

**Flugzeuggetragene Messungen von Eis- und Rußpartikeln in
Kondensstreifen bei Verwendung konventioneller und
synthetischer Treibstoffe**

Dissertation zur Erlangung des Grades
"Doktor der Naturwissenschaften"

am Fachbereich Physik, Mathematik und Informatik
der Johannes Gutenberg-Universität in Mainz

Jonas Kleine
geb. in Karlsruhe
Mainz, den 01.07.2019

Datum der mündlichen Prüfung: 27.11.2019

Angefertigt am Deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V.
Institut für Physik der Atmosphäre, Oberpfaffenhofen

Kurzfassung

Kondensstreifen-Zirren steuern derzeit mehr als 2 % zum gesamten anthropogenen Strahlungsantrieb bei und liefern damit den größten Beitrag zur Klimawirkung des globalen Luftverkehrs. Gemäß aktuellen Simulationen korreliert der Strahlungsantrieb von Kondensstreifen-Zirren stark mit der Höhe ihrer Eispartikelkonzentrationen. Durch deren systematische Reduktion ließe sich folglich die Klimawirkung des Luftverkehrs zu einem gewissen Grad von dessen Wachstum entkoppeln und dies - im Gegensatz zur Wirkungsweise von CO₂ - bereits auf Zeitskalen von Stunden. In dieser Hinsicht scheint die Nutzung alternativer, synthetischer Treibstoffe mit reduziertem Aromatengehalt aussichtsreich, konnten doch für diese deutlich reduzierte Rußemissionen experimentell nachgewiesen werden. Allerdings wird bislang eine von Ruß kontrollierte Eisbildung in Kondensstreifen lediglich angenommen, konnte aber noch nicht experimentell belegt werden.

In der vorliegenden Arbeit wird erstmals experimentell untersucht, ob die Nutzung synthetischer Treibstoffe zu einer systematischen Reduktion der Eisanzahlkonzentrationen in Kondensstreifen führt. Im Rahmen des DLR-Projekts ECLIF (Emissions and Climate Impact of Alternative Fuels) wurden hierzu Kondensstreifen eines entsprechend betankten Airbus A320 mit dem DLR-Forschungsflugzeug Falcon in-situ vermessen. Auf Grundlage einer eingehenden Charakterisierung des CAS-Instruments (Cloud and Aerosol Spectrometer) und des Einflusses von Eisresiduen auf die Messung interstitieller Rußpartikel wurde ein qualitätsgesicherter Datensatz kondensstreifeninterner sowie atmosphärischer Parameter gewonnen. Dieser wird genutzt, um zunächst mikrophysikalische und dynamische Prozesse in Kondensstreifen gezielt zu analysieren. So kann durch eine Gegenüberstellung der in Kondensstreifen gemessenen Vertikalprofile von Ruß- und Eispartikelzahlen die rußkontrollierte Eisbildung für Rußemissionen im Bereich von $2\text{-}5 \times 10^{15}$ Partikeln je kg verbranntem Treibstoff erstmals im Flugversuch nachgewiesen werden. Bei Temperaturen von ca. 215 K werden dabei Aktivierungsraten von etwa 90 % gefunden. Weiter gelingt es, Sublimationsverluste von Eispartikeln im Flugzeugnachlauf direkt nachzuweisen, zu quantifizieren und auf die adiabatische Erwärmung des absinkenden Wirbelsystems zurückzuführen.

Auf Basis dieser Analysen wird erstmals experimentell gezeigt, dass die Verwendung semisynthetischer, aromatenarmer Treibstoffe zu einer systematischen Reduktion von Eispartikelzahlen in Kondensstreifen führt. Unter für die nördlichen Extratropen typischen Reiseflugbedingungen und einen gängigen Flugzeugtyp (A320, IAE V2527-A5 Triebwerke) werden gegenüber konventionellem Jet A-1 für einen semisynthetischen Treibstoff deutliche Reduktionen der Anzahl emittierter Rußpartikel um $52 (\pm 3) \%$, initial gebildeter Eispartikel um $50 (\pm 4) \%$, sowie der gegen Ende der Wirbelphase im Mittel vorliegenden Eispartikel um $36 (\pm 5) \%$ ermittelt. Die Ergebnisse dieser Arbeit tragen dazu bei, das Potential synthetischer Treibstoffe zur Reduktion der Klimawirkung des globalen Luftverkehrs besser bewerten zu können.

Abstract

With a share of more than 2% contrail cirrus currently yields the largest single-component contribution from aviation to total anthropogenic climate forcing. According to global simulations the radiative forcing due to contrail cirrus correlates considerably with the number of associated ice particles. Hence, reducing ice particle numbers in contrails represents a fast acting measure to decouple - at least to some extent - the climate forcing of global aviation from its growth. In this regard, the use of alternative synthetic fuels with substantially lower aromatic content seems promising, since, compared to conventional Jet A-1, these fuels cause much lower numbers of emitted soot particles, which are often assumed - but not yet experimentally verified - to control ice particle nucleation in contrails.

The present work analyzes if switching from conventional to synthetic fuels leads to systematically reduced ice particle numbers present in contrails. To this end, in situ measurements were performed employing instruments installed on the DLR research aircraft Falcon to sample contrails originating from an Airbus A320 burning both conventional and semi-synthetic fuels. Conducted within the DLR project Emissions and Climate Impact of Alternative Fuels (ECLIF), measurements in contrails from semi-synthetic fuels are the first of their kind. In order to obtain a high quality data set of contrail and environmental parameters, both the Cloud and Aerosol Spectrometer (CAS) and the impact of ice residues on measurements of interstitial soot particles were characterized in-depth. Before focussing on fuel effects, microphysical and dynamical processes governing contrail formation and evolution are studied in detail. By juxtaposing vertical profiles of measured ice and soot particle numbers during the vortex descent, strong evidence is provided that soot particles indeed control ice particle formation for soot emissions in the range of $2\text{-}5 \times 10^{15}$ particles per kg of fuel burned. At temperatures close to 215 K around 90% of the emitted soot particles are found to contribute to ice particle formation. Furthermore the results provide direct observational evidence of sublimation substantially reducing ice particle abundances in descending aircraft wakes due to adiabatic heating.

Based on these analyses it is shown that, compared to conventional Jet A-1, ice particle numbers in contrails originating from semi-synthetic fuels are systematically reduced. Concerning a widespread type of aircraft (A320, IAE V2527-A5 engines) and conditions typical for cruise flights in the northern extratropics, marked reductions of the number of emitted soot particles of $52 (\pm 3) \%$, initially formed ice particles of $50 (\pm 4) \%$ and of wake-averaged ice numbers towards the end of the vortex phase of $36 (\pm 5) \%$ are found when comparing semi-synthetic to conventional fuel. The results of this study will help to assess the overall potential of synthetic fuels as a measure to mitigate the climate impact of aviation.

Teile dieser Arbeit wurden vorab in der Fachzeitschrift *Geophysical Research Letters* veröffentlicht. Die beiden Artikel werden an den entsprechenden Stellen zitiert:

Kleine, J., Voigt, C., Sauer, D., Schlager, H., Scheibe, M., Jurkat-Witschas, T., Kaufmann, S., Kärcher, B. & Anderson, B. E. (2018). In situ observations of ice particle losses in a young persistent contrail. *Geophysical Research Letters* 45(24), 13 553–13 561.

Kärcher, B., Kleine, J., Sauer, D. & Voigt, C. (2018). Contrail formation: Analysis of sublimation mechanisms. *Geophysical Research Letters* 45(24), 13 547–13 552.

Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung	i
1 Einleitung	1
1.1 Ziele dieser Arbeit	5
2 Kondensstreifen: Eine Einführung	7
2.1 Lebenszyklus von Kondensstreifen	7
2.1.1 Bildung von Kondensstreifen	7
2.1.2 Dynamische und mikrophysikalische Prozesse	10
2.2 Klimawirkung von Kondensstreifen	15
2.3 Mitigationspotential synthetischer Treibstoffe	19
3 Grundlagen und Methoden der Partikelmesstechnik	23
3.1 Licht-Teilchen-Wechselwirkungen	23
3.2 Konzept des Streuquerschnitts	25
3.3 Berechnung des Streuquerschnitts	28
3.3.1 Sphärische Partikel	29
3.3.2 Asphärische Partikel	34
3.4 Das Streulichtspektrometer CAS-DPOL	35
3.4.1 Sondenaufbau	36
3.4.2 Funktionsprinzip der Sonderelektronik	37
3.4.3 Kriterium der Tiefenschärfe	39
3.4.4 Analyse des Streulichts in Rückwärtsrichtung	42
3.4.5 Datensystem	42
3.4.6 Bestimmung der Größenverteilung	44
3.4.7 Diskussion von Unsicherheiten	46
3.4.8 Artefakte der Messtechnik	49
3.5 Die 2D-Stereo Probe (2D-S)	53
3.6 Berechnung mikrophysikalischer und optischer Parameter	54
3.7 Aerosolmesssystem zur Rußpartikelmessung	57
3.7.1 Vorwärtsgerichteter Aerosoleinlass	57
3.7.2 Der Thermodenuder	59
3.7.3 Der Kondensationskernzähler (CPC)	60
3.8 Spurengasmessung	61
3.8.1 CO ₂ -Messung	61
3.8.2 Wasserdampfmessung	62

3.9	Messplattform: DLR Falcon 20-E5	64
4	Charakterisierung zweier CAS und Berechnung von Emissionsindizes	65
4.1	Kalibrierung der Größenbestimmung	66
4.1.1	Streuquerschnittskalibrierung der CAS	67
4.1.2	Festlegung der CAS-Größenbins	71
4.1.3	Streuquerschnittskalibrierung der CAS [†]	73
4.1.4	Festlegung der CAS [†] -Größenbins	76
4.2	Bestimmung der effektiv wirksamen Messfläche	77
4.2.1	Bestimmung der effektiven Messfläche der CAS	77
4.2.2	Bestimmung der effektiven Messfläche der CAS [†]	81
4.3	Empirische Herleitung einer Funktion zur Koinzidenzkorrektur	83
4.4	Bedeutung der Ergebnisse für Kondensstreifenmessungen	86
4.5	Berechnung der Emissionsindizes	87
5	Die Flugzeugmesskampagne ECLIF	91
5.1	Durchführung der Flugzeugmesskampagne	91
5.2	Kondensstreifen aus konventionellem Jet A-1 Treibstoff (F10, Ref2)	94
5.3	Kondensstreifen aus semisynthetischem Treibstoff (F02, SSJF1)	105
5.4	Kondensstreifen aus einer Treibstoffmischung (F11, Ref1 & SSJF3)	113
5.5	Treibstoffabhängigkeit der Eis- und Rußemissionen	120
5.6	Validierung der Sublimationsverluste während der Wirbelphase	123
5.7	Einordnung der Messungen und Schlussfolgerungen	126
6	Zusammenfassung und Ausblick	135
6.1	Messtechnische Methoden	136
6.2	Mikrophysik von Kondensstreifen	138
6.3	Mitigationspotential synthetischer Treibstoffe	139
	Abkürzungen und Symbole	143
	Abbildungsverzeichnis	147
	Tabellenverzeichnis	149
	Literaturverzeichnis	151
	Einzelbeiträge zur Thematik	165

KAPITEL 1

Einleitung

Die Frage nach der Sensitivität des Klimasystems auf anthropogene Einflüsse stellt zweifelsohne eine der bedeutendsten unserer Zeit dar. Die Höhe der Emissionen einer global zunehmend industriell geprägten Gesellschaft und deren klimatologische Folgen bestimmen den politischen Diskurs. Etwa 20 % dieser vom Menschen verursachten Emissionen entstammen dem Transportsektor (Righi et al. 2013, Sausen et al. 2012). Eine kontinuierlich zunehmende Bedeutung kommt dabei dem Flugverkehr zu, sind doch die Wachstumsraten der Passagierkilometer der jüngeren Vergangenheit von jährlich etwa 5 % (Lee et al. 2009) auch realistische Zukunftsszenarien (ICAO 2013). Im Jahr 2011 betrug der Anteil des Luftverkehrs an der gesamten anthropogenen Klimawirkung¹ etwa 4 – 5 %. Geht mit dem Wachstum des Luftverkehrs kein grundlegender technologischer oder operationeller Fortschritt einher, ist es wahrscheinlich, dass sich dessen Beitrag in den nächsten Dekaden um ein Vielfaches erhöhen wird (Kärcher 2018).

