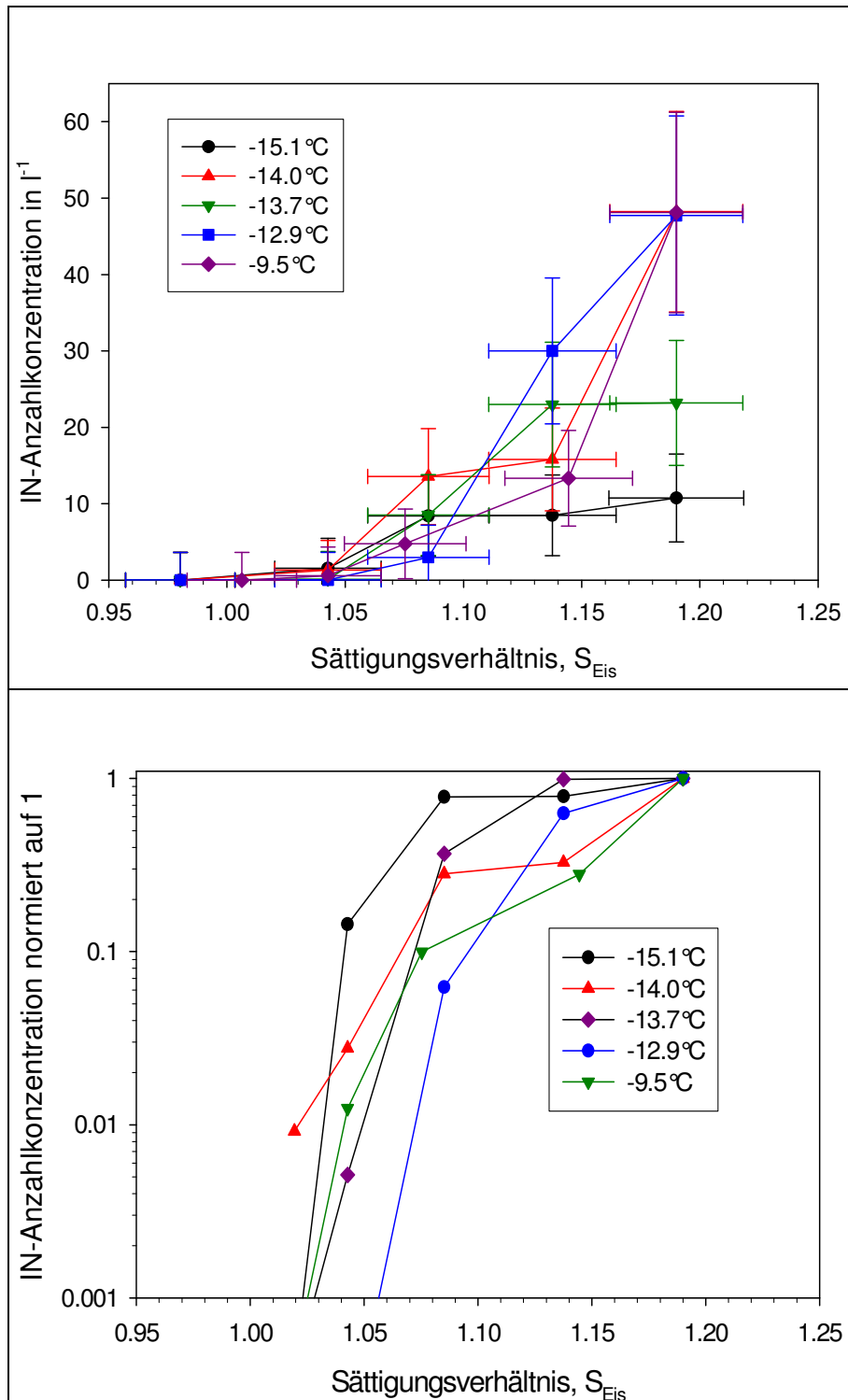
Die Fehlerbalken sind in Abbildung 5.7 (oben) sowohl für den Fehler des Sättigungsverhältnis  $S_{\text{Eis}}$  als auch für die IN-Anzahlkonzentration dargestellt. Im weiteren Verlauf der Auswertung wird auf die Darstellung der Fehlerbalken zur besseren Übersichtlichkeit verzichtet.

In Abbildung 5.7 (unten) ist nochmals die gleiche Messung aufgetragen, jedoch ist hier die Anzahlkonzentration auf den maximalen Wert bei 19 % Eisübersättigung normiert.

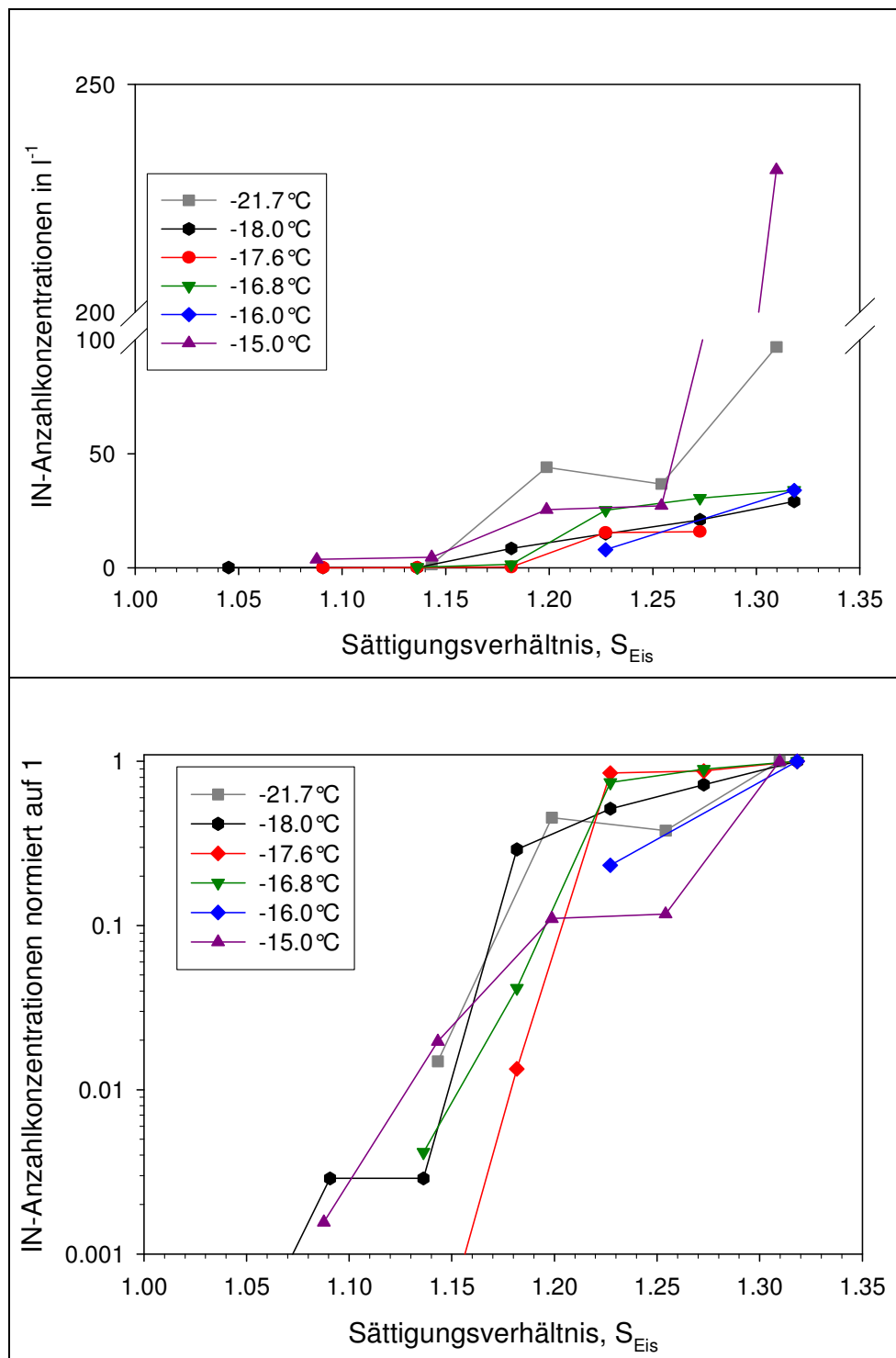
Diese Messungen wurden auch für Kaolinit durchgeführt (Abbildung 5.8). Man erkennt, dass bei höheren Temperaturen z.B.  $-16.8 \text{ }^\circ\text{C}$  eine Aktivierung von IN erst bei  $S_{\text{Eis}} = 1.17$  beobachtet werden kann. Bei geringeren Temperaturen zeigt sich bereits



eine Aktivierung um  $S_{\text{Eis}} = 1.1$ . Generell ist jedoch eine Aktivierung erst bei geringeren Temperaturen und höherem  $S_{\text{Eis}}$  im Vergleich zum AgI-Aerosol zu beobachten.



**Abbildung 5.7:** IN-Anzahlkonzentrationen in  $l^{-1}$  als Funktion von  $S_{\text{Eis}}$  für verschiedene Temperaturen und AgI-Aerosol (oben), sowie die IN-Anzahlkonzentration normiert auf das Maximum der IN-Anzahlkonzentration in logarithmischer Skala als Funktion von  $S_{\text{Eis}}$  (unten).



**Abbildung 5.8:** IN-Anzahlkonzentrationen in  $l^{-1}$  als Funktion von  $S_{Eis}$  für verschiedene Temperaturen und Kaolinit-Aerosol (oben), sowie die IN-Anzahlkonzentration normiert auf das Maximum der IN-Anzahlkonzentration in logarithmischer Skala als Funktion von  $S_{Eis}$  (unten).

In Abbildung 5.9 sind IN-Aktivierungstemperaturen und -eisübersättigungen für Silberjodid und Kaolinit bei Messungen mit FINCH, bei Messungen von Schaller und Fukuta (1979), Zimmermann et al. (2007), sowie von FRIDGE dargestellt.

FRIDGE (FRankfurt Ice Deposition freezinG Experiment) ist eine statische Thermo-Diffusionskammer zur Aktivierung und Auszählung von Eiskeimen, die auf einem Filter gesammelt wurden. Für die Messung der IN-Anzahlkonzentration wird der Filter in einer evakuierten Kammer Temperaturen unterhalb des Gefrierpunkts und Eisübersättigung ausgesetzt. Aktivierte IN wachsen zu Eiskristallen an und werden mit einer CCD Kamera fotografiert und mit einem LabView-Programm automatisch ausgezählt [Bundke, (2008)].

Zur Erzeugung der Übersättigung ist die Kammer mit einer temperierten und evakuierten Wasserdampfquelle verbunden. Zunächst wird der Filter auf der Unterseite mit Vaseline getränkt, um einen besseren thermischen Kontakt zum Filtertisch zu erhalten. Dazu wird zunächst der Filtertisch aufgeheizt.

Die Temperatur des Filtertisches und damit die Filtertemperatur kann über ein PID geregeltes Peltierelement auf einen gewünschten Wert eingestellt werden. Durch Öffnen eines Ventils an der Wasserdampfquelle strömt Wasserdampf in die Kammer und es stellt sich auf Grund der Temperatur der Wasserdampfquelle und Filtertemperatur eine gewünschte Übersättigung ein. Durch das vorherige Evakuieren der Kammer herrscht nun in dieser eine reine Wasserdampfatmosphäre. Somit kann man den Wasserdampfpartialdruck direkt messen und durch Variation der Temperatur der Wasserdampfquelle per PID Regelung regeln.

Der Vorteil dieser Methode ist folglich die Möglichkeit einer sehr exakten Einstellung der Übersättigung.

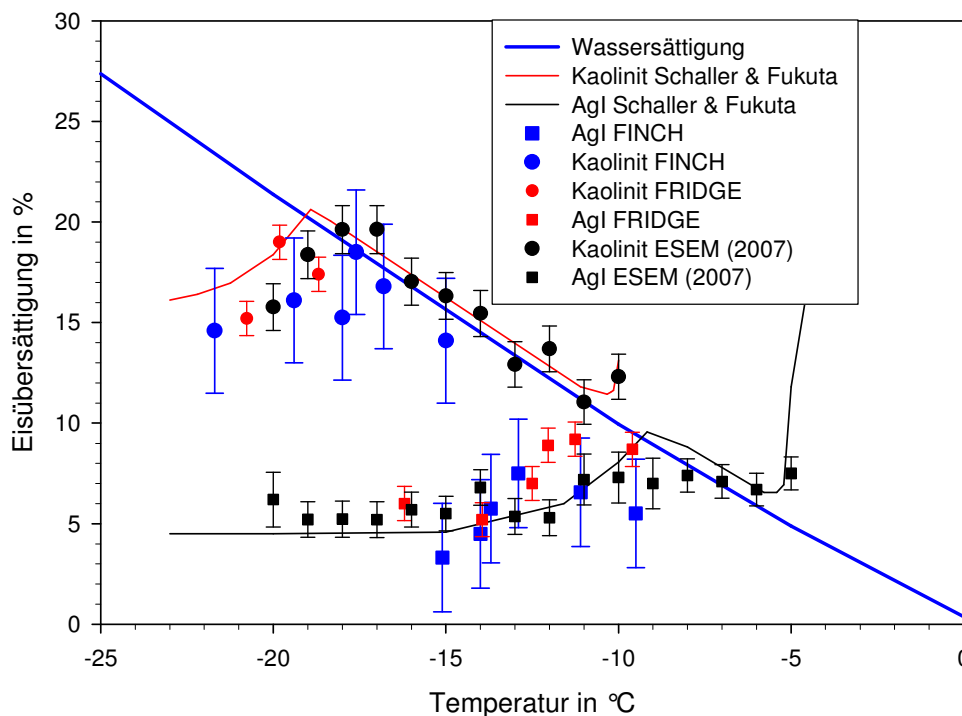
Die Nachteile hingegen sind, dass es durch verwendete Vaseline zu einer Deaktivierung von möglichen Eiskeimen durch Eintauchen in die Vaseline und durch Bedeckung der Teilchen durch Vaselinedampf kommen kann. Ebenso ist der Einfluss auf die Aktivierbarkeit als IN durch die Sammlung des Aerosols auf der Filteroberfläche nicht bekannt.

Eine Messung bei Wasserübersättigung ist nicht möglich, da es dabei zu einer großflächigen Vereisung der Filteroberfläche kommt.

Bei den Messungen von Zimmermann et al. (2007) wird ebenfalls eine temperierte Wasserdampfquelle verwendet, um in einer zuvor evakuierten Kammer auf einem mit einem Peltierelement temperierten Aerosolträger eine Übersättigung zu erzeugen. Hierbei wird das Aerosol im Gegensatz zu FRIDGE (Filter) auf ein silanisierendes Siliziumplättchen aufgebracht. Das Anwachsen von Eiskeimen zu Eiskristallen kann dann durch environmental scanning electron microscopy (ESEM) beobachtet werden.

Bei den Messungen bei Schaller und Fukuta wurde eine keilförmige Diffusionskammer verwendet, bei der die Übersättigungen durch zwei unterschiedliche temperierte und eisbedeckte Kammerwände erzeugt wurden. Die Aerosolpartikel wurden frei in der Luft suspendiert und die entstehenden Eiskristalle mit einem Laser bzw. einer Mikroskoplampe beleuchtet. Diese wurden dann mit dem Auge gezählt.

Für die FINCH Messungen gilt eine IN-Aktivierung als nachgewiesen, wenn der aktivierte IN-Anteil einen Grenzwert von 2 % des maximalen Wertes der IN-Anzahlkonzentration überschreitet. Der 2 %-Wert wurde hier gewählt, um sicher zu gehen, dass es sich um eine signifikante Änderung der IN-Anzahlkonzentration im Vergleich zum Hintergrundwert handelt, der bei der Messung mit dem HEPA-Filter beobachtet wurde.



**Abbildung 5.9:** Einsetzen von Eisnukleation als Funktion von Temperatur und Eisübersättigung für Silberjodid und Kaolinit. Es sind Messungen von Schaller und Fukuta (1979) (durchgezogene Linien), mit FINCH (blau), mit FRIDGE (rot) und von Zimmermann et al. (2007) (schwarz) gezeigt. Die blaue Linie zeigt an, ab welchen Eisübersättigungen Wassersättigung erreicht ist. Der Fehler der Temperatur liegt bei allen Messungen  $\leq 0.1$  °C.

Alle vier Messreihen zeigen ein Einsetzen der IN-Aktivierung bei höheren Temperaturen und geringeren Eisübersättigungen für Silberjodid im Vergleich zu Kaolinit. Vergleicht man die Ergebnisse einer Substanz der verschiedenen Geräte untereinander, so stimmen die Ergebnisse unter der Berücksichtigung der Fehler zum Großteil überein. Bei Kaolinit ist jedoch bereits bei geringeren Eisübersättigungen bei FINCH, FRIDGE und ESEM eine Aktivierung im Vergleich zu Daten von Schaller und Fukuta zu beobachten. Gründe hierfür können eine unterschiedliche Generierung, Unterschiede in der verwendeten Substanz, sowie in der Größenverteilung des Aerosols sein. Für FINCH und FRIDGE wurde die gleiche Substanz, sowie gleiche Art der Aerosolgenerierung verwendet.

### 5.2. CLACE 6

Das Cloud and Aerosol Characterization Experiment CLACE 6 fand in der hochalpinen Forschungsstation auf dem Jungfrauoch in der Schweiz vom 06.02.-15.3.2007 statt. Die Forschungsstation (Sphinx) befindet sich in einer Höhe von 3580 m ü.NN und 7.98° östl. Länge und 46.55° nördl. Breite (Abbildung 5.10) Die eigentliche Messphase startete nach Installation aller Geräte am 17.2.2007. Abbildung 5.9 zeigt die Sphinx-Station in der sich unterhalb der Kuppel das eigentliche Labor für den Zeitraum der Messphase befand.



**Abbildung 5.10:** Karte von Mitteleuropa, bei der die Lage des Jungfrauochs mit einem roten Punkt gekennzeichnet ist (links) und eine Foto der Forschungsstation Sphinx (rechts).

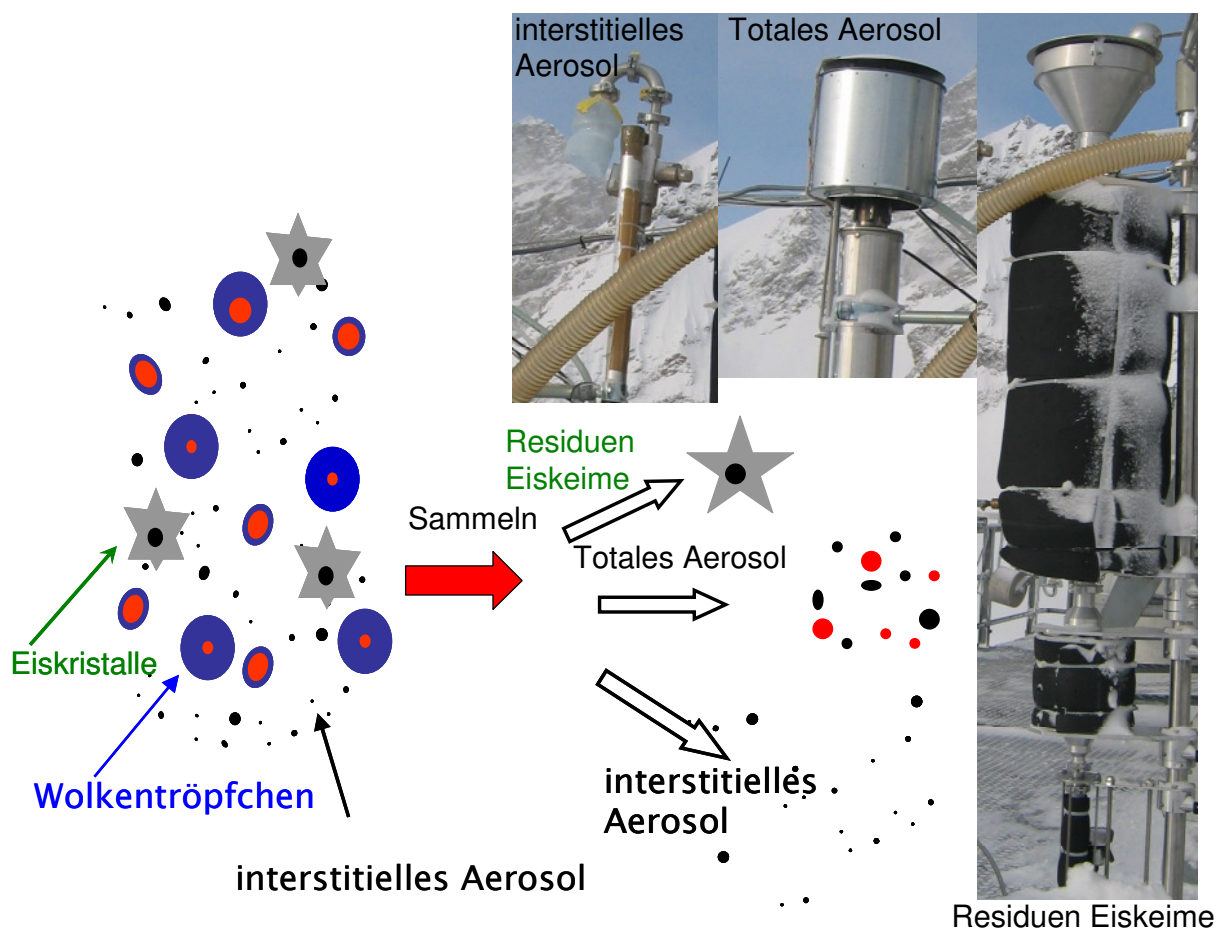
Da FINCH erst kurz vor Kampagnenbeginn fertig gestellt wurde, blieb zuvor wenig Zeit für Laborexperimente. So war das Ziel der Kampagne, erste Erfahrungen im realen Messbetrieb zu sammeln und bei konstanten Temperaturen und Übersättigungen, die nahe an den realen Bedingungen liegen sollten, zu arbeiten.

In Abbildung 5.11 sind die bei CLACE 6 verwendeten Aerosoleinlässe gezeigt. Diese sammeln Partikel etwa 2 m oberhalb der Dachplattform, unter der sich das Messlabor befindet, so dass die Rohrleitungen zu den einzelnen Geräten möglichst kurz gehalten werden konnten. Hierdurch konnten Partikelverluste in den Rohrleitungen minimiert werden. Der Interstitielle Einlass dient dazu, bei Messung in Wolken, nur die nicht zu Wolkentropfen und Eiskristallen angewachsenen Aerosole zu sammeln. Hierbei passieren nur Partikel kleiner 2  $\mu\text{m}$  den Vorimpaktor. Größere Aerosolteilchen sowie Wolkentropfen und Eiskristalle werden abgeschieden.

Bei dem Totalen Einlass werden das gesamte Aerosol, Wolkentropfen und Eiskristalle kleiner 10  $\mu\text{m}$  gesammelt. In einer beheizten Strecke werden Tropfen und Eiskristalle verdampft, so dass anschließend das totale Aerosol untersucht werden kann.

Der dritte Einlass ist der Eis-CVI (Counterflow Virtual Impactor) Einlass. Mit Hilfe von mehreren Impaktoren gelangen aus Mischphasenwolken nur die Residuen von Eiskristallen mit einem Durchmesser von 5 - 20  $\mu\text{m}$  zu den verschiedenen Instrumenten, in denen sie analysiert werden können. Eine genauere Beschreibung des Einlasses und dessen Funktionsweise folgt in Kapitel 5.2.2.

Mit FINCH wurde zum Großteil der Messzeit am Totalen Einlass, sowie für eine Stunde am Eis-CVI gemessen. Messungen am Interstitiellen Einlass wurden nicht durchgeführt, da bei Messungen in Wolken davon auszugehen ist, dass ein Großteil der IN bereits aktiviert und zu Eiskristallen herangewachsen sind und diese vom Interstitiellen Einlass nicht gesammelt werden.

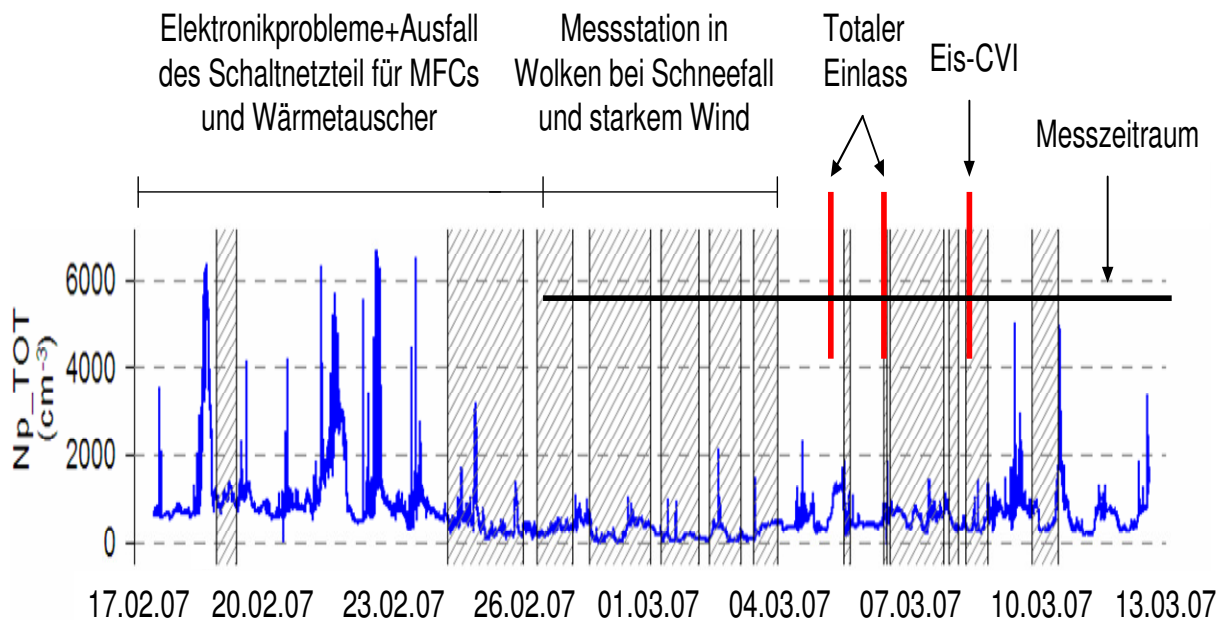


**Abbildung 5.11:** Foto der verschiedenen Aerosoleinlässe, Interstitielle, Totale und Eis-CVI Einlass, sowie eine schematische Darstellung des durch die Einlässe gesammelten Aerosols.

Im Verlauf der Kampagne wurden standardmäßig die Größenverteilung des Aerosols mit einem Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS,  $20 \text{ nm} < d_p < 800 \text{ nm}$ ) und einem Optical Particle Counter (OPC,  $0.3 \mu\text{m} < d_p < 20 \mu\text{m}$ ), (mit  $d_p$ , dem trockenen

Partikeldurchmesser) und mit mehreren CPCs die Aerosolanzahlkonzentration gemessen.

In Abbildung 5.12 ist die Messung der CN-Anzahlkonzentration über den gesamten Zeitraum der Messkampagne gezeigt. Die grau schraffierten Bereiche geben an, wann die Messstation in Wolken lag.



**Abbildung 5.12:** Messung der CN-Anzahlkonzentration in  $\text{cm}^{-3}$  am Totalen Einlass bei CLACE 6 auf dem Jungfraujoch mit Angabe des Messzeitraums von FINCH (schwarzer Balken) und den in dieser Arbeit vorgestellten Messungen (rote Balken). Die grau schraffierten Bereiche geben an, wann die Station in Wolken lag.

Auf Grund von elektronischen Problemen bei der Ansteuerung der Wärmetauscher und der Ausfall eines Schaltnetzteils konnte der Messbetrieb von FINCH erst am 27.2.2007 aufgenommen werden.

Der Schwarze Balken zeigt den eigentlichen Messzeitraum von FINCH während der Kampagne. Hierzu muss jedoch gesagt werden, dass nur Messungen am Tage durchgeführt wurden. Ebenso kommt es zu Messunterbrechungen durch das nötige Auftauen der Einlässe und Wärmetauschern nach mehrstündigen Messungen.

Im Anschluss sollen drei Messungen, von denen zwei am Totalen Einlass und eine am Eis-CVI-Einlass durchgeführt wurden und mit den roten Balken gekennzeichnet sind, präsentiert werden.

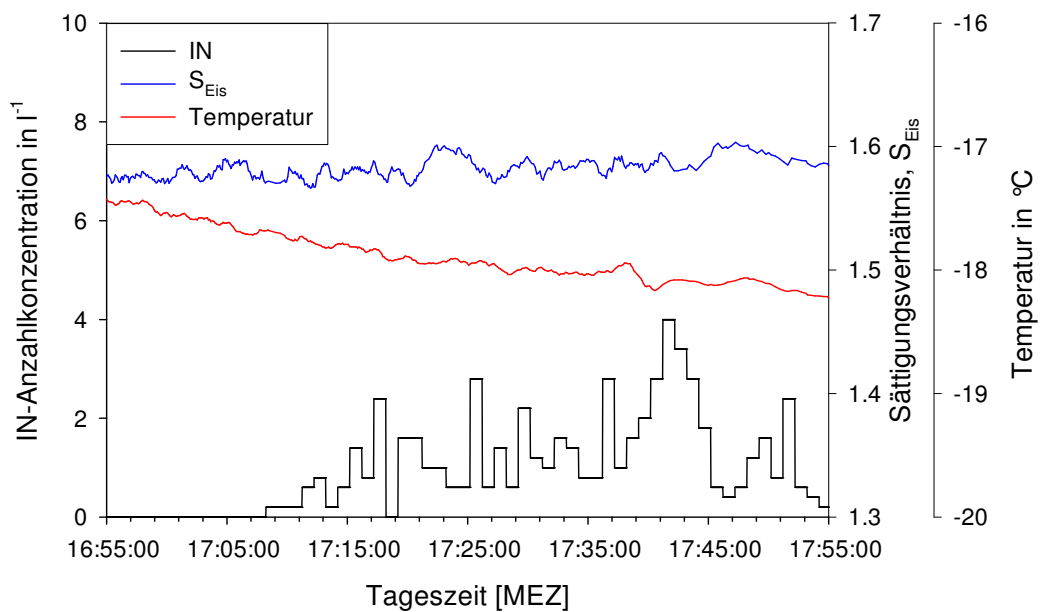
Da über einen langen Zeitraum der Messkampagne die Messstation von Wolken umgeben war und zum Teil starker Schneefall herrschte, lag bei einem Großteil der Messungen eine IN-Anzahlkonzentration von  $0 \text{ l}^{-1}$  vor. Die IN waren in diesem Fall bereits aktiviert worden und zu Eiskristallen herangewachsen und gelangten somit auf Grund ihrer Größe nicht in die Einlässe.

Auf diese Messungen von etwa 30 Stunden wird im weiteren Verlauf nicht eingegangen

### 5.2.1. Messungen am Totalen Einlass

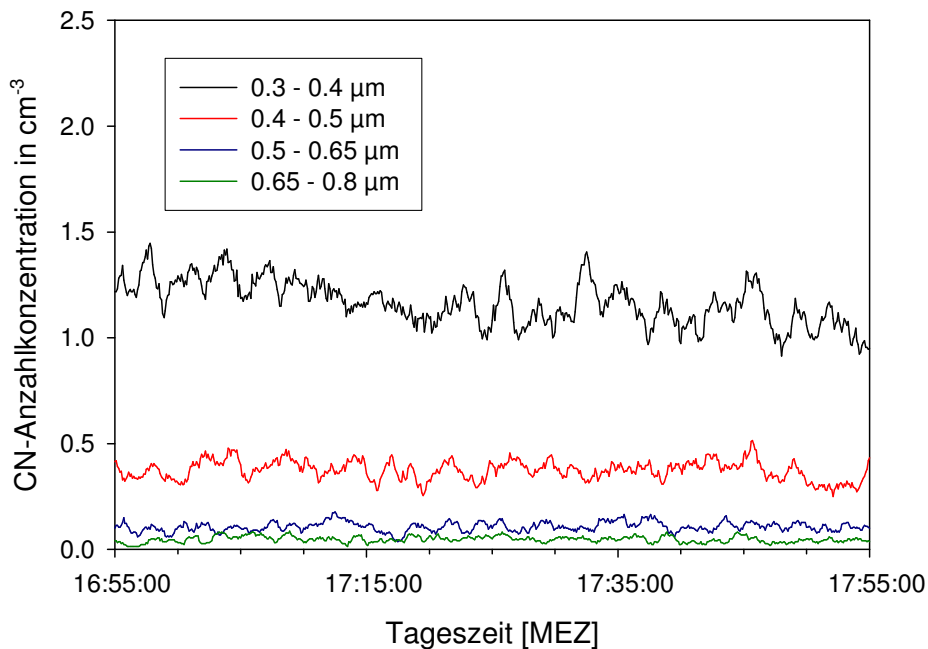
In diesem Abschnitt werden zwei unterschiedliche Messungen mit FINCH am 5.3.07 und 6.3.07 am Totalen Einlass gezeigt, bei dem Residuen von Eiskristallen und Tropfen, sowie das interstitielle Aerosol  $< 10 \mu\text{m}$  gesammelt wird.

Die Abbildung 5.13 zeigt die Messung von FINCH am 5.3.07 von 16:55 - 17:55 Uhr mit einem Sammelfluss von 5 l/min. Die Lufttemperatur betrug  $-10.3 \text{ }^\circ\text{C}$  und die relative Feuchte 35 %. Man sieht, dass im Verlauf der einstündigen Messung die Übersättigung in Bezug auf Eis (blaue Linie) nahezu konstant ist, die Temperatur (rote Linie) hingegen von etwa  $-17.3 \text{ }^\circ\text{C}$  auf  $-18.3 \text{ }^\circ\text{C}$  abnimmt. Ab einer Temperatur von etwa  $-18 \text{ }^\circ\text{C}$  erkennt man einen Anstieg der gemessenen IN-Anzahlkonzentration von  $0 \text{ l}^{-1}$  auf bis zu  $4 \text{ l}^{-1}$ . Die gemessene CN-Anzahlkonzentration in verschiedenen Größenbereichen von  $0.3$  und  $0.8 \mu\text{m}$  (Abbildung 5.14) bleibt jedoch nahezu konstant. Dies zeigt, dass IN sich bei niedrigeren Temperaturen besser aktivieren lassen. Dies entspricht den Erfahrungen von Messungen anderer Eiskeimzähler aus der Vergangenheit [Flechter, (1962)].