Flugzugemissionen umfassen neben Spurengasen (hauptsächlich CO_2 , H_2O , NO_x , SO_2) auch Aerosolpartikel und werden im Reiseflug in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre (UTLS Region) auf Höhen von etwa 8-13 km in die Atmosphäre eingetragen. Oftmals folgt diesem Eintrag eine im Nachlauf einsetzende Kondensstreifenbildung, die mit bloßem Auge gut erkennbar ist. Dabei führt die rasche Abkühlung der feuchten, heißen ($\approx 500^\circ\text{C}$) Abgase in einer hinreichend kalten Umgebung zur Kondensation des verfügbaren Wasserdampfes auf vorhandenen Nukleationskernen. Zu letzteren tragen insbesondere vom Triebwerk emittierte volatile (Schwefelsäure-) und nicht-volatile (Ruß-) Partikel bei, während Umgebungsaerosol in der UTLS Region diesbezüglich eine untergeordnete Bedeutung zukommt (Kärcher et al. 1996). Im Verlauf des Abkühlens werden Kondensationskeime zunächst zu flüssigen Wassertröpfchen aktiviert, die dann bei Temperaturen unterhalb des Gefrierpunkts Eis bilden. Abhängig von der relativen Hintergrundfeuchte über Eis (RH_i) können initial gebildete Eispartikel entweder schnell wieder verdampfen, also einen nur kurzlebigen Kondensstreifen bilden, oder vielmehr in der Atmosphäre vorhandenen Wasserdampf aufnehmen, weiter anwachsen und Ursprung eines langlebigen, persistenten Kondensstreifen-Zirrus werden. Durch sukzessive Mischung der

1 Maß: Strahlungsantrieb (*Radiative Forcing*)

Triebwerksemissionen mit atmosphärischer Luft, steigt der Einfluss letzterer kontinuierlich an, sodass bei einem persistenten Kondensstreifen der atmosphärische Beitrag zur Eismasse denjenigen des Treibstoffs schon nach wenigen Minuten deutlich übertreffen kann (Unterstrasser & Görsch 2014). Während des Lebenszyklus eines Kondensstreifens variieren dessen mikrophysikalischen und optischen Eigenschaften deutlich und zeigen eine starke Sensitivität auf die vorliegende synoptische Situation (Bier et al. 2017). Betrachtet man hingegen die zeitliche Entwicklung persistenter Kondensstreifen unter fixen synoptischen Bedingungen, zeigt sich, dass Eigenschaften (und Lebensdauern) der Kondensstreifen-Zirren maßgeblich von den Eigenschaften der noch jungen Kondensstreifen - und damit insbesondere von den Triebwerksemissionen - bestimmt werden (Burkhardt et al. 2018).

Schon deren bloße Sichtbarkeit macht deutlich, dass Eiswolken bzw. Kondensstreifen den atmosphärischen Strahlungshaushalt beeinflussen. Neben der Streuung bzw. Reflexion kurzweiliger, solarer Strahlung streuen und absorbieren Kondensstreifen auch einen Teil der langwelligen terrestrischen Strahlung und verhindern damit - zu einem gewissen Grad - deren Abstrahlung ins Weltall. Betrachtet man die sich teilweise kompensierenden Beiträge im Detail, zeigt sich, dass Kondensstreifen im Mittel einen positiven Netto-Energiefluss in die Atmosphäre induzieren, also wärmend wirken (Meerkötter et al. 1999, Lee et al. 2009). Als quantitatives Maß wird üblicherweise der den Kondensstreifen zuzuschreibende Strahlungsantrieb (*Radiative Forcing*) herangezogen. Dieser entspricht der Differenz der am Oberrand der Atmosphäre vorliegenden Energiestromdichten bei An- und Abwesenheit von Kondensstreifen im jährlichen globalen Mittel (Myhre et al. 2009). Strahlungstransportrechnungen für einzelne Kondensstreifen gestalten sich dabei vergleichsweise aufwändig, hängt doch der jeweilige Strahlungsantrieb von einer Vielzahl an - mitunter räumlich und zeitlich variierenden - Parametern ab. Zu nennen sind dabei insbesondere Konzentration, Größenverteilung und Form der Eispartikel, der Sonnenstand, die Untergrundalbedo, sowie die Temperatur bzw. Höhe, die geometrische Ausdehnung und die Lebensdauer der Eiswolke. Im Vergleich zu gut durchmischten Spurengasen (wie z.B. CO₂) gestalten sich die Rechnungen für Kondensstreifen aufgrund dieser vielseitigen Abhängigkeiten deutlich komplizierter. Kennzeichnend ist eine ausgeprägte Sensitivität der von einzelnen Kondensstreifen induzierten Strahlungsflüsse auf die genannten Parameter, was vergleichsweise große Unsicherheiten berechneter Strahlungsantriebe impliziert (Lee et al. 2009).

Werden neben den zunächst linienförmigen Kondensstreifen auch sich daraus entwickelnde Kondensstreifen-Zirren in die Rechnungen miteinbezogen, zeigt sich, dass der Strahlungsantrieb dieser luftfahrtinduzierten Bewölkung (AIC, *aircraft-induced clouds*) den größten Einzelbeitrag zur gesamten Klimawirkung des Luftverkehrs ausmacht (Burkhardt & Kärcher 2011), also auch denjenigen von CO₂ übersteigt. So setzt sich der gesamte Strahlungsantrieb der Luftfahrt, der für das Jahr 2011 zu etwa 90 mW m⁻² abgeschätzt wird, hauptsächlich aus Beiträgen der AIC (50 mW m⁻²), von CO₂ (35 mW m⁻²) und NO_x (5 mW m⁻²) zusammen (Kärcher 2018). Zur weiteren Interpretation der Zahlen müssen den Wirkmechanismen zugrunde liegende Zeitskalen berücksichtigt werden. Da einmal emittierte CO₂-Moleküle eine sehr lange Verweildauer in der Atmosphäre haben (einige hundert Jahre), bezieht sich der für das

Jahr 2011 ermittelte Strahlungsantrieb des CO₂ auf die Wirkung der akkumulierten CO₂-Emissionen seit Aufkommen der modernen Luftfahrt. Entsprechend würde das bereits von der Luftfahrt emittierte CO₂ auch bei einer sofortigen und dauerhaften Stilllegung der globalen Flugzeugflotte über die nächsten Jahrzehnte weiterhin einen Großteil seiner aktuellen Wirkung entfalten. Im Unterschied dazu beträgt die Lebensdauer von Kondensstreifen (-Zirren) lediglich einige Stunden bis maximal Tage. Dies impliziert, dass der größte Einzelbeitrag zum Strahlungsantrieb des Luftverkehrs (aus AIC) bereits auf kurzen Zeitskalen sensitiv auf entsprechende Mitigationsmaßnahmen reagiert. Gelänge es durch technische oder operationelle Methoden die Bildung von Kondensstreifen mit hohem Strahlungsantrieb systematisch zu reduzieren, wären signifikante Änderungen des atmosphärischen Strahlungshaushalts - salopp gesprochen - ab dem Folgetag zu erwarten.

In Kärcher (2018) wird der von verschiedenen modell- und beobachtungsbasierten Studien ermittelte Strahlungsantrieb von Kondensstreifen-Zirren einander gegenübergestellt. Dabei streuen die einzelnen Resultate, die ihrerseits große Unsicherheiten aufweisen, erheblich und decken mit 20-150 mW m⁻² einen breiten Bereich um einen Mittelwert von etwa 50 mW m⁻² ab. Die studienübergreifende Einigkeit zum insgesamt wärmenden Effekt von Kondensstreifen, gepaart mit der deutlichen Varianz zwischen einzelnen Resultaten, demonstriert die Notwendigkeit weiterer diesbezüglicher Forschung deutlich (Heymsfield et al. 2010). So stellt sich in erster Linie die Frage, mit welchen Maßnahmen die Klimawirkung der luftfahrtinduzierten Bewölkung - im Kontext des zu erwartenden Wachstums dieses Industriezweigs - beschränkt bzw. reduziert werden kann. Zudem gilt es, das Prozessverständnis in jungen Kondensstreifen zu verbessern, um entsprechende Unsicherheiten modellierter Klimawirkungen weiter reduzieren zu können. Im Vordergrund steht dabei, Eispartikelgrößen, -konzentrationen und deren vertikale Verteilung in jungen Kondensstreifen besser zu charakterisieren, da diese Parameter maßgeblich die weitere Entwicklung und Klimawirkung von Kondensstreifen (-Zirren) bestimmen (Kärcher et al. 2018). Aktuelle Modellstudien (Schumann et al. 2013, Burkhardt et al. 2018) zufolge fällt der Strahlungsantrieb von Kondensstreifen (-Zirren) umso geringer aus, je kleiner die Eispartikelkonzentrationen im noch jungen Kondensstreifen (Alter von einigen Minuten) sind.

Bei diesem Vorhaben ist eine präzise Kenntnis der Triebwerksemissionen sowie der anschließend im Flugzeugnachlauf ablaufenden mikrophysikalischen und dynamischen Prozesse elementar. Dabei kommt in-situ Messungen eine wesentliche Bedeutung zu, bieten sie doch die einzigartige Möglichkeit die direkten Emissionen und im Flugzeugnachlauf stattfindende Prozesse unter realen Bedingungen untersuchen zu können. Ausgehend von der Quantifizierung absoluter Spurengas- und Partikelemissionen gilt es, die gesamte Prozesskette über die Eisbildung¹ und anschließende Prozessierungen im Flugzeugnachlauf experimentell zu studieren und auf Systematiken zu prüfen.

1 Im Folgenden wird - etwas ungenau - auch von „Eisemissionen“ die Rede sein. Dies soll lediglich einfachere Formulierungen ermöglichen und nicht darüber hinwegtäuschen, dass es sich bei Eis um indirekte Emissionen handelt, da Eis erst im Nachlauf gebildet - und nicht etwa emittiert - wird.

Die Durchführung von in-situ Messungen in Kondensstreifen stellt eine experimentelle Herausforderung dar. So muss zunächst eine möglichst umfangreiche, zuverlässig arbeitende Instrumentierung auf dem Forschungsflugzeug integriert werden, um Messungen bei hohen Geschwindigkeiten ($\simeq 200$ m/s) im dynamischen Umfeld des Flugzeugnachlaufs zu ermöglichen. Zurückliegende in-situ Studien sind vergleichsweise rar gesät, liefern aber wertvolle Erkenntnisse über mikrophysikalische und optische Eigenschaften von Kondensstreifen während verschiedener Entwicklungsstadien, die dabei Jetphase (Petzold et al. 1997, Baumgardner & Gandrud 1998), Wirbelphase (Voigt et al. 2010, Gayet et al. 2012) und Dissipationsphase (Heymsfield et al. 1998, Jensen et al. 1998, Schröder et al. 1999, Voigt et al. 2017) umfassen. Allerdings besteht hinsichtlich der experimentellen Beobachtung fundamentaler mikrophysikalischer Prozesse akuter Forschungsbedarf. So zeigen Busen & Schumann (1995), dass die Kondensstreifenbildung auch ohne signifikanten Beitrag von emittiertem Schwefel-aerosol ablaufen kann. Weiter legen Rußpartikelmessungen von Schröder et al. (1998) in einem eisuntersättigten Umfeld nahe, dass im untersuchten (sublimierenden) Kondensstreifen etwa 1/3 der vom Triebwerk emittierten Rußpartikel in Eispartikeln gebunden ist. Zwar konnte damit indirekt ein erster Zusammenhang zwischen Ruß- und Eisemissionen beobachtet werden, jedoch bleibt offen, ob bzw. in welchem Maß die Eisbildung in Kondensstreifen rußkontrolliert erfolgt (Schumann et al. 2013). Falls sich die Hypothese der von Ruß kontrollierten Eisbildung bewahrheiten sollte, also nahezu jeder Eiskristall Ruß enthält, wäre weiter zu klären, wie hoch die Aktivierungsraten der Rußpartikel (f_*) ausfallen.

Zudem ist - aus experimenteller Sicht - wenig über etwaige Sublimationsverluste der Eispartikel in jungen persistenten Kondensstreifen (Alter ≤ 2 -5 min) bekannt. Ergeben sich Sublimationsverluste in Modellrechnungen (Unterstrasser 2016, Kärcher & Voigt 2017) als Folge einer adiabatischen Erwärmung absinkender Wirbel implizit, lieferten bisherige Messungen (Schumann et al. 2013, Jeßberger et al. 2013) diesbezüglich lediglich vereinzelte Hinweise. Ein direkter Nachweis der Sublimationsverluste von Eispartikeln während der Wirbelphase steht aus. In diesem Zusammenhang wäre eine Quantifizierung beobachteter Sublimationsverluste von besonderem Interesse, um in Modellen implementierte Prozesse validieren zu können.

Erst auf Basis eines grundlegenden Prozessverständnisses können mögliche Optionen zur Mitigation der Klimawirkung luftfahrtinduzierter Bewölkung eingehend diskutiert bzw. quantitativ bewertet werden. Neben operationellen Maßnahmen, wie z.B. dem Umfliegen von Luftraum mit einer hohen Wahrscheinlichkeit zur Bildung persistenter Kondensstreifen zum Preis erhöhter CO₂-Emissionen (Grewe et al. 2017), erscheinen insbesondere technische Ansätze vielversprechend. So konnte in Boden- und Flugmessungen gezeigt werden, dass die Rußemissionen eines Triebwerks in (positiver) Korrelation mit dem Aromatengehalt des verbrannten Treibstoffs stehen (Lobo et al. 2011, Beyersdorf et al. 2014, Moore et al. 2017). Inwieweit reduzierte Rußemissionen auch reduzierte Eispartikelkonzentrationen entstehender Kondensstreifen bedingen, wurde experimentell bislang nicht untersucht. Da es aber die Eispartikelkonzentrationen und -eigenschaften sind, die die Klimawirkung resultierender Kondensstreifen (-Zirren) zu weiten Teilen bestimmen, können Aromatengehalte aktuell noch nicht direkt zu einer Klimawirkung in Verbindung gebracht werden.

Dies ist allerdings Voraussetzung, um Empfehlungen hinsichtlich der chemischen Zusammensetzung „klimafreundlicherer“ Treibstoffe ausarbeiten zu können.

1.1 Ziele dieser Arbeit

Ein zentrales Ziel dieser Arbeit ist es, die Bildung von Eispartikeln in Kondensstreifen sowie deren anschließende Prozessierung in den sich ausbildenden Wirbeln durch in-situ Messungen systematisch zu untersuchen. Es gilt zu prüfen, ob die Hypothese der von Ruß kontrollierten Eisbildung zutreffend ist. Bisherige Studien liefern diesbezüglich keine eindeutigen Ergebnisse (Schröder et al. 1999, Schumann et al. 2013). Außerdem soll untersucht werden, inwieweit sich theoretisch zu erwartende Sublimationsverluste von Eispartikeln während der Wirbelphase experimentell beobachten und möglicherweise quantifizieren lassen. Neben konventionellen sollen auch synthetische Treibstoffe mit reduzierten Aromatengehalten zum Einsatz kommen, um herauszufinden, ob eine Korrelation zwischen den Aromatengehalten der Kraftstoffe und Eispartikelanzahlen in resultierenden Kondensstreifen beobachtet werden kann. Die durchgeführten Messungen in Kondensstreifen, die aus synthetischen Kraftstoffen stammen, sind dabei die ersten ihrer Art. Um die aufgeführten Fragestellungen experimentell anzugehen, werden die von einer umfangreichen und gut charakterisierten in-situ Instrumentierung gewonnenen Daten, die neben Messungen von Eispartikeln auch die von Ruß und Spurengasen umfassen, in einem gemeinsamen Kontext analysiert. Die detaillierte Charakterisierung bzw. Kalibrierung der Instrumentierung zur Eispartikelmessung, sowie deren Einsatz in jungen Kondensstreifen während der Messkampagne ECLIF (Emissions and Climate Impact of Alternative Fuels) soll vom instrumentellen Teil dieser Arbeit abgedeckt werden.

Meine Arbeit gliedert sich wie folgt. In Kapitel 2 wird ein kurzer Überblick über den aktuellen Stand der Forschung zu Kondensstreifen gegeben. Auf Basis bisheriger Experimente und Modellstudien wird auf die zeitliche Entwicklung von Kondensstreifen eingegangen. So wird der Bogen von der Eispartikelbildung bis hin zur Klimawirkung entstandener Kondensstreifen (-Zirren) gespannt und das diesbezügliche Mitigationpotential synthetischer Treibstoffe erläutert. Dieses Kapitel hat außerdem den Zweck, typische Begriffe und charakteristische Messgrößen einzuführen. In Kapitel 3 werden die eingesetzte Instrumentierung, deren Funktionsweise, sowie technische Limitierungen vorgestellt. Ein besonderer Fokus liegt dabei auf einer präzisen Ausarbeitung des Messprinzips von Streulichtspektrometern am Beispiel der CAS (Cloud and Aerosol Spectrometer), um eine Basis für eine detaillierte Instrumentencharakterisierung zu schaffen. Letzterer widmet sich Kapitel 4. So werden zwei sich leicht unterscheidende CAS zunächst charakterisiert und daraufhin in einem Instrumentenvergleich einander gegenübergestellt. Die Charakterisierung umfasst neben der Streuquerschnitts- und Messflächenkalibrierung auch die Bestimmung einer auf asphärische Eispartikel optimierten Größenordnung. Zudem wird eine Funktion zur Korrektur des Artefakts der systematischen Unterschätzung hoher Partikelkonzentrationen (Koinzidenz) empirisch bestimmt. Anschließend wird erläutert, wie Emissionsindizes von Eis- und Rußpartikeln in Kondensstreifen berechnet werden. In Kapitel 5 werden die Flugmessungen der ECLIF-Kampagne vorgestellt, bei denen erstmals sich aus (semi-)synthetischen Treibstoffen gebildete Kondensstreifen erfolgreich vermessen wurden. Nach einem

kurzen Überblick werden die Eis-, Ruß- und CO₂-Messungen der drei Flüge, bei denen sich Kondensstreifen gebildet haben, im Detail analysiert. Dabei liegt der Fokus auf einer Untersuchung der vertikalen Kondensstreifenstruktur. Ausgehend von absolut gemessenen Konzentrationen werden Vertikalprofile von Emissionsindizes berechnet, um in jungen Kondensstreifen ablaufende mikrophysikalische Prozesse gezielt untersuchen zu können. Auf dieser Basis wird anschließend der Einfluss des Treibstoffs auf die Partikel- und Eisemissionen der Triebwerke bestimmt. Durch eine Gegenüberstellung gemessener Eisemissionen mit den von einem Modell prognostizierten, wird zudem untersucht, inwieweit das Modell die Prozessierung von Eispartikeln im dynamischen Umfeld des Flugzeugnachlaufs abbilden kann. Abschließend werden in Kapitel 6 die zentralen Ergebnisse dieser Arbeit und entsprechende Schlussfolgerungen zusammengefasst. Zudem werden Möglichkeiten für weitere Forschungsaktivitäten und Verbesserungen der Methodik diskutiert.

KAPITEL 2

Kondensstreifen: Eine Einführung

Um die wissenschaftlichen Fragestellungen dieser Arbeit präzise zu formulieren, soll dieses Kapitel einen gezielten Überblick über den gegenwärtigen Stand der Forschung zu Kondensstreifen liefern. Ausgehend von den Triebwerksemissionen werden im Folgenden die Bildung, zeitliche Entwicklung und Klimawirkung von Kondensstreifen (-Zirren) besprochen (Kap. 2.1 und 2.2). Abschließend soll das Potential synthetischer Treibstoffe zur Mitigation der Klimawirkung von Kondensstreifen (-Zirren) vorgestellt werden (Kap. 2.3).

Aktuellen Studien zufolge lässt sich der Anteil des Luftverkehrs zum gesamten anthropogenen Strahlungsantrieb derzeit auf etwa 4-5 % beziffern (Kärcher 2018, Lee et al. 2009). Angesichts hoher prognostizierter Wachstumsraten des globalen Luftverkehrs von jährlich etwa 5 % wird dessen Beitrag zukünftig sehr wahrscheinlich weiter wachsen (ICAO 2013). Ursächlich lässt sich der dem Luftverkehr zuzuschreibende Strahlungsantrieb auf die Triebwerksemissionen zurückführen, die sich im Wesentlichen aus CO_2 , H_2O , $\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$, CO , SO_2 , SO_3 , HC und Rußpartikeln zusammensetzen (Penner et al. 1999), welche im Reiseflug auf Höhen von etwa 8-13 km in die Atmosphäre eingetragen werden. Um die Spurengas- und Partikelemissionen quantitativ zu erfassen, werden typischerweise Emissionsindizes (*EI*) berechnet. Diese geben an, welche Masse eines Stoffs bzw. welche Anzahl der jeweiligen Partikel pro kg verbranntem Treibstoff emittiert werden. Eine detaillierte Gegenüberstellung der in verschiedenen Studien ermittelten *EIs* der Verbrennungsprodukte findet sich in Lee et al. (2010). Dabei hängt die relative Zusammensetzung dieser *direkten* Emissionen entscheidend von der chemischen Zusammensetzung des Treibstoffs sowie vom Triebwerkstyp und dessen Betriebsbedingungen ab.

2.1 Lebenszyklus von Kondensstreifen

2.1.1 Bildung von Kondensstreifen

Erfolgt der Eintrag der Verbrennungsprodukte in einer hinreichend kalten Atmosphäre (Temperaturen etwa $\leq -40^\circ\text{C}$), kommt es in kurzer Distanz hinter dem Triebwerksausgang zur Kondensstreifenbildung. Durch Mischen der heißen, feuchten Triebwerksemissionen mit kalter Umgebungsluft werden starke Kühlraten und hohe relative Feuchten generiert. Wird während des Abkühlvorgangs Wassersättigung

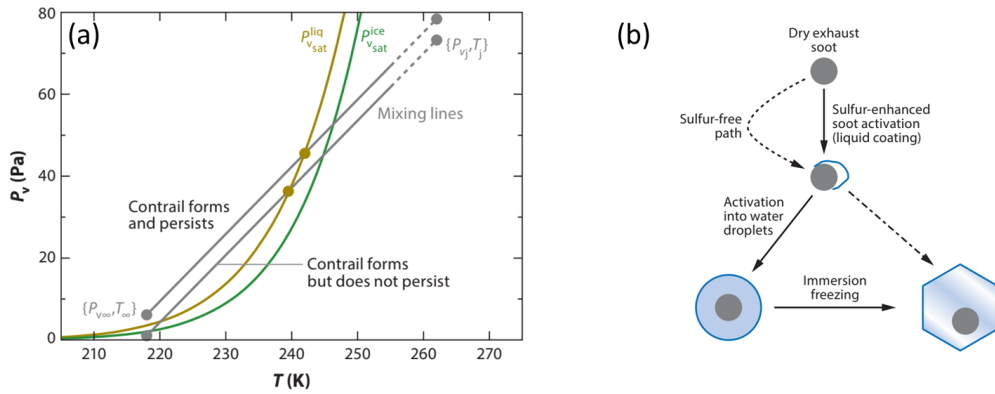


Abbildung 2.1 (a) Temperaturabhängigkeit des Wasserdampfpartialdrucks (P_v) in der Abgasfahne während des Abkühlvorgangs. Thermodynamisch betrachtet kühlen sich frisch ausgestoßene Abgase (Indizes j) entlang der eingezeichneten Mischungsgeraden (grau) auf Umgebungsbedingungen (Indizes ∞) ab. Weiter sind Sättigungsdampfdruckkurven bzgl. Flüssigwasser ($P_{v, \text{sat}}^{\text{liq}}$, braun) und Eis ($P_{v, \text{sat}}^{\text{ice}}$, grün) eingezeichnet. (b) Skizzenhafte Darstellung der Rußaktivierung und deren Unterstützung durch eine teilweise Benetzung mit wässrigem Schwefelsäureaerosol. Bildquelle: Paoli & Shariff (2016), adaptiert von Schumann (1996) (a) bzw. Kärcher (1999) (b).

($RH_{\text{liq}} = 100\%$) erreicht, können vorhandene Aerosolpartikel als Kondensationskern dienen, Wassertröpfchen aktivieren und während des weiteren Abkühlens homogen gefrieren (Kärcher et al. 2015). Die Eispartikelbildung ist schon nach etwa einer Sekunde abgeschlossen.

Thermodynamisch wird die Bildung von Kondensstreifen durch das Schmidt-Appleman-Kriterium beschrieben (Schmidt 1941, Appleman 1953), das in Abb. 2.1a illustriert wird. Während des Abkühlens der Abgasfahne nimmt der Wasserdampfpartialdruck (linear) mit der Temperatur ab, wobei die genaue Abhängigkeit (Geradensteigung) von den jeweiligen Triebwerks- und Treibstoffeigenschaften sowie von Umgebungsbedingungen abhängt (Schumann 1996). Liegt die Umgebungstemperatur (T_∞) unterhalb eines Schwellwerts, der Schmidt-Appleman-Temperatur (T_{SA}), wird während des Abkühlvorgangs Flüssigwassersättigung erreicht und das Schmidt-Appleman-Kriterium ($T_\infty < T_{\text{SA}}$) ist erfüllt. Dabei konnten in-situ Messungen bestätigen, dass die Erfüllung des Schmidt-Appleman-Kriteriums eine notwendige Voraussetzung zur Kondensstreifenbildung darstellt (Busen & Schumann 1995, Schumann 1996, Petzold et al. 1997). Gewissermaßen im Gegensatz zur initialen Bildung von Kondensstreifen, die von RH_{liq} kontrolliert wird, ist es die relative Feuchte über Eis, RH_i , die deren weitere Entwicklung und Lebensdauer maßgeblich bestimmt.

Die zur Eispartikelbildung nötigen Nukelationskerne können den Triebwerksemissionen entstammen oder auch aus der Umgebungsluft in die Abgasfahne eingemischt werden. Eingemischtes Umgebungsaerosol enthält zwar gut wasserlösliche Substanzen bspw. auf Sulfat- oder organischer Basis (Murphy et al. 1998) und trägt damit in gewissem Maß zur Eispartikelbildung bei, kann jedoch aufgrund vergleichsweise geringer Konzentrationen die Sichtbarkeit junger Kondensstreifen nicht alleine erklären (Kärcher et al. 1996). Vielmehr kommt diesbezüglich den emittierten und in

der Abgasfahne in weitaus höheren Konzentrationen vorliegenden (nicht-volatilen) Rußpartikeln und volatilen Aerosolpartikeln eine Schlüsselrolle zu (Kärcher et al. 2015).

Zu den volatilen ultrafeinen¹ Aerosolpartikeln tragen hauptsächlich zwei Arten von Partikeln bei. Während wässriges Schwefelsäureaerosol durch die Oxidation emittierter Schwefeloxide gebildet wird, führt die Ionisation von Kohlenwasserstoffen im Verbrennungsprozess zur Bildung sog. Chemi-Ionen und größerer Molekülcluster (Yu & Turco 1997). Zwar ist die Verfügbarkeit volatiler Partikel mit etwa 10^{16} - 10^{17} Partikeln pro kg verbranntem Treibstoff unabhängig vom Schwefelgehalt des Treibstoffs sehr hoch (Brock et al. 2000), jedoch sind diese zu klein, um die beobachtete Kondensstreifenbildung bei Umgebungstemperaturen leicht unterhalb T_{SA} erklären zu können (Kärcher et al. 1995). Weiter zeigen in-situ Messungen (Busen & Schumann 1995), dass die Kondensstreifenbildung im Umfeld üblicher Rußemissionsniveaus ($> 10^{14} \text{ kg}^{-1}$) nicht signifikant vom Schwefelgehalt des verbrannten Treibstoffs beeinflusst wird.