**Abbildung 5.13:** Messung der IN-Anzahlkonzentration in  $\text{l}^{-1}$  mit FINCH am 5.3.07 bei fast konstantem Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (blaue Linie) und abnehmender Temperatur (rote Linie) im Verlauf der einstündigen Messung.





**Abbildung 5.14:** Messung der CN-Anzahlkonzentration in  $\text{cm}^{-3}$  mit einem Grimm OPC für verschiedene Größenbereiche (schwarz:  $0.3 - 0.4 \mu\text{m}$ ; rot:  $0.4 - 0.5 \mu\text{m}$ ; blau:  $0.5 - 0.65 \mu\text{m}$  und grün:  $0.65 - 0.8 \mu\text{m}$ ) am 5.3.07 zwischen 16:55 und 17:55 Uhr.

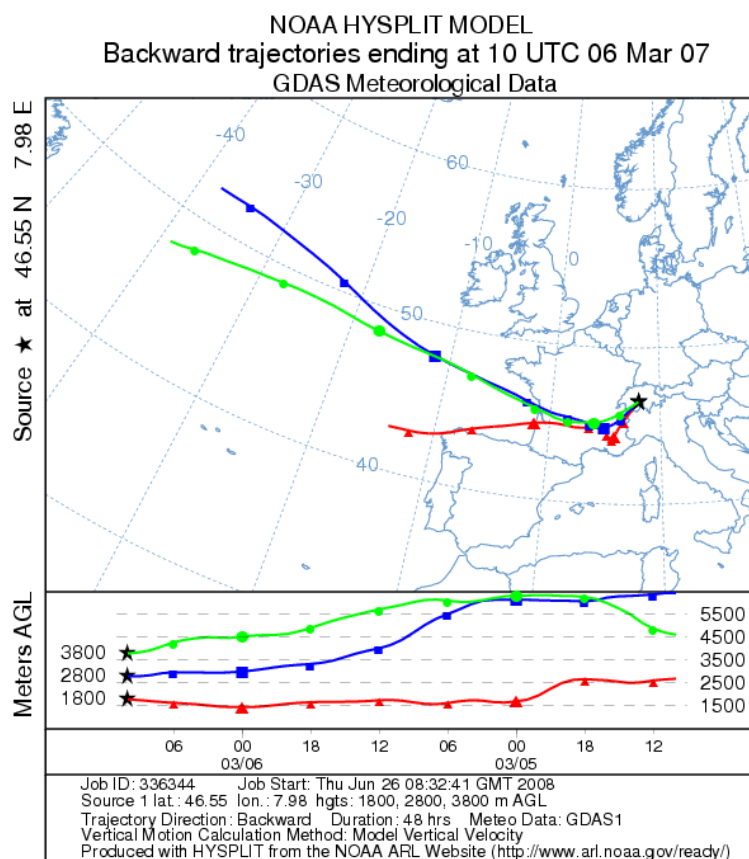
Die zweite Messung fand am 6.3.07 von 10:00 bis 11:20 Uhr statt. Die Lufttemperatur lag um  $-11 \text{ }^\circ\text{C}$ . Während dieses Zeitraums hat eine Wolke die über den südlich der Sphinx liegenden Aletschgletscher aufgestiegen ist, die Messstation erreicht. Auf dem Bild (Abbildung 5.15) ist die Station kurz vor Erreichen der Wolke zu sehen. Das Bild wurde mit einer Webcam von der gegenüberliegenden Swisscom-Station aufgezeichnet, die an diesem Tag dort installiert wurde.

Die Rückwärtstrajektorien (Abbildung 5.16) zeigen sehr schön die Anströmung aus südlicher Richtung.

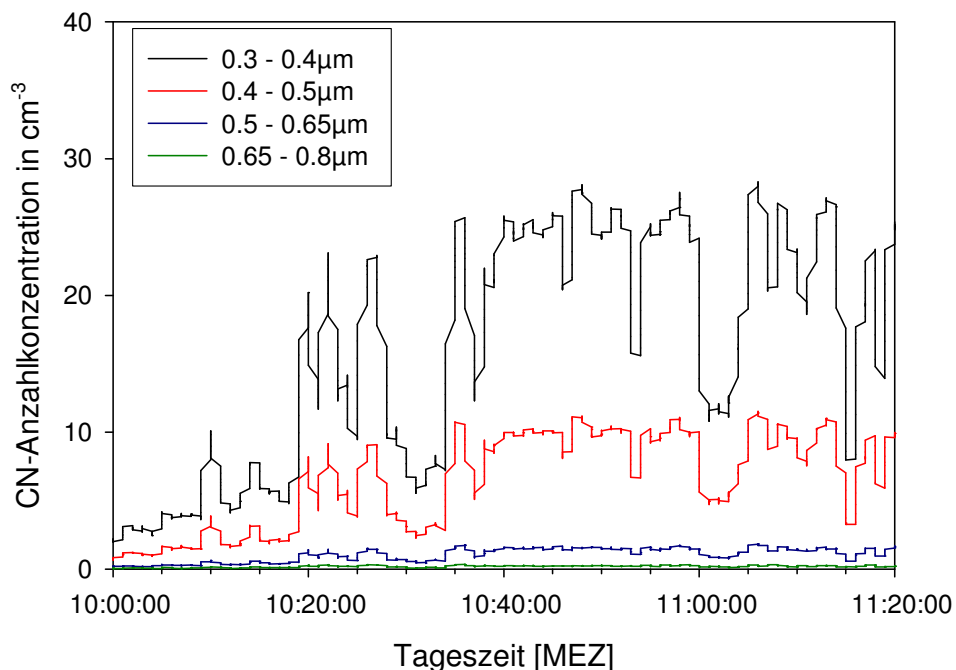
Wiederum wurde die CN-Anzahlkonzentration in verschiedenen Größenbereichen von  $0.3 \mu\text{m}$  und  $0.8 \mu\text{m}$  gemessen (Abbildung 5.17). Anders als bei der Messung zuvor steigt die Anzahlkonzentration in den verschiedenen Größenbereichen beim Erreichen der Grenzschicht stark an und bleibt bis auf sehr kurze Ausnahmen auf hohem Niveau. Dies ist auch noch der Fall, als die Wolke die Messstation erreicht.



**Abbildung 5.15:** Bild der Sphinx kurz vor Erreichen einer aufsteigenden Wolke aus südlicher Richtung über den Aletschgletscher am 6.3.07 um 10:45 Uhr, mit einer auf der gegenüberliegenden Swisscom-Station installierten Webcam.



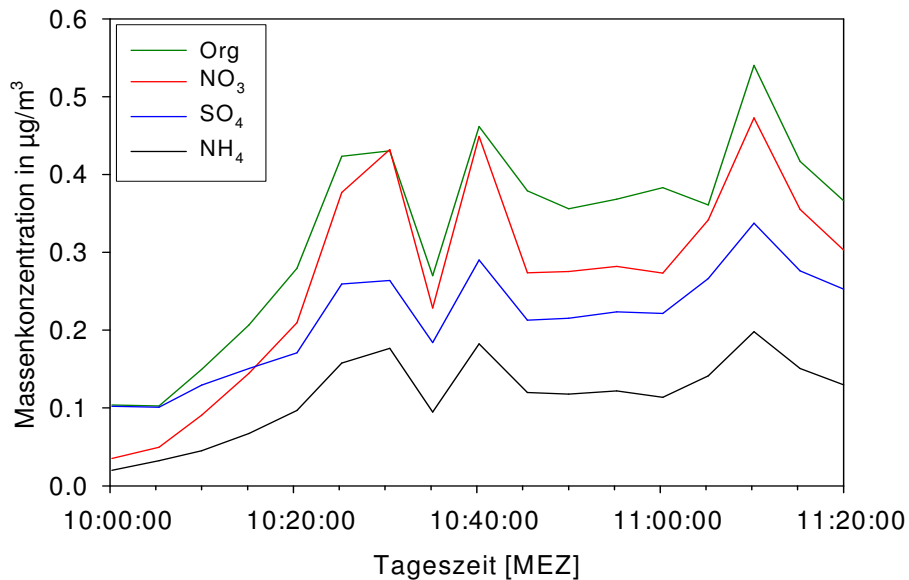
**Abbildung 5.16:** Rückwärtstrajektorien für das Jungfrauoch am 6.3.07 um 11Uhr (10Uhr UTC)basierend auf dem NOAA Hysplit Model.



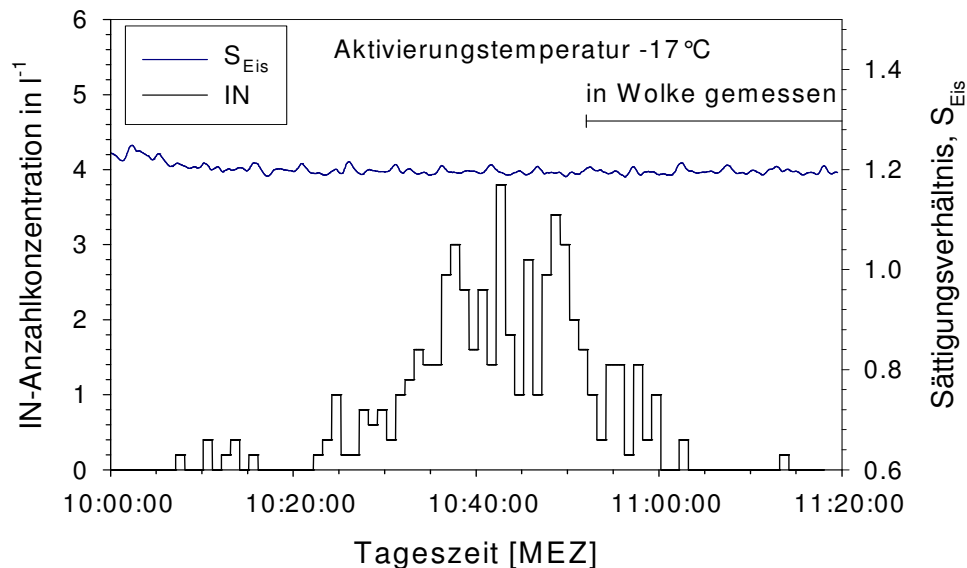
**Abbildung 5.17:** Messung der CN-Anzahlkonzentration in  $\text{cm}^{-3}$  mit einem Grimm OPC für verschiedene Größenbereiche (schwarz: 0.3 - 0.4  $\mu\text{m}$ ; rot: 0.4 - 0.5  $\mu\text{m}$ ; blau: 0.5 - 0.65  $\mu\text{m}$  und grün: 0.65 - 0.8  $\mu\text{m}$ ) am 6.3.07 zwischen 10:00 und 11:20 Uhr.

Auch die Messung mit einem ToF-AMS (Time of Flight Aerosol Mass Spectrometer) in Abbildung 5.18 zeigt für diesen Zeitraum eine deutliche Änderung in der chemischen Zusammensetzung des Aerosols, sowie einen Anstieg der Aerosolmasse. Zwar handelt es sich hier um eine Messung am Interstitiellen Einlass, jedoch wird auch hier der Luftmassenwechsel sehr gut deutlich.

Der Zeitraum, in dem die Station von Wolken umgeben ist, ist in Abbildung 5.19, dem Messergebnis von FINCH, mit einem schwarzen Balken markiert. Die IN-Anzahlkonzentration steigt zwar mit dem Erreichen der Grenzschicht ebenfalls von 0 bis zu 4  $\text{l}^{-1}$  an, fällt jedoch nach Erreichen der Wolke wieder auf 0  $\text{l}^{-1}$ , trotz nahezu gleichem Aerosolregime. Grund hierfür ist, dass die IN in der entstandenen Wolke aktiviert wurden, zu Eiskristallen  $> 10 \mu\text{m}$  angewachsen sind und somit nicht mehr vom Totalen Einlass gesammelt werden konnten. Mit FINCH wurde bei  $-17^\circ\text{C}$  und einem Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis von 1.35 gemessen, der Sammelfluss betrug erneut 5  $\text{l}/\text{min}$ .



**Abbildung 5.18:** Messung der Aerosolmassenkonzentration ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) für unterschiedlich chemische Substanzen als Funktion der Zeit (grün: Organika; rot:  $\text{NO}_3$  (Nitrat); blau:  $\text{SO}_4$  (Sulfat) und schwarz:  $\text{NH}_4$  (Ammonium) am 6.3.07 zwischen 10:00 und 11:20 Uhr am Interstitiellen Einlass [Schneider, (2007)]<sup>9</sup>

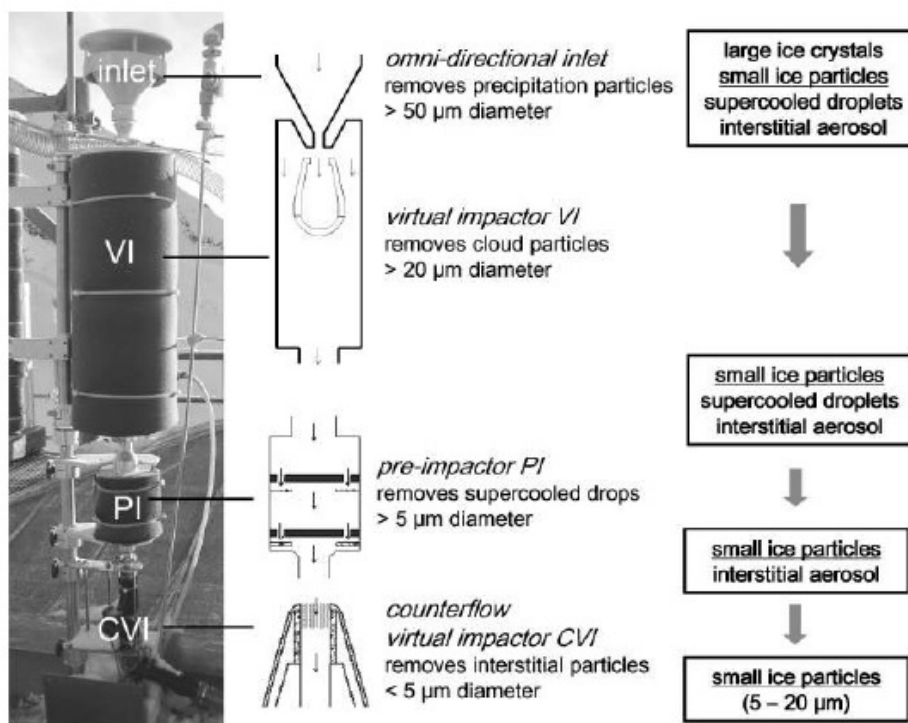


**Abbildung 5.19:** Messung der IN-Anzahlkonzentration in  $\text{l}^{-1}$  mit FINCH am 6.3.07 bei fast konstantem Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (blaue Linie) und einer konstanten Temperatur von  $-17\text{ °C}$  bei sich ändernden Bedingungen als Funktion der Zeit. Mit einem schwarzen Balken ist der Zeitraum markiert, in dem die Messstation von Wolken umgeben war.

<sup>9</sup> persönliche Datenweitergabe

### 5.2.2. Messungen am Eis-CVI Einlass

Am 8.3.07 war es möglich, für etwa 40 Minuten hinter dem Eis-CVI während eines Wolkenereignisses zu messen. Grund für die geringe Messzeit, ist der relativ hohe Fluss von FINCH, da der Gesamtfluss des Eis-CVI begrenzt ist und somit keine weiteren Geräte parallel messen konnten. In Abbildung 5.20 ist der Eis-CVI Aufbau, sowie das Flussschema gezeigt. Im obersten Bereich wird die Luft durch einen in omni-direktionalen Einlass eingesaugt. Niederschlagspartikel  $> 50 \mu\text{m}$  können auf Grund ihrer Trägheit den Einlass nicht passieren, so dass nur große Eiskristalle, kleine Eispartikel, unterkühlte Tropfen und interstitielles Aerosol zu einem nachgeschalteten virtuellen Impaktor gelangen können. In diesem werden Wolkenpartikel  $> 20 \mu\text{m}$  ebenfalls durch den Trägheitseffekt entfernt. Diesem schließt sich ein Vor-Impaktor an. Hier prallen Wassertropfen  $> 5 \mu\text{m}$  auf eine unterkühlte Platte und sollen festfrieren. Eiskristalle dieser Größe und interstitielles Aerosol prallen von der Platte ab und erreichen den eigentlichen CVI (Counterflow Virtual Impactor). In diesem wird das interstitielle Aerosol über ein Gegenstromverfahren entfernt, so dass nur noch Eiskristalle mit einem Durchmesser  $D_{\text{Eis}} 5 \mu\text{m} < D_{\text{Eis}} < 20 \mu\text{m}$  in einen partikelfreien, trockenen Trägerfluss gelangen. In diesem verdampfen die Eiskristalle und die Residuen der Eiskristalle können anschließend mit dem gewünschten Gerät analysiert werden. Je nach Flussraten kommt es durch den Virtuellen Impaktor zu einer Anreicherung der Residuen vom Faktor 5-10.

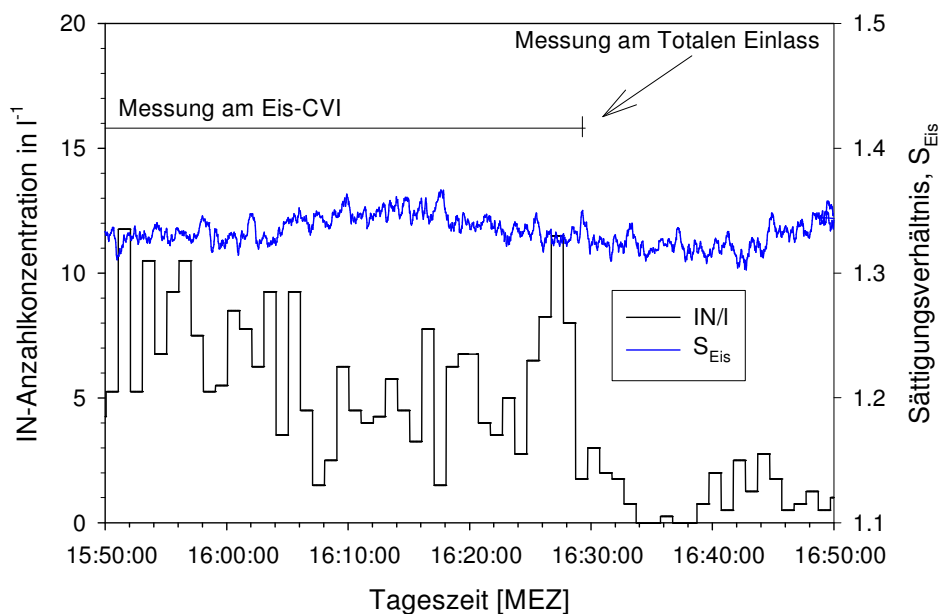


**Abbildung 5.20:** Aufbau des Eis-CVI-Einlasses auf der Dachplattform der hochalpinen Forschungsstation Jungraujoch, sowie einer Zeichnung und Erklärung der einzelnen Komponenten zur Sammlung kleiner Eiskristalle [Mertes et al., (2007)].

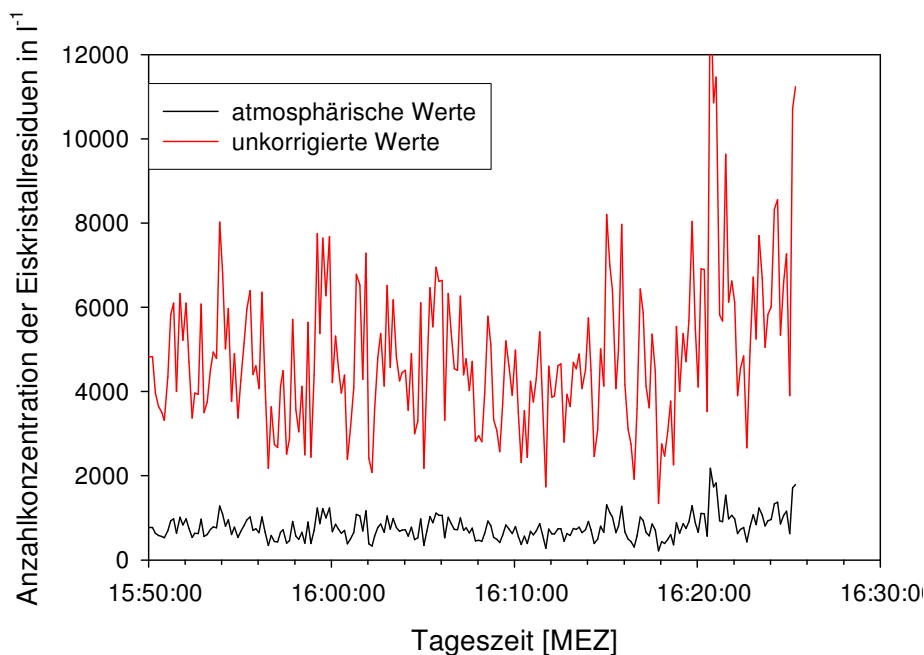
Dieser Anreicherungsfaktor lag bei der mit FINCH gemachten Messung am 8.3.07 bei 5.5.

In Abbildung 5.21 ist der Verlauf der IN-Anzahlkonzentration  $N_{IN}$  zu sehen. Von 15:50-16:25 Uhr wurde am Eis-CVI gemessen. Anschließend wurde die Messung wieder auf den Totalen Einlass umgeschaltet. Die Lufttemperatur lag bei  $-12\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Man erkennt, dass bei Sättigungsverhältnissen mit Bezug auf Eis um 1.35 am Eis-CVI  $N_{IN}$  zwischen  $1.5$  und  $12\text{ l}^{-1}$  liegt. Die Mischtemperatur lag bei etwa  $-17.5\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Nach dem Umschalten auf den Totalen Einlass geht  $N_{IN}$  auf  $0 - 2.5\text{ l}^{-1}$  zurück. Berücksichtigt man den Anreicherungsfaktor von 5.5 am Eis-CVI, so zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung der IN-Anzahlkonzentration an beiden Einlässen.

Parallel zu den FINCH Messungen wurde mit einem CPC die Anzahlkonzentration der Residuen der  $5 - 20\text{ }\mu\text{m}$  großen Eiskristalle bestimmt. Die Anzahlkonzentration ist in Abbildung 5.22 über die Zeit zum einen ohne den Anreicherungsfaktor (schwarze Linie, korrigierte atmosphärische Werte), zum anderen mit Anreicherungsfaktor (rote Linie) dargestellt. Die Messung endete um 16:25 Uhr. Zu diesem Zeitpunkt wurde der Einlass von FINCH auf den Totalen Einlass umgeschaltet.



**Abbildung 5.21:** Messung der IN-Anzahlkonzentration in  $\text{l}^{-1}$  mit FINCH am 8.3.07 bei fast konstantem Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (blaue Linie) und einer konstanten Temperatur von  $-17.5\text{ }^{\circ}\text{C}$  am Eis-CVI. Um 16:25 Uhr wurde wieder auf den Totalen Einlass umgeschaltet.



**Abbildung 5.22:** Messung der Anzahlkonzentration der Eiskristallresiduen in  $l^{-1}$  mit einem CPC. In rot sind die unkorrigierte Werte der Anzahlkonzentration und in schwarz, die um den Anreicherungsfaktor korrigierten Daten (atmosphärische Werte) gezeigt [Mertes, IfT Leipzig, (2007)]<sup>10</sup>.

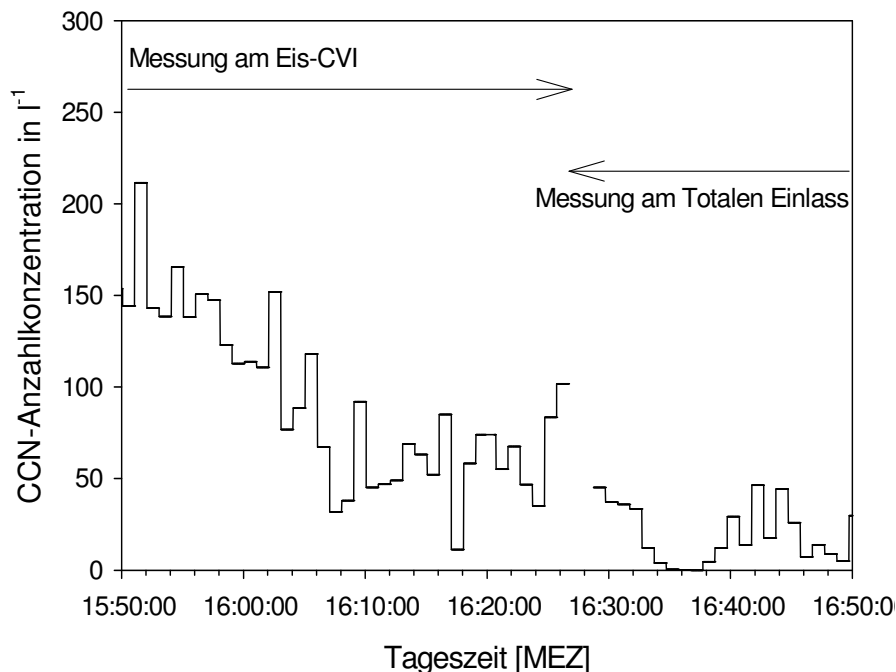
Vergleicht man die Anzahlkonzentrationen bis 16:25 Uhr des CPC (rote Linie) und  $N_{IN}$  von FINCH (Abbildung 5.17), so sieht man, dass diese sich bis zu einem Faktor 1000 unterscheiden. Die gemessenen Anzahlkonzentrationen der Eiskristallresiduen liegen somit wesentlich über den gemessenen IN-Anzahlkonzentrationen.

Dies lässt vermuten, dass durch den CPC Eisresiduen gemessen werden, die nicht im Depositionsmode entstanden sind, sondern zunächst als CCN fungiert haben und dann zum Eiskristall gefroren sind oder durch scavenging und sekundäre Eisbildung entstanden sind.

Auch die von FINCH gemessenen CCN-Anzahlkonzentration mit Werten um 50 - 150  $l^{-1}$  (Abbildung 5.23) können nur einen sehr geringen Teil der sehr hohen Anzahlkonzentration der Residuen von Eiskristallen am Eis-CVI erklären.

Bei der CCN Messungen von FINCH besteht jedoch die Möglichkeit, dass beim Vorhandensein von Tropfen und Eiskristallen zwar alle IN zu detektierbaren Eiskristallen anwachsen (Bergeron-Findeisen-Prozess), bei den Tropfen jedoch ein Großteil unter dem Limit des optischen Sensors liegt, und nicht als CCN gezählt wird.

<sup>10</sup> persönliche Datenweitergabe



**Abbildung 5.23:** Messung der CCN-Anzahlkonzentration in  $l^{-1}$  mit FINCH am 8.3.07. Um 16:25Uhr wurde wieder auf den Totalen Einlass umgeschaltet.

Weitere Probleme liegen bei der Bestimmung der Residuenkonzentration mit dem CPC, da die Nachweisgrenze des CPC bei einem Durchmesser von 7 nm liegt. Zwar ist der Eis-CVI so aufgebaut, dass lediglich Residuen von Eiskristallen von 5  $\mu\text{m}$  - 20  $\mu\text{m}$  in die eigentlichen Messgeräte gelangen sollten, jedoch kann es z.B. bei der Abscheidung der Tropfen auf einer kalten Impaktorplatte zur Splitterbildung kommen und diese so als Eiskristalle durch den Einlass gelangen. Wurde von einem dieser dann ein Aerosolpartikel aufgenommen, so wird dieses fälschlicherweise als Residuum eines Eiskristalls gezählt.

Des Weiteren können mit FINCH, wie bereits erwähnt, nur IN im Depositionsmodes gemessen werden. In der Wolke werden jedoch ebenfalls Eiskristalle aus den anderen Modi bzw. durch sekundäre Eisbildung gebildet, so dass mit dem Eis-CVI Residuen gemessen werden, die mit FINCH nicht nachweisbar sind.

Diese Messungen zeigen, dass hier noch ein großer Bedarf an Vergleichsmessungen notwendig ist und auf eine exakte Unterscheidung von Eiskristall-, Residuen- und IN-Anzahlkonzentrationen geachtet werden muss.

Die Messungen haben jedoch ebenfalls gezeigt, dass es mit FINCH möglich ist, bei atmosphärischen Bedingungen die IN bzw. CCN-Anzahlkonzentration zu messen, auch wenn die auf dem Jungfraujoch durchgeführten Messungen bei sehr geringen CN, CCN, bzw. IN-Anzahlkonzentrationen stattfanden.



### 5.3. The International Workshop on Comparing Ice Nucleation Measuring Systems (ICIS 2007)

Vom 10-28 September 2007 fand am Forschungszentrum Karlsruhe der internationale Vergleichsworkshop für Eisnukleationsmessinstrumente an der AIDA<sup>11</sup> (Aerosol-Interaktion und Dynamik in der Atmosphäre)-Kammer des Instituts für Meteorologie und Klimaforschung statt. An dieser nahmen neben FINCH sechs weitere Eiskeimzähler teil. Diese Eiskeimzähler arbeiten alle nach dem Prinzip der „Continuous Flow Diffusion Chamber“ CFDC. Für die statische Vakuumdiffusionskammer FRIDGE (Frankfurt Ice-nuclei Deposition Freezing Experiment) wurden Filtersammlungen durchgeführt. In der Tabelle 4 sind die einzelnen Geräte sowie die entsprechenden Institutionen aufgeführt.

Institution	Gerät
CSU Fort Collins, CO, U.S.A.	CSU CFDC-1H
ETH Zürich, Schweiz	ZINC
MRI Tsukuba, Japan	MRI CFDC
Uni Manchester, UK	UMAN CFDC
UK Met Office, UK	UKMET CFDC
Uni Toronto, Kanada	UT INC
Uni Frankfurt, Deutschland	Filtersammlung FRIDGE
Uni Frankfurt/Mainz, Deutschland	FINCH

**Tabelle 4:** Auflistung teilnehmender Institutionen mit dem jeweiligen Instrument an ICIS 2007.

Ziel des Vergleichsworkshops war es, vergleichbare Daten für die verschiedenen Eiskeimzähler zu erhalten. Hierzu wurden verschiedene Aerosole auf ihre Aktivierbarkeit als IN untersucht. In der Tabelle 5 sind die verschiedenen Aerosole und die Messzeiträume aufgelistet.

<sup>11</sup> Neben der AIDA existiert eine weitere Anlage zur Simulation von Wolken in Leipzig. LACIS - Leipzig Aerosol Cloud Interaction Simulator. Dabei handelt es sich um ein Rohr mit einer veränderbaren Länge von 0.5 m bis 10 m, so dass Verweilzeiten der durchströmenden Luft von bis zu 60 Sekunden erreicht werden können, um Wachstums-, Gefrier- oder Verdampfungsprozesse von Aerosolen und Tropfen zu studieren. Im Gegensatz zur Expansion in der AIDA wird hier die Übersättigung einer zunächst gesättigten Luft durch thermische Diffusion der gekühlten Wände erzeugt. Es kann bei Temperaturen bis  $-40$  °C gearbeitet werden [Stratmann, (2004)].

Aerosol	Messzeitraum
ATD Arizona Test Dust	17.09.-19.9.
GfG Soot	20.9.
Israel Dust	24.9.
Sahara Dust	25.9.
Canarian Island Dust	26.9.
SNOWMAX	27.9.
Pseudosnowmax	28.9.

**Tabelle 5:** Messzeiträume der verschiedenen Aerosoltypen bei ICIS 2007.

Wie schon erwähnt fand ICIS an der Wolkensimulationskammer AIDA statt. Diese ist eine weltweit einmalige Versuchsanlage zur Untersuchung der Bildungsprozesse und optischen Eigenschaften von Eis- und Mischwolken. In der bis zu  $-90\text{ °C}$  kühlbaren Kammer, die aus einem zylindrischen Aluminiumkammer mit  $84\text{ m}^3$  Rauminhalt besteht, lassen sich die bei der Entstehung natürlicher unterkühlten Wolken herrschenden Temperatur- und Druckverhältnisse realistisch nachbilden. Sättigungsverhältnisse in Bezug auf Eis bis zu 2 werden dynamisch erzeugt, indem der Druck in der vorgekühlten Kammer, ähnlich in einem rasch aufsteigenden Luftpaket in der freien Atmosphäre, durch starkes Pumpen kontinuierlich abgesenkt wird, wodurch sich das Kammervolumen adiabatisch abkühlt.

In einer zweiten kleineren Kammer (NAUA) von  $3.7\text{ m}^3$  wird zunächst Aerosol in einer hohen Anzahlkonzentration und gewünschten Größenverteilung erzeugt. Ein Teil des Aerosols wird anschließend in die AIDA geleitet.

Nach der Generierung des Aerosols in der NAUA-Kammer, war es möglich, an dieser kontinuierlich zu messen. Die Messperioden an der AIDA waren auf die Zeiten vor und nach dem Pumpen zur Simulation von Wolkenbildung beschränkt. Täglich wurden drei Pumpexperimente mit einer Füllung durchgeführt, so dass beim 2. bzw. 3. Pumpexperiment eine Reaktivierung des Aerosols untersucht wurde.

Mit FINCH wurde wie auch bei den Labormessungen die IN-Anzahlkonzentrationen der verschiedenen Aerosoltypen bei unterschiedlichen Übersättigungen und Temperaturen in der AIDA gemessen.