Auf Basis dieser Argumentationslinie wurde schon früh vermutet, dass emittierten Rußpartikeln bei der Eispartikelbildung wesentliche Bedeutung zukommt (Kärcher et al. 1995, 1996). Rußpartikel bestehen aus reinem Kohlenstoff mit einem variablen Anteil von organisch gebundenem Kohlenstoff. Sie entstehen durch eine unvollständige Verbrennung der im Treibstoff vorhandenen Kohlenwasserstoffe (Bockhorn 1994), wobei insbesondere ringförmige Strukturen (sog. Aromaten) Rußpartikelvorläufer darstellen. Durch Koagulation initial gebildeter Rußstrukturen wachsen Fraktale mit mittleren Durchmessern von etwa 20-100 nm heran (Petzold et al. 2003, Timko et al. 2010, Rojo et al. 2015). Diese erweisen sich zwar als wenig effiziente Keime bzgl. einer heterogenen Eiskernung (Bond et al. 2013, Kärcher et al. 2007), können jedoch trotz ihrer ursprünglich hydrophoben Natur bei sehr hohen Wasserübersättigungen, wie sie in sich abkühlenden Abgasfahnen auftreten, flüssige Wassertropfen aktivieren und anschließend homogen gefrieren (Kärcher et al. 2015).

Dabei hat die Verfügbarkeit emittierter Rußpartikel im Flugzeugnachlauf direkten Einfluss auf die Mikrophysik volatiler Aerosolpartikel. So können die Oberflächen der vergleichsweise großen Rußpartikel teilweise von wässrigem Schwefelsäure- oder organischem Aerosol benetzt werden (Kärcher 1999, Wong et al. 2013), wodurch sich deren Wasserlöslichkeit bzw. Fähigkeit flüssige Wassertropfen zu aktivieren insgesamt verbessert. Abb. 2.1b veranschaulicht den Prozess der Rußaktivierung sowie deren Unterstützung durch die Benetzung mit volatilem, gut wasserlöslichem Material schematisch (am Beispiel von Schwefelsäureaerosol). Nach der Aktivierung der Rußpartikel bei (lokalem) Vorliegen von Wassersättigung, stellen diese aufgrund ihrer Größe eine effiziente Senke für verfügbaren Wasserdampf dar und wachsen durch dessen Aufnahme, was insgesamt zu einem schnellen Abbau der Wasserübersättigung führt². Insbesondere wird hierdurch das Wachstum kleinerer, wässriger Aerosolpartikel im Umfeld hoher Rußpartikelzahlen effektiv unterdrückt. Eingehende

¹ Als ultrafein werden Partikel mit Größen $< 10 \text{ nm}$ bezeichnet.

² Eine mikrophysikalische Erweiterung des thermodynamischen Schemas aus Abb. 2.1a findet sich in Kärcher et al. (2015).

Prozessstudien zeigen, dass ein wesentlicher Beitrag ultrafeiner volatiler Partikel zur Eispartikelbildung nur im Umfeld sehr niedriger Rußemissionen ($< 10^{14} \text{ kg}^{-1}$) bei zugleich sehr geringen Temperaturen ($\leq T_{\text{SA}} - 10 \text{ K}$) zu erwarten ist (Kärcher & Yu 2009).

Dieser von prozessbasierten Modellen motivierten Vorstellung einer von Ruß kontrollierten Eisbildung steht vergleichsweise wenig direkte experimentelle Evidenz gegenüber. So deuten Flugmessungen zwar indirekt darauf hin, dass mindestens 1/3 der emittierten Rußpartikel bei der Eisbildung beteiligt gewesen sein sollten (Schröder et al. 1998), jedoch scheinen direkt gemessene Eispartikelkonzentrationen nicht in Einklang mit Abschätzungen aktueller Rußemissionsniveaus und einer von Ruß kontrollierten Eisbildung zu stehen (Schumann et al. 2013, Schumann & Heymsfield 2017). Inwieweit ein im idealisierten Laborversuch (Wong et al. 2013) beobachteter kontrollierender Einfluss von Ruß auf die Eispartikelbildung reale Prozesse im Flugzeugnachlauf widerspiegelt ist unklar. Damit steht aus experimenteller Sicht die Überprüfung der Hypothese der von Ruß kontrollierten Eisbildung (im Umfeld hoher Rußemissionen) unter realen Bedingungen (im Flugversuch) weiterhin aus.

2.1.2 Weitere Entwicklung: Dynamische und mikrophysikalische Prozesse

Formal lässt sich die zeitliche Entwicklung von Kondensstreifen in verschiedene Phasen unterteilen, die jeweils vom Ablauf unterschiedlicher mikrophysikalischer und dynamischer Prozesse geprägt werden. Je nach Alter des Kondensstreifens wird typischerweise zwischen Jet-, Wirbel- und Diffusionsphase unterschieden (s. Abb. 2.2). Um eine präzise Vorstellung der in den jeweiligen Entwicklungsstadien relevanten Prozesse zu entwickeln, gilt es, die Möglichkeiten von Modellierung und Messung in Synergie zu nutzen. Während es Simulationen ermöglichen detaillierte Parameter- bzw. Sensitivitätsstudien durchzuführen, bieten Messungen den Vorteil die Variabilität der real ablaufenden Prozesse erfassen zu können. Damit können Messungen wesentlich zur Erweiterung des Prozessverständnisses beitragen und sind insbesondere notwendig zur Modellvalidierung.

Vor diesem Hintergrund haben Messungen mikrophysikalischer und optischer Eigenschaften von Kondensstreifen schon eine gewisse Tradition. Während Satelliten- und LIDAR-Messungen vor allem auf größeren räumlichen Skalen vorteilhafte Methoden darstellen, eignen sich in-situ Messungen zur Analyse der Prozesse in jungen Kondensstreifen auf kleineren räumlichen Skalen. Letztere sind zwar von einigen experimentellen Herausforderungen begleitet, bieten jedoch direkten Zugang zu hoch aufgelösten Messungen von Eispartikeldurchmessern (D_p), -konzentrationen und -formen. So konnten im Rahmen verschiedener Messkampagnen - mit variierenden Schwerpunkten - bereits wertvolle Erkenntnisse über die zeitliche Entwicklung von Kondensstreifeneigenschaften gewonnen werden. Methodenübergreifend sollen im Weiteren die aufeinanderfolgenden Phasen der Kondensstreifenentwicklung beleuchtet werden.

So fällt die rasche Abkühlung des Abgasstrahls und die damit einhergehende Eisbildung in die Jetphase. Charakteristisch für diese ist der Austritt der heißen Triebwerksemissionen mit hoher Geschwindigkeit relativ zur Umgebung, was aufgrund

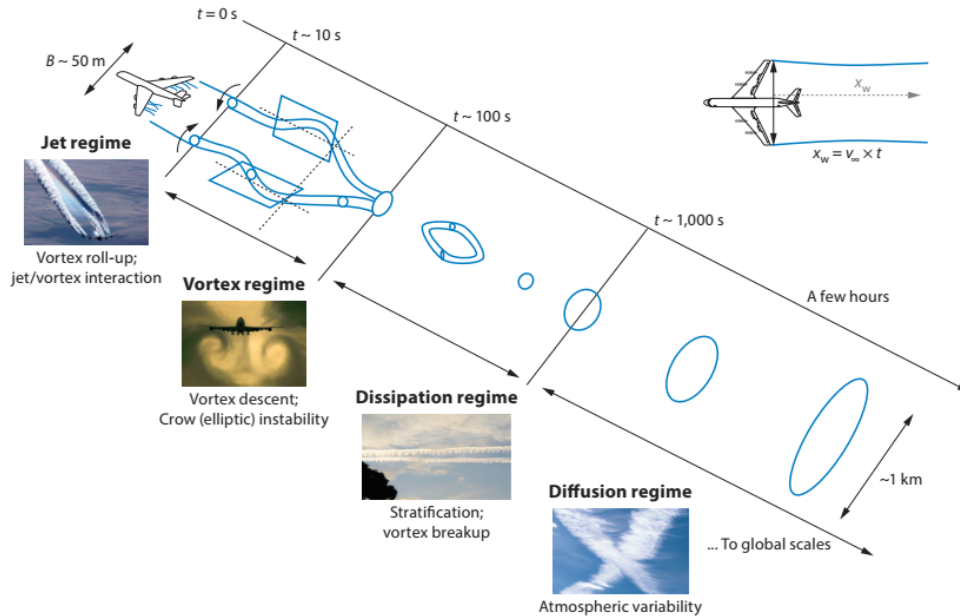


Abbildung 2.2 Illustration der verschiedenen Entwicklungsstadien eines langlebigen Kondensstreifens, aus dem sich in eisübersättigten atmosphärischen Bedingungen ein Kondensstreifen-Zirrus bildet. Bildquelle: Paoli & Shariff (2016), adaptiert von Gerz et al. (1998).

von Scherung zu turbulenter Durchmischung und hohen Kühlraten führt. Nach der Bildung von Eispartikeln können diese durch den zügigen Abbau hoher Eisübersättigungen auf Größen von bis zu einigen μm anwachsen (Kärcher & Voigt 2017). Diesbezüglich zeigen in-situ Messungen übereinstimmend, dass wenige Sekunden alte Kondensstreifen von Eispartikeln mit $D_p < 10 \mu\text{m}$ dominiert werden, für die eine unimodale Größenverteilung mit einem Maxima bei $D_p \approx 1 \mu\text{m}$ und einem drastischen Konzentrationsabfall um mehrere Größenordnungen für $D_p \rightarrow 10 \mu\text{m}$ charakteristisch sind (Petzold et al. 1997, Baumgardner & Gandrud 1998, Schröder et al. 1999). Die in den Experimenten maximal gemessenen Eispartikelkonzentrationen im Bereich von etwa $1000\text{-}2000 \text{ cm}^{-3}$ scheinen jedoch - aufgrund instrumenteller Limitierungen¹ - real vorliegende Konzentrationen signifikant zu unterschätzen (Schumann & Heymsfield 2017). Diese Einschätzung wird dadurch erhärtet, dass die gute optische Sichtbarkeit junger Kondensstreifen bereits wenige Meter hinter dem Triebwerksausgang Eispartikelkonzentrationen $\geq 10^4 \text{ cm}^{-3}$ voraussetzt (Kärcher et al. 1996). Die Jetphase endet mit dem Abbau ursprünglicher Temperatur- und Geschwindigkeitsunterschiede zwischen Jet und Umgebung nach etwa 10-20 s (Gerz & Ehret 1997).

Der Übergang von der Jetphase zur etwa 5 min andauernden Wirbelphase erfolgt fließend. Letztere ist entscheidend vom Einmischen eines Großteils der Emissionen bzw. des Kondensstreifens in ein sich im Nachlauf ausbildendes Wirbelpaar und dessen Abwärtsbewegung geprägt (Paoli & Shariff 2016). Die Ausbildung eines Wirbelfeldes

¹ Ursächlich hierfür zeigen sich insbesondere Koinzidenzartefakte, sowie - in geringerem Maß - die Lage der unteren Grenze des D_p -Messbereichs des jeweiligen Instruments (s. Kap. 3.4).

ist dabei direkt mit der Erzeugung von Auftrieb verknüpft. So bildet sich durch die schnelle Anströmung ($\approx 200 \text{ m/s}$) der Flügelprofile eine Druckverteilung an deren Oberflächen aus, die in erster Linie das Flugzeug in der Luft hält, aber auch eine Zirkulation um die Flügel induziert. So entwickelt sich ein turbulentes Strömungsfeld, das von zwei gegenläufig rotierenden Wirbeln gekennzeichnet ist, die mit einer Geschwindigkeit von etwa $1\text{-}2 \text{ m s}^{-1}$ absinken (s. Abb. 2.2). Die genaue Beschaffenheit bzw. Dynamik des Wirbelfeldes wird von einer Vielzahl an Parametern bestimmt, darunter z.B. Flügelprofil, -spannweite, Flugzeugtyp, -masse, -geschwindigkeit und die atmosphärische Stabilität (Holzäpfel 2014, Unterstrasser & Görsch 2014). Da ein substanzieller Teil der Spurengas-, Partikel- und Eisemissionen in das entstehende Wirbelpaar eingemischt und darin vergleichsweise gut abgekapselt abwärts prozessiert wird, hat die Wirbeldynamik entscheidenden Einfluss auf ablaufende mikrophysikalische Prozesse.

Durch das Absinken des auch als primärer Nachlauf bezeichneten Wirbelsystems, kommt es in diesem zu einer adiabatischen Erwärmung, was eine Abnahme der relativen Feuchte bewirkt. Werden dabei (lokal) eisuntersättigte Bedingungen erreicht, kann es zur (partiellen oder vollständigen) Sublimation von Eispartikeln kommen. Die Möglichkeit zur Sublimation besteht insbesondere auch in Fällen, in denen das Wirbelsystem in einer eisübersättigten Umgebung eingebettet ist (Sussmann & Gierens 1999, Lewellen & Lewellen 2001), da sich in Kondensstreifen bereits auf kurzen Zeitskalen ($\approx 20 \text{ s}$) der Gleichgewichtszustand ($RH_i = 100\%$) zwischen Wasser in der Gas- und Eisphase einstellt (Kaufmann et al. 2014). LES-Simulationen nach zu urteilen, wird das Ausmaß der Sublimationsverluste hauptsächlich von der Umgebungsfeuchte (RH_i), der initialen Eispartikelkonzentration und des Flugzeugtyps (bzw. der Wirbelabsinktiefe) bestimmt (Unterstrasser 2016, Unterstrasser & Görsch 2014). Oberhalb des primären kann es zur Ausbildung eines sekundären Nachlaufs kommen (Misaka et al. 2012). Dieser setzt sich aus den Emissionen zusammen, die gar nicht erst in das Wirbelsystem eingemischt wurden, sowie aus jenen, die während des Absinkens des Wirbelsystems aus diesem ausgemischt - und teilweise aufwärts prozessiert - werden (Holzäpfel et al. 2001). Infolge der Superposition dynamischer und mikrophysikalischer Prozesse entwickelt sich während der Wirbelphase eine komplexe inhomogene Verteilung der Partikel- und Spurengaskonzentrationen. Die in Abb. 2.3 dargestellten Resultate entsprechender LES-Simulationen veranschaulichen dies eindrücklich am Beispiel der zeitlichen und räumlichen Verteilung von Eispartikelkonzentrationen.

Im Vergleich zur Jetphase erweisen sich in-situ Messungen während der Wirbelphase als deutlich robuster, da bei diesen initial sehr hohe Eispartikelkonzentrationen bereits signifikant verdünnt bzw. reduziert wurden (Schumann et al. 1998, Voigt et al. 2010). So beobachten Schröder et al. (1999) gegen Ende der Wirbelphase maximale Konzentrationen von wenigen hundert cm^{-3} der auf mittlere Durchmesser von etwa $2\text{-}3 \mu\text{m}$ angewachsenen Eispartikel. Jedoch machen aktuellere experimentelle Arbeiten deutlich, dass Verdünnungs- und Wachstumsprozesse nicht homogen erfolgen, sondern vielmehr unter dem Einfluss der Wirbeldynamik unterschiedlich im primären und sekundären Nachlauf ablaufen. So finden Gayet et al. (2012) bei Messungen im Kondensstreifen eines Airbus A380 eine gegenüber dem primären Nachlauf deutlich höhere Verdünnung im sekundären Nachlauf. Weiter liefert eine Gegenüberstellung

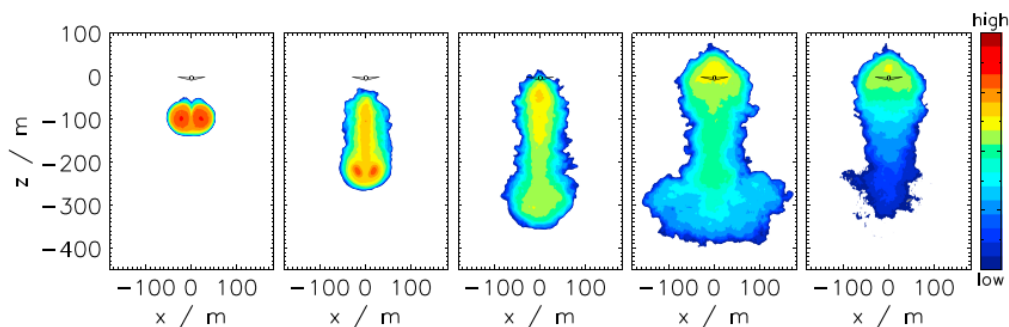


Abbildung 2.3 Large-eddy Simulationen (LES) der zeitlichen Entwicklung von Eispartikelkonzentrationen (farbkodiert) während der Wirbelphase im Querschnittsprofil des Kondensstreifens. Die ersten vier Paneele zeigen Ergebnisse für Kondensstreifenalter von 1, 2, 3 und 5 min und $RH_i = 120\%$, während das fünfte Panel (ganz rechts) das Simulationsergebnis nach 5 min bei $RH_i = 110\%$ darstellt. Das emittierende Flugzeug befindet sich im Ursprung des Koordinatensystems ($z =$ Vertikale, $x =$ Horizontale) und bewegt sich in die Zeichenebene hinein. Quelle: Unterstrasser (2014)

der in beiden Nachläufen gemessenen Eispartikelanzahlen (Schumann et al. 2013) und Größenverteilungen (Jeßberger et al. 2013) Hinweise auf das - von Modellen prognostizierte - partielle Verdampfen von Eispartikeln in den absinkenden Wirbeln. In einem eisübersättigten Umfeld führt dies insgesamt zu einem schnelleren Eispartikelwachstum im sekundären Nachlauf, da dort der Einfluss von Sublimation geringer ausfällt und die höhere Verdünnung zu mehr Feuchteintrag bei zugleich reduzierter Konkurrenz um diese führt (Paoli & Shariff 2016).

Neben Eispartikelgrößen und -konzentrationen variieren auch deren Formen im zeitlichen Verlauf. So indizieren Messungen bei Altern von wenigen Sekunden eine näherungsweise sphärische Partikelform (Schröder et al. 1999, Heymsfield et al. 2010), während das Anwachsen der Eispartikel in alternden Kondensstreifen - insbesondere im sekundären Nachlauf - mit der Entwicklung zunehmend asphärischer Formen einhergeht (Gayet et al. 2012, Chauvigné et al. 2018). Messungen von Voigt et al. (2011) in 1-2 min alten Kondensstreifen deuten darauf hin, dass sich die Asphärizität der Eiskristalle vergleichsweise gut durch die Annahme einer rotationselliptischen Form mit einem Halbachsenverhältnis (*Aspect Ratio*) von 0.5 charakterisieren lässt, was insbesondere auch methodisch realisierbar ist (Borrmann et al. 2000). Allerdings ist bislang wenig über die genauen Formen der μm -großen Eispartikel in jungen Kondensstreifen bekannt, da deren explizite Bestimmung durch die von derzeit genutzten Instrumenten maximal erzielten Auflösungen erschwert wird.

Das Ende der Wirbelphase wird durch das Aufkommen von Instabilitäten (Crow 1970) eingeläutet, unter deren Einfluss die Wirbel letztlich aufbrechen. Die Stärke der Crow-Instabilität bzw. die Lebensdauer der Wirbel wird dabei hauptsächlich von der Stabilität der atmosphärischen Schichtung, der Flugzeugmasse und -geschwindigkeit, sowie von Windscherung und atmosphärischer Turbulenz bestimmt (Misaka et al. 2012, Holzäpfel 2014, Unterstrasser & Görsch 2014).

Nach dem Aufbrechen der Wirbel bestimmen Mischungsprozesse mit der Umgebung die weitere Entwicklung der Kondensstreifen während der Dissipations- bzw. Diffusionsphase. So können sich aus ursprünglich linienförmigen Kondensstreifen in großräumig eisübersättigten Gebieten Kondensstreifen-Zirren mit Lebensdauern von mehreren Stunden und Ausdehnungen einiger hundert km^2 entwickeln (Haywood et al. 2009, Vázquez-Navarro et al. 2010, 2015). Während anfänglich das Kondensstreifenvolumen auch durch turbulente Mischung zunimmt, ist es vor allem das Zusammenspiel aus vertikaler Windscherung und vertikaler Ausdehnung des jungen Kondensstreifens, das die horizontale Ausbreitung sich entwickelnder Kondensstreifen-Zirren bestimmt (Burkhardt & Kärcher 2009). Mit dieser Ausbreitung geht eine sukzessive Verdünnung bzw. Reduktion der Eispartikelkonzentrationen einher (Schumann et al. 1998). Dabei bestimmt die Stärke der Mischungsprozesse und die relative Feuchte der beigemischten Umgebungsluft, ob bzw. in welchem Maß Eispartikel durch den lokalen Abbau von Eisübersättigung weiter anwachsen. Während in jungen Kondensstreifen ein substantieller Teil des Eiswassergehalts aus den Triebwerksemissionen von Wasserdampf stammt, resultiert der wesentliche Beitrag zur Eismasse in gealterten Kondensstreifen-Zirren aus dem Abbau der Eisübersättigung eingemischter Umgebungsluft.

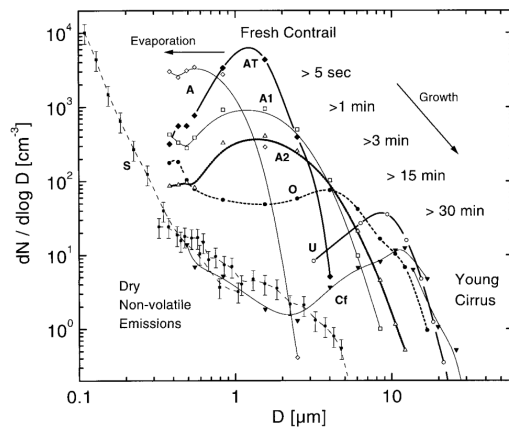


Abbildung 2.4 Zeitliche Entwicklung der in Kondensstreifen gemessenen Größenverteilungen von Eispartikeln aus Schröder et al. (1999).

Durch entsprechende in-situ Messungen in eisübersättigten Gebieten konnte der Übergang von linearen Kondensstreifen zu Kondensstreifen-Zirren eingehend untersucht werden. So sind in Abb. 2.4 die von Schröder et al. (1999) bei verschiedenen Kondensstreifenaltern gemessenen Eispartikelgrößenverteilungen einander gegenübergestellt. Während den ersten 30 min des Lebenszyklus ist dabei ein Anwachsen der mittleren Eispartikeldurchmesser auf etwa $10\ \mu\text{m}$ und eine damit einhergehenden Reduktion der Konzentrationen um 2-3 Größenordnungen zu beobachten. Durch weiteres Eispartikelwachstum und die kontinuierlich zunehmende Verdünnung werden die Eigenschaften der Kondensstreifen-Zirren den

natürlicher Zirren¹ immer ähnlicher, was insbesondere für deren Unterscheidung anhand von Satellitenmessungen eine Herausforderungen darstellt (Minnis et al. 2013, Vázquez-Navarro et al. 2015). Indes zeigen in-situ Messungen in Kondensstreifen-Zirren (Voigt et al. 2017), dass in diesen die Konzentration der kleineren Eiskristalle ($D_p < 50\ \mu\text{m}$) auch noch nach 3 Stunden deutlich über deren Konzentration in natürlichen Zirren liegt - und eine Unterscheidung zwischen diesen Wolkentypen damit noch möglich bzw. notwendig ist.

¹ Für natürliche Zirren sind Konzentrationen von etwa $0.1\text{-}1\ \text{cm}^{-3}$ und Partikelgrößen von bis zu einigen hundert μm charakteristisch (Voigt et al. 2017).

Bei der Auflösung von Kondensstreifen-Zirren sublimieren deren Eiskristalle in eisuntersättigten Umgebungsbedingungen, wobei zwischen zwei Szenarien unterschieden wird (Bier et al. 2017). Bei der mikrophysikalisch kontrollierten Auflösung wachsen Eiskristalle zunächst auf hinreichend große Dimensionen an, bevor sie in tiefer liegende eisuntersättigte Gebiete sedimentieren und dort sublimieren. Demgegenüber steht die dynamische Kontrolle, bei der Kondensstreifen durch horizontalen Transport oder die Einbettung in großräumig abgleitende Luftmassen trockeneren (eisuntersättigten) Bedingungen ausgesetzt werden, was wiederum zur Sublimation der Eispartikel führt.

Konnten die bisherigen experimentellen Arbeiten wesentlich dazu beitragen relevante Prozesse der Kondensstreifenentwicklung zu identifizieren und zu charakterisieren, besteht auch im Hinblick auf deren adäquate Implementierung in globalen Klimamodellen die Notwendigkeit weiterer experimenteller Studien (Schumann & Heymsfield 2017, Kärcher 2018). Insbesondere kommt der systematischen Analyse der die Wirbelphase dominierenden Prozesse fundamentale Bedeutung zu, sind es doch die Kondensstreifeneigenschaften zum Ende der Wirbelphase, die die weitere Entwicklung sich ausbildender Kondensstreifen-Zirren über Stunden hinweg prägen (Unterstrasser & Gierens 2010). Durch das äußerst dynamische Umfeld und resultierende inhomogene Strukturen, stellt die gemeinsame Interpretation der während der Wirbelphase gewonnenen Stichproben allerdings eine gewisse Herausforderung dar. So steht bislang ein direkter experimenteller Nachweis der von Modellen prognostizierten Sublimationsverluste von Eispartikeln während der Wirbelphase - sowie deren etwaige Quantifizierung - noch aus.