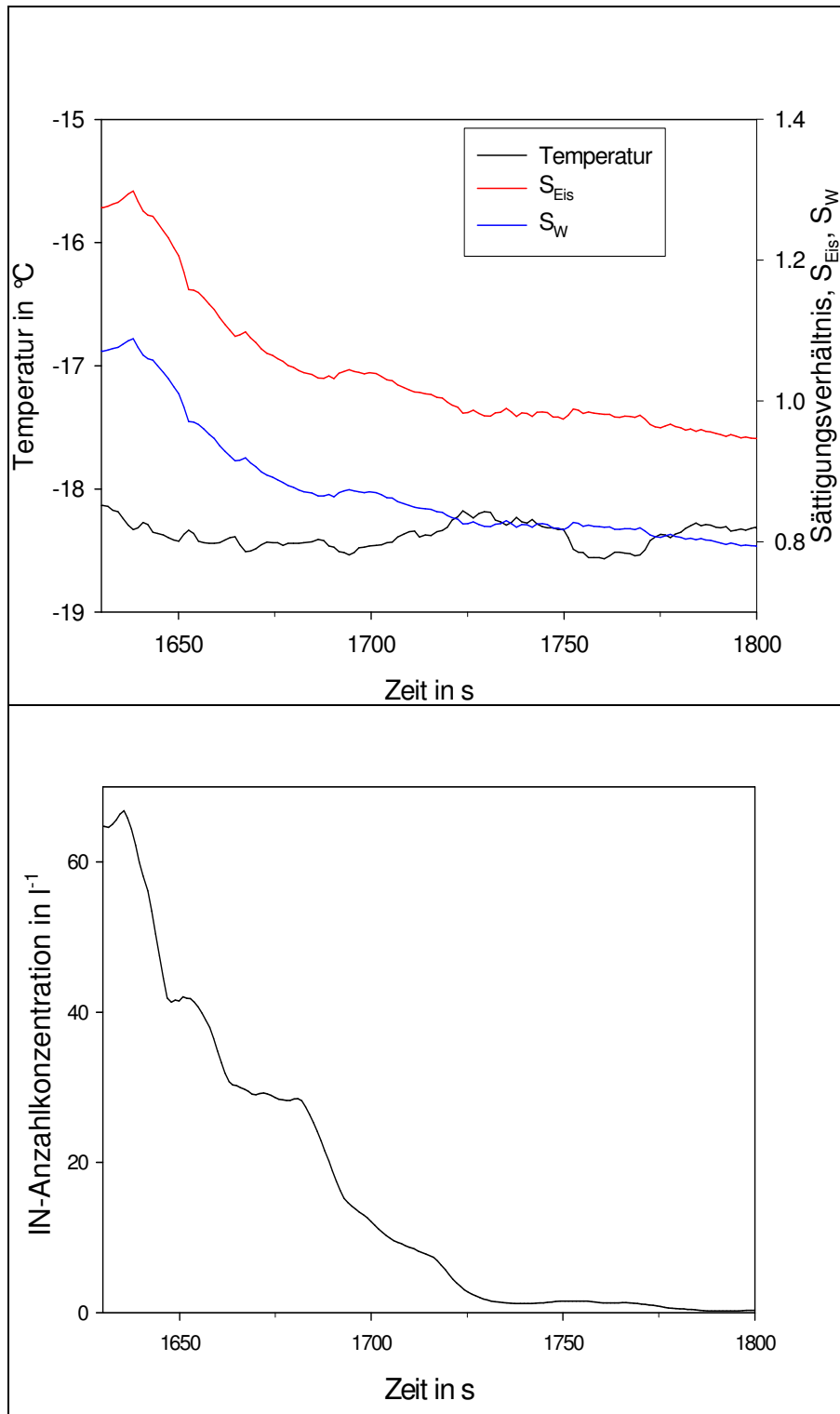
Die Abbildung 5.24 zeigt einen typischen Messverlauf bei dem, bei einer konstanten Temperatur, ein Sättigungsprofil gescannt wurde, sowie die dazugehörige IN-Anzahlkonzentration in  $\text{l}^{-1}$  für Arizona Test Dust Aerosol in der AIDA-Kammer. Man erkennt, dass mit abnehmendem  $S_{\text{Eis}}$  bzw.  $S_{\text{W}}$  die IN-Anzahlkonzentration abnimmt und unterhalb von Eissättigung die Werte nahe  $0\text{ l}^{-1}$  liegen.

Für die IN-Anzahlkonzentration lässt sich somit wiederum eine Aktivierungskurve als Funktion des Sättigungsverhältnisses und einer konstanten Temperatur erzeugen, wie in Abbildung 5.25 zu sehen.

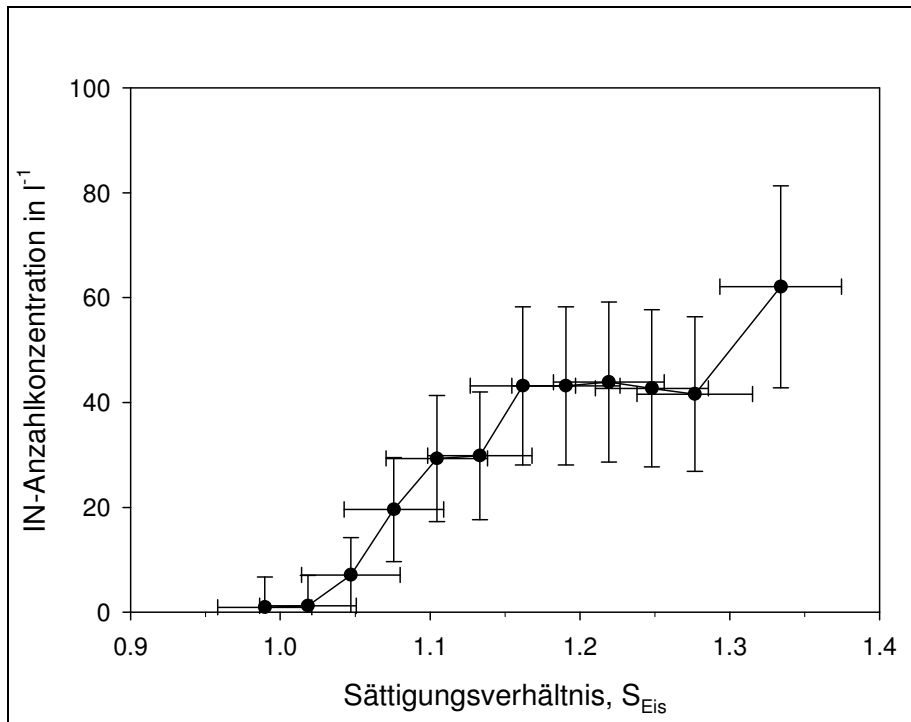
Im Folgenden werden die Messungen von Arizona Test Dust, GfG Ruß, Sahara Dust und Snowmax vorgestellt. Auf die Substanzen wird in den einzelnen Unterkapiteln näher eingegangen.

Messungen von Pseudosnowmax und Canarian Island Dust konnten auf Grund technischer Probleme der Feuchteregelung und Feuchtemessung leider nicht durchgeführt werden. Ebenso führten die Probleme dazu, dass bei den übrigen Aerosoltypen die Messzeit sich stark verringerte und nur Messungen in einem sehr eng begrenzten Temperaturbereich durchgeführt werden konnten.

Zur Zeit der Abgabe der Arbeit lagen noch keine Vergleichsdaten der anderen Eiskeimzähler vor, so dass die gemessenen Resultate der Aktivierungstemperaturen und -übersättigungen der unterschiedlichen Aerosole von FINCH mit Literaturwerten verglichen werden.



**Abbildung 5.24:** Temperatur in °C (schwarz), Sättigungsverhältnis  $S_W$  (blau) und  $S_{Eis}$  (rot), am oberen Rand der Wachstumskammer (oben) und IN-Anzahlkonzentrationen pro Liter (schwarz, gleitender Mittelwert über 10 Sekunden) im Verlauf einer Messung mit Arizona Test Dust Aerosol (ATD) mit einer Dauer von 180 Sekunden (unten).



**Abbildung 5.25:** *IN-Anzahlkonzentration in l<sup>-1</sup> als Funktion des Sättigungsverhältnis  $S_{Eis}$ , bei konstanter Temperatur ( $-18.5\text{ }^{\circ}\text{C}$ ) bei einer Messung mit Arizona Test Dust Aerosol (ATD) mit Angabe des Fehlerbalken für das Sättigungsverhältnis, sowie der IN-Anzahlkonzentration.*

### 5.3.1. Arizona Test Dust ATD

Wie in Tabelle 5 aufgeführt, wurden die NAUA- und AIDA-Kammer in den ersten drei Messtagen mit Arizona Test Dust (ATD) Aerosol befüllt.

Bei ATD handelt es sich um einen kommerziell verfügbaren Teststaub der Firma Powder Technologie Inc. (Minnesota, USA).

In Tabelle 6 ist die chemische Zusammensetzung von ATD gezeigt. Die Messung wurde bei einer früheren Messkampagne an der AIDA mit der Röntgen-Fluoreszenzanalyse durchgeführt.

Sample	Arizona Test Dust
Key	ATD
Elemental composition of the bulk samples (weight percentages from XRF analysis)	
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	13.8
CaO	4.3
FeO	4.0
K <sub>2</sub> O	3.8
MgO	2.9
Na <sub>2</sub> O	2.7
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.2
SiO <sub>2</sub>	57.4
TiO <sub>2</sub>	0.6
Mass loss	10.3

**Tabelle 6:** Chemische Zusammensetzung in % von ATD. Gemessen mit der Röntgen-Fluoreszenzanalyse [Möhler et al., (2006)].

Nach Herstellerangaben wird ATD erzeugt durch (1) Mahlen des gesammelten Sand aus Arizona in einer Edelstahlrohrmühle, (2) Trennung der feinen Größenfraktion der Partikel durch Aufschwemmen, (3) Trocknung des groben Material in einem Ofen, (4) erneutes Mahlen und Trennung der trockenen Sammlung in vier bestimmte Größenklassen und (5) Mischung der vier gemahlten Fraktionen, um eine gewünschte Größenverteilung zu erhalten.

Für die Messung wurde ATD mit einem nominalen Partikeldurchmessergrößenbereich von 0-3µm benutzt.

In Abbildung 5.26 ist die IN-Anzahlkonzentration einer Messung an der AIDA-Kammer vom 17.9. bei einer CN-Anzahlkonzentration von  $\sim 580 \text{ cm}^{-3}$  als Funktion von  $S_{\text{Eis}}$  (oben) und  $S_{\text{W}}$  (unten) für zwei unterschiedliche Temperaturen dargestellt. Man erkennt bei beiden Temperaturen, dass zunächst die  $N_{\text{IN}}$  bei Eissättigung um  $0 \text{ l}^{-1}$  liegen und mit ansteigender Übersättigung auf  $S_{\text{Eis}} = 1.12$  bis auf  $8 \text{ l}^{-1}$  ansteigt. Das entspricht einem Verhältnis von  $N_{\text{IN}}/N_{\text{CN}} \sim 1.4 \cdot 10^{-5}$ . Ebenfalls ist zu erkennen, dass bei einer Temperatur von  $-16.2 \text{ }^\circ\text{C}$  IN bereits bei geringeren Übersättigungen als bei  $-15.0 \text{ }^\circ\text{C}$  aktiviert werden.

Bei der in Abbildung 5.26 gezeigten Messung lag  $S_{\text{W}}$  im gesamten Zeitraum unter 1, so dass nur Übersättigung in Bezug auf Eis vorherrscht.

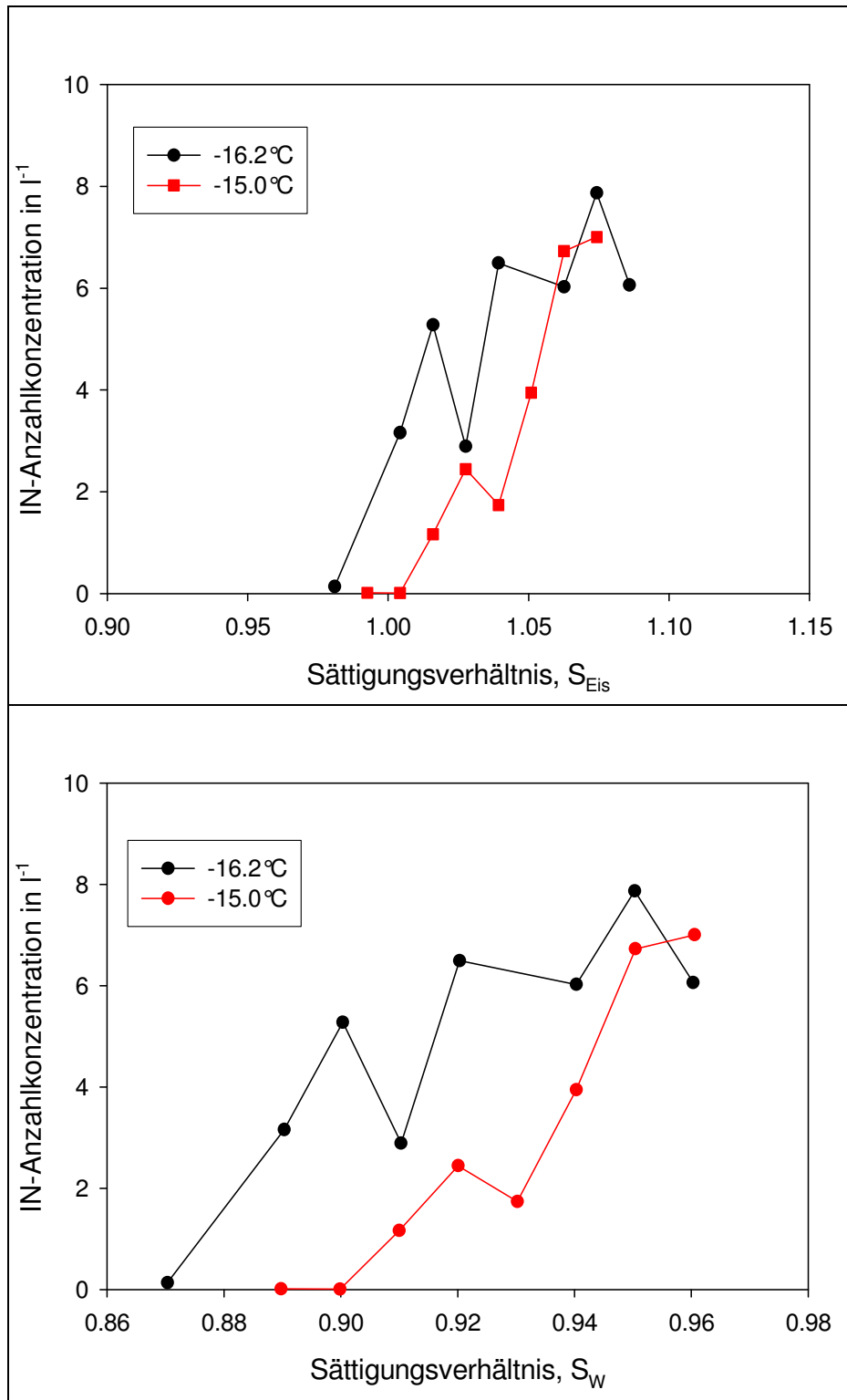
Bei der Messung vom 18.9. (Abbildung 5.27) an der AIDA bei  $N_{\text{CN}} = 280 \text{ cm}^{-3}$  hingegen wurde zusätzlich noch bei Wasserübersättigung gemessen. Man erkennt, wie bei den Messungen vom Vortag einen leichten Anstieg der IN-Anzahlkonzentration um  $S_{\text{Eis}} = 1$  auf etwa  $10 \text{ l}^{-1}$ . Im Bereich Wassersättigung erkennt man einen starken Anstieg bis auf  $80 \text{ l}^{-1}$ . Auch hier ist wiederum bei geringeren Temperaturen eine Aktivierung bei geringeren Übersättigungen zu sehen.

Auch bei einer weiteren Messung zu einem späteren Zeitpunkt an der AIDA bei  $N_{\text{CN}} = 200 \text{ cm}^{-3}$  am 18.9. (Abbildung 5.28) liegen die IN-Anzahlkonzentrationen wieder für  $S_{\text{Eis}} = 1.2 - 1.4$  zwischen  $40 \text{ l}^{-1}$  und  $80 \text{ l}^{-1}$  bei Temperaturen von  $-18 \text{ °C} - -19 \text{ °C}$ , wobei wiederum bei geringeren Temperaturen  $N_{\text{IN}}$  größer ist.

Lediglich bei zwei Messungen bei Temperaturen von  $-18 \text{ °C}$  und  $-18.4 \text{ °C}$  sind bei geringeren Übersättigungen höhere IN-Anzahlkonzentrationen zu erkennen. Dies ist das Resultat eines zu schnellen Scannens eines Übersättigungsbereiches. Auf Grund der sehr geringen Anzahl an Eiskeimen und teilweise Auftreten in Clustern kann dies zu Messfehlern führen, da eine zu geringe Zeit zur Mittelung der Werte zur Verfügung steht.

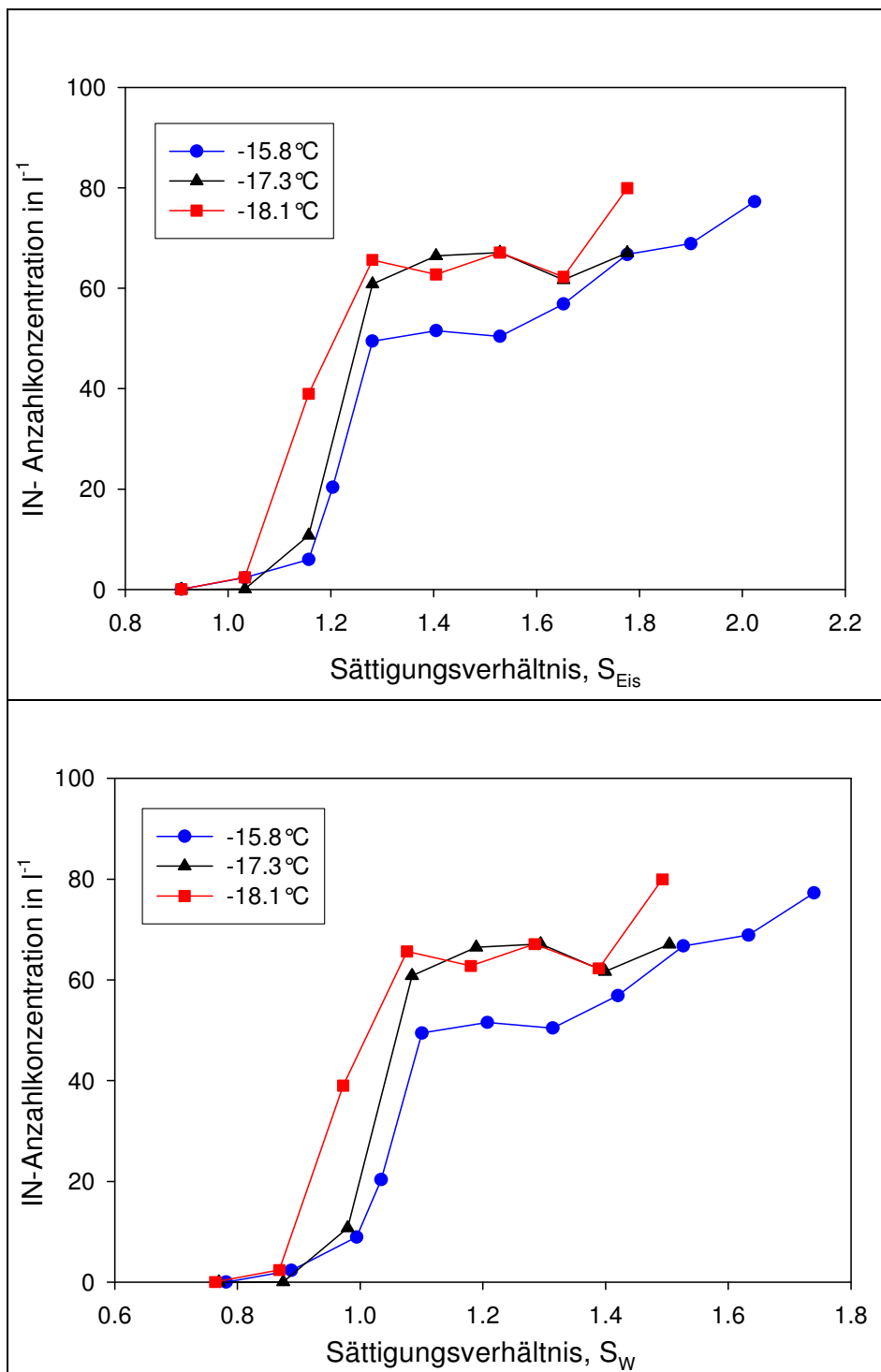
Die Messungen zeigen, dass Arizona Test Dust bereits bei Temperaturen um  $-15 \text{ °C}$  und geringen Eisübersättigungen als Eiskeim im Depositionsmode aktiv ist. Dies deckt sich mit Messergebnissen von Megahed (2006) bei Pumpexperimenten an der AIDA. Hier wurde eine Aktivierung von ATD als Eiskeim im Depositionsmode bei 5 % Eisübersättigung und  $-15 \text{ °C}$  beobachtet.

Bei geringeren Temperaturen und höheren Übersättigungen im Bereich um die Wassersättigung, steigt bei den FINCH-Messungen die Aktivierbarkeit stark an.

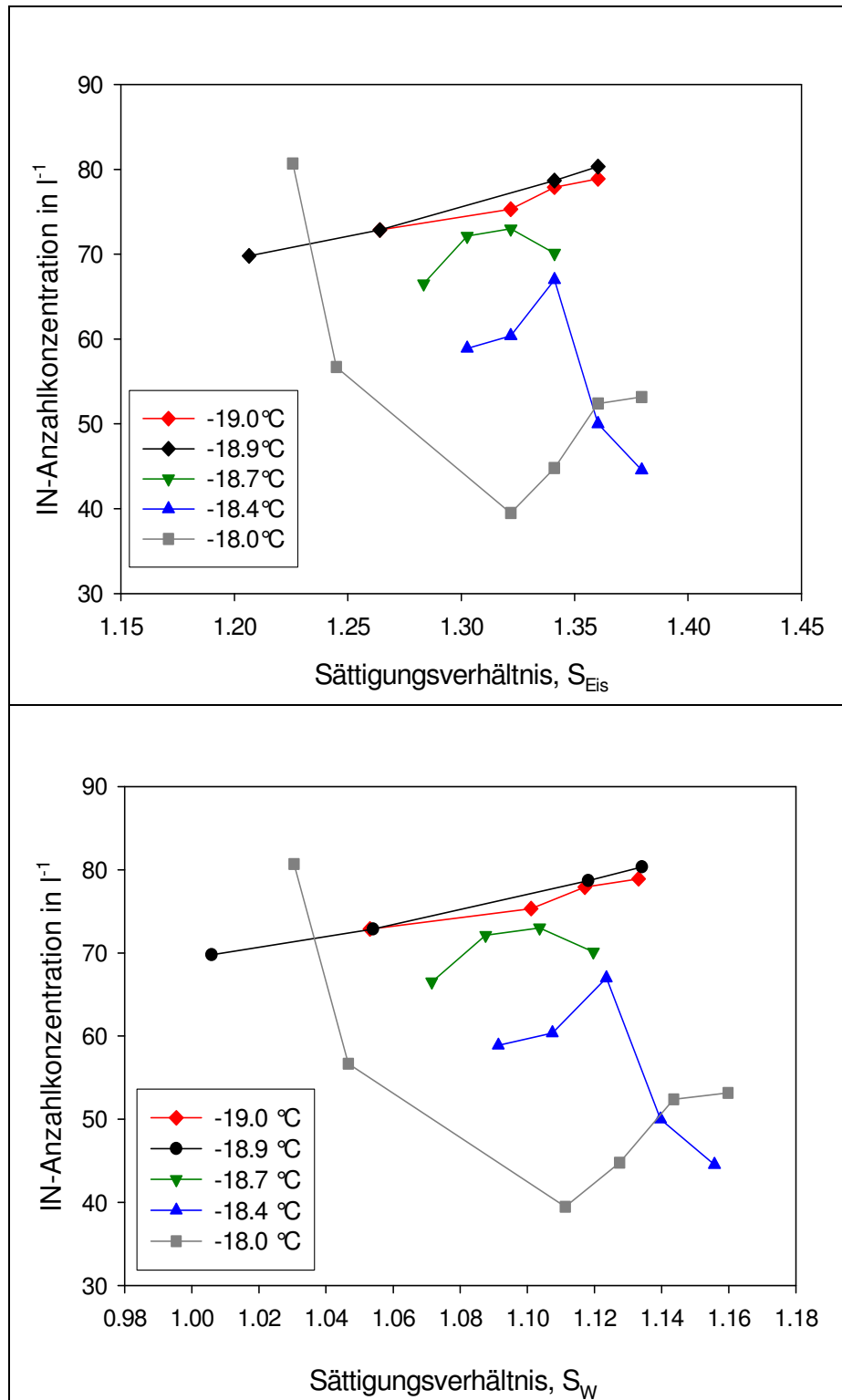


**Abbildung 5.26:** IN-Anzahlkonzentration in l<sup>-1</sup> für Arizona Test Dust ATD am 17.9 in der AIDA als Funktion des Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (oben) und IN-Anzahlkonzentration in l<sup>-1</sup> als Funktion des Sättigungsverhältnis in Bezug auf Wasser (unten) bei Temperaturen von jeweils -15.0 °C in rot und -16.2 °C in schwarz.





**Abbildung 5.27:** IN-Anzahlkonzentration in l<sup>-1</sup> für Arizona Test Dust ATD am 18.9. an der AIDA als Funktion des Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (oben) und IN-Anzahlkonzentration in l<sup>-1</sup> als Funktion des Sättigungsverhältnis in Bezug auf Wasser (unten) bei Temperaturen von jeweils -15.8 °C in blau, -17.3 °C in schwarz und -18.1 °C in rot.



**Abbildung 5.28:** Weitere Messungen der IN-Anzahlkonzentration in  $l^{-1}$  für Arizona Test Dust ATD am 18.9. in der AIDA als Funktion des Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (oben) und IN-Anzahlkonzentration in  $l^{-1}$  als Funktion des Sättigungsverhältnis in Bezug auf Wasser (unten) bei Temperaturen zwischen jeweils  $-18\text{ }^{\circ}\text{C}$  und  $-19\text{ }^{\circ}\text{C}$ .

### 5.3.2. GfG Ruß

Am 20.9. wurde in der NAUA- und AIDA-Kammer Ruß mit einem GfG-Generator der Firma Palas erzeugt. Der Aerosolgenerator generiert Partikelagglomerate aus reinem Graphit. Die primären Partikel haben einen Durchmesser von wenigen Nanometern. Der mittlere Durchmesser der Agglomerate liegt zwischen 20 nm und 150 nm abhängig von den Betriebsbedingungen. Aus diesem Grund ist das Aerosol sehr ähnlich zu natürlichen Rußaerosolpartikeln aus Verbrennungsprozessen (z.B. Dieselruß). Die Partikelanzahlkonzentration ist über einen weiten Bereich einstellbar [Palas, (2008)].

Die in der NAUA erzeugten CN-Anzahlkonzentrationen lagen zwischen  $35000 \text{ cm}^{-3}$  und  $40000 \text{ cm}^{-3}$ . Ruß gilt im Allgemeinen als sehr schlechter Eiskeim im Depositionsmodus über  $-25 \text{ °C}$  und unterhalb von Wassersättigung [Dymarska, (2006); Kanji und Abbatt, (2006)].

Aus diesem Grund wurde versucht mit FINCH bei der aktuell möglichen minimalen Temperatur von  $-23 \text{ °C}$  zu messen.

Durch ein Leck auf der Hochdruckseite von FINCH lag der minimal einzustellende Probenfluss bei 4.5 l/min. Auf Grund der extrem trockenen Probenluft aus der NAUA wurde eine Vorbefeuchtung der Probenluft nötig, da es sonst nicht möglich gewesen wäre Sättigung in Bezug auf Wasser bzw. Eis zu erreichen. Hierzu wurde die Luft durch einen Glaskolben geleitet, dessen Wände mit angefeuchtetem Filterpapier ausgelegt waren.

Die Messungen ergaben (Abbildung 5.29) bei Temperaturen von  $-22.5 \text{ °C}$  bzw.  $-22.8 \text{ °C}$  und unterhalb von Wassersättigung sehr geringe IN-Anzahlkonzentrationen von  $N_{\text{IN}} < 10 \text{ l}^{-1}$ . Dies entspricht einem Verhältnis von  $N_{\text{IN}}/N_{\text{CN}} \sim 2.8 \cdot 10^{-7}$ , was eine um einen Faktor 500 geringere Aktivierung der CN als IN im Vergleich zum ATD bedeutete. Bei Wasserübersättigung ist ein Anstieg auf bis zu  $N_{\text{IN}} = 20 \text{ l}^{-1}$  zu erkennen. Eine mögliche Erklärung ist, dass ab diesen Wasserübersättigungen eine Aktivierung im Depositionsmodus möglich ist oder es im Verlauf der Kammer zu Gefrieren von Tropfen kommt (Kondensationsgefrieren), die dann als Eiskristalle detektiert werden. Das Aktivierungsverhältnis liegt jedoch mit  $N_{\text{IN}}/N_{\text{CN}} \sim 5.5 \cdot 10^{-7}$  immer noch weit unter denen für ATD bei gleichen Übersättigungen.

Um zu unterscheiden, ob es sich bei den Eiskristallen um gefrorene Tropfen oder Eiskristalle aus dem Depositionsmodus handelt, wurde die prozentuale Häufigkeit der detektierten Eiskristalle als Funktion des unkalibrierten optischen Durchmessers (Wurzel der Streulichtintensität  $I$ ) für Ruß und ATD für eine Messung bei nahezu gleichen Übersättigungen oberhalb von Wassersättigung dargestellt (Abbildung 5.30). Da die Wurzel der Streulichtintensität  $I$  proportional zum Durchmesser  $d$  ist [Bohren und Huffmann, (1983)], entspricht Abbildung 5.30 einer Art Größenverteilung.

Man erkennt für Ruß ein Maximum bei etwa  $0.05 \text{ mV}^{1/2}$ , bei ATD ist ein Maximum bei  $0.06 \text{ mV}^{1/2}$  zu erkennen, jedoch zeigt sich eine wesentlich breitere Verteilung hin zu höheren Intensitätswerten.

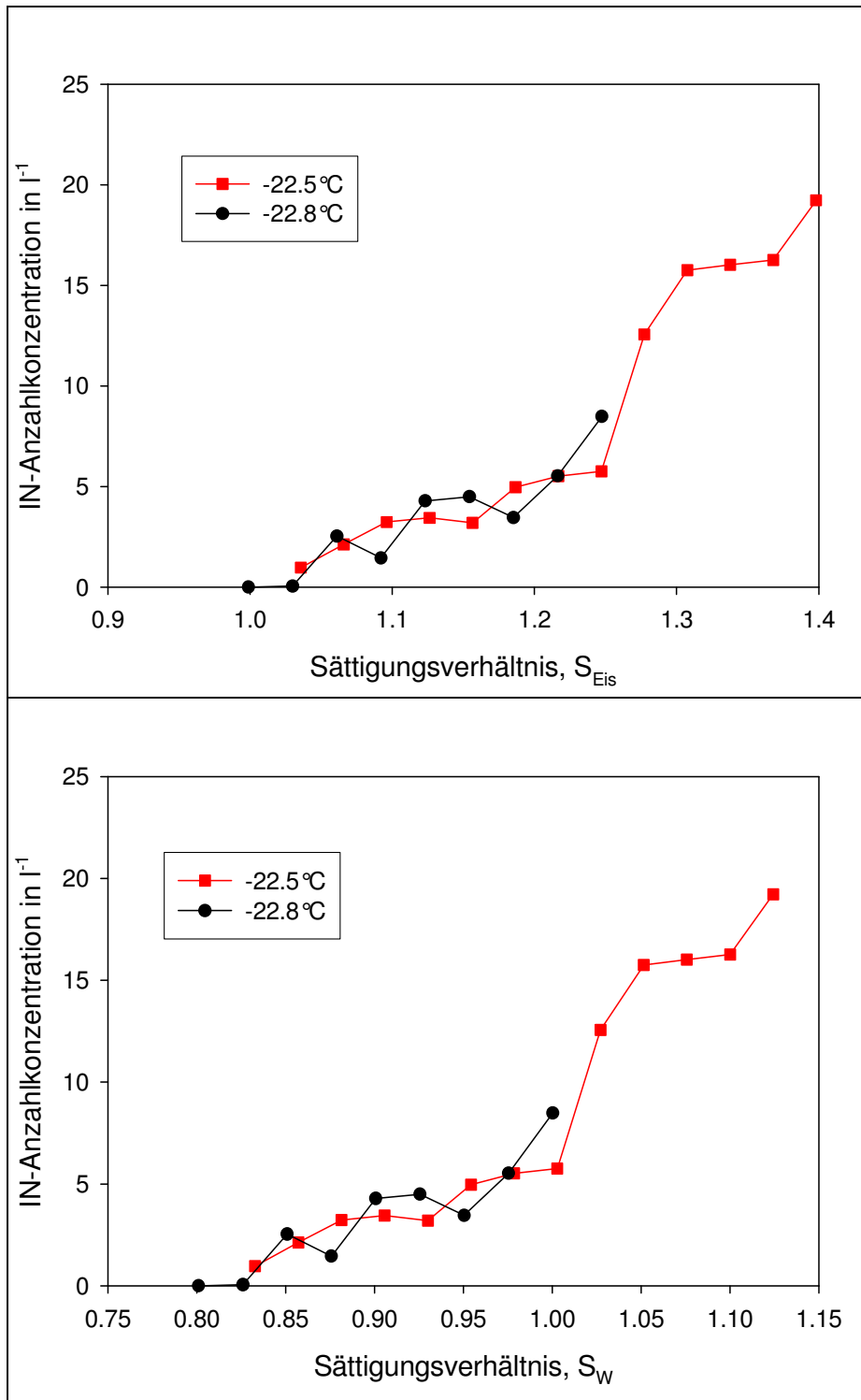
Für die These, dass es sich bei Ruß um Eiskristalle handelt, die sich über einen Tropfen gebildet haben sprechen zwei Argumente. Zum einen, dass sich bei Ruß ein schärfer

abgegrenzter Peak im Vergleich zum ATD ausbildet (Abbildung 5.30), was auf sphärische Eiskristalle hindeutet. Würde es sich um asphärische Eiskristalle (z.B. aus dem Depositionsmode) handeln, so würde die Orientierung wie sie den Laserstrahl im optischen Sensor durchqueren einen Einfluss auf die Intensität des Streulichtsignals haben. Dies würde zu einer breiteren Verteilung, wie es beim ATD der Fall ist, führen. Zum anderen sind die bei Ruß gemessenen Streusignalintensitäten kleiner, was auf einen kleiner Durchmesser der Eiskristalle schließen lässt. So deutet dies ebenfalls darauf hin, dass der Ruß zunächst als CCN aktiv war und Tropfen gebildet hat, diese jedoch wesentlich langsamer anwachsen als aktivierte IN, die im Depositionsmode anwachsen, da  $S_W$  bei gleicher Temperatur kleiner ist als  $S_{Eis}$ . Im weiteren Verlauf der Wachstumskammer kommt es dieser These folgend zum Gefrieren der Tropfen.