2.2 Klimawirkung von Kondensstreifen

Schon deren Sichtbarkeit mit bloßem Auge belegt eindrücklich, dass Kondensstreifen (-Zirren) den atmosphärischen Strahlungshaushalt beeinflussen. Der insgesamt von der luftfahrtinduzierten Bewölkung (AIC) verursachte Strahlungsantrieb ist dabei Folge zweier sich teilweise kompensierender Effekte. So ist der Streuung bzw. Reflexion kurzwelliger solarer Strahlung eine kühlende Wirkung auf die Erdatmosphäre zuzuschreiben, da insgesamt weniger solare Strahlung in Bodennähe gelangen bzw. dort absorbiert werden kann. Demgegenüber wirkt die Absorption und Emission langwelliger terrestrischer Strahlung bei tiefen Temperaturen (215-230 K) wärmend, da hierdurch die Abstrahlung terrestrischer Strahlung ins Weltall - zu einem gewissen Grad - unterdrückt wird. Da der wärmende Einfluss den kühlenden im Mittel übertrifft, resultiert ein positiver, wärmend wirkender Netto-Strahlungsfluss am Oberrand der Atmosphäre bzw. an der Tropopause (Meerkötter et al. 1999, Myhre et al. 2009). Eine quantitative Bestimmung des von AIC verursachten Strahlungsantriebs wird dadurch erschwert, dass - unabhängig von einer etwaigen Kondensstreifenbildung - eine Vielzahl potentieller Kondensationskerne (Ruß, organische oder Sulfataerosol) vom Flugverkehr emittiert werden. Diese können während ihrer Verweildauer in der Atmosphäre die Wolkenbildung und deren Eigenschaften beeinflussen, was wiederum die Strahlungsbilanz der als „natürlich“ klassifizierten Bewölkung modifiziert (*indirekter Aerosoleffekt*).

Zur Berechnung der Klimawirkung von Kondensstreifen (-Zirren) wurden verschiedene Ansätze entwickelt (Burkhardt & Kärcher 2011, Jacobson et al. 2011, Voigt et al. 2011, Chen & Gettelman 2013, Schumann & Graf 2013, Bock & Burkhardt 2016a, Bier et al. 2017). Besondere Bedeutung kommt den globalen Zirkulationsmodellen (GCM) zu. Diese simulieren atmosphärische Prozesse auf großen räumlichen und zeitlichen Skalen, welche von direkten Messungen nicht erfasst werden können. Damit ermöglichen es GCMs prinzipiell, die vielfältigen Abhängigkeiten der von Kondensstreifen induzierten Strahlungsflüsse realitätsnah zu berücksichtigen. Dazu gilt es, über deren Lebensdauer variierende Eigenschaften der Kondensstreifen sowie vorherrschende synoptische Situationen möglichst präzise in den Strahlungstransportrechnungen zu berücksichtigen (Bock & Burkhardt 2016b). Ein besonderes Augenmerk muss hierbei auf einer genauen und gut aufgelösten Simulation von Temperatur- und Feuchtefeldern in der UTLS Region liegen. Unabhängig davon welches Modell zur Berechnung herangezogen wird, stellt dessen Initialisierung mit den Emissionen der globalen Verkehrsflugzeugflotte eine beträchtliche Herausforderung dar. Während globale Flugbewegungen in entsprechenden Katastern (Eyers et al. 2004, Wilkerson et al. 2010) systematisch erfasst werden, bleibt fraglich, in welchem Zusammenhang Triebwerksemissionen unter realen Flugbedingungen mit den überwiegend auf Bodenmessungen der Hersteller beruhenden Werten aus Emissionsdatenbanken (ICAO 2018) stehen. Darüber hinaus müssen zur GCM-Initialisierung die räumlich stark konzentrierten bzw. inhomogenen Verteilungen der Eispartikel junger Kondensstreifen (Alter ≤ 10 min) in eine Gitterbox wesentlich größeren Ausmaßes gewissermaßen eingebettet werden.

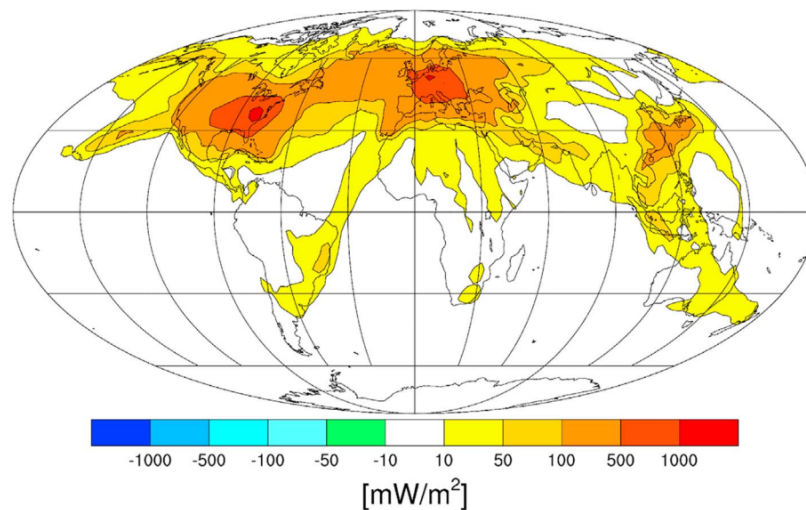


Abbildung 2.5 Räumlich aufgelöster Strahlungsantrieb (farbkodiert) der luftfahrt-induzierten Bewölkung im mehrjährigen Mittel aus Bock & Burkhardt (2016a). Die Simulationen wurden auf Basis des Flugverkehrskatasters AERO2k für das Jahr 2002 (Eyers et al. 2004) durchgeführt. Motiviert von in-situ Messungen wurde das globale Modell mit einer mittleren Eispartikelkonzentration von 150 cm^{-3} im 7.5 min alten Kondensstreifen - also nach der Wirbelphase - initialisiert. Im globalen Mittel ergibt sich ein Strahlungsantrieb von 35 mW m^{-2} .

In Abb. 2.5 sind globale Simulationen von Bock & Burkhardt (2016a) dargestellt. Unter Nutzung des Modells ECHAM5 und auf Basis der Flugbewegungen des Jahres 2002 (AERO2k) wurde der räumlich aufgelöste Strahlungsantrieb der luftfahrtinduzierten Bewölkung im mehrjährigen Mittel bestimmt. Dabei ergeben sich starke regionale Unterschiede mit höchsten Strahlungsantrieben über Nordamerika, dem nördlichen Atlantik, Europa und dem Westpazifik. Ursächlich ist dies in erster Linie darauf zurückzuführen, dass in diesen Regionen auch das Flugaufkommen am höchsten ist. Weiter ist insbesondere in den nördlichen Extratropen die Wahrscheinlichkeit zur Bildung von Kondensstreifen gegenüber dem globalen Mittel deutlich erhöht (Bier & Burkhardt 2019). Während diese, auf den Flugbewegungen des Jahres 2002 (AERO2k) basierenden, Simulationen auf einen globalen Mittelwert von 35 mW m^{-2} führen, liefert dasselbe Modell unter Nutzung des Katasters AEDT für das Jahr 2006 (Wilkerson et al. 2010) einen Wert von 56 mW m^{-2} (Bock & Burkhardt 2016a).

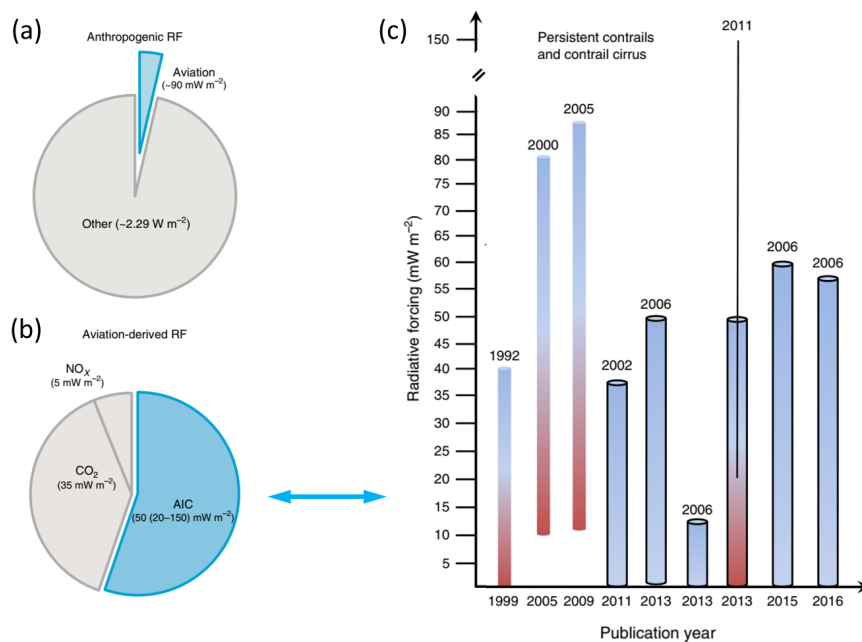


Abbildung 2.6 (a,b) Anteilige Darstellung der Beiträge des Luftverkehrs zum gesamten anthropogenen Strahlungsantrieb (RF). (c) Chronologische Gegenüberstellung der von verschiedenen Studien im zeitlichen und globalen Mittel bestimmten Strahlungsantriebe der luftfahrtinduzierten Bewölkung (AIC). Über den Balken ist jeweils das Jahr der berücksichtigten Flugbewegungen angegeben. So spiegelt z. B. das ganz rechts dargestellte Ergebnis (2016: 56 mW m^{-2} für 2006) das Resultat von Bock & Burkhardt (2016a) auf Basis des AEDT 2006 Katasters wider. (a,b,c) wurden aus Kärcher (2018) übernommen.

Angesichts der erläuterten Herausforderungen sowohl Flugbewegungen, Triebwerksemissionen, im Flugzeugnachlauf ablaufenden Prozesse, die synoptische Situation sowie entsprechende atmosphärische Parameter präzise in den globalen Modellen zu implementieren bzw. zu simulieren, scheint eine gewisse Varianz zwischen verschiedenen Studienergebnissen durchaus nachvollziehbar (Bock & Burkhardt 2016a, Kärcher 2018). In Abb. 2.6 werden die in verschiedenen Arbeiten ermittelten Strahlungsantriebe der luftfahrtinduzierten Bewölkung einander gegenübergestellt (c), sowie im

Kontext der Beiträge anderer Luftverkehrsemissionen (b) und der gesamten anthropogenen Klimawirkung (a) dargestellt.

Während sich für CO_2 ein Strahlungsantrieb von etwa 35 mW m^{-2} berechnen lässt, spannen die Studienergebnisse für AIC einen Bereich von etwa $20\text{-}150 \text{ mW m}^{-2}$ auf und streuen damit erheblich um das Studienmittel von 50 mW m^{-2} (Kärcher 2018). In Verbindung mit den vom indirekten Aerosoleffekt ausgehenden Unsicherheiten, trägt dies zur Gesamteinschätzung eines derzeit noch geringen wissenschaftlichen Verständnisses der der luftfahrtinduzierten Bewölkung zuzuschreibenden Klimawirkung bei (Penner et al. 1999, Lee et al. 2009). Insgesamt ist jedoch davon auszugehen, dass die luftfahrtinduzierte Bewölkung den größten Einzelbeitrag zum gesamten vom Luftverkehr induzierten Strahlungsantrieb beisteuert, also insbesondere die Wirkung des seit Aufkommen der kommerziellen Luftfahrt in der Atmosphäre akkumulierten CO_2 übertrifft (Burkhardt & Kärcher 2011).

Qualitativ lässt sich die von Kondensstreifen induzierte Klimawirkung im Wesentlichen auf zwei unabhängige Effekte zurückführen. Um hohe Strahlungsantriebe bewirken zu können, bedarf es atmosphärischer Bedingungen, unter denen sich ein initial gebildeter Kondensstreifen weit ausbreiten, lange überdauern und zum Kondensstreifen-Zirrus entwickeln kann. Ist diese Voraussetzung erfüllt, wird der resultierende Strahlungsantrieb maßgeblich von den mikrophysikalischen Eigenschaften und der räumlichen Verteilung der Eispartikel des noch jungen Kondensstreifens (Alter ≤ 10 min) bestimmt.

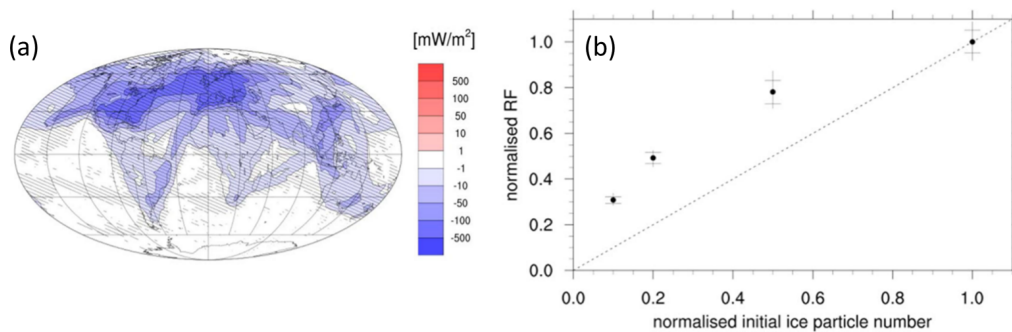


Abbildung 2.7 (a) Relative Änderung des räumlich aufgelösten, zeitlich gemittelten Strahlungsantriebs der luftfahrtinduzierten Bewölkung bei einer gegenüber dem Referenzlauf um 80 % reduzierten Eispartikelkonzentration in jungen Kondensstreifen (7.5 min alt). Der Referenzlauf entspricht der in Abb. 2.5 dargestellten Simulation. (b) Relative Änderung global und zeitlich gemittelter Strahlungsantriebe (RF) bei Reduktion mittlerer Eispartikelkonzentrationen zum Initialisierungszeitpunkt (bei 7.5 min) gegenüber dem Referenzfall. Letzterer wird durch den Datenpunkt (1.0, 1.0) dargestellt. Quelle: Burkhardt et al. (2018)

Dies verdeutlichen die in Abb. 2.7 gezeigten Resultate von GCM-Studien aus Burkhardt et al. (2018), die die Sensitivität des globalen Strahlungsantriebs der luftfahrtinduzierten Bewölkung auf mittlere Eispartikelkonzentrationen des 7.5 min alten Kondensstreifens (Initialisierungszeitpunkt) untersuchen. Der Referenzlauf wurde dabei so initialisiert, dass dieser in-situ Messungen von Eispartikelkonzentrationen

in jungen Kondensstreifen der derzeitigen Flugzeugflotte bestmöglich repräsentiert. Für gegenüber dem Referenzfall reduzierte initiale Eispartikelkonzentrationen ist ein deutlich nicht-linearer Trend hin zu geringeren Strahlungsantrieben zu beobachten. So resultiert eine Reduktion initialer Eispartikelkonzentrationen um 80 % (50 %) in einem um etwa 50 % (20 %) reduzierten Strahlungsantrieb. Zu etwas anderen Zahlen kommen Studien von Schumann et al. (2013), nach denen eine Reduktion der Eispartikelzahlen in jungen Kondensstreifen um 50 % eine Reduktion des Strahlungsantriebs um etwa 38 % bewirkt. Insgesamt verdeutlichen diese starken Abhängigkeiten des Strahlungsantriebs von den Eispartikelkonzentrationen junger Kondensstreifen jedoch eindrücklich die Notwendigkeit, Eisemissionen sowie im Flugzeugnachlauf ablaufende dynamische und mikrophysikalische Prozesse unter realen Bedingungen präzise zu charakterisieren, um belastbare Resultate zur Klimawirkung aus globalen Simulationen gewinnen zu können. Andererseits eröffnen diese Sensitivitätsstudien eine auf kurzen Zeitskalen (\propto Stunden) wirksame Option zur Mitigation der Klimawirkung des Luftverkehrs. Gelingt es durch technische oder operationelle Maßnahmen, Eispartikelkonzentrationen in jungen Kondensstreifen substanziell zu reduzieren, wären deutlich geringere Strahlungsantriebe und eine Reduktion des insgesamt wärmenden Einflusses der Luftfahrt auf die Erdatmosphäre die Folge.

2.3 Potential synthetischer Treibstoffe zur Mitigation der Klimawirkung von Kondensstreifen

Um die Klimawirkung des Luftverkehrs zu einem gewissen Grad von dessen Wachstum zu entkoppeln, stellt die Reduktion der Triebwerksemissionen ein naheliegendes und geeignetes Mittel dar. In Bezug auf Kondensstreifen steht dabei eine systematische Reduktion der Eispartikelkonzentrationen im Vordergrund (s. Kap. 2.2). Diese ergäbe sich als Folge reduzierter Rußemissionen, sofern die Hypothese einer von Ruß kontrollierten Eisbildung zutreffend ist. Vereinfacht ausgedrückt würde sich in diesem Szenario die gleiche Menge verfügbaren Wasserdampfs auf eine reduzierte Anzahl Rußpartikel aufteilen, was insgesamt zu weniger, im Mittel aber größeren Eispartikeln führen würde. Ebenso würde sich die aus der Umgebung eingemischte Feuchte auf weniger Eispartikel verteilen, die dadurch schneller anwachsen können. In der Folge ergäben sich geringere Lebensdauern, Bedeckungsgrade und optische Tiefen der Kondensstreifen-Zirren, was insgesamt zu geringeren Strahlungsantrieben bzw. einer Verringerung der Klimawirkung führen würde (Schumann et al. 2013, Bier et al. 2017, Burkhardt et al. 2018).

Neben der Entwicklung neuartiger Triebwerkstechnologien (Boies et al. 2015) zur systematischen Reduktion von Rußpartikelemissionen, kommt diesbezüglich auch der Verwendung geeigneter Treibstoffe wesentliche Bedeutung zu. Konventionell hergestelltes Kerosin fossilen Ursprungs besteht typischerweise aus einer Vielzahl verschiedener Kohlenwasserstoffe, die sich gemäß ihrer Molekülstruktur klassifizieren lassen. So zählen neben langkettigen unverzweigten (n-Alkane), langkettigen verzweigten (Iso-Alkane) und ringförmigen (Cyclo-Alkane) Strukturen insbesondere auch cyclische Kohlenwasserstoffe mit einem System delokalisierter Elektronen (Aromaten) zu den Hauptbestandteilen handelsüblichen Kerosins. In diesem Zusammenhang

wurde schon früh erkannt, dass die Rußbildung in erster Linie auf die aromatischen Kohlenwasserstoffe zurückzuführen ist (Bauer & Jeffers 1988, Richter & Howard 2000) und Treibstoffe mit geringeren Aromatengehalten¹ zu einer geringeren Rußbildung neigen (Beyersdorf et al. 2014, Braun-Unkhoff & Riedel 2015).

Die Aromatengehalte konventioneller, petroleumbasierter Kraftstoffe liegen typischerweise um etwa 20 vol%. Allerdings variieren die genauen Werte in Abhängigkeit von der Förderregion deutlich (Brem et al. 2015), vereinzelt existieren auch konventionelle Kraftstoffe mit verschwindend geringen Aromatengehalten. Erfolgt die Herstellung eines Kraftstoffs hingegen nicht durch das konventionelle Verfahren (Erdölraffination), wird dieser auch als alternativ bezeichnet². Ein solches alternatives Verfahren stellt der Fischer-Tropsch-Prozess (FTP) dar, bei dem Treibstoffe mit äußerst geringen Aromatengehalten synthetisiert werden. Deren Produktion im FTP basiert auf der Herstellung und anschließenden Verflüssigung eines aus CO und H₂ bestehenden Synthesegases unter kontrollierten Laborbedingungen. Da als Rohstoffquellen neben fossilen (Erdöl, Erdgas, Kohle) auch erneuerbare (Biomasse) Energieträger zur Verfügung stehen, können prinzipiell auch synthetische Treibstoffe mit deutlich reduzierten netto CO₂-Emissionen produziert werden (Biokraftstoffe). Unabhängig von der eingesetzten Rohstoffquelle werden im FTP Treibstoffe mit verschwindend geringen Aromaten- und Schwefelgehalten hergestellt, die deshalb auch als synthetisches paraffinbasiertes Kerosin (SPK) bezeichnet werden.

Allerdings muss ein SPK eine Vielzahl an physikalischen, chemischen und technischen³ Anforderungen (ASTM Standards) erfüllen, um zum Einsatz im realen Flugbetrieb zugelassen werden zu können. In diesem Zusammenhang wird vor allem an der Entwicklung von SPKs geforscht, deren Einsatz keine Triebwerksmodifikationen an der Bestandsflotte voraussetzten (sog. *drop-in SPKs*). Dabei gilt es SPKs zu synthetisieren, die sich trotz ihrer grundlegend anderen chemischen Zusammensetzung in relevanten Eigenschaften⁴ nicht zu sehr von konventionellen petroleumbasierten Treibstoffen unterscheiden. Während derzeit verfügbare SPKs die Zulassungskriterien meist nicht vollständig erfüllen, können etwa 50%-Mischungen aus konventionellen und synthetischen Treibstoffen durchaus im Flugbetrieb eingesetzt und deren Emissionen vermessen werden.

Detaillierte Untersuchungen des Einflusses der Aromaten- und Schwefelgehalte verschiedener Kraftstoffe auf resultierende Triebwerksemissionen wurden bislang überwiegend im Rahmen von Bodenmessungen angegangen (Timko et al. 2010, Lobo et al. 2011, Beyersdorf et al. 2014, Brem et al. 2015). Dabei unterschieden sich die Experimente zwar bezüglich der eingesetzten Triebwerke, Treibstoffe, Instrumentierung und des Versuchsaufbaus, dennoch wurde übereinstimmend festgestellt, dass Treibstoffe mit reduzierten Aromatengehalten Ruß in geringerer Anzahl, mittlerer Größe und

-
- 1 Geringere Aromatengehalte gehen in der Regel mit erhöhten H/C-Verhältnissen einher.
 - 2 Eine Untergruppe der alternativen Kraftstoffe stellen die Biokraftstoffe dar, die aus nachwachsenden Rohstoffquellen produziert werden.
 - 3 So muss z. B. sichergestellt sein, dass ursprünglich auf konventionelle Kraftstoffe ausgelegte Dichtungen des Kraftstoffsystems weiterhin ihren Zweck erfüllen.
 - 4 Wie z. B. Gefrierpunkt, Viskosität, Dichte, Energiedichte, Flammpunkt, Flammgeschwindigkeit, . . .

Gesamtmasse produzieren. Beispielsweise stellen Timko et al. (2010) die Emissionen eines Pratt & Whitney PW 308 Triebwerks bei dessen Betrieb mit konventionellem JP-8 (Aromatengehalt: 19 vol%), einem SPK (< 0.2 vol%) und einer 50/50-Mischung beider Kraftstoffe (9.5 vol%) einander gegenüber. Unter für Reiseflugbedingungen typischen Lastzuständen¹ werden dabei gegenüber JP-8 für SPK (50/50-Mischung) deutliche Reduktionen der Anzahl emittierter Rußpartikel von 47 % (20 %) und der Gesamtmasse von 58 % (10 %) festgestellt. Demgegenüber konnte für den gleichen Lastzustand ein wesentlich stärkerer Einfluss des Aromatengehalts auf die Rußemissionen eines CFM 56 Triebwerks beobachtet werden. So finden Beyersdorf et al. (2014) für Treibstoffe vergleichbarer Aromatengehalte gegenüber JP-8 relative Reduktionen der Rußpartikelzahlen von etwa 80-90 % (SPK) bzw. 40-50 % (50/50-Mischung). Messungen von Brem et al. (2015) bestätigen einen Einfluss des Aromatengehalts qualitativ und finden weiter, dass die Höhe der Rußemissionen eines Kraftstoffs quantitativ besser mit dessen Wasserstoffgehalt (negativ) korreliert.

Gegenüber Bodenmessungen gestalten sich entsprechende Analysen unter realen Flugbedingungen wesentlich aufwändiger - und teurer. So konnte ein Zusammenhang zwischen geringeren Aromatengehalten und reduzierten Rußemissionen erst kürzlich im Flugexperiment nachgewiesen werden (Moore et al. 2017). Hierzu kam neben konventionellem Jet A (Aromatengehalt: 21 vol%) auch eine 50/50-Mischung (13 vol%) aus diesem und Biotreibstoff (auf Leindotterbasis²) zum Einsatz³. So wurden unter typischen Reiseflugbedingungen für die 50/50-Mischung um etwa 50 % (60 %) reduzierte Emissionen der Anzahl (Gesamtmasse) der Rußpartikel gegenüber Jet A beobachtet. Zudem wurden im Vergleich zu Jet A für die 50/50-Mischung um etwa 14 % geringere mittlere Rußpartikeldurchmesser festgestellt (32.5 nm vs. 28 nm). Unabhängig vom verbrannten Treibstoff konnte eine deutliche Zunahme der Rußpartikelemissionen mit steigender Triebwerksleistung ausgemacht werden, sodass die absoluten Emissionen einen Bereich von etwa $1.5 - 8 \times 10^{14} \text{ kg}^{-1}$ (Jet A) bzw. $0.8 - 4 \times 10^{14} \text{ kg}^{-1}$ (50/50-Mischung) abdecken.

Demgegenüber ist die im Hinblick auf die Klimawirkung von Kondensstreifen-Zirren drängendste Frage, ob bzw. zu welchem Grad reduzierte Aromatengehalte auch geringere Eispartikelkonzentrationen in jungen Kondensstreifen bedingen, noch nicht untersucht worden. Bislang existieren weder die dafür notwendigen Flugmessungen in Kondensstreifen aus aromatenarmen Kraftstoffen (z. B. SPKs), noch sind Nukleations- und Wirbelphasenprozesse der Eispartikel experimentell hinreichend gut charakterisiert. Es ist das Ziel der vorliegenden Arbeit einen Beitrag zum Schließen dieser Wissenslücken zu leisten.

1 Üblicherweise zu 65 % der max. Triebwerksleistung angesetzt.

2 Dieser Biotreibstoff wurde im HEFA-Verfahren, einem zum FTP alternativer Weg zur Kraftstoffproduktion aus Biomasse, hergestellt. HEFA= Hydroprocessed Esters and Fatty Acids.