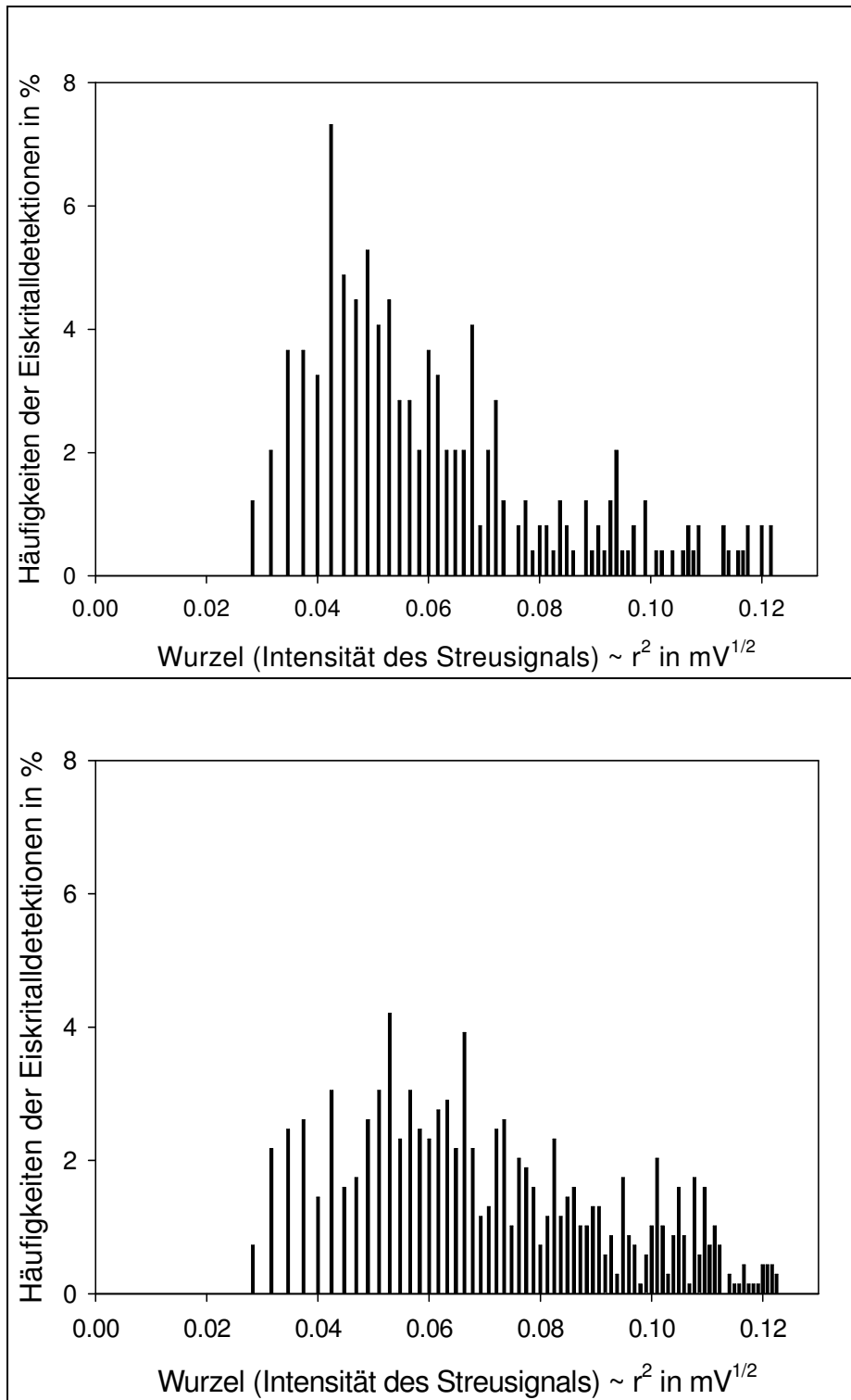
Ein Grund für das spätere Gefrieren kann hier jedoch nicht genannt werden. Kontaktgefrieren von Tropfen untereinander sollte unter der Annahme, dass alle Tropfen zu gleicher Größe anwachsen auf Grund des laminaren Flusses entlang der Wachstumskammer nach der eigentlichen Mischung auszuschließen sein.

Es besteht jedoch die Möglichkeit, dass gebildete Tropfen auf Grund ihrer höheren Sedimentationsgeschwindigkeit mit nicht aktiviertem Ruß kollidieren und es zum Kontaktgefrieren kommt.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass sich Ruß im Depositionsmode bei Temperaturen über  $-23\text{ °C}$  und unterhalb von Wassersättigung sehr schlecht als Eiskeim eignet. Somit belegen die Messungen die Beobachtungen von Dymarska et al. (2006) und Kanji und Abbatt (2006). Des Weiteren ist ein Anstieg der Eiskeimanzahlkonzentration oberhalb von Wassersättigung zu beobachten. Das Aktivierungsverhältnis  $N_{IN}/N_{CN}$  von Ruß liegt jedoch weit unterhalb von ATD.



**Abbildung 5.29:** IN-Anzahlkonzentration in l<sup>-1</sup> für GfG Ruß als Funktion des Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (oben) und IN-Anzahlkonzentration in l<sup>-1</sup> als Funktion des Sättigungsverhältnis in Bezug auf Wasser (unten) bei Temperaturen von jeweils -22.5 °C in rot und -22.8 °C in schwarz.



**Abbildung 5.30:** Häufigkeitsverteilung der Eiskristalle (%) als Funktion Wurzel der Intensität des Streusignals (mV) für Ruß (oben) und ATD (unten).

### 5.3.3. Sahara Dust

Am 25.9. wurden mit FINCH Messungen von Sahara Dust sowohl an der AIDA als auch an der NAUA durchgeführt.

Bei dem Sahara Dust handelt es sich um Staub aus der gleichen Region wie bei den Messungen von Möhler et al. (2006), dessen chemische Analyse in Tabelle 7 gezeigt ist. Hierbei sollte es sich um sehr ähnliche Stäube handeln. Zur Zeit der Abgabe der Arbeit lagen die chemischen Analysen zu dem bei ICIS 2007 verwendeten Staub noch nicht vor<sup>12</sup>.

Sample	Saharan Dust
Key	SD2
Elemental composition of the bulk samples (weight percentages from XRF analysis)	
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	8.5
CaO	22.9
FeO	4.7
K <sub>2</sub> O	1.2
MgO	3.9
Na <sub>2</sub> O	0.9
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.2
SiO <sub>2</sub>	26.8
TiO <sub>2</sub>	0.8
Mass loss	30.1

**Tabelle 7:** Chemische Zusammensetzung von Sahara Dust aus der gleichen Region, wie des bei ICIS verwendeten Staubs. Gemessen mit der Röntgen-Fluoreszenzanalyse [Möhler et al., (2006)].

Die CN-Anzahlkonzentration betrug an der AIDA  $\sim 290 \text{ cm}^{-3}$  und an der NAUA  $\sim 3500 \text{ cm}^{-3}$ .

Bei beiden Messungen in Abbildung 5.31 ist wiederum ein Anstieg der IN-Anzahlkonzentration bei steigender Übersättigung zu beobachten. Bei der Messung an der NAUA (Abbildung 5.31 unten) ist jedoch eine höhere IN-Anzahlkonzentration bei  $S_{\text{Eis}}$  von 1.0 - 1.04 im Vergleich zu den Anzahlkonzentrationen für gleiche Übersättigungen und annähernd gleiche Temperaturen an der AIDA zu erkennen. Grund hierfür ist die höhere CN-Anzahlkonzentration an der NAUA. Betrachtet man jedoch das Aktivierungsverhältnis von  $N_{\text{IN}}/N_{\text{CN}}$ , so erhält man bei  $S_{\text{Eis}} = 1.035$  an der AIDA  $N_{\text{IN}}/N_{\text{CN}} \sim 5.8 \cdot 10^{-6}$  bei einer Temperatur von  $-17.9 \text{ }^\circ\text{C}$  und an der NAUA  $N_{\text{IN}}/N_{\text{CN}} \sim 4.5 \cdot 10^{-6}$  bei  $-17.4 \text{ }^\circ\text{C}$ .

<sup>12</sup> persönlicher Kontakt mit O. Möhler vom Instituts für Meteorologie und Klimaforschung im FZ Karlsruhe

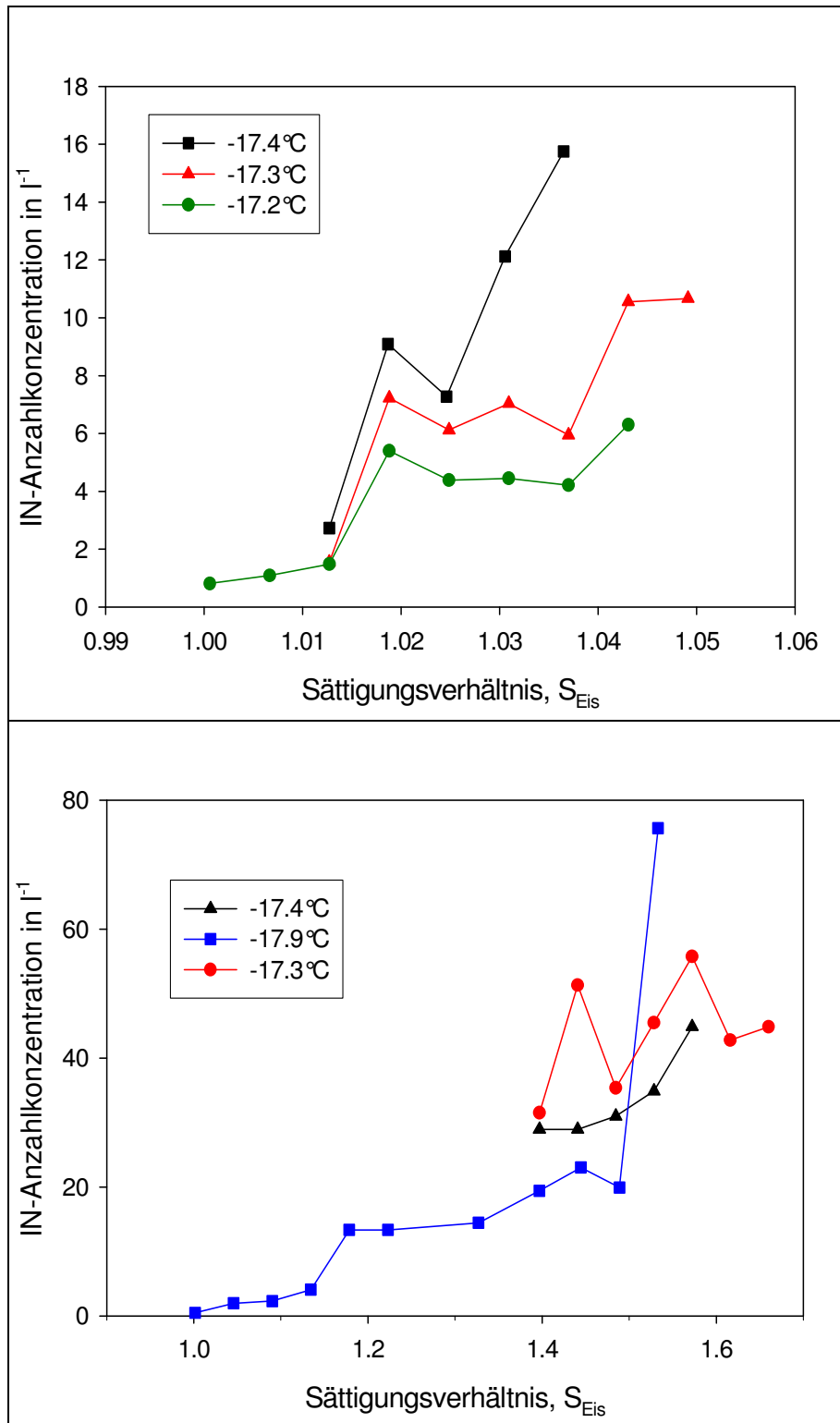
Die Messungen zeigen eine gute Übereinstimmung des Aktivierungsverhältnisses für das Aerosol aus AIDA und der NAUA, sowie den Beginn von Eiskeimaktivierung bereits bei Eisübersättigungen von 2 %.

Grund für den Vergleich zweier Messungen mit einem Temperaturunterschied von 0.5 °C ist, dass Messungen bei gleichem  $S_{\text{Eis}}$  und Temperatur nicht vorliegen.

Ergebnisse aus der Literatur von Kanji und Abbatt (2006) zeigen bei Temperaturen von -10.16 °C, -25.16 °C und -40.16 °C und 4 % - 7 % Eisübersättigung eine erste Eiskeimaktivierung von Sahara Dust und stimmen somit mit den FINCH - Messungen unter Berücksichtigung des Messfehlers sehr gut überein.

Messungen von Field et al. (2006) zeigen ebenfalls eine Aktivierung von Sahara Dust bei -19.7 °C und 3 % Eisübersättigung.





**Abbildung 5.31:** IN-Anzahlkonzentration in  $l^{-1}$  für Sahara Dust als Funktion des Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis in der NAUA (oben) und in der AIDA (unten) bei unterschiedlichen Temperaturen.

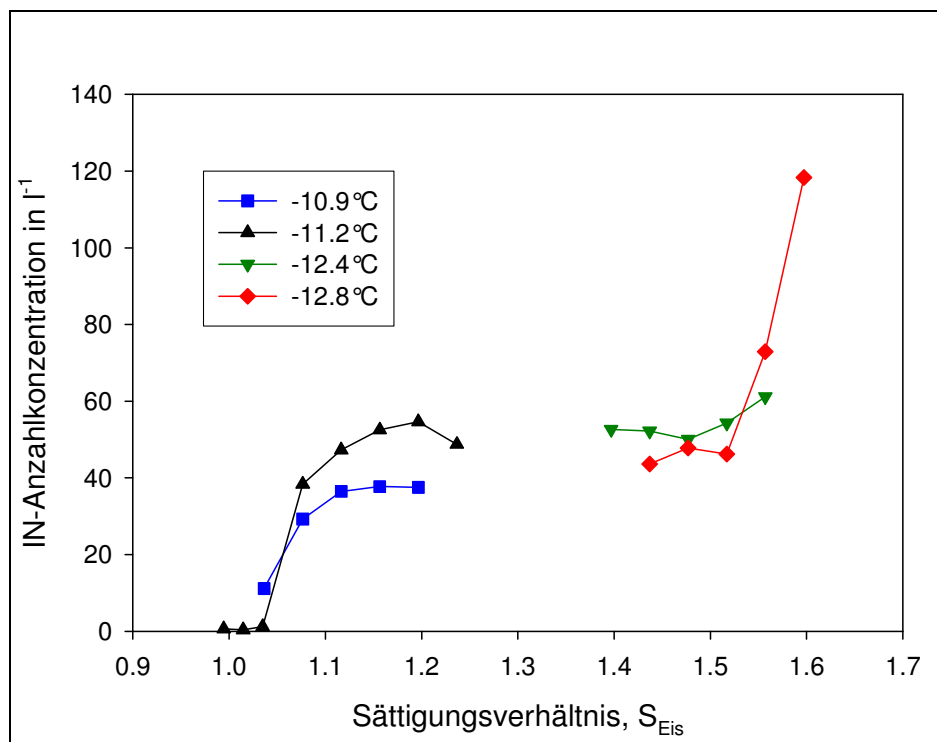
### 5.3.4. SNOWMAX

Bei SNOWMAX handelt es sich um industriell hergestellte abgetötete Bakterien (*Pseudomonas syringae*), die bei der künstlichen Beschneigung von Pisten mit Schneekanonen zum Einsatz kommen. Es handelt sich somit um ein Protein. Hierbei fungieren die Bakterien als Eiskeim und sorgen damit für ein Gefrieren der Wassertropfen bei höheren Temperaturen, die mit hohem Druck durch die Schneekanone fein vernebelt werden.

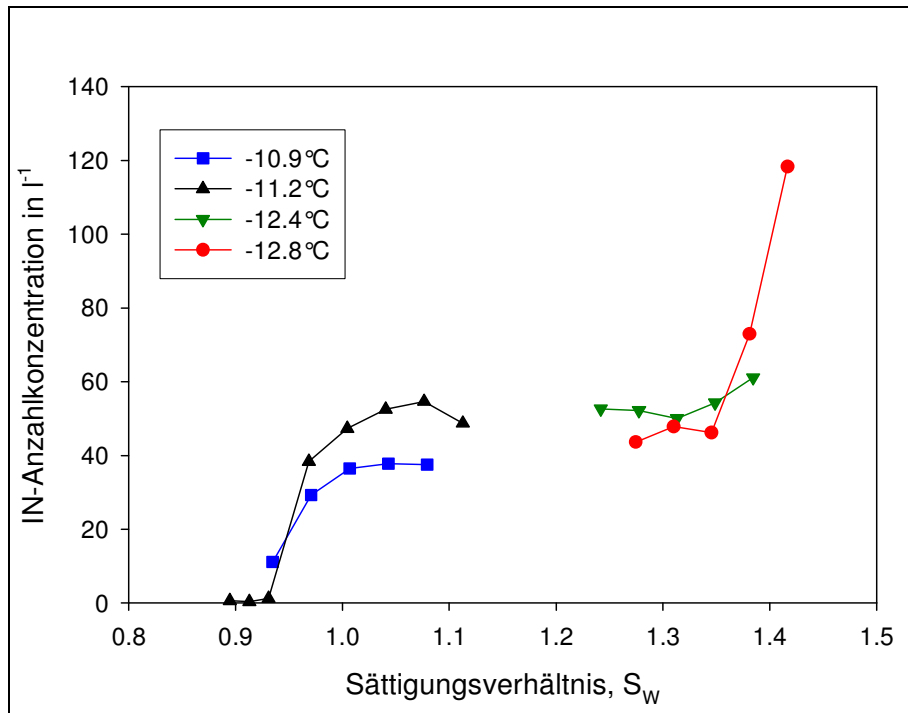
Abbildung 5.32 und Abbildung 5.33 zeigen die Messung mit FINCH an der NAUA bei CN-Anzahlkonzentrationen von  $1100 \text{ cm}^{-3}$ . Für die Temperaturen von  $-12.4 \text{ °C}$  und  $-12.8 \text{ °C}$  liegen keine Messergebnisse für  $S_{\text{Eis}} < 1.4$  vor.

Man erkennt im Vergleich zu den anderen Aerosolen bereits einen starken Anstieg der IN-Anzahlkonzentrationen bei höheren Temperaturen von  $-10.9 \text{ °C}$  und weit unterhalb von Wassersättigung.

SNOWMAX ist somit im Vergleich mit den anderen Aerosoltypen bereits bei höheren Temperaturen sehr gut als Eiskeim im Depositionsmode aktiv.



**Abbildung 5.32:** IN-Anzahlkonzentration in  $l^{-1}$  für SNOWMAX als Funktion des Sättigungsverhältnisses in Bezug auf Eis bei unterschiedlichen Temperaturen.

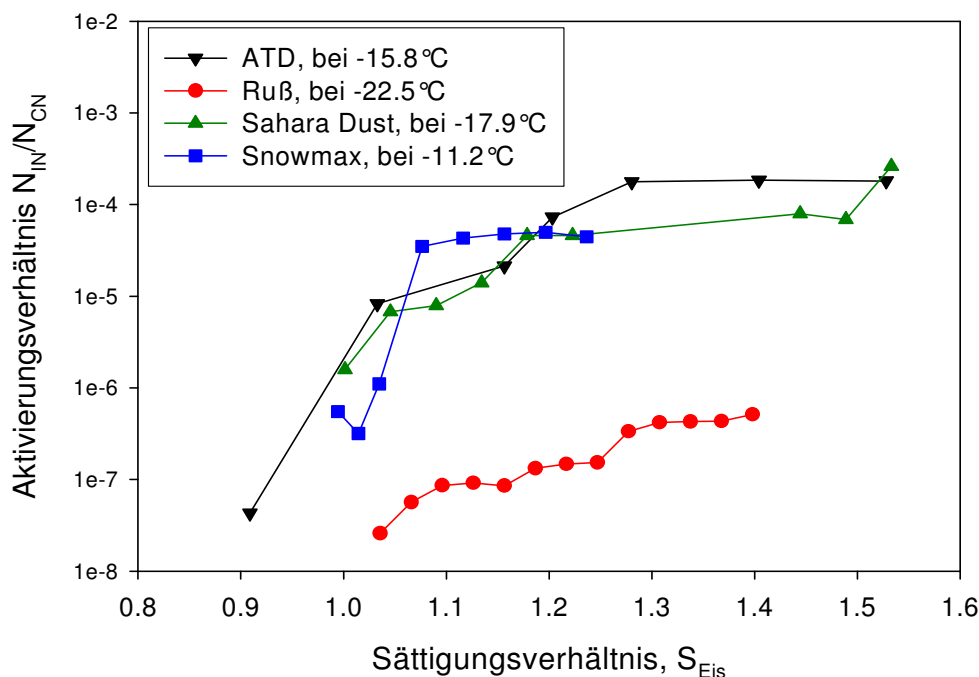


**Abbildung 5.33:** *IN-Anzahlkonzentration in  $l^{-1}$  für SNOWMAX als Funktion des Sättigungsverhältnis in Bezug auf Wasser bei unterschiedlichen Temperaturen.*

### 5.3.5. Vergleich der normierten Aktivierungskurven $N_{IN}/N_{CN}$ der verschiedenen Aerosoltypen

Um einen Vergleich des Aktivierungsverhaltens der unterschiedlichen Aerosoltypen zu erhalten wurden in Abbildung 5.34 jeweils eine normierte Aktivierungskurve  $N_{IN}/N_{CN}$  aus den vorangegangenen Messergebnissen als Funktion von  $S_{Eis}$  für ATD, Ruß, Sahara Dust und Snowmax für eine Temperatur aufgetragen. So ist Ruß im Vergleich mit den andern Aerosoltypen trotz einer Temperatur von  $-22.5\text{ °C}$  am schlechtesten als IN im Depositionsmode geeignet. Auch der zuvor beobachtete Anstieg beim Erreichen von Wassersättigung fällt im Vergleich mit den auf die CN-Anzahlkonzentration normierten Werten für ATD, Sahara Dust und Snowmax sehr gering aus. Man erkennt, dass Sahara Dust und ATD einen vergleichbaren Anstieg mit zunehmender Eisübersättigung aufweisen, jedoch hier bei etwas unterschiedlichen Temperaturen.

Snowmax erweist sich bei den Messungen als bester Eiskeim im Depositionsmode. Wie in der Abbildung 5.34 zu erkennen steigt hier das Aktivierungsverhältnis schon bei einer Eisübersättigung von 5 % fast auf den Maximalwert an.



**Abbildung 5.34:** Normierte Aktivierungskurven  $N_{IN}/N_{CN}$  in logarithmischer Skala als Funktion von  $S_{Eis}$  für verschiedene Testaerosoltypen bei einer Temperatur.

### 5.3.6. Atmosphärische Vergleichsmessung mit FRIDGE

Um einen ersten Vergleich der gemessenen IN-Anzahlkonzentrationen von FRIDGE und FINCH bei atmosphärischen relevanten Bedingungen zu bekommen, wurde am 11.3.2008 eine Außenluftmessung im Labor des Instituts für Atmosphäre und Umwelt durchgeführt. Hierzu wurde die atmosphärische Luft durch eine Öffnung in der Wand mit einem Schlauch angesaugt.

Über eine Y-Verbindung wurden der Fluss aufgeteilt und die Luft von FINCH und FRIDGE parallel gemessen.

Für die Sammlung des Aerosols für die Messungen mit FRIDGE wurden monokristalline Siliziumplättchen mit einem Durchmesser von 47 mm verwendet. Auf diesen wird das Aerosol mit Hilfe von elektrostatischer Abscheidung gesammelt.

Diese Methode wurde neu entwickelt, da bei der alten Methode, der Sammlung des Aerosols auf Filtern (Kapitel 5.1), der Filter vor der Messung in FRIDGE auf der Unterseite mit Vaseline getränkt werden musste, um einen besseren thermischen Kontakt zum gekühlten Filtertisch zu erlangen. Hierbei wurden die IN teilweise mit Vaseline bedeckt, was sie als IN inaktiv machte.

Messungen haben gezeigt, dass die Sammelmethode mit den Siliziumplättchen um einen Faktor 45 höhere IN-Anzahlkonzentrationen liefert, als die Messungen mit den Filtern.

In Abbildung 5.35 ist die gemessene Temperatur und das Sättigungsverhältnis  $S_{\text{Eis}}$  für die Messung von FINCH zwischen 9:48-10:18 Uhr gezeigt. Bei der Messung wurde bei sinkender Temperatur,  $S_{\text{Eis}}$  sehr schnell in einem Bereich zwischen 1.0 und 1.3 abgefahren.

In Abbildung 5.36 ist die dazu gemessene IN-Anzahlkonzentration als gleitender Mittelwert über 20 Sekunden für diese Zeit aufgetragen. Man erkennt deutlich einen Anstieg von  $N_{\text{IN}}$  auf bis zu Werte von  $N_{\text{IN}} = 30 \text{ l}^{-1}$  bei höherem  $S_{\text{Eis}}$  und eine Abnahme bei geringerem  $S_{\text{Eis}}$  auf  $N_{\text{IN}} = 0 \text{ l}^{-1}$ .

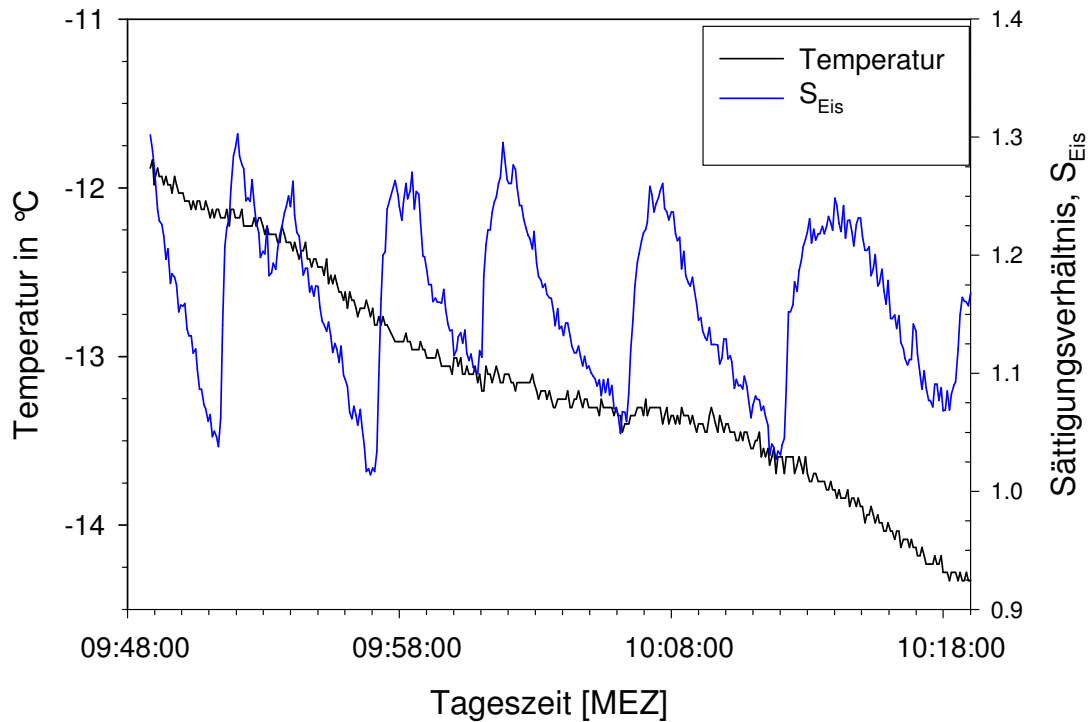
Vergleicht man nun die in Abbildung 5.37 gezeigten Messungen von FINCH und FRIDGE, so erkennt man zwar keine Übereinstimmung der Werte, jedoch liegen sie sehr nah beieinander bei einer Aktivierungstemperatur bei FRIDGE von  $T = -14 \text{ °C}$  und bei FINCH von  $T = -14.2 \text{ °C}$ . Bei Temperaturen um  $T = -13 \text{ °C}$  liegen die Werte bei FRIDGE etwas höher. Hierbei muss jedoch angemerkt werden, dass es sich bei FRIDGE um eine Mittelung der IN-Anzahlkonzentration über einen Zeitraum von 15 Minuten handelt, was der Sammelzeit auf den Siliziumplättchen entspricht. Somit ist es mit dieser Methode nicht möglich wie mit FINCH zeitlich hoch aufgelöste Verläufe der IN-Anzahlkonzentration zu messen.

Ebenso kann mit FRIDGE nicht oberhalb von Wassersättigungen gemessen werden, da sich in diesem Fall Wasserdampf auf dem Siliziumplättchen niederschlägt und zu einer Vereisung führt. Aus diesem Grund ist es nicht möglich bei höheren  $S_{\text{Eis}}$  zu messen als in Abbildung 5.37 gezeigt.

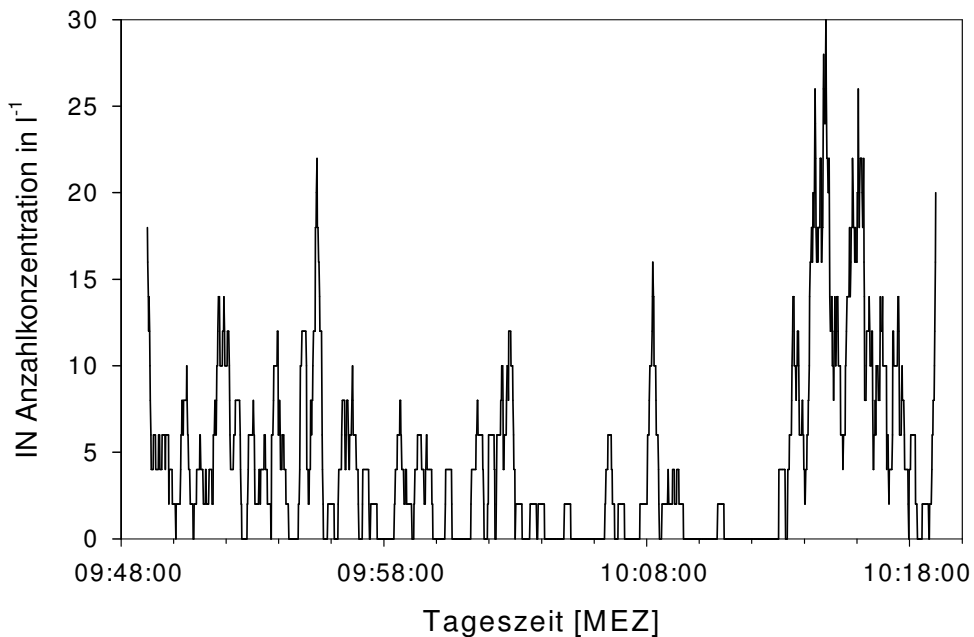
Die Messungen zeigen, dass beide Geräte in der gleichen Größenordnung messen, wenn bei FRIDGE die Sammlung mit den Siliziumplättchen verwendet wird. Um einen exakteren Vergleich zwischen den beiden Geräten zu erhalten müsste über einen

gleichen Zeitraum der Sammlung mit FRIDGE, FINCH bei einer konstanten Temperatur und Sättigungsverhältnis  $S_{\text{Eis}}$  messen.

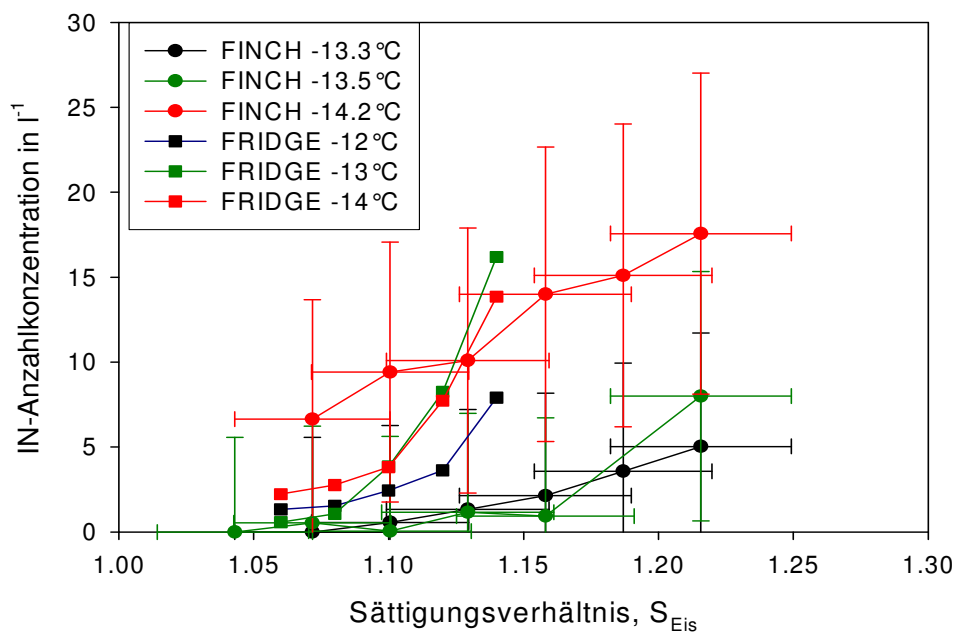
Dies war leider auf Grund des Transports von FINCH zu Messungen in den USA nicht mehr möglich. Zuvor stand leider die neue Sammelmethode mit den Siliziumplättchen noch nicht zur Verfügung.



**Abbildung 5.35:** Gemessene Temperatur (schwarz) und Sättigungsverhältnis,  $S_{\text{Eis}}$  (blau) während einer Atmosphärenluftmessung der IN-Anzahlkonzentration am Institut für Atmosphäre und Umwelt in Frankfurt am 11.3.2008 von 9:48-10:19 Uhr.



**Abbildung 5.36:** Gemessene IN-Anzahlkonzentration (gleitender Mittelwert über 20 Sekunden) von Atmosphärenluft am 11.3.2008 von 9:48-10:19 Uhr am Institut für Atmosphäre und Umwelt in Frankfurt.



**Abbildung 5.37:** Vergleichsmessungen der IN-Anzahlkonzentration  $N_{IN}$  von FINCH und FRIDGE von Atmosphärenluft am 11.3.2008 von 9:48-10:19 Uhr am Institut für Atmosphäre und Umwelt in Frankfurt bei unterschiedlichen Temperaturen, in Abhängigkeit von  $S_{Eis}$ .

### 6. Zusammenfassung

Im Rahmen der hier vorliegenden Arbeit wurde ein neuer Eiskeimzähler FINCH (Fast Ice Nucleus Chamber) für den Mode des Depositionsgefrieren entwickelt.

Zunächst wurde die Entwicklung eines Düseneiskeimzählers angestrebt, bei dem durch eine kontinuierliche Expansion eine Temperaturabnahme erreicht werden sollte. Bei einer zuvor gesättigten Probenluft führt dies zu einer Übersättigung. Eiskeime sollten so zu Eiskristallen anwachsen und anschließend in einem optischen Sensor detektiert werden. Resultate für die Bedingungen in verschiedenen Düsen mit der Strömungssoftware FLUENT zeigten, dass in einer Düse keine konstanten Bedingungen von Temperatur und Übersättigung über eine ausreichend lange Zeit erzielt werden können, um Eiskeime zu Eiskristallen zu einem detektierbaren Durchmesser  $> 3 \mu\text{m}$  anwachsen zu lassen.

Aus diesem Grund wurde die Entwicklung eines Eiskeimzählers mit dem Prinzip der Mischung (FINCH) vorangetrieben. 3D-FLUENT-Modellierungen bestätigen, dass durch die Mischung unterschiedlicher Luftströme nahezu konstante Übersättigungen in Bezug auf Eis bzw. Wasser und Temperaturen unter dem Gefrierpunkt über mehrere Sekunden erzeugt werden können. Eiskeime IN und Wolkenkondensationskeime CCN werden aktiviert, was zu einem Anwachsen zu Eiskristallen und Tropfen mit einem Durchmesser  $> 3 \mu\text{m}$  führt. Ebenso ergab sich eine 100 % Transmission für Partikel mit einem Durchmesser von  $0.1 \mu\text{m}$  bis  $10 \mu\text{m}$  entlang der Kammer für alle gerechneten Partikeltrajektorien.

Durch automatische Änderung der relativen Feuchte des warmen Flusses ist es möglich IN-Aktivierungsspektren in weniger als 10 Minuten bei konstanter Temperatur bis  $-23 \text{ }^\circ\text{C}$  und verschiedenen Sättigungsverhältnissen in Bezug auf Eis von 0.9 - 1.7 zu messen. Neben der Möglichkeit der schnellen Änderung des Sättigungsverhältnisses ist der relativ hohe Probenfluss von 1 - 10 l/min im Vergleich zu anderen Eiskeimzählern mit etwa 0.9 l/min der Grund für die Bezeichnung von FINCH als schnellen Eiskeimzähler. Dies führt zu einer verbesserten Zählstatistik und somit zu einer höheren zeitlichen Auflösung.

In einem ebenfalls neu entwickelten optischen Sensor kann durch Messung des Polarisationsverhältnisses  $P_{44}/P_{11}$  des zurückgestreuten Laserlichts von Tropfen und Eiskristallen mit einem Durchmesser  $> 4 \mu\text{m}$  zwischen den verschiedenen Aggregatzuständen unterschieden werden. Hierbei handelt es sich jeweils um eine Einzelpartikelmessung.

Dies ist wiederum ein Vorteil im Vergleich zu Detektionsmethoden anderer Eiskeimzähler, bei denen zur Zeit operationell lediglich über die Größe zwischen Eiskristallen und Tropfen unterschieden wird.

Um die Verweilzeit und damit die zeitliche Auflösung des Detektorsignals für die Eiskristalle und Tropfen bei FINCH zu erhöhen wurde ein virtueller Impaktor entwickelt in dem die Eiskristall- und Tropfenanzahl aufkonzentriert und somit für eine geringere Flussgeschwindigkeit durch den optischen Sensor sorgt. Die



Transmissionseffizienz wurde mit Hilfe von FLUENT-Modellierungen bestimmt und liegt bei Partikeldurchmessern  $> 3 \mu\text{m}$  bei 1 für alle berechneten Partikel.

Mit dem neu entwickelten Aufbau von FINCH wurden Laborexperimente zur Aktivierungstemperatur und -übersättigung für Silberjodid- und Kaolinitaerosol durchgeführt. Die Ergebnisse zeigen eine gute Übereinstimmung mit Daten von Schaller und Fukuta (1979) und dem ESEM, wie auch mit Messungen mit der statischen Diffusionskammer FRIDGE, sowohl in der Aktivierungstemperatur und -sättigungsverhältnis für Silberjodid und Kaolinit, als auch für die IN-Anzahlkonzentration bei atmosphärischen Messungen.

Im Rahmen der Arbeit wurde an zwei Messkampagnen CLACE 6 und ICIS 2007 teilgenommen.

CLACE 6 fand auf dem Jungfrauojoch in der Schweiz kurz nach Fertigstellung von FINCH statt. Trotz sehr geringer Aerosolanzahlkonzentrationen (unter  $1000 \text{ cm}^{-3}$ ) konnten IN-Anzahlkonzentrationen von  $0 \text{ l}^{-1}$  bis  $4 \text{ l}^{-1}$  gemessen werden.

Beim Aufsteigen einer Wolke aus dem Tal konnte nach anfänglicher Zunahme von  $N_{\text{IN}}$  vor Eintreffen der Wolke, eine Abnahme nach Erreichen der Wolke von  $N_{\text{IN}}$  bei konstanten Aktivierungsbedingungen gemessen werden. Dies deutet auf eine Aktivierung der Eiskeime in der Wolke hin, was zum Anwachsen zu Eiskristallen führt, diese daraufhin aussedimentieren oder nicht mehr in die Einlässe gelangen.

Eine Vergleichsmessung am Eis-CVI-Inlet zeigte bis zu einem Faktor 1000 höhere Eiskristallresiduenanzahlkonzentrationen als  $N_{\text{IN}}$ . Dies könnte ein Hinweis auf eine bessere Aktivierung der IN in Mischwolken in anderen Gefriermoden sein, als den im FINCH gemessenen Depositionsmode. Um eine gesicherte Aussage treffen zu können wären weitere Messungen am Eis-CVI wünschenswert.

Messungen bei ICIS 2007 an der AIDA-Kammer ergaben für Messungen von Arizona Test Dust, GfG Ruß, Sahara Dust und Snowmax eine gute Übereinstimmung der Aktivierungstemperatur und -übersättigungen mit anderen Autoren.

So zeigte sich, dass GfG Ruß im Vergleich zu den anderen Aerosolen sehr schlecht als Eiskeim im Depositionsmode geeignet ist.

Snowmax hingegen ist bereits bei Temperaturen um  $-10 \text{ °C}$  und 2 % Eisübersättigung als Eiskeim aktiv.

Daten anderer, an dem Vergleichworkshop teilnehmender, Eiskeimzähler waren zum Zeitpunkt der Abgabe der Arbeit noch nicht verfügbar.

Atmosphärische Vergleichsmessungen in Frankfurt mit FRIDGE zeigen Resultat der IN-Anzahlkonzentration in der gleichen Größenordnung. Diese lagen je nach Aktivierungstemperaturen und -übersättigungen bei bis zu  $N_{\text{IN}} = 20 \text{ l}^{-1}$ . Bei FRIDGE wurde das Aerosol mit einer neu entwickelten elektrostatischen Abscheidung auf Silikonplättchen gesammelt und anschließend  $N_{\text{IN}}$  gemessen.

### Fazit

Mit FINCH steht ein neuer Eiskeimzähler mit dem Prinzip der Mischung zur Aktivierung und Messung von Eiskeimanzahlkonzentrationen zur Verfügung. Auf Grund des hohen Probenfluss und der Möglichkeit der schnellen Änderung der Übersättigung erlaubt dieser eine schnelle Aufnahme von Aktivierungskurven und ist somit besonders auf den Hinblick auf Flugzeugmessungen eine Verbesserung zu den bisher gängigen CFDCs.

### Ausblick

Durch eine stärkere Kühlung der Wand der Wachstumskammer lässt sich eine Erniedrigung der aktuellen minimalen Aktivierungstemperatur von  $-23\text{ °C}$  auf  $-38\text{ °C}$  erzielen. Somit wäre der gesamten Temperaturbereich der Eiskeimaktivierung bis hin zum homogenen Gefrieren abdeckt.

Sowohl für den virtuellen Impaktor, als auch für den optischen Sensor muss eine genauere experimentelle Kalibrierung der Transmissionseffizienz bzw. der 50 % Abscheidungsgrenze durchgeführt werden.

Durch eine Verkürzung der Wachstumskammer sowie einer besseren Anordnung der Elektronik zur Steuerung von FINCH und einer Direktkühlung mit Kompressoren anstatt Kryostaten und Durchlaufkühlern wäre ein kleinerer, sowie leichter Aufbau realisierbar. Diese Entwicklung wird im Rahmen des Schwerpunktsprogramm HALO (SPP1294) (Bundke, Bingemer, Jaenicke) der Deutschen Forschungsgemeinschaft gefördert.

Besonders die großen Unterschiede zwischen Eiskristallresiduenanzahlkonzentration und  $N_{IN}$  bei den Messungen am Eis-CVI-Inlet auf dem Jungfraujoch zeigen die Notwendigkeit weiterer Vergleichsmessungen.

Ebenso wären weitere Atmosphärenmessungen der IN-Anzahlkonzentration auch im Vergleich zu FRIDGE bei unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen z.B. auf dem Taunusobservatorium der Universität Frankfurt von großem Interesse.

Schließlich ist die Datenanalyse mit den Vergleichsdaten der anderen Eiskeimzähler bei ICIS 2007, besonders für die IN-Anzahlkonzentrationen, zu vervollständigen.

## Literaturverzeichnis

**Bergeron, T.**

On the physics of cloud and precipitation. *In: 5th Assembly of the U.G.G.I. Paul Dupont, Paris, 156–178, (1935).*

**Bigg, E.K.**

A new technique for counting ice-forming nuclei in aerosols, *Tellus*, 4, 394-400, (1956).

**Bigg, E.K., S. C. Mossop, R. T. Meade, N. S. C. Thorndike**

The measurement of ice nucleus by mean of millipore filters, *Journal of Applied Meteorology*, 2, 266-269, (1962).

**Bohl, W.**

*Technische Strömungslehre*, Vogel-Buchverlag Würzburg, 5. Auflage, (1982).

**Bohren, C. F, D. R. Huffman**

*Absorption and scattering of light by small particles*, John Wiley & Sons, (1983).

**Bundke, U., B. Bühner, T. Wetter, A. Afchine**

Paddy (passiv airflow dewpoint detection assembly) a new small and fast frost and dewpoint sensor for use in an aircraft wingpot, *EGU*, Poster, 2007-A-08251, (2007).

**Bundke U., B. Nillius, R. Jaenicke, T. Wetter, H. Klein, H. Bingemer**

The Fast Ice Nucleus Chamber FINCH, *Atmospheric Research*, doi:10.1016/j.atmosres.2008.02.008, (2008).

**Buschmann, U., B. March, A. Steinke, S. Völlmeke**

Mikrosensoren zur Betauungserkennung, *Materials and Corrosion*, 51, 4-6, (2000).

**Chen, Y., S.M. Kreidenweis, L.M. McInnes, D.C. Rogers, P.J. DeMott**

Single particle analyses of ice nucleating aerosols in the upper troposphere and lower stratosphere, *Geophysical Research Letters*, 25, 1391, (1998).

**Cziczo, D.J., D.M. Murphy, P.K. Hudson, D.S. Thomson**

Single particle measurements of the chemical composition of cirrus ice residue during CRYSTAL-FACE, *Geophysical Research Letters*, 109, 201, doi:10.1029/2003JD004032, (2004).

**DeMott, P.J., D.C. Rogers, S.M. Kreidenweis, Y.L. Chen, C.H. Twohy, D. Baumgardner, A.J. Heymsfield, K.R. Chan**

The role of heterogeneous freezing nucleation in upper tropospheric clouds: Inferences from SUCCESS, *Geophysical Research Letters*, 25, 1387–1390, (1998).

**DeMott, P.J., K. Sassen, M.R. Poellot, D. Baumgardner, D.C. Rogers, S.D. Brooks, A.J. Prenni, S.M. Kreidenweis**

African dust aerosols as atmospheric ice nuclei, *Geophysical Research Letters*, 30, 1732, doi:10.1029/2003GL017410, (2003).

**Diehl, K., C. Quick, S. Matthias-Maser, S.K. Mitra, and R. Jaenicke**

The ice nucleating ability of pollen. Part I: Laboratory studies in deposition and condensation freezing modes, *Atmospheric Research*, 58, 75–87, (2001).

**Dong, Y., R.G. Oraltay, J. Hallett**

Ice particle generation during evaporation, *Atmospheric Research*, 32, 45–53, (1994).

**Dymarska, M, B.J. Murray, L. Sun, M.L. Eastwood, D.A. Knopf, A.K. Bertram**

Deposition ice nucleation on soot at temperatures relevant for the lower troposphere, *Journal of Geophysical Research*, 111, 204, doi10.1029/2005JD006627, (2006).

**Field P. R., O. Möhler, P. Connolly, M. Krämer, R. Cotton, A. J. Heymsfield , H. Saathoff, M. Schnaiter**

Some ice nucleation characteristics of Asian and Saharan desert dust, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 2991–3006, (2006).

**Fletcher, N. H.**

Physics of Rain Clouds. *Cambridge University Press*, 386 pp, (1962).

**FLUENT Dokumentation**

*FLUENT 6.1 Documentation*, Fluent Inc., ohne Jahr.

**Fukuta, N.**

Ice nucleation by metaldehyde, *Nature*, 199, 475-476, (1963).

**Fukuta, N., B.J. Mason**

Epitaxial growth of ice on organic crystals. *Journal of physics and chemistry of solids*, 24, 715-718, (1963).

**Fukuta, N.**

Experimental studies of organic ice nuclei, *Journal of the Atmospheric Science*, 23, 191-196, (1966).

**GAMBIT Dokumentation**

*GAMBIT 2.0 Documentation*, Fluent Inc., ohne Jahr

**Gorbunov, B., A. Baklanov, N. Kakutkina, H.L. Windsor, R. Toumi**

Ice nucleation on soot particles, *Journal Aerosol Science*, 32, 199-215, (2001).

**Hallett, J., S. Mossop**

Production of secondary ice particles during the riming process, *Nature*, 249, 26-28 (1974).

**Heymsfield, A. J., L. M. Miloshevich**

Homogeneous ice nucleation and supercooled liquid water in orographic wave clouds, *Journal of Atmospheric Science*, 50, 2335-2353, (1993).

**Hinds, W. C.**

Aerosol technology - properties, behaviour, and measurement of airborne particles; 2. Auflage, *John Wiley & Sons, Inc., New York*, (1999).

**Hobbs P.V., M.K. Politovich, L.F. Radke**

The structures of summer convective clouds in eastern Montana. 1. Natural clouds, *Journal of Applied Meteorology*, 19, 645-663, (1980).

**Hu, Y.-X., P. Yang, B. Lin, G. Gibson, C. Hostetler**

Discriminating between spherical and non-spherical scatterers with lidar using circular polarization: a theoretical study, *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 79–80, 757–764, (2003).

**ICCP**

Climate Change 2007, [http://www.ipcc.ch/pdf/assessment-report/ar4/syr/ar4\\_syr.pdf](http://www.ipcc.ch/pdf/assessment-report/ar4/syr/ar4_syr.pdf), 28.4.,(2008).

**Jaenicke, R.**

Abundance of cellular material and proteins in the atmosphere, *Science*, 308, 73-73, (2005).

**Kanji Z.A., J.P.D. Abbatt**

Laboratory studies of ice formation via deposition mode nucleation onto mineral dust and n-hexane soot samples, *Journal of Geophysical Research*, 111, D16204, doi:10.1029/2005JD006766, (2006).

**Karcher, B., U. Lohmann**

A parameterization of cirrus cloud formation: Homogeneous freezing of supercooled aerosols, *Journal of Geophysical Research*, 107, 4010, doi: 10.1029/2001JD000470, (2002).

**Klaar, J.**

Entwicklung einer Diffusions-Wolkenkammer für tiefe Temperaturen, *Diplomarbeit am Fachbereich Physik, Johannes Gutenberg-Universität, Mainz*, (1970).

**Koop, T., B. Luo, A. Tsias, and T. Peter**

Water activity as the determinant for homogeneous ice nucleation in aqueous solutions, *Nature*, 406, 611 –614, (2000).

**Langer, G. (a)**

Evaluation of NCAR ice nucleus counter. Part I: Basic operation, *Journal of Applied Meteorology*, 12, 1000-1011, (1973).

**Langer, G. (b):**

Analysis of Results from Second International Ice Nucleus Workshop with Emphasis on Expansion Chambers, NCAR Counters, and Membrane Filters, *Journal of Applied Meteorology*, 12, 991-999, (1973).

**Levin, Z., S. A. Yankofsky**

Contact versus immersion freezing of freely suspended droplets by bacterial ice nuclei, *Journal of Climate and Applied Meteorology*, 22, 1964–1966, (1983).

**Megahed, K.**

The Impact of Mineral Dust Aerosol Particles on Cloud Formation, *Dissertation an der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät, Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn*, (2006).

**Mertes, S., B. Verheggen, S. Walter, P. Connolly, M. Ebert, J. Schneider, K. N. Bower, J. Cozic, S. Weinbruch, U. Baltensperger, E. Weingartner**

Counterflow virtual impactor based collection of small ice particles in mixed-phase clouds for the physico-chemical characterization of tropospheric ice nuclei: sampler description and first case study, *Aerosol Science and Technology*, 41, 848–864, (2007).

**Meyers, P.M., P.J. DeMott, W.R. Cotton**

New primary ice-nucleation parameterizations in an explicit cloud model, *Journal of Applied Meteorology*, 31, 708-721, (1992).

**Möhler, O., P.R. Field, P. Connolly, S. Benz, H. Saathoff, M. Schnaiter, R. Wagner, R. Cotton, M. Krämer, A. Mangold, and A. J. Heymsfield**

Efficiency of the deposition mode ice nucleation on mineral dust particles, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 3007–3021, (2006).

**Mishchenko, M.I., K. Sassen**

Depolarization of lidar returns by small ice crystals: An application to contrails, *Geophysical Research Letters*, 25, 309–312, (1998).

**Nillius, B.**

Modifikation eines Expansions-Aerosolkernzählers auf Streulichtmessung und Charakterisierung, *Diplomarbeit am Fachbereich Physik, Johannes Gutenberg-Universität, Mainz*, (2003).

**Ohtake, T.**

Cloud settling chamber for ice nuclei counting, *Bulletin of the American Meteorological society*, 52, 623-627, (1971).

**Palas**

<http://www.palas.de/engl/produkte/trockd.htm>, 07.05., (2008).

**Phillips, V.T.J., C. Andronache, S.C. Sherwood, A. Bansemer , W.C. Conant , P.J. Demott , R.C. Flagan , A. Heymsfield , H. Jonsson , M. Poellot , T.A. Rissman , J.H. Seinfeld , T. Vanreken , V. Varutbangkul , J.C. Wilson**

Anvil glaciation in a deep cumulus updraught over Florida simulated with the explicit microphysics model. I: Impact of various nucleation processes, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 131, 2019-2046, (2005).

**Prenni, A.J., P.J. DeMott, C. Twohy, M.R. Poellot, S.M. Kreidenweis, D.C. Rogers, S.D. Brooks, M.S. Richardson, A.J. Heymsfield**

Examinations of ice formation processes in Florida cumuli using ice nuclei measurements of anvil ice crystal particle residues, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 112, 10221, (2007).

**Pruppacher, H. R., J.D. Klett**

*Microphysics of clouds and precipitation*, 2. Ausgabe, Kluwer Academic Publisher, Dordrecht, (1997).

**Richardson, M.S., P.J. DeMott, S.M. Kreidenweis, D.J. Cziczo, E.J. Dunlea, J.L. Jimenez, D.S. Thomson, L.L. Ashbaugh, R.D. Borys, D.L. Westphal, G.S. Casuccio, T.L. Lersch**

Measurements of heterogeneous ice nuclei in the western United States in springtime and their relation to aerosol characteristics, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 112, 2209, (2007).

**Rogers, D.C.**

Development of a continuous flow thermal gradient diffusion chamber for ice nucleation studies, *Atmospheric Research*, 22, 149-181, (1988).



**Rogers, D.C., P.J. DeMott, S.M. Kreidenweis, Y. Chen**

Ice Nucleating Aerosols: Measurement Techniques, Interpretation and Potential for Modeling Applications, <http://www.eol.ucar.edu/~dcrogers/Mex97/mexpaper.html> 22.01., (2008).

**Sassen, K., G. Dodd**

Homogeneous nucleation rate for highly supercooled cirrus cloud droplets, *Journal of Atmospheric Science*, 45, 1357–1369, (1988).

**Sassen, K., P.J. DeMott, J.M. Prospero, M.R. Poellot**

Saharan dust storms and indirect aerosol effects on clouds: CRYSTAL-FACE results, *Geophysical Research Letters*, 30, 1633, (2003).

**Schaller, R.C. und N. Fukuta**

Ice nucleation by aerosol particles: Experimental studies using a wedge-shaped ice thermal diffusion chamber, *Journal of Atmospheric Science*, 36, 1788–1802, (1979).

**Sonntag, D.**

Advancements in the field of hygrometry, *Meteorologische Zeitschrift*, 3, 51-66 (1994).

**Stetzer, O., B. Baschek, F. Lüönd, U.Lohmann**

The Zurich Ice Nucleation Chamber (ZINC)-A New Instrument to Investigate Atmospheric Ice Formation, *Aerosol Science and Technology*, 42, 64–74, (2008).

**Stöcker, H.**

*Taschenbuch der Physik*, Verlag Hanni Deutsch, 3. Auflage, (1998).

**Stratmann, F., A. Kiselev, S. Wurzler, M. Wendisch, J. Heintzenberg K. Diehl, H. Wex, S. Schmidt, R. J. Charlson**

Laboratory studies and numerical simulations of cloud droplet formation under realistic supersaturation conditions, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 2, 876-887, (2004).

**Targino, A. C., R. Krejci, K. J. Noone, P. Glantz**

Single particle analysis of ice crystal residuals observed in orographic wave clouds over Scandinavia during INTACC experiment, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 1977-1990, (2006).

**Teller A., Z. Levin**

The effects of aerosols on precipitation and dimensions of subtropical clouds: a sensitivity study using a numerical cloud model, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 67-80, (2006).

**TSI Incorporated**

Model 3321 Aerodynamic Particle Sizer, Spectrometer, Instruction Manual; *Revision E*, TSI Incorporated, (2004).

**Twohy, C.H., M.R. Poellot**

Chemical characteristics of ice residual nuclei in anvil cirrus clouds: evidence for homogeneous and heterogeneous ice formation, *Atmospheric Chemistry Physics*, 5, 2289– 2297, (2005).

**Twomey, S.A., M. Piepgrass, T.L. Wolfe**

An assessment of the impact of pollution on global cloud albedo, *Tellus B*, 36, 356-366, (1984).

**Universität München**

[http://leifi.physik.uni-muenchen.de/web\\_ph11/umwelt-technik/12dopplereffekt/theorie1.htm](http://leifi.physik.uni-muenchen.de/web_ph11/umwelt-technik/12dopplereffekt/theorie1.htm), 18.06., (2008)

**Vali, G.**

Nucleation Terminology, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 66, 1426–1427, (1985).

**Vali, G.**

Ice observations in the atmosphere 1949 – 2004, *Ice Initiation Workshop*, June 7, (2004).

**Van den Heever, S. C., G. Carrio, W. R. Cotton, P. J. DeMott, A. J. Prenni**

Impacts of nucleating aerosol on Florida convection: Part I. Mesoscale simulations, *Journal of Atmospheric Science*, 63, 1752, (2006).

**Vardiman, L.**

Generation of secondary ice particles in clouds by crystal-crystal collision, *Journal of the Atmospheric Science*, 35, 2168–2180, (1978).

**Volten H, O. Munoz, E. Rol, J.F. de Haan, W. Vassen, J.W. Hovenier, K. Muinonen, T. Nousiainen**

Scattering matrices of mineral aerosol particles at 441.6 nm and 632.8 nm, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 106, 17375-17401, (2001).

**Warner, J.**

An instrument for the measurement of freezing nucleus concentration, *Bulletin Obs. Puy de Dome*, 1, 33-46, (1957).

**Wegener, P. P., A. A. Pouring**

Experiment on condensation of water vapour by homogeneous nucleation in nozzles, *Physics of Fluids*, 7, 352-361, (1964).

**Willeke, K., P. A. Baron**

*Aerosol measurement, principles, techniques, and applications*; Van Nostrand Reinhold, New York, (1993).

**Yang, J.L.**

Condensational growth of atmospheric aerosol particles in an expanding water saturated air flow: numerical optimisation and experiment, *Dissertation am Fachbereich Physik, Johannes Gutenberg-Universität, Mainz*, (1999).

**Yang, J.L., R. Jaenicke, V. Dreiling, T. Peter**

The condensational growth of aerosol particle and its effect in aerosol measurements. *Journal Aerosol Science*, 30, 69-70, (1999).

## A Anhang

### A.1 Berechnung des Fehlers bei der Messung des Sättigungsverhältnisses

Der Messfehler für die Bestimmung des Sättigungsverhältnisses lässt sich über die Gauß'sche Fehlerfortpflanzung

$$\Delta y \pm \sqrt{\left(\frac{\partial y}{\partial x_1} \Delta x_1\right)^2 + \left(\frac{\partial y}{\partial x_2} \Delta x_2\right)^2 + \left(\frac{\partial y}{\partial x_3} \Delta x_3\right)^2} \quad \text{A1-1}$$

ermitteln. Mit  $x_1, x_2, x_3$  den abhängigen Variablen von  $y$ .

So ergibt sich nach Formel 4.11 folgende Fehlerformel für das Sättigungsverhältnis:

$$\begin{aligned} \Delta S_{\text{Eis}} &= \pm \sqrt{\left(\frac{\partial S_{\text{Eis}}}{\partial T_{\tau}} \cdot \Delta T_{\tau}\right)^2 + \left(\frac{\partial S_{\text{Eis}}}{\partial T_{\text{Pt}}} + \Delta T_{\text{Pt}}\right)^2} \\ &= \pm \sqrt{\left(\left(-\frac{b}{T_{\tau}^2} + c + 2 \cdot d \cdot T_{\tau} + \frac{1}{T_{\tau}}\right) \cdot p_{\tau} \cdot \Delta T_{\tau}\right)^2 + \left(\frac{-p_{\tau} \cdot \left(-\frac{b}{T_{\text{Pt}}^2} + c + 2 \cdot d \cdot T_{\text{Pt}} + \frac{1}{T_{\text{Pt}}}\right)}{p_{\text{Pt}}} \cdot \Delta T_{\text{Pt}}\right)^2} \end{aligned} \quad \text{A1-2}$$

## A.2 Berechnung der Diffusionsverlustrate in Aerosolleitungen

Die folgenden Gleichungen zur Berechnung der Diffusionsverluste stammen aus Willecke und Baron (1993) und Hinds (1999) und gelten für laminare Flußbedingungen. Der partikelgrößenabhängige Anteil der Aerosolpartikel, die eine zylindrische Rohrleitung passieren, ist abhängig von der Funktion des dimensionslosen Depositionsparameter  $\mu_D$ .

$$\mu_D = \frac{\pi \cdot D \cdot L}{Q} \quad \text{A2-1}$$

(Willecke und Baron (1993))

mit:

$D$  = Partikeldiffusionskoeffizient in  $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$

$L$  = Länge der Rohrleitung in m

$Q$  = Volumenstrom durch die Rohrleitung in  $\text{m}^3 \text{s}^{-1}$

$$D = \frac{\pi \cdot T_{\text{abs}} \cdot C_C}{3\pi \cdot \nu \cdot d} \quad \text{A2-2}$$

mit

$d$  = Partikeldurchmesser in m

$k$  = Boltzmannkonstante in  $\text{J K}^{-1}$

$T_{\text{abs}}$  = Absoluttemperatur des Gases in K

$\nu$  = Viskosität des Gases, in diesem Fall Luft, in  $\text{Pa s}$

$C_C$  = Cunninghamsche Gleitkorrektur

und mit der Cunninghamschen Gleitkorrektur:

$$C_C = 1 + \frac{2 \cdot \lambda^*}{d} \left[ 1.142 + 0.558 \cdot \exp\left(\frac{-0.999 \cdot d}{2 \cdot \lambda^*}\right) \right] \quad \text{A2-3}$$

[Hinds, (1999)]

mit der mittleren freien Weglänge  $\lambda^*$  in m:

$$\lambda^* = \frac{k \cdot T_{\text{abs}}}{\sqrt{2} \cdot \pi \cdot p \cdot d_x^2} \quad \text{A2-4}$$

[Hinds, (1999)]

mit:

$d_x$  = der Kollisionsdurchmesser in m, für Luft:  $d_x = 3,7 \cdot 10^{-10}$  m (Hinds, 1999)

$p$  = Luftdruck in Pa

In Willecke und Baron (1993) erfolgt die Parametrisierung der Funktion zur Bestimmung des Anteils  $P$  der Partikel, die ein Rohrleitung passieren (der Quotient aus der Anzahl der passierenden Partikel und der Anzahl der ursprünglichen Partikel), für den laminaren Strömungsfall für Werte von  $\mu_D > 0,02$  und für  $\mu_D \leq 0,02$ .

$$P = 0.81905 \cdot \exp(-3.6568 \cdot \mu_D) + 0.09753 \cdot \exp(-22.305 \cdot \mu_D) + 0.0325 \cdot \exp(-56.961 \cdot \mu_D) \\ + 0.81905 \cdot \exp(-3.6568 \cdot \mu_D) + 0.01544 \cdot \exp(-107.62 \cdot \mu_D)$$

A2-5

für  $\mu_D > 0.02$

[Willecke und Baron (1993)]

$$P = 1.0 - 2.5638 \cdot \mu_D^{2/3} + 1.2 \cdot \mu_D + 0.1767 \cdot \mu_D^{4/3} \quad \text{A2-6}$$

für  $\mu_D \leq 0.02$

[Willecke und Baron (1993)]

### A.3 Fehlerabschätzung der Messungen

Um eine Fehlerabschätzung bei der Messung der IN-Anzahlkonzentration zu erhalten, wurde bei einer konstanten CN-Anzahlkonzentration die IN-Anzahlkonzentration bei nahezu konstanten Temperaturen und konstanten Sättigungsverhältnissen  $S_{\text{Eis}}$  für Arizona Test Dust ATD in der AIDA (siehe auch 5.4) gemessen.

Mögliche Fehler bei der Bestimmung der Anzahlkonzentration können sich durch Abweichungen der Aerosolflussrate, nicht ganz auszuschließende Aerosolverluste im Einlassbereich der Kammer, entlang der Kammer und im virtuellen Impaktor ergeben.

Des Weiteren ist nicht auszuschließen, dass die IN nicht homogen verteilt in der AIDA vorkommen und es so zu natürlichen Schwankungen der IN-Anzahlkonzentration kommt.

Ebenso besteht die Möglichkeit bei sehr geringen Eisübersättigungen, dass die Eiskeime entlang der Kammer nicht bis zu Eiskristallen von detektierbarer Größe heranwachsen und so vom Detektor nicht erfasst und gezählt werden.

Die Abbildung 6.0.1 zeigt eine Messung der IN-Anzahlkonzentration (unten) bei nahezu konstanten Werten für  $S_{\text{Eis}} \approx 1.4$  und  $T \approx -22 \text{ °C}$  (oben). Trotz der nahezu konstanten Bedingungen ist eine starke Schwankung der IN-Anzahlkonzentration im gleitenden Mittelwert über 20 Sekunden zu erkennen. Auch die mittleren IN Minutenwerte zeigen eine Schwankung im Bereich von  $10 - 30 \text{ l}^{-1}$ .

Die zweite Messung (Abbildung 6.0.2) wurde bei geringeren  $S_{\text{Eis}} \approx 1.05$  und  $T \approx -18.5 \text{ °C}$  durchgeführt.

Auch hier ist im gleitenden Mittel und in den mittleren Minutenwerten wiederum eine starke Schwankung zu erkennen.

Für die Standardabweichung  $s$  des gleitenden Mittelwerts der ersten Messung ergibt sich  $s = 9.74 \text{ l}^{-1}$  und für die zweite Messung  $s = 7.35 \text{ l}^{-1}$ .

Der Mittelwert  $IN_M$  für den gleitenden Mittelwert ergibt für die erste Messung  $IN_M = 18.86 \text{ l}^{-1}$  und für die zweite Messung  $IN_M = 8.03 \text{ l}^{-1}$ .

Für die jeweils 5 Werte der gemittelten Minutenwerte ergibt sich die Standardabweichung  $s = 7.34 \text{ l}^{-1}$  für die erste Messung und  $s = 5.2 \text{ l}^{-1}$  für die zweite Messung.

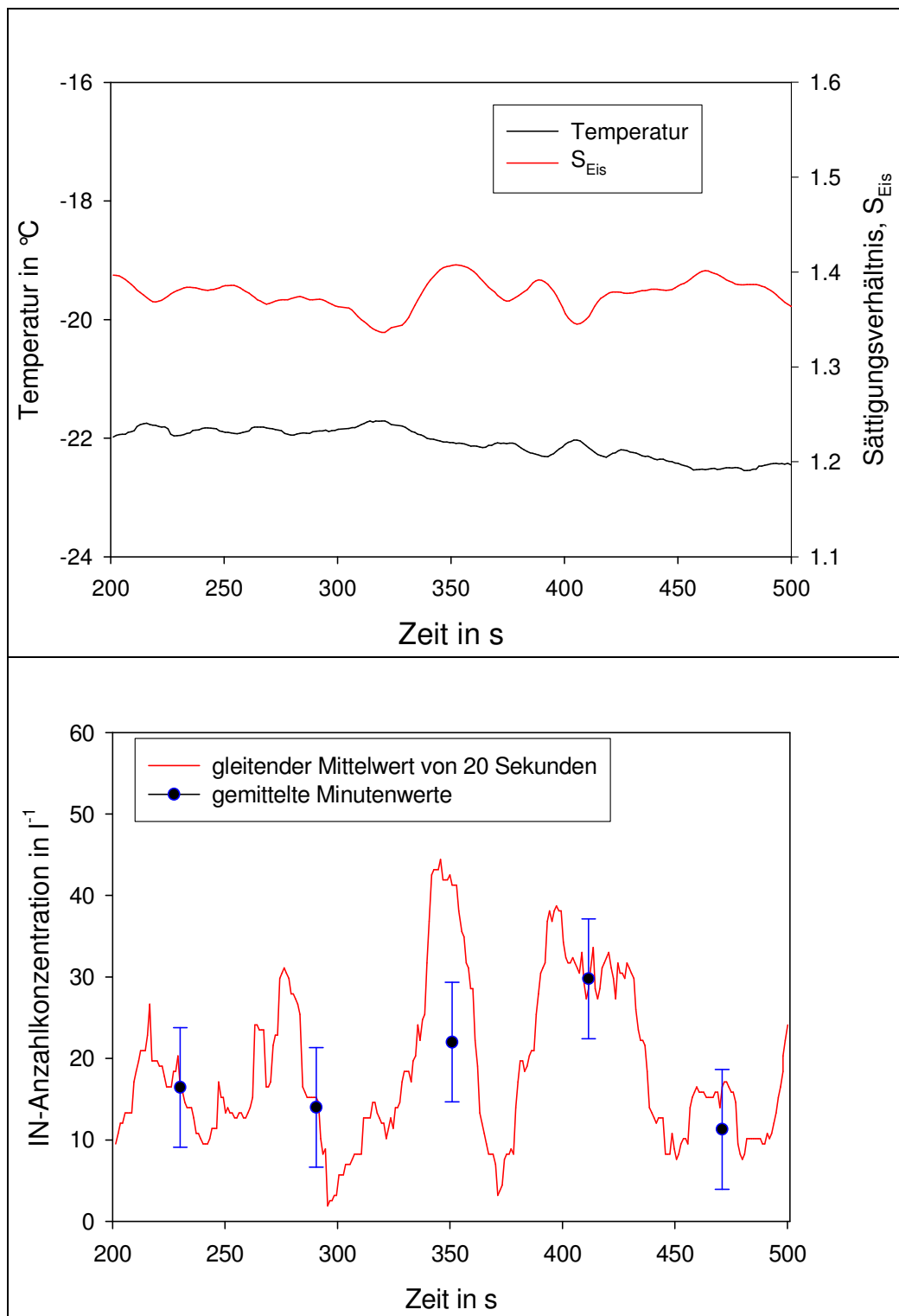
Die Standardabweichungen sind als Fehlerbalken in den Messungen angegeben.

Werden nun die Werte die Standardabweichung und der Mittelwert für den gleitenden Mittelwert gegeneinander aufgetragen, so erhält man für die Standardabweichung die in Abbildung 6.0.3 gezeigte lineare Regression in rot mit folgender Gleichung:

$$y = 5.5755 + 0.2208x . \quad \text{A3-1}$$

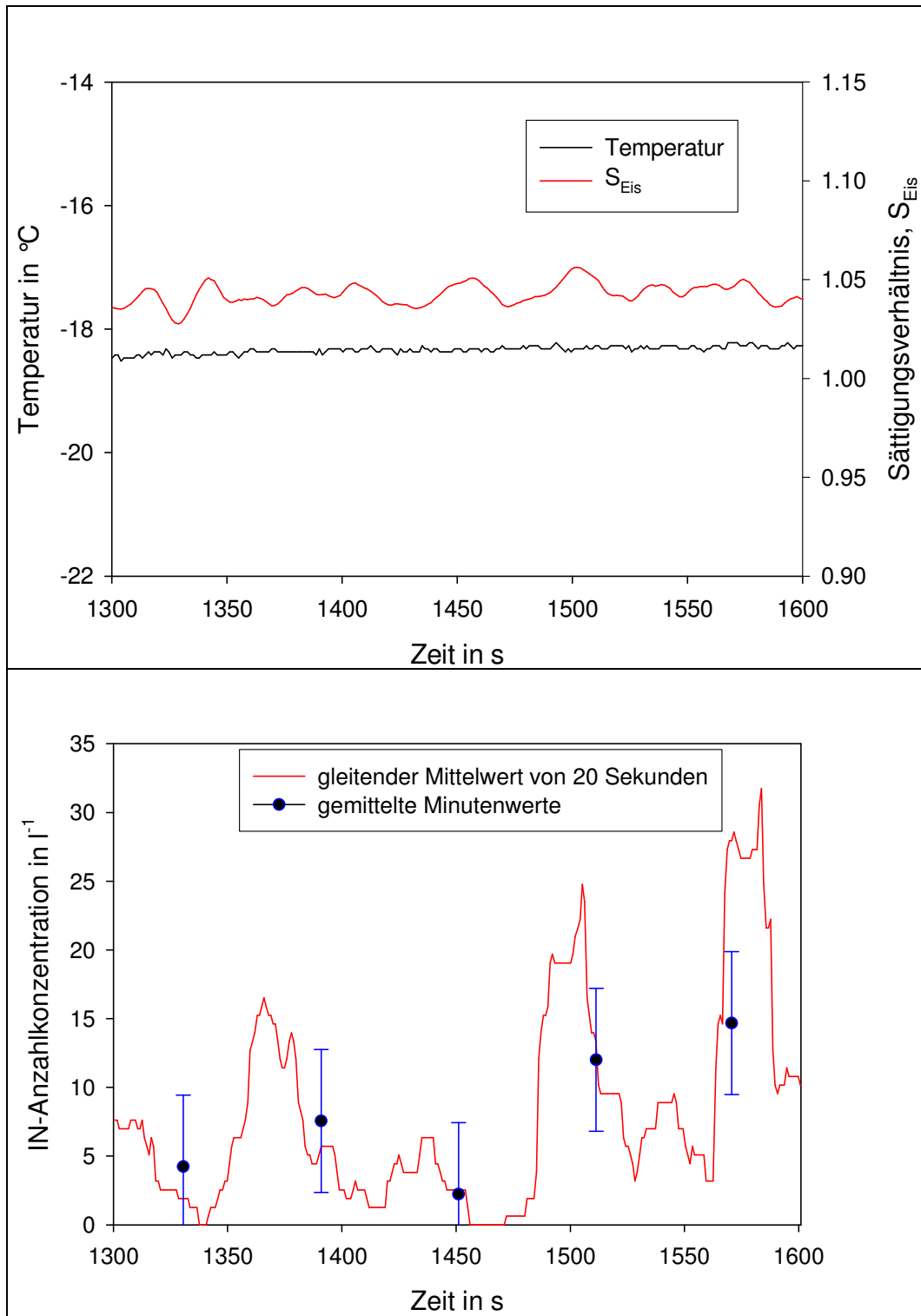
Für die Minutenmittelwerte ergibt sich folgende Gleichung:

$$y = 3.61116 + 0.197618x \quad \text{A3-2}$$

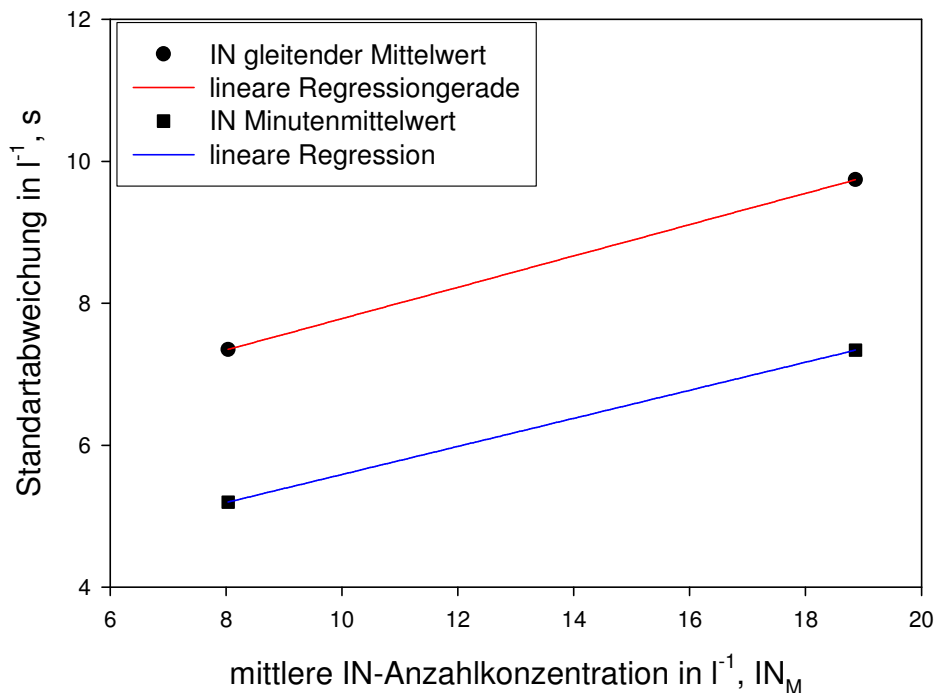


**Abbildung 6.0.1:** Temperatur in °C (schwarz), Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (rot), am oberen Rand der Wachstumskammer (oben) und IN-Anzahlkonzentrationen pro Liter (blau, (über eine Minute gemittelt) und rot, gleitender Mittelwert über 20 Sekunden im Verlauf einer Messung mit ATD bei konstanter Aerosolanzahlkonzentration mit einer Dauer von 300 Sekunden.





**Abbildung 6.0.2:** Temperatur in °C (schwarz), Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (rot), am oberen Rand der Wachstumskammer (oben) und IN-Anzahlkonzentrationen pro Liter (blau, (über eine Minute gemittelt) und rot, gleitender Mittelwert über 20 Sekunden im Verlauf einer Messung mit ATD bei konstanter Aerosolanzahlkonzentration mit einer Dauer von 300 Sekunden.



**Abbildung 6.0.3:** Standardabweichung als Funktion der mittleren IN-Anzahlkonzentrationen in  $\Gamma^{-1}$  für den gleitenden Mittelwert (●) und den Minutenmittelwert (■). In rot ist die dazugehörige lineare Regressionskurve den gleitenden Mittelwert mit der Gleichung  $y = 5.5755 \cdot 0.2208x$  und in blau für den Minutenmittelwert mit der Gleichung  $y = 3.61116 \cdot 0.197618x$  gezeigt.

## B Verzeichnisse

### B.1 Abbildungsverzeichnis

Nummer	Seite
Abbildung 1.1: <i>Globaler mittlerer Strahlungsantrieb (RF) in <math>W/m^2</math> für 2005 (beste Abschätzung und 5-95% Unsicherheitsbereich) in Bezug auf das Jahr 1750 für <math>CO_2</math>, <math>CH_4</math>, <math>N_2O</math> und andere wichtige Faktoren und Mechanismen, zusammen mit der typischen räumliche Ausdehnung und der geschätzten Güte des wissenschaftlichen Verständnisses (LOSU) [IPCC, (2007)].</i> .....	4
Abbildung 2.1: <i>Die vier möglichen Modi zur Aktivierung eines Eiskeimes zum Anwachsen zum Eiskristall, bei unterschiedlichen Temperaturen <math>T</math> und Sättigungsverhältnissen <math>S_{Eis}</math> und <math>S_W</math>. Die Temperaturen <math>T_{act}</math> geben jeweils die Temperatur an, bei der das Tropfenwachstum stattfand. [Vali, (2004)]</i> .....	7
Abbildung 2.2: <i>Verschiedene Gefrierregime für homogenes Gefrieren und heterogene Nukleation als Funktion von Temperatur und relative Feuchte im Bezug auf Eis. Die schwarze, durchgezogene Linie zeigt die 100% relative Feuchte im Bezug auf Wasser an. [Prenni et al., (2007), mit leichten Veränderungen]</i> .....	8
Abbildung 2.3: <i>Sättigungsdampfdruck in Bezug auf Wasser (schwarze, gestrichelt Linie) und Sättigungsdampfdruck in Bezug auf Eis (rote Linie) als Funktion der Temperatur. Die blaue Linie zeigt den Dampfdruck für eine Mischung zweier gesättigter Luftmassen je nach Mischungsverhältnis und die grüne Linie für eine gesättigte und eine ungesättigte Luftmasse.</i> .....	9
Abbildung 2.4: <i>Änderung von <math>p_{sat,w} - p_{sat,Eis}</math> als Funktion der Temperatur.</i> .....	10
Abbildung 2.5: <i>Änderung der Eiskristalldurchmesser als Funktion der Zeit für unterschiedliche <math>S_{Eis}</math> und für <math>T = 253.15</math> K (oben) bzw. <math>T = 233.15</math> K (unten), bei einem Anfangsdurchmesser <math>D_0 = 0.2 \mu m</math>.</i> .....	13
Abbildung 3.1: <i>Schematischer Aufbau der von Rogers (1988) entwickelten Continuous Flow Diffusion Chamber CFDC. In einem Vorimpaktor werden alle Partikel mit einem Durchmesser <math>d &gt; 1 \mu m</math> entfernt, die übrigen Partikel können anschließend in einem Aktivierungs- und Wachstumsbereich, zu Eiskristallen und Tropfen heranwachsen. Die entstanden Tropfen werden anschließend in einer beheizten Sektion der Kammer wieder verdampft und Eiskristalle und Aerosolpartikel mit einem optischen Partikelzähler (OPC) gezählt. Eiskristalle werden anschließend mit einem Impaktor gesammelt und mit einem transmission electron microscope (TEM) analysiert.</i> .....	16
Abbildung 3.2: <i>Bandbreite der mittleren Anzahlkonzentration von IN in <math>m^{-3}</math> als Funktion der Temperatur für unterschiedliche geographische Orte. Die gestrichelte Linie zeigt die Funktion von Fletcher, (1962).</i> .....	18
Abbildung 3.3: <i>Einfluss des Eisknukleationsmodes auf die IN-Anzahlkonzentration in <math>\Gamma^{-1}</math> als Funktion der Temperatur unter <math>0^\circ C</math> für Aerosolpartikel mit einem Radius <math>r_{AP} \geq 0,45 \mu m</math>. Offene Symbole zeigen Beobachtungen im Winter in Laramie</i>	

(Wyoming); Gefüllte Symbole Beobachtungen auf dem Berg Elk (3400m, Wyoming). (Pruppacher und Klett, 1997, nach Cooper, 1980) .....	20
Abbildung 3.4: Einsetzen von Eisnukleation als Funktion von Temperatur und Eisübersättigung für unterschiedliche Komponenten. Bedingungen für Kondensationsgefrieren und Depositionsnukleation sind aufgezeigt. Eisnukleation tritt oberhalb der angezeigten Linien auf; (1) AgI, (2) PbI, (3) Dihydroxynaphthalen, (4) Phloroglucinol, (5) Methaldehyd, (6) Erdboden, (7) Kaolinit, [Pruppacher und Klett, (1997)]. .....	22
Abbildung 3.5: Eisanreicherungsverhältnis, $R_M$ , als Funktion der Temperatur am Wolkenoberrand bestimmt in der Aufwindregion von Wolken über Miles City (Montana). (●) Kleine Kumuluswolken, (Δ) Komplexe Kumuluswolken, (+) eingeschlossene Kumuluswolken; die Linie ist gegeben durch: $\log R_M = 5.9 + 0.295T_C$ , mit $T_C$ der Temperatur am der Wolkenoberrand in °C, [Hobbs et al, (1980)]. .....	22
Abbildung 3.6: Schematische Entstehung von Niederschlag in einer Mischwolke. Ein entscheidender Prozess hierbei ist der Bergeron-Findeisen-Prozess, der schwarz umrandet ist. Hierbei diffundiert bei Temperaturen unter 0 °C Wasserdampf von den Tropfen zu den Eiskristallen auf Grund des geringeren Sättigungsdampfdrucks über Eis im Vergleich zu Wasser. ....	26
Abbildung 4.1: Schematischer Aufbau des von Yang (1999) entwickelten kontinuierlichen, Expansion-CN-Counter. ....	29
Abbildung 4.2: Geometrie der Düse für die Berechnungen von Yang und den FLUENT Berechnungen (links), sowie das Gitter der Geometrie für die FLUENT Berechnungen (rechts). ....	31
Abbildung 4.3: Druckverlauf entlang der x-Achse der Düse für drei unterschiedliche Drücke am Ende der Düse ((oben) FLUENT-Berechnungen, (unten) von Yang (1999)). ....	32
Abbildung 4.4: Temperaturverlauf entlang der x-Achse der Düse für drei unterschiedliche Drücke am Ende der Düse ((oben) FLUENT-Berechnungen, (unten) von Yang(1999)). ....	34
Abbildung 4.5: Geschwindigkeitsverlauf entlang der x-Achse der Düse für drei unterschiedliche Drücke am Ende der Düse ((oben) FLUENT-Berechnungen, (unten) von Yang (1999)). ....	35
Abbildung 4.6: Sättigungsverhältnis in Bezug auf Wasser entlang der x-Achse der Düse für drei unterschiedliche Drücke am Ende der Düse von Yang (1999). ....	36
Abbildung 4.7: FLUENT-Berechnung des Temperaturverlaufs entlang der x-Achse einer 40 cm langen Düse mit einem Druck von 500 hPa am Ende der Düse. ....	37
Abbildung 4.8: Geometrie einer Laval-Düse mit dem Druck $p$ , der Temperatur $T$ und der Dichte $\rho$ vor der Düse mit dem Index 0 und nach der Düse ohne Index. Die Machgeschwindigkeit $M$ ist vor dem minimalen Durchmesser der Düse $M < 1$ und nach der Düse $M > 1$ . ....	39
Abbildung 4.9: Entstehung einer kegelförmigen Wolke am Heck und der Pilotenkanzel eines Düsenjet-Flugzeug durch Expansion und damit adiabatischer Abkühlung	

<i>der Luft beim Überschreiten der Schallgeschwindigkeit [Universität München, (2008)].</i> .....	40
Abbildung 4.10: <i>Geometrie einer sich von 6 mm auf 1 mm verjüngende Düse, die nach 2 cm sich wieder auf ihren Ausgangsdurchmesser aufweitet.</i> .....	41
Abbildung 4.11: <i>Druckverlauf entlang der in Abbildung 4.10 gezeigten Geometrie für einen Druck am Ende der Düse von 600 hPa.</i> .....	41
Abbildung 4.12: <i>Temperaturverlauf entlang der in Abbildung 4.10 gezeigten Geometrie für einen Druck am Ende der Düse von 600 hPa.</i> .....	42
Abbildung 4.13: <i>Grundprinzip des Fast IN CHamber counter (FINCH) mit den verschiedenen Gasflüssen, der gekühlten Wachstumskammer und dem optischen Sensor.</i> .....	45
Abbildung 4.14: <i>Geometrie des Einlassbereiches mit dem dazugehörigen Gitter für die FLUENT-Berechnungen (links) und die gesamte Geometrie der Kammer und dazugehöriges Gitter (rechts).</i> .....	46
Abbildung 4.15: <i>FLUENT-Berechnungen der Stromlinien der Probenluft am Anfang und Ende der Wachstumskammer mit dem Auslass der Kammer in rot. Die rot umrandeten Bereiche sind nochmals vergrößert dargestellt.</i> .....	48
Abbildung 4.16: <i>FLUENT-Berechnungen der Trajektorien für Wassertropfen mit einem Durchmesser von 0.1 <math>\mu\text{m}</math> (links) und 10 <math>\mu\text{m}</math> (rechts) entlang der Wachstumskammer bei einer Aerosolflussrate von 1 l/min. Der Farbcode der Trajektorien zeigt die verstrichene Zeit in Sekunden nach Eintritt des betrachteten Partikel in die Kammer an. Der Trajektorienverlauf ist für den oberen umrandeten Bereich nochmals vergrößert dargestellt.</i> .....	50
Abbildung 4.17: <i>FLUENT-Berechnungen der Trajektorien für Wassertropfen mit einem Durchmesser von 0.1 <math>\mu\text{m}</math> (links) und 10 <math>\mu\text{m}</math> (rechts) entlang der Wachstumskammer bei einer Aerosolflussrate von 5 l/min. Der Farbcode der Trajektorien zeigt die verstrichene Zeit in Sekunden nach Eintritt des betrachteten Partikel in die Kammer an. Der Trajektorienverlauf ist für den oberen umrandeten Bereich nochmals vergrößert dargestellt.</i> .....	51
Abbildung 4.18: <i>FLUENT-Berechnungen der Trajektorien für Wassertropfen mit einem Durchmesser von 0.1 <math>\mu\text{m}</math> (links) und 10 <math>\mu\text{m}</math> (rechts) entlang der Wachstumskammer bei einer Aerosolflussrate von 10 l/min. Der Farbcode der Trajektorien zeigt die verstrichene Zeit in Sekunden nach Eintritt des betrachteten Partikel in die Kammer an. Der Trajektorienverlauf ist für den oberen umrandeten Bereich nochmals vergrößert dargestellt.</i> .....	52
Abbildung 4.19: <i>Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (oben) und Temperatur (unten) für zwei FLUENT-Berechnungen entlang der Wachstumskammer mit einem unterschiedlichen <math>S_{\text{Eis}}</math> von 0.7 und 1.0 des warmen Flusses und den in Tabelle 1 aufgelisteten Parameter der einzelnen Flüsse.</i> .....	54
Abbildung 4.20: <i>Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (oben) und Temperatur (unten) für zwei FLUENT-Berechnungen entlang der Wachstumskammer mit einem unterschiedlichen <math>S_{\text{Eis}}</math> von 0.32 und 1.0 des warmen Flusses und den in Tabelle 2 aufgelisteten Parameter der einzelnen Flüsse.</i> .....	56

- Abbildung 4.21: Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (oben) und Temperatur (unten) für zwei FLUENT-Berechnungen entlang der Wachstumskammer mit einem unterschiedlichen  $S_{\text{Eis}}$  von 0.73 und 1.0 des warmen Flusses und den in Tabelle 3 aufgelisteten Parameter der einzelnen Flüsse. ....58
- Abbildung 4.22: Schematischer Aufbau von FINCH mit dem Verlauf der einzelnen Flüsse (warmer, feuchter, kalter trockener, gesättigte Mantelluft, sowie Probenluft). In lila und grün sind die Kühlkreisläufe des Kryostaten und des Durchlaufkühlers (DLK) zur Kühlung der Kammerwand und der Wärmetauscher sowie zur Vorkühlung der verschiedenen Flüsse dargestellt. ....60
- Abbildung 4.23: Foto des Einlassbereichs mit den um  $15^\circ$  zur Mittelachse der Kammer geneigten Düsen für den kalten und warmen Fluss. Im Zentrum gelangt die Probenluft in die Kammer. Die Düsen sind von einem Luftleitblech umgeben. Durch weitere 100 Düsen um das Luftleitblech strömt die Mantelluft. ....61
- Abbildung 4.24: Schema der Signalverknüpfung von FINCH mit dem Eingang der verschiedenen Signale, Verarbeitung, Ausgabe von Regelparametern zu Steuerung und Ausgabe der Messergebnisse. ....62
- Abbildung 4.25: Benutzeroberfläche (oben), sowie ein Ausschnitt des graphischen Programmcodes (unten) von LabView zur Steuerung von FINCH. ....64
- Abbildung 4.26: Berechnete Transmissionseffizienz abhängig vom Partikeldurchmesser in nm für verschiedene Probeflussraten 1 l/min (rot), 5 l/min (blau) und 10 l/min (schwarz) für den Aerosoleinlass mit Vorkühlung VK (25 cm) und ohne Vorkühlung (125 cm). ....65
- Abbildung 4.27: Ehemaliger Aufbau zur Anfeuchtung der verschiedenen Flüsse mit drei  $\mu\text{l}$ -Pumpen in schwarz, die in einen mit Sintermaterial gefüllten teflonummantelten Messingblock, Wasser pumpen. Das Sintermaterial wird mit Heizpatronen auf  $90^\circ\text{C}$  erwärmt, was zum Verdampfen des Wassers und zur Anfeuchtung der Flüsse führt. Der Grad der Anfeuchtung lässt sich über die Pumpenfrequenz der einzelnen Pumpen steuern. ....67
- Abbildung 4.28: Technische Zeichnung der drei Wärmetauscher zur Temperaturregelung der verschiedenen Flüsse (warm, kalt und Mantelluft) mit den jeweils vier Peltierelementen in weiß und den mit Kühlflüssigkeit durchströmten Messingblöcken zum Abführung der Abwärme. ....68
- Abbildung 4.29: Schematischer Aufbau der Vorkühlung. Durch einen an den Enden verschweißtes Edelstahlrohr mit einem Durchmesser von 50mm strömt über einen Ein- und Auslass Kühlflüssigkeit. Drei durchgeführte 6 mm Rohre und damit die durch sie strömende Luft werden gekühlt und Feuchtigkeit aus der Luft ausgefroren. ....69
- Abbildung 4.30: Foto eines der drei doppelwandigen Kammerzylinder mit den Gewinde für Temperatur-, Taupunkt- und Druckmessung, sowie den Verbindungen für die Kühlflüssigkeit zum Umspülen der gesamten Kammerwand. ....71
- Abbildung 4.31: Foto des Taupunktsfühlers PADDY, mit dem eigentlichen Betauungsfühler, sowie dem Peltierelement zum Erreichen der Taupunkttemperatur und dem Messingstab zur Ableitung der Abwärme des Peltierelements. ....73

Abbildung 4.32: 2D Querschnitt des virtuellen Impaktors mit dem verwendeten Gitter für die FLUENT-Berechnungen (oben) und die Stromlinien entlang des virtuellen Impaktors mit der aktuellen Geschwindigkeit der Partikel in m/s im Farbcode (unten). .....	75
Abbildung 4.33: Partikeltrajektorien für 1.5 µm große Wassertropfen (oben) und für 3.0 µm große Wassertropfen (unten) entlang des virtuellen Impaktors. Im Farbcode zu sehen ist die aktuelle Geschwindigkeit der Partikel in m/s.....	76
Abbildung 4.34: Transmissionseffizienz durch den virtuellen Impaktor für Gesamtflüsse von 50, 60 und 70 l/min als Funktion des Partikeldurchmessers.....	77
Abbildung 4.35: Schematisches Diagramm des optischen Sensors zur Detektion und Unterscheidung von unterkühlten Tropfen und Eiskristallen (links). Der rechte Graph zeigt die Anzahl der Detektionen als Funktion des Verhältnisses $P_{44}/P_{11}$ des gemessenen Streulichts für jedes einzelne Signal.....	78
Abbildung 4.36: Verhältnis $P_{44}/P_{11}$ als Funktion des Streuwinkels für verschiedene Eiskristallformen (Stäbchen, Kugeln und Agglomerate), sowie für Wassertropfen (sphärisch). Der Detektionsbereich von FINCH ist zwischen 100° und 130° Streuwinkel markiert (Abbildung modifiziert nach Hu et al., (2003)). .....	80
Abbildung 4.37: Anzahl der Detektionen als Funktion des Polarisationsverhältnisses $P_{44}/P_{11}$ für Kaolinit (links) und Illit (rechts) mit einem Durchmesser > 3µm. ....	81
Abbildung 4.38: Anzahl der Detektionen als Funktion des Polarisationsverhältnisses für mit einer Sprühflasche generierte Wassertropfen. ....	82
Abbildung 4.39: Anzahl der Eiskristalle bzw. Tropfen als Funktion der Wurzel aus der Summe der gemessenen Detektorintensitäten (proportional zum Durchmesser) jedes detektierten Partikels. In rot für Wassertropfen und in schwarz für Eiskristalle.....	83
Abbildung 4.40: Foto des optischen Sensors ohne Abdeckung, mit Strahlteilungswürfel, $\lambda/4$ -Plättchen, zirkularen Polarisator und Photodioden. ....	84
Abbildung 4.41: Labview-Programmierung zur Auswertung und graphischen Darstellung der Detektorsignale, der Verteilung des Polarisationsverhältnisses und der Anzahlkonzentrationen von CCN und IN. ....	85
Abbildung 4.42: Messung zweier unterschiedlichen Größenverteilungen für Quarzsand mit einem APS der Firma TSI.....	86
Abbildung 5.1: Schematisches Verlaufsdiagramm der Messvorbereitungen bis zur eigentlichen Messung mit einer Zeitachse links.....	87
Abbildung 5.2: Temperaturverlauf der einzelnen Flüsse in °C (oben) und Verlauf der einzelnen Flussraten in l/min (unten). .....	90
Abbildung 5.3: Temperatur in °C (schwarz), Sättigungsverhältnis in Bezug auf Wasser (blau) und Eis (rot), am oberen Rand der Wachstumskammer (oben) und IN (rot, mit Fehlerbalken) und CCN (blau) Anzahlkonzentrationen pro Liter (über eine Minute gemittelt) (unten) im Verlauf einer Messung mit Rußaerosol mit einer Dauer von 900 Sekunden. ....	91
Abbildung 5.4: Temperatur in °C (schwarz), $S_W$ (blau) und $S_{Eis}$ (rot), am oberen Rand der Wachstumskammer (oben) und die IN-Anzahlkonzentrationen in $\Gamma^{-1}$ (gleitender Mittelwert über 10 Sekunden) im Verlauf einer Messung mit	

<i>Rußaerosol mit einer Dauer von 420 Sekunden, mit zwischenzeitlicher Messung mit einem Filter vor dem Aerosoleinlass. ....</i>	92
Abbildung 5.5: <i>Flussdiagramm des Laboraufbaus zur Dispergierung und Messung von verschiedenen Aerosolen. Mit Hilfe eines rotierenden Stabmagneten wird die Substanz aufgewirbelt und die Partikel mit einem partikelfreien Trägergasfluss nach oben in den Glaskolben transportiert. Von dort aus gelangen sie zu den unterschiedlichen Geräten. ....</i>	93
Abbildung 5.6: <i>CN-Anzahlkonzentration als Funktion des Durchmessers gemessen mit dem APS. ....</i>	94
Abbildung 5.7: <i>IN-Anzahlkonzentrationen in <math>l^{-1}</math> als Funktion von <math>S_{Eis}</math> für verschiedene Temperaturen und AgI-Aerosol (oben), sowie die IN-Anzahlkonzentration normiert auf das Maximum der IN-Anzahlkonzentration in logarithmischer Skala als Funktion von <math>S_{Eis}</math> (unten). ....</i>	95
Abbildung 5.8: <i>IN-Anzahlkonzentrationen in <math>l^{-1}</math> als Funktion von <math>S_{Eis}</math> für verschiedene Temperaturen und Kaolinit-Aerosol (oben), sowie die IN-Anzahlkonzentration normiert auf das Maximum der IN-Anzahlkonzentration in logarithmischer Skala als Funktion von <math>S_{Eis}</math> (unten). ....</i>	96
Abbildung 5.9: <i>Einsetzen von Eisnukleation als Funktion von Temperatur und Eisübersättigung für Silberjodid und Kaolinit. Es sind Messungen von Schaller und Fukuta (1979) (durchgezogene Linien), mit FINCH (blau), mit FRIDGE (rot) und von Zimmermann et al. (2007) (schwarz) gezeigt. Die blaue Linie zeigt an, ab welchen Eisübersättigungen Wassersättigung erreicht ist. Der Fehler der Temperatur liegt bei allen Messungen <math>\leq 0.1</math> °C. ....</i>	98
Abbildung 5.10: <i>Karte von Mitteleuropa, bei der die Lage des Jungfraujochs mit einem roten Punkt gekennzeichnet ist (links) und eine Foto der Forschungsstation Sphinx (rechts). ....</i>	99
Abbildung 5.11: <i>Foto der verschiedenen Aerosoleinlässe, Interstitielle, Totale und Eis-CVI Einlass, sowie eine schematische Darstellung des durch die Einlässe gesammelten Aerosols. ....</i>	100
Abbildung 5.12: <i>Messung der CN-Anzahlkonzentration in <math>cm^{-3}</math> am Totalen Einlass bei CLACE 6 auf dem Jungfraujoch mit Angabe des Messzeitraums von FINCH (schwarzer Balken) und den in dieser Arbeit vorgestellten Messungen (rote Balken). Die grau schraffierten Bereiche geben an, wann die Station in Wolken lag. ....</i>	101
Abbildung 5.13: <i>Messung der IN-Anzahlkonzentration in <math>l^{-1}</math> mit FINCH am 5.3.07 bei fast konstantem Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (blaue Linie) und abnehmender Temperatur (rote Linie) im Verlauf der einstündigen Messung. ....</i>	102
Abbildung 5.14: <i>Messung der CN-Anzahlkonzentration in <math>cm^{-3}</math> mit einem Grimm OPC für verschiedene Größenbereiche (schwarz: 0.3 - 0.4 <math>\mu m</math>; rot: 0.4 - 0.5 <math>\mu m</math>; blau: 0.5 - 0.65 <math>\mu m</math> und grün: 0.65 - 0.8 <math>\mu m</math>) am 5.3.07 zwischen 16:55 und 17:55 Uhr. ....</i>	103
Abbildung 5.15: <i>Bild der Sphinx kurz vor Erreichen einer aufsteigenden Wolke aus südlicher Richtung über den Aletschgletscher am 6.3.07 um 10:45 Uhr, mit einer auf der gegenüberliegenden Swisscom-Station installierten Webcam. ....</i>	104



Abbildung 5.16: Rückwärtstrajektorien für das Jungfraujoch am 6.3.07 um 11Uhr (10Uhr UTC)basierend auf dem NOAA Hysplit Model. ....	104
Abbildung 5.17: Messung der CN-Anzahlkonzentration in $\text{cm}^{-3}$ mit einem Grimm OPC für verschiedene Größenbereiche (schwarz: 0.3 - 0.4 $\mu\text{m}$ ; rot: 0.4 - 0.5 $\mu\text{m}$ ; blau: 0.5 - 0.65 $\mu\text{m}$ und grün:0.65 - 0.8 $\mu\text{m}$ ) am 6.3.07 zwischen 10:00 und 11:20 Uhr. ....	105
Abbildung 5.18: Messung der Aerosolmassenkonzentration ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) für unterschiedlich chemische Substanzen als Funktion der Zeit (grün: Organika; rot: $\text{NH}_3$ (Nitrat); blau: $\text{SO}_4$ (Sulfat) und schwarz: $\text{NO}_4$ (Ammonium) am 6.3.07 zwischen 10:00 und 11:20 Uhr am Interstitiellen Einlass [Schneider, (2007)] ....	106
Abbildung 5.19: Messung der IN-Anzahlkonzentration in $\text{l}^{-1}$ mit FINCH am 6.3.07 bei fast konstantem Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (blaue Linie) und einer konstanten Temperatur von $-17^\circ\text{C}$ bei sich ändernden Bedingungen als Funktion der Zeit. Mit einem schwarzen Balken ist der Zeitraum markiert, in dem die Messstation von Wolken umgeben war. ....	106
Abbildung 5.20: Aufbau des Eis-CVI-Einlasses auf der Dachplattform der hochalpinen Forschungsstation Jungfraujoch, sowie einer Zeichnung und Erklärung der einzelnen Komponenten zur Sammlung kleiner Eiskristalle [Mertes et al., (2007)]......	107
Abbildung 5.21: Messung der IN-Anzahlkonzentration in $\text{l}^{-1}$ mit FINCH am 8.3.07 bei fast konstantem Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (blaue Linie) und einer konstanten Temperatur von $-17.5^\circ\text{C}$ am Eis-CVI. Um 16:25 Uhr wurde wieder auf den Totalen Einlass umgeschaltet. ....	108
Abbildung 5.22: Messung der Anzahlkonzentration der Eiskristallresiduen in $\text{l}^{-1}$ mit einem CPC. In rot sind die unkorrigierte Werte der Anzahlkonzentration und in schwarz, die um den Anreicherungsfaktor korrigierten Daten (atmosphärische Werte) gezeigt [Mertes, IfT Leipzig, (2007)]. ....	109
Abbildung 5.23: Messung der CCN-Anzahlkonzentration in $\text{l}^{-1}$ mit FINCH am 8.3.07. Um 16:25Uhr wurde wieder auf den Totalen Einlass umgeschaltet. ....	110
Abbildung 5.24: Temperatur in $^\circ\text{C}$ (schwarz), Sättigungsverhältnis $S_{\text{W}}$ (blau) und $S_{\text{Eis}}$ (rot), am oberen Rand der Wachstumskammer (oben) und IN-Anzahlkonzentrationen pro Liter (schwarz, gleitender Mittelwert über 10 Sekunden) im Verlauf einer Messung mit Arizona Test Dust Aerosol (ATD) mit einer Dauer von 180 Sekunden (unten)......	114
Abbildung 5.25: IN-Anzahlkonzentration in $\text{l}^{-1}$ als Funktion des Sättigungsverhältnis $S_{\text{Eis}}$ , bei konstanter Temperatur ( $-18.5^\circ\text{C}$ ) bei einer Messung mit Arizona Test Dust Aerosol (ATD) mit Angabe des Fehlerbalken für das Sättigungsverhältnis, sowie der IN-Anzahlkonzentration. ....	115
Abbildung 5.26: IN-Anzahlkonzentration in $\text{l}^{-1}$ für Arizona Test Dust ATD am 17.9 in der AIDA als Funktion des Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (oben) und IN-Anzahlkonzentration in $\text{l}^{-1}$ als Funktion des Sättigungsverhältnis in Bezug auf Wasser (unten) bei Temperaturen von jeweils $-15.0^\circ\text{C}$ in rot und $-16.2^\circ\text{C}$ in schwarz. ....	118

- Abbildung 5.27: *IN-Anzahlkonzentration in  $\Gamma^{-1}$  für Arizona Test Dust ATD am 18.9. an der AIDA als Funktion des Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (oben) und IN-Anzahlkonzentration in  $\Gamma^{-1}$  als Funktion des Sättigungsverhältnis in Bezug auf Wasser (unten) bei Temperaturen von jeweils  $-15.8\text{ }^{\circ}\text{C}$  in blau,  $-17.3\text{ }^{\circ}\text{C}$  in schwarz und  $-18.1\text{ }^{\circ}\text{C}$  in rot. ....*119
- Abbildung 5.28: *Weitere Messungen der IN-Anzahlkonzentration in  $\Gamma^{-1}$  für Arizona Test Dust ATD am 18.9. in der AIDA als Funktion des Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (oben) und IN-Anzahlkonzentration in  $\Gamma^{-1}$  als Funktion des Sättigungsverhältnis in Bezug auf Wasser (unten) bei Temperaturen zwischen jeweils  $-18\text{ }^{\circ}\text{C}$  und  $-19\text{ }^{\circ}\text{C}$ . ....*120
- Abbildung 5.29: *IN-Anzahlkonzentration in  $\Gamma^{-1}$  für GfG Ruß als Funktion des Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (oben) und IN-Anzahlkonzentration in  $\Gamma^{-1}$  als Funktion des Sättigungsverhältnis in Bezug auf Wasser (unten) bei Temperaturen von jeweils  $-22.5\text{ }^{\circ}\text{C}$  in rot und  $-22.8\text{ }^{\circ}\text{C}$  in schwarz. ....*123
- Abbildung 5.30: *Häufigkeitsverteilung der Eiskristalle (%) als Funktion Wurzel der Intensität des Streusignals (mV) für Ruß (oben) und ATD (unten). ....*124
- Abbildung 5.31: *IN-Anzahlkonzentration in  $\Gamma^{-1}$  für Sahara Dust als Funktion des Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis in der NAUA (oben) und in der AIDA (unten) bei unterschiedlichen Temperaturen. ....*127
- Abbildung 5.32: *IN-Anzahlkonzentration in  $\Gamma^{-1}$  für SNOWMAX als Funktion des Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis bei unterschiedlichen Temperaturen. ....*128
- Abbildung 5.33: *IN-Anzahlkonzentration in  $\Gamma^{-1}$  für SNOWMAX als Funktion des Sättigungsverhältnis in Bezug auf Wasser bei unterschiedlichen Temperaturen. ....*129
- Abbildung 5.34: *Normierte Aktivierungskurven  $N_{IN}/N_{CN}$  in logarithmischer Skala als Funktion von  $S_{Eis}$  für verschiedene Testaerosoltypen bei einer Temperatur. ....*130
- Abbildung 5.35: *Gemessene Temperatur (schwarz) und Sättigungsverhältnis,  $S_{Eis}$  (blau) während einer Atmosphärenluftmessung der IN-Anzahlkonzentration am Institut für Atmosphäre und Umwelt in Frankfurt am 11.3.2008 von 9:48-10:19 Uhr. ...*132
- Abbildung 5.36: *Gemessene IN-Anzahlkonzentration (gleitender Mittelwert über 20 Sekunden) von Atmosphärenluft am 11.3.2008 von 9:48-10:19 Uhr am Institut für Atmosphäre und Umwelt in Frankfurt. ....*133
- Abbildung 5.37: *Vergleichsmessungen der IN-Anzahlkonzentration  $N_{IN}$  von FINCH und FRIDGE von Atmosphärenluft am 11.3.2008 von 9:48-10:19 Uhr am Institut für Atmosphäre und Umwelt in Frankfurt bei unterschiedlichen Temperaturen, in Abhängigkeit von  $S_{Eis}$ . ....*133
- Abbildung 6.0.1: *Temperatur in  $^{\circ}\text{C}$  (schwarz), Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (rot), am oberen Rand der Wachstumskammer (oben) und IN-Anzahlkonzentrationen pro Liter (blau, (über eine Minute gemittelt) und rot, gleitender Mittelwert über 20 Sekunden im Verlauf einer Messung mit ATD bei konstanter Aerosolanzahlkonzentration mit einer Dauer von 300 Sekunden. ...*150
- Abbildung 6.0.2: *Temperatur in  $^{\circ}\text{C}$  (schwarz), Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis (rot), am oberen Rand der Wachstumskammer (oben) und IN-Anzahlkonzentrationen pro Liter (blau, (über eine Minute gemittelt) und rot,*

*gleitender Mittelwert über 20 Sekunden im Verlauf einer Messung mit ATD bei konstanter Aerosolanzahlkonzentration mit einer Dauer von 300 Sekunden...* 151

Abbildung 6.0.3: *Standardabweichung als Funktion der mittleren IN-Anzahlkonzentrationen in  $l^{-1}$  für den gleitenden Mittelwert (●) und den Minutenmittelwert (■). In rot ist die dazugehörige lineare Regressionskurve den gleitenden Mittelwert mit der Gleichung  $y = 5.5755 \cdot 0.2208x$  und in blau für den Minutenmittelwert mit der Gleichung  $y = 3.61116 \cdot 0.197618x$  gezeigt.* ..... 152

## B.2 Tabellenverzeichnis

Tabelle 1: *Flussraten, Temperaturen und  $S_{Eis}$  der verschiedenen Flüsse (Aerosol-, kalter, warmer und Mantelfluss) für die FLUENT-Berechnungen.* ..... 53

Tabelle 2: *Flussraten, Temperaturen und  $S_{Eis}$  der verschiedenen Flüsse (Aerosol-, kalter, warmer und Mantelfluss) für die FLUENT-Berechnungen.* ..... 55

Tabelle 3: *Flussraten, Temperaturen und  $S_{Eis}$  der verschiedenen Flüsse (Aerosol-, kalter, warmer und Mantelfluss) für die FLUENT-Berechnungen.* ..... 57

Tabelle 4: *Auflistung teilnehmende Institutionen mit dem jeweiligen Instrument an ICIS 2007.* ..... 111

Tabelle 5: *Messzeiträume der verschiedenen Aerosoltypen bei ICIS 2007.* ..... 112

Tabelle 6: *Chemische Zusammensetzung in % von ATD. Gemessen mit der Röntgen-Fluoreszenzanalyse [Möhler et al., (2006)].* ..... 116

Tabelle 7: *Chemische Zusammensetzung von Sahara Dust aus der gleichen Region, wie des bei ICIS verwendeten Staubs. Gemessen mit der Röntgen-Fluoreszenzanalyse [Möhler et al., (2006)].* ..... 125

## B.3 Abkürzungen und Symbole

### Lateinische Symbole

Symbole	verwendete Einheit	Bedeutung
A		Konstante
A*		Konstante
a	m/s	Schallgeschwindigkeit
B		Konstante
B <sub>i</sub>	kg m <sup>-3</sup>	Bildungsrate
b		Konstante für eine bestimmte Luftmasse
C		Konstante für eine bestimmte Luftmasse
C <sub>C</sub>		Cunninghamsche Gleitkorrektur
c <sub>p</sub>	J kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>	spezifische Wärmekapazität
d	μm	Durchmesser
D	m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	Diffusionskoeffizient
D <sub>0</sub>	μm	Anfangsdurchmesser der Aerosolpartikel
D <sub>Eis</sub>	μm	Durchmesser der Eiskristalle
D <sub>i</sub>	cm <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	Diffusionsstrom
D <sub>v</sub>	cm <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	Diffusionskoeffizient
d <sub>x</sub>	m	Kollisionsdurchmesser
F	m <sup>2</sup>	vom Streulicht bestrahlte Fläche
h	J	Enthalpie
I	V~Wm <sup>-2</sup>	Streulichtintensität
I <sub>0</sub>	W m <sup>-2</sup>	Intensität des einfallenden Strahls
J <sub>i</sub>	kg m <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup>	Diffusionsfluss
K <sub>a</sub>	J s <sup>-1</sup>	Wärmeleitfähigkeit von Luft
k	J K <sup>-1</sup>	Boltzmannkonstante
L	m	Rohrlänge
L <sub>s</sub>	J g <sup>-1</sup>	Latente Wärme für Sublimation
m	kg	Masse
M		Machgeschwindigkeit M ≈ 333 m s <sup>-1</sup>
M <sub>w</sub>	kg mol <sup>-1</sup>	Molekulargewicht von Wasser
N <sub>CCN</sub>	cm <sup>-3</sup>	Anzahlkonzentration der Wolkenkondensationskeime
N <sub>CN</sub>	cm <sup>-3</sup>	Anzahlkonzentration der Kondensationskeime
N <sub>IN</sub>	l <sup>-1</sup>	Anzahlkonzentration der Eiskeime
P		Anteil der Partikel
P <sub>44</sub> /P <sub>11</sub>		Polarisationsverhältniss
p	hPa	Druck
p <sub>a</sub>	hPa	der Druck am Auslass des Druckbehälters
p <sub>E</sub>	hPa	Eisdampfpartialdruck

## B Verzeichnisse

---

Symbole	verwendete	
	Einheit	Bedeutung
$p_i$	hPa	der Druck im inneren eines Druckbehälters
$p_M$	hPa	Mischungsdampfdruck
$p_{\text{sat,Eis}}$	hPa	Sättigungsdampfdruck in Bezug auf Eis
$p_{\text{sat,w}}$	hPa	Sättigungsdampfdruck in Bezug auf Wasser
$p_w$	hPa	Wasserdampfpartialdruck
$\Delta p$	hPa	Druckabfall
$Q_s$		Streukoeffizient
$Q$	$\text{m}^3 \text{s}^{-1}$	Volumenstrom durch die Rohrleitung
$r$	$\mu\text{m}$	Radius der Partikel
$R$	$\text{J mol}^{-1} \text{K}^{-1}$	der universalen Gaskonstante für Luft
$R_i$	$\text{kg m}^{-3}$	Nettoproduktionsrate der Spezies $i$
$Re$		Reynoldszahl
$RF$	$\text{W m}^{-2}$	Strahlungsantrieb (Radiative Forcing)
$S_w$		Sättigungsverhältnis in Bezug auf Wasser
$S_{\text{Eis}}$		Sättigungsverhältnis in Bezug auf Eis
$S_{v,i}$	%	relative Feuchte
$S_i$		Übersättigung in Bezug auf eine Eisoberfläche, ( $S_i = S_{\text{Eis}} - 1$ )
$T_0$	K	Temperatur vor der Expansion
$T_1$	K	Temperatur nach der Expansion
$T_a$	$^{\circ}\text{C}$	angenommene Temperatur
$T_{\text{abs}}$	K	Absoluttemperatur des Gases
$T_{\text{act}}$	$^{\circ}\text{C}$	Aktivierungstemperatur des Tropfenwachstums
$T_M$	$^{\circ}\text{C}$	Mischtemperatur
$T_{\tau}$	$^{\circ}\text{C}$	Taupunktssensortemperatur
$T_{\text{Pt}}$	$^{\circ}\text{C}$	Pt-1000- Temperatur
$T$	$^{\circ}\text{C}$	Temperatur
$TP$	$^{\circ}\text{C}$	Taupunktstemperatur
$t$	s	Wachstumszeit
$\bar{v}$	$\text{m s}^{-1}$	Geschwindigkeit des Massevolumens
$Y_i$	$\text{kg m}^{-3}$	örtlicher Massenanteil für jede Spezies $i$

## Griechische Symbole

Symbole	verwendete Einheit	Bedeutung
$\beta$	$K^{-1}$	Konstante
$\rho_i$	$kg\ m^{-3}$	der Dichte der Luft
$\varepsilon$	$s^{-1}$	Dissipationsrate
$\kappa$	$kg\ m\ s^{-1}$	kinetische Energie
$\lambda^*$	m	mittlere freie Weglänge
$\mu_D$		Depositionsparameter
$\omega$	$m\ s^{-1}$	Geschwindigkeit der Luft
$\omega'_a$	$m\ s^{-1}$	Austrittsgeschwindigkeit der Luft aus einem Druckbehälter
$\omega'_{krit}$	$m\ s^{-1}$	kritische Geschwindigkeit
$\zeta$		Widerstandsbeiwert
$\nu$	Pa s	Viskosität der Luft
$\chi$		dimensionsloser Adiabatenkoeffizient

## B.4 Akronyme

AIDA	Aerosol-Interaktion und Dynamik in der Atmosphäre
AP	Aerosolpartikel
APS	Aerodynamic Particle Sizer
ATD	Arizona Test Dust
CCC	condensate controlled capacitance
CCN	Cloud Condensation Nuclei
CFDC	Continous Flow Diffusion Chamber
CLACE	CLoud and Aerosol Characterization Experiment
CN	Condensation Nuclei
CPC	Condensation Particle Counter
CVI	Counterflow Virtual Impactor
DLK	Durchlaufkühler
DWD	Deutscher Wetterdienst
ESEM	environmental scanning electron microscopy
ETH	Eidgenössische Technische Hochschule
F	Filter
FINCH	Fast Ice Nucleus Chamber
FRIDGE	FRankfurt Ice Deposition freezinG Experiment

HALO	High Altitude and Long Range Research Aircraft
HEPA	High Efficiency-Particulate Airfilter
ICIS	The International Workshop on Comparing Ice Nucleation Measuring Systems
IN	Ice Nuclei
INC	Ice Nucleus Counter
IPL	Integrated Photomatrix Limited
LabVIEW	Laboratory Virtual Instrumentation Engineering Workbench
MFC	Mass Flow Controller
MRI	Meteorological Research Institute
OPC	Optical Particle Counter
OS	optischer Sensor
PADDY	Passiv Airflow Dewpoint Detection Assambly
PCI	Peripheral Component Interconnect
PID	Proportional, Integral, Differential
PVC	Polyvinylchlorid
PWM	Pulsweitenmodulation
RS-232	Recommended Standard, Spannungsschnittstelle
SFB	Sonderforschungsbereich
SMPS	Scanning Mobility Particle Sizer
SPP 1294	Schwerpunktsprogramm HALO
TEM	Transmission Electron Microscope
ToF-AMS	Time of Flight Aerosol Mass Spectrometer
V	Dreiwegeventil
VI	Virtuelle Instrumente
VK	Vorkühlung
WT	Wärmetauscher
ZINC	The Zurich Ice Nucleation Chamber

### C Übersicht

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein neuer Eiskeimzähler FINCH (Fast Ice Nucleus CHamber) entwickelt und erste Messungen von verschiedenen Testaerosolen im Labor und atmosphärischem Aerosol durchgeführt.

Die Aerosolpartikel bzw. Ice Nuclei IN werden bei Temperaturen unter dem Gefrierpunkt und Übersättigungen in Bezug auf Eis zum Anwachsen zu Eiskristallen gebracht, um sie mittels optischer Detektion zu erfassen. In FINCH ist dies durch das Prinzip der Mischung realisiert, wodurch eine kontinuierliche Messung der IN-Anzahlkonzentration gewährleistet ist.

Hierbei kann mit sehr hohen Sammelflussraten von bis zu 10 l/min gemessen werden. Ebenso ist ein schnelles Abfahren von verschiedenen Sättigungsverhältnissen in Bezug auf Eis in einem weiten Bereich von 0.9 - 1.7 bei konstanten Temperaturen bis zu  $-23$  °C möglich.

Die Detektion der Eiskristalle und damit der Bestimmung der IN-Anzahlkonzentration erfolgt über einen neu entwickelten optischen Sensor basierend auf der unterschiedlichen Depolarisation des zurückgestreuten Lichtes von Eiskristallen und unterkühlten Tropfen.

In Labormessungen wurden Aktivierungstemperatur und -sättigungsverhältnis von Silberjodid AgI und Kaolinit vermessen. Die Resultate zeigten gute Übereinstimmungen mit Ergebnissen aus der Literatur sowie Parallelmessungen mit FRIDGE (FRankfurt Ice Deposition freezinG Experiment). FRIDGE ist eine statische Diffusionskammer zur Aktivierung und Auszählung von Eiskeimen, die auf einem Filter gesammelt wurden.

Bei atmosphärischen Messungen auf dem Jungfraujoch (Schweiz) lagen die IN-Anzahlkonzentrationen mit bis zu  $4 \text{ l}^{-1}$  im Rahmen der aus der Literatur bekannten Werte. Messungen der Eiskristallresiduen von Mischwolken zeigten hingegen, dass nur jedes tausendste als Eiskeim im Depositionsmode aktiv ist. Hier scheinen andere Gefrierprozesse und sekundäre Eiskristallbildung von sehr großer Bedeutung für die Anzahlkonzentration der Eiskristallresiduen zu sein.

Eine weitere Messung von atmosphärischem Aerosol in Frankfurt zeigte IN-Anzahlkonzentrationen bis zu  $30 \text{ l}^{-1}$  bei Aktivierungstemperaturen um  $-14$  °C.

Die parallele Probenahme auf Siliziumplättchen für die Messungen der IN-Anzahlkonzentration in FRIDGE ergaben Werte im gleichen Anzahlkonzentrationsbereich.



### D Abstract

Within the scope of this work a new ice nuclei counter FINCH (Fast Ice Nucleus CHamber) was developed and first measurements of different test aerosol and atmospheric aerosol were carried out.

Aerosol particle respectively ice nuclei IN grow to ice crystals in the instrument at temperature below frost-point and super-saturation with respect to ice, to count and classify their phase with an optical detector. Within FINCH supersaturated conditions are realized with the principle of mixture, whereby it is ensured to get a continuous measurement of the IN-number concentration.

It is possible to measure with a very high sample flow rate up to 10 l/min. Furthermore a fast scan of different saturation ratios with respect to ice in a wide range of 0.9 - 1.7 at constant temperature down to  $-23\text{ }^{\circ}\text{C}$  is possible.

The detection of the ice crystals and so the measurement of the IN-number concentration is done by a new developed optical sensor based on the different depolarisation of the backscattered light of ice crystal and super-cooled droplets.

In laboratory measurement the activation temperatures and saturation ratios of silver iodide AgI and caolinite were measured.

The results show good agreement with literature data and parallel measurements with FRIDGE (FRankfurt Ice Deposition freezinG Experiment). FRIDGE is a static diffusion chamber for activation and counting the ice nuclei, which were sampled on filters.

During Atmospheric measurements at the Jungfrauoch (Switzerland) the IN-number concentration were up to  $4\text{ l}^{-1}$  and so in the range of literature data.

Measurements of ice crystal residuals of mixed clouds show on the other hand, that only one of thousand is active as an IN in the deposition mode. Here other freezing processes and secondary ice nucleation seem to have a high impact for the number concentration of the ice crystal residual.

A further measurement of atmospheric aerosol in Frankfurt showed IN-number concentration up to  $30\text{ l}^{-1}$  at an activation temperature of  $-14\text{ }^{\circ}\text{C}$ .

The parallel sampling on silicon wafer for the measurements in FRIDGE yield to IN-number concentration values in the same range.

## **Erklärung der Selbständigkeit**

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig und unter Verwendung ausschließlich der angegebenen Quellen angefertigt habe.

Mainz, den 11.07.2008  
(Björn Nillius)

# Veröffentlichungen in Verbindung mit der vorliegenden Arbeit



## SFB 641 „Die troposphärische Eisphase“ TROPEIS Model Calculations and Characterization of the Fast Ice Nucleus Counter FINCH



B. Nillius<sup>1</sup>, Prof. R. Jaenicke<sup>1</sup>, U. Bundke<sup>2</sup>, T. Wetter<sup>2</sup>, H. Bingemer<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Institute for Atmospheric Physics, Johannes Gutenberg University, 55099 Mainz, Germany

<sup>2</sup>Institute for Atmospheric and Environment, J.W. Goethe-University, 60325 Frankfurt

Contact: nillb005@students.uni-mainz.de

### Introduction

Among the cloud condensation nuclei (CCN) in the troposphere ice nuclei (IN) play a special role for the formation of precipitation by the Bergeron-Findeisen process (Pruppacher, 1997). The number concentration of the IN, the temperature and the ice-super saturation to activate the IN are considered as key information to the understanding of ice formation in clouds. In the past, comparative measurements with different instruments showed large differences of deposition mode freezing IN concentrations (Vali, 1975) due to different measuring methods and sampling strategies. Furthermore long sampling times are needed to obtain a sufficient statistic. During long sampling times considerable concentration fluctuations may occur. These points complicate the interpretation of measured data. Therefore a Fast Ice Nuclei Counter FINCH (Fast Ice Nucleus Chamber) was developed at the Institute for Atmosphere and Environment Frankfurt together with the Institute for Atmospheric Physics in Mainz (Fig.1). IN particles are activated within the chamber at certain ice super saturation and temperature by mixing three gas flows, a warm moist, a cold dry, and an aerosol flow. After activation the particles will grow in a processing chamber of about 1m length. With a new developed optical detector it is possible to distinguish between super-cooled droplets and ice particles to obtain the number concentration of CCN and IN. FINCH is called a fast IN-Counter because of the high flow rate of the aerosol probe of about 10 l/min. Considering a number concentrations of 10 IN/l, a measuring period of 1minute is sufficient to obtain good statistics.

### Model Calculations and Characterization

FLUENT 3D calculations were performed on the actual chamber geometry to get information about the conditions within the chamber. The aim was to calculate flow conditions in the chamber at different flow rates, considering an aerosol flow of about 10 l/min. The flow rates were optimized for high residence time for particle development and minimization of aerosol losses.

The calculations show residence time of about 4,5 seconds in the development section of the chamber at an aerosol flow rate of 10 l/min combined with a sheath air flow and a cold flow-rates of 20 l/min and a warm flow rate of 10l/min.

Higher flow rates of cold and sheath flow up to 50 l/min are possible without changing the principle flow characteristics, but considerable shorter residence times. Considering this result we are able to achieve a wide range of possible super saturation and temperature for IN and CCN activation.

These calculations were proved by measurements made with a new developed small heated dewpoint-mirror (Bundke et al. 2006) at different temperatures and saturations in the chamber.

Fig. 2 shows a comparison of the measured temperature and saturation for the given flows in table 1.

All temperatures of the different flows and the relative humidity with respect to ice for the aerosol flow were measured. The sheath and warm gas flows are assumed to be saturated after the cooling unit. The cold flow was dried by cold trap. The temperature of the chamber wall was 260.6K during this experiment.

Table 1: Temperature, relative humidity over ice and flow rates for the different flows

The result show a very good consistency of measurement and calculation. Furthermore at 0.4 m distance nearly constant minimum temperature and maximum saturation conditions were reached. Thus it is possible to deduce at which temperature and saturation the IN were activated with one measurement of temperature and super saturation.

In Fig.3 shows two example (1+2) of the control of temperature and saturation (over water and ice) for a 35 minutes period. In phase 1 we controlled the saturation over ice to 1.13. With an intern PID controlling the injection of water into the warm flow the desired super saturation in the chamber can be adjusted. After an interruption we started the saturation controlling again (phase 2). After 2 minutes the desired saturation over ice (1.05) was reached. Temperature can be adjusted down to 235 K and saturation over wide range. These temperatures and saturations cover the whole regime of IN activation.

### Conclusion and Outlook

FLUENT calculation and the measurement of the temperature and saturation in the FINCH IN counter were made. The results show a very good consistency of measurement and calculation. The temperature and saturation is controlled automatically and will hold on constant conditions. So it is possible to activate IN at well known conditions and with a high time resolution.

For the near future a measurement of the deliquescence curves for different aerosol probes (e.g. caolinite, AgI, desert dust etc.) are planned.

Also the instrument will be integrated on board of the High Altitude and LOng range research aircraft.

### Literatur:

- Pruppacher, H.R. & J.D. Klett (1997). *Microphysics of cloud and precipitation*. Kluwer, Netherlands.
- Vali, G. (1975): *Ice Nucleation Workshop*. Bull. Amer.Meteorol. Soc. 56, 1180-1184.
- Bundke et al., A new, fast Frost-/Dew point hygrometer with an active Sensor area of 4 mm<sup>2</sup>, Proceedings of the EGU, 2006

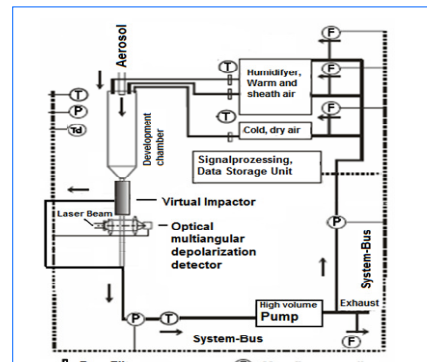


Fig. 1: Schematic flow diagram of the Finch IN counter

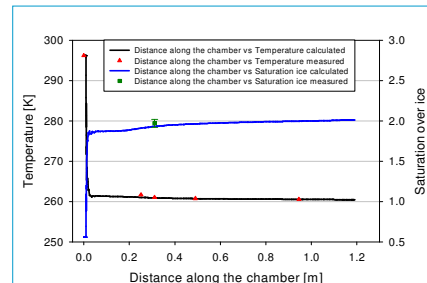


Fig. 2: Comparison of measured temperature and saturation and calculated

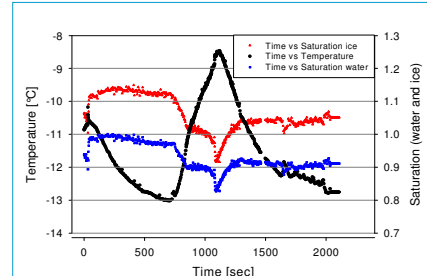


Fig. 3: Measurement of temperature and saturation (over ice and water) over about 35 minutes

### Acknowledgements:

This work is supported by the special research grant SFB 641 of the German Science Foundation "The Tropospheric Ice Phase", Project A1.

Eingereichter Abstract zum mündlichen Vortrag bei der European Geosciences Union (EGU) Konferenz in Wien, 2007:

Geophysical Research Abstracts, Vol. 9, 08681, 2007  
SRef-ID: 1607-7962/gra/EGU2007-A-08681  
© European Geosciences Union 2007

## **First Measurement Results of the Fast Ice Nucleus Counter FINCH**

**B. Nillius** (2), H. Bingemer (1), U. Bundke (1), R. Jaenicke (2), and T. Wetter (1)

(1) University of Frankfurt, Institute for Atmosphere and Environment, Germany, (2) University of Mainz, Institute for Atmospheric Physics , Germany

Among the cloud-active aerosols, the tropospheric ice nuclei (IN) play a special role in the formation of precipitation considering the Bergeron-Findeisen process (Pruppacher, 1997). The number concentration of the IN, the temperature and the ice-super saturation to activate the IN are considered as key information to the understanding of ice formation in clouds. In the past, comparative measurements with different instruments showed large differences of deposition mode freezing IN concentrations (Vali, 1975). This is the result of different measuring methods and sampling strategies. Furthermore long measurement periods are needed to obtain a sufficient statistic. In such periods considerable concentration fluctuations occur. These points complicate the interpretation of measured data.

Therefore a Fast Ice Nuclei Counter FINCH (Fast Ice Nucleus Chamber) was developed at the Institute for Atmosphere and Environment Frankfurt together with the Institute for Atmospheric Physics in Mainz. IN particles are activated within the chamber at certain ice super-saturation and temperature by mixing three gas flows, a warm moist, a cold dry, and an aerosol flow. After activation the particles will grow while they pass a processing chamber.

With a new developed optical detector it is possible to distinguish between supercooled droplets and ice particles (result of activated IN) to obtain the number concentration of IN. This is done in two ways: 1) by measuring the depolarisation ratio  $P_{44}/P_{11}$  and 2) by measuring the asymmetry ratio of forward scattering at  $30^\circ$  scattering angle.

FINCH is called a fast IN-Counter because of the high flow rate of the aerosol sample of 5-10 l/min. With number concentrations from 10 IN/l this leads to a measuring period of 1-2 minutes, sufficient to obtain good statistics. The presentation will show measurements of the deliquescence curves for different aerosol samples (e.g. caolinite, AgI, desert dust etc.) and furthermore the first results of the field measurements at the Jungfrauoch (CLACE 2007).

*Acknowledgments:* This work was supported by the German Research Foundation, SFB 641, The tropospheric Ice Phase - TROPICE , TP A1

## ARTICLE IN PRESS

ATMOS-01715; No of Pages 7

Atmospheric Research xxx (2008) xxx–xxx



Contents lists available at ScienceDirect

Atmospheric Research

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/atmos](http://www.elsevier.com/locate/atmos)

## The fast Ice Nucleus chamber FINCH

U. Bundke<sup>a,\*</sup>, B. Nillius<sup>b</sup>, R. Jaenicke<sup>b</sup>, T. Wetter<sup>a</sup>, H. Klein<sup>a</sup>, H. Bingemer<sup>a</sup><sup>a</sup> Institute for Atmosphere and Environment, J.W. Goethe University, Frankfurt, Germany<sup>b</sup> Institute for Atmospheric Physics, J. Gutenberg University, Mainz, Germany

## ARTICLE INFO

## Article history:

Received 15 October 2007

Received in revised form 31 January 2008

Accepted 4 February 2008

Available online xxxxx

## Keywords:

Heterogeneous nucleation

Ice Nucleus Counter

## ABSTRACT

We present first results of our new developed Ice Nucleus (IN) counter FINCH from the sixth Cloud and Aerosol Characterization Experiment (CLACE6) campaign at Jungfraujoch station, 3571 m asl. Measurements were made at the total and the ICE CVI inlet. Laboratory measurements of ice onset temperatures by FINCH are compared to those of the static diffusion chamber FRIDGE (Frankfurt Ice Deposition Freezing Experiment). Within the errors of both new instruments the results compare well to published data.

© 2008 Published by Elsevier B.V.

## 1. Introduction

Ice nuclei (IN) initiate the formation of primary ice in tropospheric clouds. It is fairly well understood that in mixed phase clouds precipitation develops by the growth of ice crystals at the expense of the evaporating water drops in what is called the Bergeron–Findeisen process (Findeisen, 1938). However, the role of IN in the development of clouds and precipitation is still poorly understood and needs to be studied (Levin and Cotton, 2007).

The number concentration of IN as well as the temperature and supersaturation required to “activate” IN are considered as key information for the understanding of primary ice formation in clouds. However, the concentration of ice particles in a cloud can exceed the actual IN concentration by orders of magnitude due to ice multiplication processes. The existence of different modes of nucleation (Condensation-, immersion-, contact-, and deposition-freezing) during both the activation of IN in the atmosphere and in the various different IN detection instruments is a further complication. While off-line methods that collect aerosol on substrates (e.g. filters, impaction plates) and subsequently measure IN by counting the ice crystals that develop upon exposure of the substrate to freezing temperatures and supersaturation may be suitable to study air mass characteristics on a time scale of hours, in situ methods are required to study the microphysics of cloud development on the scale of minutes, especially when an airplane is used as a platform. In the past, intercomparisons (Vali, 1975) had shown large differences of deposition mode freezing IN concentrations

measured by various methods. It appears that continuous-flow-device measurements (e.g. Rogers, 1982; Al-Naimi and Saunders, 1985) exhibit roughly a factor of 10 higher concentrations of IN at warmer temperatures than filter processing systems (Levin and Cotton, 2007). Making use of the data by Rogers (1982) and by Al-Naimi and Saunders (1985) Meyers et al. (1992) developed their well-known parameterization of IN concentration as a function of supersaturation.

Measurements with the Continuous Flow Diffusion Chamber (CFDC) of the Colorado State University (Rogers et al., 2001a) meanwhile have provided many IN concentration data for various atmospheric environments (Rogers et al., 1998, 2001b; DeMott et al., 2003a;) as well as of IN chemical composition (DeMott et al., 2003b).

Within the collaborative Research Center 641 TROPICE, funded by the German Research Foundation, two IN counters called FINCH (Fast Ice Nucleus Chamber, a continuous flow mixing chamber) and FRIDGE (Frankfurt Ice Deposition Freezing Experiment, a static vacuum vapour diffusion chamber) were developed and are described briefly below. The first measurements using test aerosol as well as first results from the CLACE 6 Campaign at Jungfraujoch research Station at 3570 m asl are presented.

## 2. Methods

## 2.1. FINCH principle of operation

The Fast Ice Nuclei Counter FINCH (Bundke et al., 2006a) was developed jointly by the Institute for Atmosphere and Environment Frankfurt and the Institute for Atmospheric Physics in Mainz (Fig. 1). In FINCH, a 5–10 lpm sample air flow is introduced into the supersaturation zone at the upper end of the annular processing chamber (Fig. 1). Here, supersaturation (with respect to water or ice) is

\* Corresponding author.

E-mail address: [ulrich.bundke@web.de](mailto:ulrich.bundke@web.de) (U. Bundke).

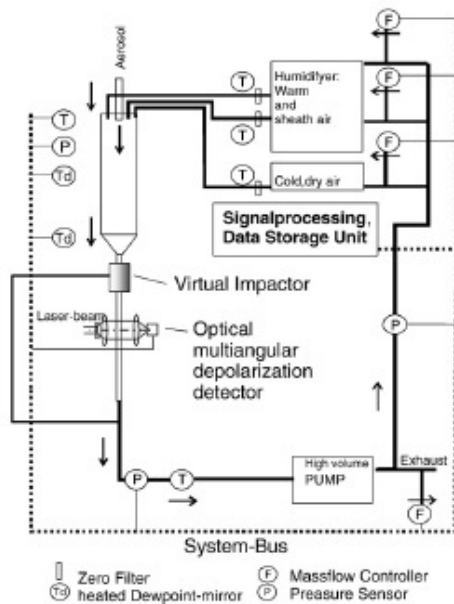


Fig. 1. Schematic flow diagram of the FINCH counter.

produced by the mixing of particle-free warm, humidified air and cold dry air. Temperature and supersaturation are actively controlled using PID (Proportional Integral Derivative) algorithms with measurements of temperature and frost point as process variables. IN and CCN are activated and grow to macroscopic ice crystals or supercooled water droplets of 5 to 10  $\mu\text{m}$  size as the sample travels along the temperature controlled, annular processing chamber of about 1 m length and 9 cm internal diameter. Large particles are separated from the total sample flow by a virtual impactor (Nozzle diameter 4 mm, Nozzle gap 3.5 mm) and thus concentrated into 10% of the total flow to reduce the flow speed in the optical detector downstream (Nozzle diameter 3 mm, 3 mm diameter of the Laser beam in the detection volume). The design of the virtual impactor ensures a transmission efficiency of 100% for particles larger than 3  $\mu\text{m}$  at total flow rates larger than 50 lpm (see Fig. 2). With our new developed optical detector it is possible to distinguish between supercooled droplets and ice particles to obtain the number concentrations of CCN and IN. FINCH is called a fast IN-counter because of its high sample flow rate of 5–10 l/min. Considering a number concentration of 10 IN/l, a measuring period of 1 up to 2 min will be sufficient to obtain good statistics.

2.2. Benefits of the mixing principle

In the CFDC type IN counters (Rogers, 1988) supersaturation is controlled by the temperature difference between two annular concentric walls which are ice coated. A laminar sample air flow is introduced into the 1 cm gap in between the walls, and a linear temperature gradient will establish. Water vapour will diffuse from the warmer walls into the flow and towards the cold surface. A supersaturation profile will establish, with a maximum near the center of the gap and saturated conditions near the walls. Particles are introduced and held focused in the small zone (1 mm) of maximum supersaturation.

In general, the mixing principle realized in FINCH has several benefits in comparison to the CFDC style IN counters:

1. No gradients of supersaturation and of temperature are imposed perpendicular to the flow direction, thus it is not necessary to focus the aerosol beam. As a consequence higher sample flowrates up to 10 lpm can be realized. In CFDC type counters a displacement of the particle beam (e.g. by thermophoresis or by misalignment) may result in large errors of the calculated supersaturation and temperature.
2. In FINCH supersaturation and temperature are measured and directly controlled without affecting the particle beam. In CFDC type counters both parameters have to be calculated as function of the flowrate and wall temperatures.
3. Temperature and supersaturation can be changed rapidly by varying the flows of FINCH. In CFDC type counters both temperature and supersaturation can be changed only by changing wall temperatures, which needs some time, because of a large heat capacity of the walls.

2.3. FINCH: fluid mechanic characterization

The three-dimensional distributions of temperature, humidity, and velocity in the chamber were calculated for a variety of different flow rates using FLUENT 3D. The flow rates were optimized with respect to residence time for particle growth and minimization of aerosol losses. For 10 l/min of aerosol flow an optimal residence time of about 4.5 s was found for a combination of 20 l/min of both cold air and sheath air, and 10 l/min of warm air. Higher flow rates of cold and sheath flows up to 50 l/min are possible without changing the basic flow characteristics, but with considerable shorter residence times. Longer residence times are achieved by lowering the flow rates proportionally. But this will result in a poorer count statistics at atmospheric conditions. The results indicate that the instrument is able to measure IN and CCN activation under a wide range of possible supersaturations and temperatures.

These fluid mechanic calculations were compared to measurements made with a newly developed small heated dew point mirror (Bundke et al., 2006b) at a variety of different temperatures and saturation ratios in the chamber. The result shows a very good consistency of measurement and calculation (see Fig. 3a). The dewpoint sensor is now used to actively control the supersaturation during the mixing process.

For optimum flow conditions both temperature and humidity have stabilized and remain constant after a distance of 10 cm downstream from the inlet and point of mixing (Fig. 3b). Thus it is possible to deduce the peak supersaturation and corresponding temperature

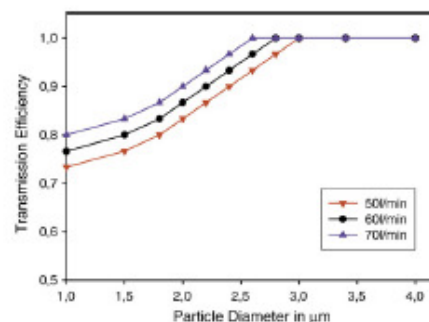


Fig. 2. 2D Model calculations of the virtual impactor transmission efficiency with different flow rates (40, 60, 70 l/min).

Please cite this article as: Bundke, U., et al., The fast Ice Nucleus chamber FINCH, Atmospheric Research (2008), doi:10.1016/j.atmosres.2008.02.008

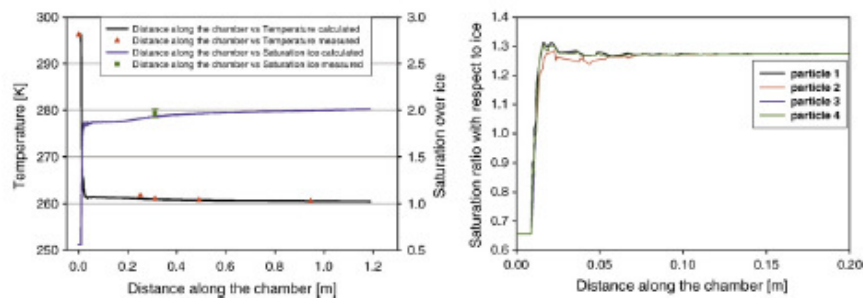


Fig. 3. 3D Model calculations of the FINCH geometry with different flow rates. Calculated temperature and super saturation along particle trajectories were compared with measurements (left). By optimizing the flow rates peak supersaturation seen by individual particles (of 1µm diameter and different starting points across the aerosol inlet nozzle) can be avoided.

from the measurement of temperature and frost point at 10–20 cm without influencing the particle beam. In order to avoid the occurrence of high undiscovered supersaturations (Fig. 3b) measurements with a second sensor were done at 3 cm distance. These proved the general profiles to be correct.

The calculations of particle trajectories show a transmission of near 100% of 0.1–10 µm size particles in the inlet and processing section.

2.4. FINCH: detection of ice nuclei and droplets

Cloud-active aerosols grow to supercooled droplets or ice crystals of 5–10 µm size while they travel through the processing chamber. For the detection and discrimination of super-cooled droplets and ice-crystals we have developed a new optical detector, shown in Fig. 4a.

It is based on the different depolarization of scattered light by ice crystals and by droplets, as described by Hu et al. (2003). The Stokes vector (I, Q, U, V), describing the state of polarization of the radiation after scattering is given by the product of the scattering matrix and the Stokes Vector of the incident radiation (I<sub>0</sub>, Q<sub>0</sub>, U<sub>0</sub>, V<sub>0</sub>).

$$\begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} P_{11} & P_{12} & 0 & 0 \\ P_{12} & P_{22} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & P_{33} & P_{34} \\ 0 & 0 & -P_{34} & P_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I_0 \\ Q_0 \\ U_0 \\ V_0 \end{pmatrix} \quad (1)$$

The Stokes Vector can be easily derived by measuring the intensity  $P_x$  of the radiation at different polarized directions (here the index x indicates

the direction of linear polarization. The index  $X=RZ$  and  $X=IZ$  describes right circular and left circular polarization, respectively).

$$\begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} P_{0^\circ} + P_{90^\circ} \\ P_{0^\circ} - P_{90^\circ} \\ P_{45^\circ} - P_{135^\circ} \\ P_{RC} - P_{LC} \end{pmatrix} \quad (2)$$

If the incident radiation of unity intensity ( $I=1$ ) is completely right circular polarized, then the Stokes Vector becomes (1, 0, 0, 1). The Stokes Vector of the scattered radiation then reads

$$\begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 \\ P_{12}/P_{11} \\ P_{34}/P_{11} \\ P_{44}/P_{11} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} P_{11} & P_{12} & 0 & 0 \\ P_{12} & P_{22} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & P_{33} & P_{34} \\ 0 & 0 & -P_{34} & P_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (3)$$

In the experimental setup of our optical detector (Fig. 4a) a Laser beam (primary linear polarized) passes first a circular polarizer before entering the detection volume. Thus his normalized Stokes Vector reads (1, 0, 0, 1). Droplets and ice crystals scatter this incident beam of radiation. Backscattered light is detected and analyzed for the circular polarization (Component V of the Stokes Vector) at 115° scattering angle. Therefore the scattered light passes a λ/4 retarder (quarter wave plate) and a polarizing beam splitting cube to analyze for  $P_{LC}$  and  $P_{RC}$ . The quarter wave plate converts the circularly polarized light into linear polarized light that is polarized at either 45° or 135° from the principal axis, depending on the direction of rotation of the incident circular polarization. The quarter wave plate is followed by a polarizing beam-splitter oriented to separate the components of linear polarized light. Separate detectors measure the two

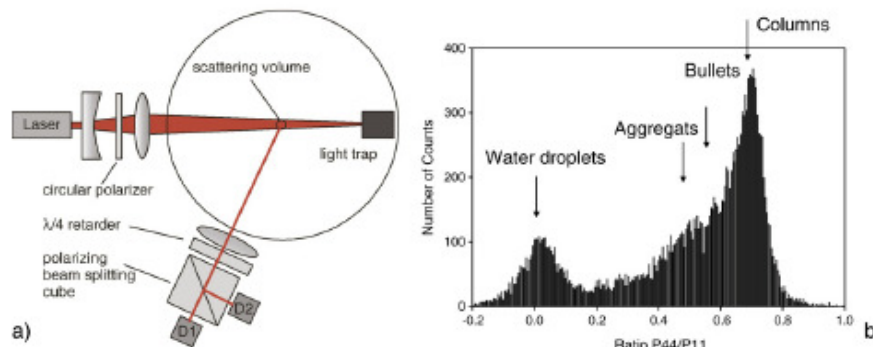


Fig. 4. Schematic diagram of the optical sensor for detection and discrimination of super-cooled droplets and ice-crystals (left). The right graph shows the Histogram (frequency of occurrence) of FINCH measurements as function of the ratio  $P_{44}/P_{11}$  of scattered light from single particles.  $P_{11}$  and  $P_{44}$  are elements of the scattering matrix.

Please cite this article as: Bundke, U., et al, The fast Ice Nucleus chamber FINCH, Atmospheric Research (2008), doi:10.1016/j.atmosres.2008.02.008

ARTICLE IN PRESS

4

U. Bundke et al. / Atmospheric Research xxx (2008) xxx–xxx

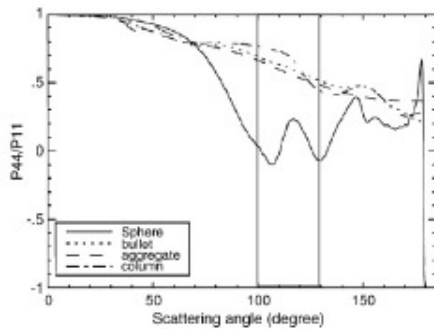


Fig. 5. Ratio P44/P11 as function of scattering angle for different ice crystals types (bullet, aggregate and column) as well as water droplets (spheres). The FINCH detection range is marked between 100 up to 130° scattering angle (Adapted from Hu et al. (2003)).

perpendicular linear polarized beams emanating from the polarizing beam splitter which give the values of  $P_{LC}$  and  $P_{RC}$  respectively. Thus it is possible to determine the ratio of P44/P11 by normalization of  $V$  with  $I = P_{RC} + P_{LC}$ . Following Hu et al. (2003) this ratio shows a maximal difference for water droplets and different types of ice crystals as a function of scattering angle at a  $\pm 15^\circ$  range centred at 115° scattering angle (See Fig. 5).

Thus it is possible to discriminate droplets with a high accuracy from crystals. (see Fig. 4b).

2.5. The Frankfurt Ice Deposition freezing Experiment: FRIDGE

We have recently set up the static diffusion chamber FRIDGE for the activation and counting of ice nuclei sampled on filter substrates. This device, which was first set up by Meyer and Gravenhorst (1976), was rebuilt using state of the art equipment (Bundke et al., 2006c, Klein et al., 2007). Its combination of the low-tech sampling approach with modern

sample and data processing methods promises easy sampling for the establishment of an environmental climatology of IN, and allows us to make comparison between our present work and the one made earlier, as well as to compare to in situ-methods.

Aerosol is sampled on 47 mm diameter cellulose nitrate membrane filters (Millipore HABPO4700). For the measurement of IN number, filters are exposed inside FRIDGE to sub-freezing temperatures and ice supersaturation. Filters are placed on top of a Peltier cooled plate, using a little amount of Vaseline™ to enhance the heat transfer.

Using a micro PT1000 Sensor on the filter surface, the filter surface temperature is directly controlled via a PID controller by adjusting the cooling rate of the Peltier element. The chamber is connected to a water vapor source (see Fig. 6) and a turbomolecular pump. After evacuating the chamber and connection to the vapour source the resulting pressure in the chamber depends only on the temperature of the vapour source. The water vapor supersaturation over the filter's surface is derived from the pressure in the chamber and the temperature of the filter. The water vapor pressure is measured by a Datametrics barocell pressure sensor and is controlled (PID) by adjusting the temperature of the water vapour source. Thus it is possible to adjust the filter temperature and the corresponding supersaturation with an accuracy of typically below 0.03 K and 0.7% RH<sub>ice</sub> at -10 °C and 1.5% RH<sub>ice</sub> at -25 °C respectively.

Upon activation, ice nuclei on top of the filter surface grow to macroscopic ice crystals and are observed by a CCD camera and counted by an automatic picture analysis software (Fig. 7). All instrumental parameters are fully controlled via LABVIEW™. Since the coordinates of each individual ice particle on the filter are recorded, the filters can be reanalyzed with ease by electron microscopy.

3. Results and discussion

3.1. First Measurements during CLACE 6

The capabilities of FINCH were first exhibited during the CLACE 6 experiment. As an example Fig. 8 shows the number-concentration of IN

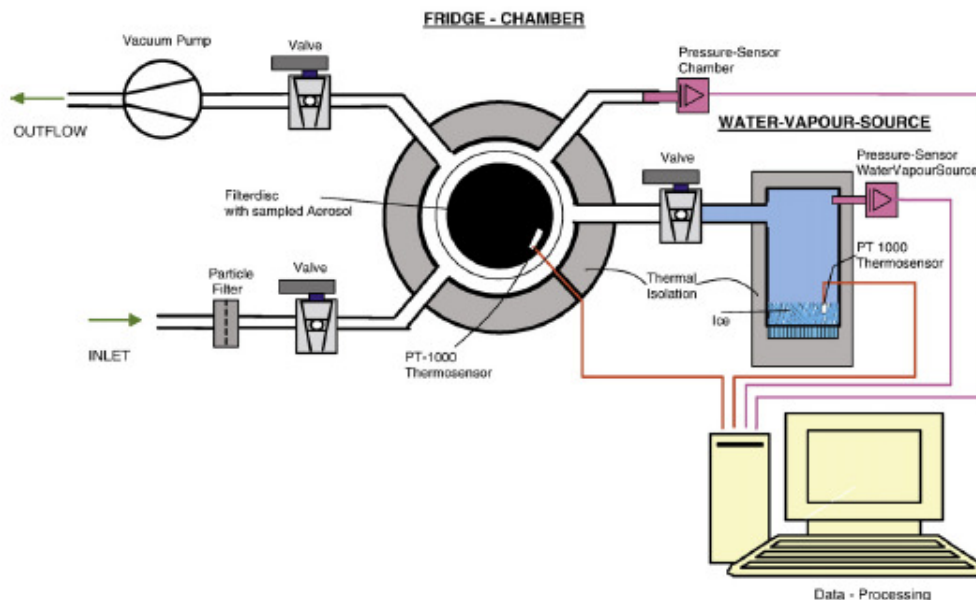


Fig. 6. FRIDGE (Frankfurt Ice Deposition freezing Experiment) schematic diagram.

Please cite this article as: Bundke, U., et al., The fast Ice Nucleus chamber FINCH, Atmospheric Research (2008), doi:10.1016/j.atmosres.2008.02.008



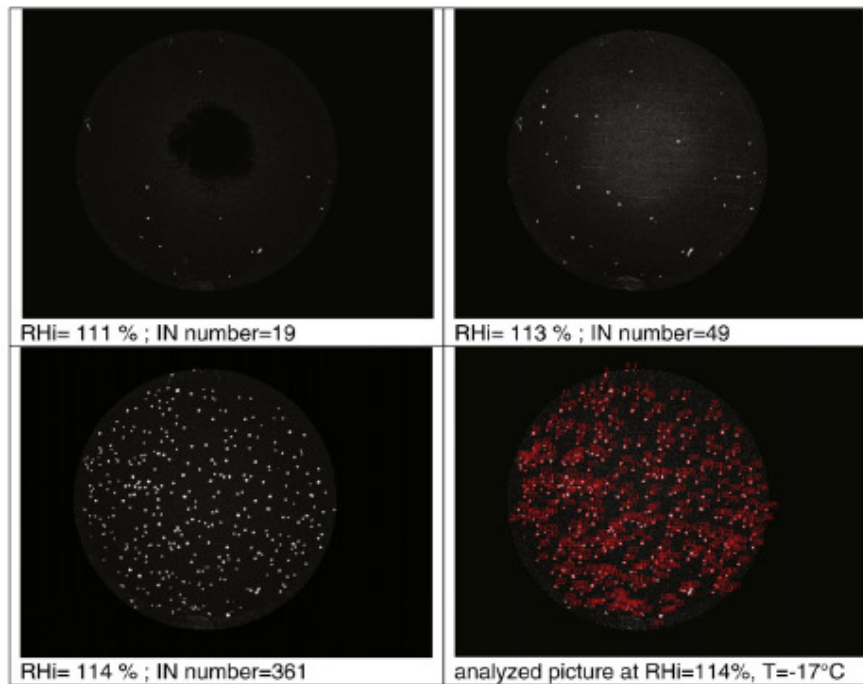


Fig. 7. Typical IN activation of an atmospheric aerosol filter sample within the FRIDGE chamber. The first IN activation here is observed at 111% RH<sub>ice</sub>. The number of ice crystals increases rapidly with rising RH<sub>ice</sub>. All images are differential images between a real image taken at the activating conditions T, RH<sub>ice</sub> and a reference taken before activation. Grayscale Differences are magnified by a factor of 9.

as 1 min average values during a cloud event. Boundary layer air reached Jungfraujoch station at 10:30, where CN increased (see Fig. 8b). Fig. 8a shows that the IN concentration rose up to 4 IN/l until at 10:50 a cloud reached the station. IN concentration then fell rapidly but CN remained at a constant level. IN were incorporated into hydrometeors, which could not enter the inlet. The temperature and supersaturation were kept constant at -17 °C and 20% with respect to ice, to be comparable with ambient conditions.

### 3.2. Laboratory measurements

Using FINCH and FRIDGE we have determined the number concentration of IN in various test aerosols as a function of supersaturation and temperature. Fig. 9 displays our measurements of kaolinite test dust by FINCH in terms of the activation ratio, i.e. the number of IN divided by the maximum number of IN observed at the highest supersaturation. A steep increase of activation ratio below -16.5°C and above 20% of ice supersaturation is apparent.

Fig. 10 compiles measurements of the temperature and supersaturation at the onset of icing on various test substances by FINCH, and FRIDGE, together with those of Schaller and Fukuta (1979) and Zimmernann et al. (2007). In our measurements the first ice was considered to be present when the activated fraction of IN exceeded a threshold of 2% of the maximum value. The different measurements agree reasonably well within the errors of the measurements. The FINCH data of Fig. 9 were measured within one hour, thus supporting the adverb "Fast" in the instruments name.

### 3.3. Conclusion and outlook

The instruments FINCH for fast in situ-counting and FRIDGE for off line-counting of atmospheric ice nuclei have been set up and

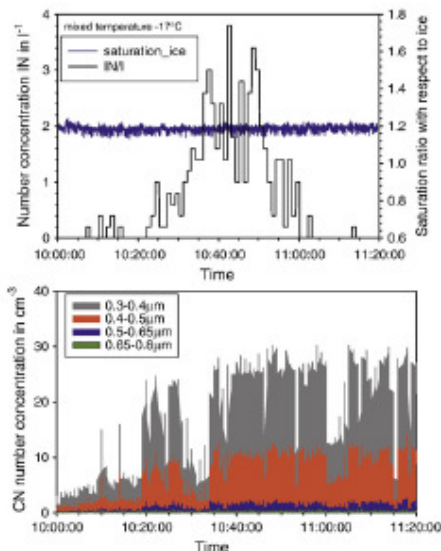


Fig. 8. IN and CN measurements at Jungfraujoch station during an event of cloud formation. The upper graph shows the IN number concentration measured by FINCH at -17°C and 12 saturation ratio with respect to ice. The lower part shows the CN number concentration measured for different size classes using a Grimm Optical Particle Counter (OPC) operated by the MPI Chemie Mainz by J. Schneider.

Please cite this article as: Bundke, U., et al., The fast Ice Nucleus chamber FINCH, Atmospheric Research (2008), doi:10.1016/j.atmosres.2008.02.008

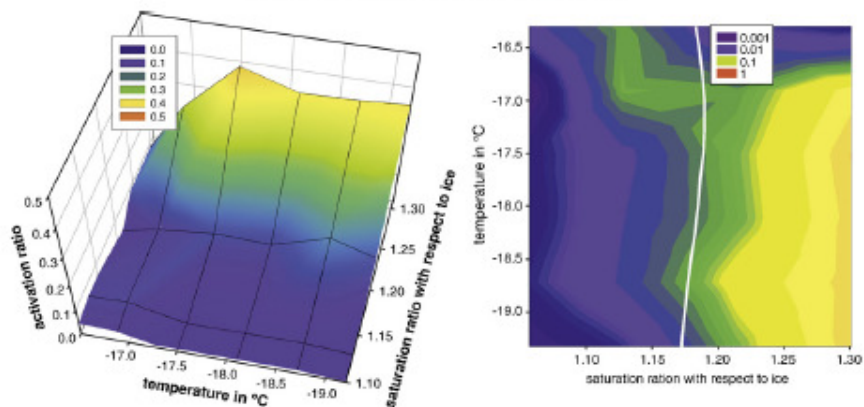


Fig. 9. First laboratory studies are made with test aerosol. Here as an example we dispersed pure kaolinite and measured the 3 dimensional IN spectra as a function of temperature and relative humidity. Fig. 8b shows the same dataset in a 2 dimensional contour plot. The white line indicates the kaolinite ice onset temperature measured by Schaller and Fukuta (1979).

tested. Temperature and saturation ratio of nucleation are controlled automatically and precisely. FINCH is well characterized by fluid mechanic calculations and inter-comparison measurements. Both measurement devices have passed successfully their first field campaign at the Jungfraujoch station.

FINCH samples at a high time resolution and thus is able to scan three dimensional spectra of IN (number as function of temperature and supersaturation) very rapidly.

A refined version of FINCH will be integrated into the German Research Aircraft HALO for airborne operation. For chemical analysis of individual IN it is planned to couple FINCH to a single particle mass spectrometer (Kürten et al., 2007). For the detection of biological IN a fluorescence channel will be added to the detection system. The large scale biogeographical distribution of IN will be investigated by measurements onboard RV-“Polarstern”.

**Acknowledgement**

This work has been performed within Project A1 of the Collaborative Research Centre (SFB) 641 “The Tropospheric Ice Phase”, funded by the German Science Foundation. Logistical support by the

European Community – Research Infrastructure Action under the FP6 “Structuring the European Research Area” Programme, EUSAAR Contract N° RIB-CT-2006-026140.

**References**

Al-Naimi, R., Saunders, C.P.R., 1985. Measurements of natural deposition and condensation-freezing ice nuclei with a continuous flow chamber. *Atmos. Environ.* 19, 1871–1882.  
 Bundke, U., Bingemer, H., Wetter, T., Nilius, B., Jaenicke, R., 2006a. The FINCH (Frankfurt Ice Nuclei Chamber) Counter – new developments and first measurements. 7th International Aerosol Conference September 10–15, 2006 St. Paul, MN, USA, p. 1350.  
 Bundke, U., et al., 2006b. A new, fast Frost/Dew point hygrometer with an active sensor area of 4 mm<sup>2</sup>. Proceedings of the EGU.  
 Bundke, U., Bingemer, H., Klein, H., 2006c. The FRIDGE Frankfurt “INn Deposition freezinG Experiment”. 7th International Aerosol Conference September 10–15, St. Paul, MN, USA, p. 1437.  
 DeMott, P.J., Sassen, K., Poellet M.R., Baumgardner, D., Rogers, D.C., Brooks, S.D., Prenni, A.J., Kreidenweis, S.M., 2003a. African dust aerosols as atmospheric ice nuclei. *Geophys. Res. Lett.* 30 (14), 1732. doi:10.1029/2003GL017410.  
 DeMott, P.J., Crizzo, D.J., Prenni, A.J., Murphy, D.M., Kreidenweis, S.M., Thomson, D.S., Boris, R., Rogers, D.C., 2003b. Measurements of the concentration and composition of nuclei for cirrus formation. *Proc. Natl. Acad. Sci.* 100, 14655–14660.  
 Findeisen, R., 1938. Meteorologisch-physikalische Begebenheiten der Vereisung in der Atmosphäre. Hauptversammlung 1938 der Lössenthal-Gesellschaft.

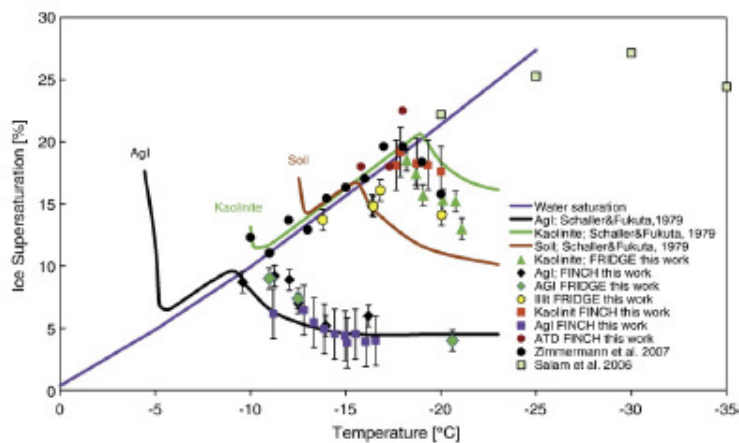


Fig. 10. Ice onset temperatures of Silver iodide (AgI), Kaolinite, Illite and Arizona Test Dust (ATD) measured with FINCH and Silver iodide measured with FRIDGE in comparison with data published by Schaller and Fukuta (1979), Salam et al. (2006), Zimmermann et al. (2007).

Please cite this article as: Bundke, U., et al., The fast Ice Nucleus chamber FINCH, *Atmospheric Research* (2008), doi:10.1016/j.atmosres.2008.02.008

ARTICLE IN PRESS

U. Bundke et al. / Atmospheric Research xxx (2008) xxx–xxx

7

- Hu, Y.X., Yang, P., Lin, B., Gibson, G., Hostetler, C., et al., 2003. Discriminating between spherical and non-spherical scatterers with lidar using circular polarization: A theoretical study. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* 79–80, 757–764.
- Klein, H., Bingemer, H.G., Bundke, U., Wetzel, T., 2007. Measurements of atmospheric ice nuclei using a vacuum diffusion chamber and CCD detection. Proceedings of the EGU2007-A-08430.
- Kürten, A., Curtius, J., Helleis, F., Lovejoy, E.R., Borrmann, S., 2007. Development and characterization of an ion trap mass spectrometer for the on-line chemical analysis of atmospheric aerosol particles. *Int. J. Mass Spectrom.* 265, 30–39.
- Levin, Z., Cotton, W., 2007. Aerosol pollution impact on precipitation: a scientific review. The WMO/IGGG International Aerosol Precipitation Science Assessment Group (IAPSAC). World Meteorological Organization, Geneva.
- Meyer, D., Gravenhorst, G., 1976. A low pressure diffusion chamber. In: Vali, G. (Ed.), III. International workshop on ice nucleus measurements, Laramie (Wyo) 1975, pp. 128–148.
- Meyers, M.P., DeMott, P.J., Cotton, W.R., 1992. New primary ice-nucleation parameterizations in an explicit cloud model. *J. Appl. Meteorol.* 31, 708–721.
- Rogers, D.C., 1982. Field and laboratory studies of ice nucleation in winter orographic clouds. Ph.D. dissertation, Dept. Of Atmospheric Science, Univ. Of Wyoming, Laramie, 161 pp.
- Rogers, D.C., 1988. Development of a continuous flow thermal gradient diffusion chamber for ice nucleation studies. *Atmos. Res.* 22, 149–181.
- Rogers, D.C., DeMott, P.J., Kreidenweis, S.M., Chen, Y., 1998. Measurements of ice nucleating aerosols during SUCCESS. *Geophys. Res. Lett.* 25 (9), 1383–1386.
- Rogers, D.C., DeMott, P.J., Kreidenweis, S.M., Chen, Y., 2001a. A continuous-flow diffusion chamber for airborne measurement of ice nuclei. *J. Atmos. Ocean. Technol.* 18, 725–741.
- Rogers, D.C., DeMott, P.J., Kreidenweis, S.M., 2001b. Airborne measurements of tropospheric ice-nucleating aerosol particles in the Arctic spring. *J. Geophys. Res.* 106, 15,053–15,063.
- Salam, A., et al., 2006. Ice nucleation studies of mineral dust particles with a new continuous flow diffusion chamber. *Aerosol Sci. Tech.* 40, 134–141.
- Schaller, R.C., Fukuta, N., 1979. Ice nucleation by aerosol particles: experimental studies using a wedge-shaped ice thermal diffusion chamber. *J. Atmos. Sci.* 36, 1788–1802.
- Vali, G., 1975. Ice nucleation workshop. *Bull. Am. Meteorol. Soc.* 56, 1180–1184.
- Zimmermann, F., et al., 2007. Environmental scanning electron microscopy (ESEM) as a new technique to determine the ice nucleation capability of individual atmospheric aerosol particles. *Atmos. Environ.* 41, 8219–8227. doi:10.1016/j.atmosenv.2007.06.023.

Please cite this article as: Bundke, U., et al., The fast Ice Nucleus chamber FINCH, Atmospheric Research (2008), doi:10.1016/j.atmosres.2008.02.008

## Danksagungen

Die vorliegende Arbeit entstand in Zusammenarbeit des Instituts für Physik der Atmosphäre der Johannes Gutenberg-Universität und dem Institut für Atmosphäre und Umwelt der Wolfgang Goethe Universität Frankfurt.

Mein Dank gilt an erster Stelle Herrn Prof. R. JXXXX und Dr. U. BXXXX, die mir ermöglicht haben diese Arbeit durchzuführen und mir immer mit Rat und Tat zur Seite gestanden haben.

Den mechanischen Werkstätten, sowohl der Universität Frankfurt als auch der Universität Mainz möchte ich für die prompte und zuverlässige Arbeit bei der Produktion der einzelnen Komponenten und vielen Ersatzteilen, sowie für die technische Unterstützung danken. Hier meinen besonderen Dank an Herrn R. RXXXX, Herrn F. EXXXX und Herrn L. HXXXX.

Ebenso möchte ich der elektronischen Werkstatt aus Frankfurt danken für die Entwicklung und Fertigung vieler Platinen und die technische Beratung. Besonders gilt hier der Dank Herrn R. RXXXX, sowie Frau V. FXXXX.

Für die zur Verfügung gestellten Messdaten möchte ich mich bei Herrn J. SXXXX (Johannes - Gutenberg Universität) und bei Herrn S. MXXXX (IfT Leipzig) bedanken. Sowie Herrn O. MXXXX für die Möglichkeit an der Teilnahme beim ICIS - Workshop an der AIDA in Karlsruhe.

## Curriculum vitae

Name	Björn Nillius
Adresse	
Geburtsdatum	08.06.1978
Geburtsort	Groß-Gerau
Staatsangehörigkeit	deutsch
1984 - 1988	Albert-Schweizer-Grundschule, Ginsheim
1988 - 1997	Rabanus-Maurus-Gymnasium, Mainz
1997	Abitur
1998 - 2004	Studium der Meteorologie am Institut für Physik der Atmosphäre der Johannes Gutenberg - Universität, Mainz
2002	Vordiplom in Meteorologie
2004	Diplom in Meteorologie
2004 - 2008	Dissertation am Fachbereich Physik der Johannes Gutenberg - Universität, Mainz
2008	Einreichung der Dissertation Tag der mündlichen Prüfung: 05.11.2008