3 Jet A und JP-8 unterscheiden sich lediglich durch die ihnen beigemischten Additive.

KAPITEL 3

Grundlagen und Methoden der Partikelmessstechnik

Die experimentelle Charakterisierung von Kondensstreifen hinsichtlich mikrophysikalischer und optischer Eigenschaften durch in-situ Messungen erfordert den Einsatz eines breiten Spektrums an Messgeräten auf dem Forschungsflugzeug. Dies ist nötig, um - gegebenenfalls größen aufgelöste - Konzentrationen verschiedener Flugzeugemissionen (Eispartikel¹, Aerosolpartikel, Spurengase) über einen Bereich mehrerer Größenordnungen bestimmen zu können. Im Folgenden werden die im Rahmen dieser Arbeit genutzten Instrumente, deren theoretische Grundlagen, Funktionsprinzipien, Datenerfassungen und Limitierungen vorgestellt. Weiter wird gezeigt, wie sich mikrophysikalische und optische Eigenschaften von Eispartikeln aus den nativen Messwerten berechnen lassen. Insbesondere sollen in diesem Kapitel die Grundlagen geschaffen werden, auf denen das in Kap. 4 beschriebene Verfahren zur Kalibrierung der CAS (Cloud and Aerosol Spectrometer) aufbaut. Insgesamt ermöglichen es die detaillierten instrumentellen Arbeiten einen Datensatz hoher Qualität zu gewinnen, aus welchem - nach einer eingehenden Fehlerbetrachtung - belastbare Schlüsse auf im Kondensstreifen ablaufende mikrophysikalische Prozesse gezogen werden können (s. Kap. 5).

3.1 Wechselwirkung zwischen Licht und einzelnen Partikeln

Als elementare Fragestellung der Physik wurde die quantitative Beschreibung der Wechselwirkung zwischen Licht und Materie intensiv studiert. Bereits im 19. Jahrhundert wurden die grundlegenden *Maxwell-Gleichungen* (Maxwell 1865) entwickelt, in denen Licht als elektromagnetisches Feld behandelt wird. Im Rahmen der beiden folgenden bahnbrechenden „physikalischen Revolutionen“ wurde diese Theorie der klassischen Elektrodynamik um Lorentz-Kovarianz (Jackson 1975) sowie die Quantisierung der Felder (Peskin & Schroeder 1995) erweitert.

Der klassischen Elektrodynamik folgend, kann man sich die Wechselwirkung von Licht mit einem Teilchen kondensierter Materie qualitativ derart vorstellen, dass das Licht der einfallenden Primärstrahlung in das Teilchen² eindringt und dort positive

1 Da Eis erst im Nachlauf gebildet und nicht direkt emittiert wird, spricht man in diesem Zusammenhang auch von *indirekter* Emission.

2 Bei Streuproblemen auch *Target* genannt.

wie negative Ladungsträger zu Schwingungen anregt, diese also eine beschleunigte Bewegung ausführen. Diese mikroskopischen Oszillatoren emittieren daraufhin ihrerseits elektromagnetische Strahlung, deren Superposition als Sekundärstrahlung bezeichnet wird. An einem beliebigen Ort im Raum - also auch im Target - ergibt sich das resultierende Feld als Überlagerung von Primär- und Sekundärfeldern. Zur makroskopischen Beschreibung des Verhaltens des resultierenden Feldes in einem Medium eignet sich eine Formulierung über den Brechungsindex, n , der maßgeblich von der Dichte und der Schwingungscharakteristik der mikroskopischen Oszillatoren des Mediums bestimmt wird. Eine Berechnung der gestreuten Felder außerhalb des Targets setzt voraus, dass Eigenschaften des Primärfeldes sowie Kenntnis der internen Struktur des Targets gegeben sind. Ist dieses *direkte Streuproblem* gelöst, ist es im Umkehrschluss zudem möglich, aus einem bekanntem (bzw. gemessenem) Feld fernab des Targets Rückschlüsse auf dessen innere Struktur zu ziehen. In vielen Teilbereichen der Physik wird dieses Vorgehen - die Behandlung des *inversen Streuproblems* - zur Strukturanalyse von Materie genutzt und stellt auch die Grundlage der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Partikelmessungen dar. Um die aufgeworfenen Fragestellungen mathematisch zu behandeln, wurden Methoden der Streutheorie entwickelt (Bohren & Huffman 1983). Dabei werden die Maxwell-Gleichungen unter gewissen Randbedingungen (und ggf. Näherungen) gelöst, um Zusammenhänge zwischen resultierenden Feldern und den Eigenschaften der Targets sowie der Primärstrahlung zu bestimmen.

Im Hinblick auf die instrumentellen Anwendungen in dieser Arbeit wird die Primärstrahlung als monochromatisch und der Streuvorgang als elastisch betrachtet. Außerdem wird in den konkreten Anwendungen Symmetrie der gestreuten Strahlung um die optische Achse des Systems angenommen, was im Falle sphärischer Targets offensichtlich ist und für Partikel anderer Form mathematisch durch eine Mittelung über sämtliche Orientierungen relativ zur Primärstrahlung erreicht wird. Wird das Streulicht hinreichend vieler Targets untersucht, deren Orientierungen statistisch gleichverteilt sind, so ist dieses Vorgehen auch physikalisch gerechtfertigt. Eine allgemeine Abhängigkeit des Streulichts von den beiden Raumwinkelkoordinaten (θ, ϕ) reduziert sich damit auf eine Abhängigkeit vom Streuwinkel θ , dem Winkel zwischen einfallender und gestreuter Strahlung.

Da mit der Wellenlänge der Primärstrahlung (λ) und der Größe des Targets (L) zwei charakteristische Längen in das Streuproblem eingehen, liegt die Vermutung nahe, dass das Muster der gestreuten Strahlung vom Verhältnis dieser Längen abhängen wird. Im Bereich der *Rayleigh*-Streuung ist die Größe des Targets sehr klein gegenüber der Wellenlänge ($L \ll \lambda$). Angeregte mikroskopische Oszillatoren werden also näherungsweise phasengleich schwingen und auch der maximale Gangunterschied zwischen Sekundärwellen zweier beliebiger Oszillatoren ist damit klein gegen λ . Die im Allgemeinen von θ abhängenden Gangunterschiede zwischen einzelnen Wellenzügen der emittierten Sekundärstrahlung werden damit vernachlässigbar, was erwarten lässt, dass die Winkelabhängigkeit der gestreuten Strahlung wenig facettenreich ausfällt. Tatsächlich liefert eine mathematische Analyse für sphärische Partikel (Seinfeld & Pandis 2016) mit einer Winkelabhängigkeit der Streulichtintensität von $1 + \cos^2(\theta)$ einen vergleichsweise wenig komplexen Zusammenhang.

Liegt hingegen die Dimension des Targets in der Größenordnung der Wellenlänge, so schwingen die verschiedenen Oszillatoren mit relativen Phasen zueinander und auch die Gangunterschiede zwischen den Oszillatoren erreichen Werte, die gegenüber λ nicht mehr vernachlässigbar sind. Damit ergibt sich ein komplexeres Interferenzmuster für die Winkelabhängigkeit der Streulichtintensität. Diese charakteristischen Resonanzstrukturen werden neben Wellenlänge und Polarisation der Primärstrahlung maßgeblich von Größe, Form sowie Brechungsindex des Targets bestimmt. Für den Fall sphärischer Partikel lässt sich eine analytische Lösung der Maxwell-Gleichungen ausarbeiten (Mie 1908). Zur weiteren Beschreibung von Streuphänomenen im *Mie*-Regime ist es hilfreich den Größenparameter α einzuführen, der sich nach

$$\alpha = 2\pi \frac{r}{\lambda} \quad (3.1)$$

aus dem Quotienten von Targetradius¹ (r) und Wellenlänge berechnet. Da mit zunehmender Targetgröße auch die Anzahl der zur Sekundärstrahlung beitragenden Oszillatoren steigt, gestaltet sich ein immer komplexeres Interferenzmuster, bei dem sich eine wachsende Zahl an Haupt- und Nebenmaxima an immer kleiner werdenden Abständen des Streuwinkels θ entwickelt (s. Abb. 3.2). Zudem prägt sich mit zunehmender Targetgröße ein immer stärkeres Maximum in Vorwärtsrichtung aus. Insgesamt ergibt sich eine deutliche θ -Abhängigkeit der Streulichtintensität, hervorgerufen durch die sogenannten Mie-Resonanzen.

Bei Targetgrößen, die groß gegenüber der Wellenlänge sind ($L \gg \lambda$), bietet sich eine Beschreibung der Streuung durch Methoden der *geometrischen Optik* an. Hierbei wird Licht als sich geradlinig ausbreitendes Strahlenbündel betrachtet, das an der Grenzfläche zweier Medien ($n_1 \neq n_2$) reflektiert, gebrochen oder gebeugt werden kann. Diese Art der Beschreibung löst sich also von zugrunde liegenden mikroskopischen Streumodellen und beschreibt Streueffekte phänomenologisch auf makroskopischer Ebene. Die Zusammenhänge der geometrischen Optik ergeben sich dabei als Grenzfall der Streutheorie für große Größenparameter.

Um im Rahmen dieser Arbeit eine möglichst präzise Instrumentenkalibrierung und damit Partikelgrößenbestimmung zu ermöglichen, werden diese qualitativen Ausführungen im Folgenden quantitativ aufbereitet.

3.2 Konzept des Streuquerschnitts

Eine wesentliche Größe zur Beschreibung der Wechselwirkung von Licht und Materie stellt der differentielle Streuquerschnitt ($d\sigma/d\Omega$) dar. Dieser verknüpft die auf ein Target treffende Primärstrahlung mit der am Target in einen bestimmten Raumwinkelbereich $\Delta\Omega$ gestreuten Sekundärstrahlung. Neben dem Betrag der in den gesamten Raum ($\Delta\Omega = 4\pi$) gestreuten Lichtleistung lässt sich aus ($d\sigma/d\Omega$) also insbesondere auch deren Winkelverteilung berechnen. Betrachtet man ein- und auslaufende

¹ Für asphärische Targets lassen sich z.B. volumen-äquivalente Radien oder Durchmesser konstruieren. Im Folgenden wird daher unabhängig von der Partikelform von Radien oder Durchmessern gesprochen, was bei Bedarf konkretisiert wird.

Strahlung als Strom von Photonen der Frequenz f (elastische Streuung) und der Energie $h \cdot f$, mit dem Planckschen Wirkungsquantum h , ergibt sich der differentielle Streuquerschnitt nach

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right) = \frac{P_{s,\Delta\Omega}(\theta, \phi)}{I_i} = \frac{\text{Streulichtleistung pro Raumwinkelement}}{\text{Einfallende Energiestromdichte}}. \quad (3.2)$$

Die Energiestromdichte der Primärstrahlung (I_i) ergibt sich aus dem zeitlich gemittelten Betrag des Poynting-Vektors (\vec{S}_P) des Primärfeldes nach

$$I_i = \langle |\vec{S}_{P,i}| \rangle. \quad (3.3)$$

Der Poynting-Vektor ergibt sich dabei (im Vakuum) nach

$$\vec{S}_P = \frac{1}{\mu_0} (\vec{E} \times \vec{B}) \quad (3.4)$$

aus den elektromagnetischen Feldern; μ_0 steht für die magnetische Permeabilität des Vakuums. Die Energiestromdichte¹ des Lichts, beschreibt also die Leistung, die vom elektromagnetischen Feld durch eine senkrecht zur Ausbreitungsrichtung orientierten Fläche transportiert wird (Einheit: $\text{J s}^{-1} \text{m}^{-2}$). Die englische Bezeichnung lautet *Irradiance*. Die Dimension des differentiellen Streuquerschnitts beträgt damit „Fläche pro Raumwinkel“ ($\text{m}^2 \text{sr}^{-1}$).

Ein Streuquerschnitt, σ , lässt sich aus Integration des differentiellen Streuquerschnitts über einen Raumwinkelbereich berechnen, hängt also folglich von den gewählten Integrationsgrenzen ab. Der *totale Streuquerschnitt*, σ_{tot} , ergibt sich aus einer Integration über den gesamten Raum, bei der sich die winkelabhängenden Beiträge zur Gesamtleistung des Streulichts ($P_{4\pi}$) aufintegrieren,

$$\sigma_{\text{tot}} = \sigma_{4\pi} = \int_{4\pi} d\Omega \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right) = \frac{P_{4\pi}}{I_i}. \quad (3.5)$$

Zur Berechnung instrumentenspezifischer Streuquerschnitte, σ_{Probe} , wird hingegen der Integrationsbereich auf den Streuwinkelbereich eingeschränkt, aus welchem die Detektoren der Sonde Licht registrieren. Diese Raumwinkel ($\Delta\Omega_{\text{Probe}}$) werden von der Beschaffenheit der jeweiligen Instrumentenoptik definiert. Da zudem auch I_i eine instrumentenspezifische Größe ist, wird σ_{Probe} auch als *Probe Response* bezeichnet. Steht P_{Detektor} für die Leistung des auf den Detektor gestreuten Lichts, ergibt sich σ_{Probe} nach

$$\sigma_{\text{Probe}} = \int_{\Delta\Omega_{\text{Probe}}} d\Omega \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right) = \frac{P_{\text{Detektor}}}{I_i}. \quad (3.6)$$

Wie die Bezeichnung schon nahelegt, handelt es sich beim Streuquerschnitt um eine Fläche. Allerdings geht diese nur indirekt aus der Querschnittsfläche des Targets hervor und darf nicht mit dieser verwechselt werden. Der Streuquerschnitt ist vielmehr

¹ Der Begriff *Intensität* kann synonym verwendet werden.

als konzeptionelle Größe der Streutheorie zu verstehen. Anschaulich verknüpft er die in einen gewissen Raumwinkelbereich gestreute Lichtleistung mit derjenigen Fläche, durch welche, sollte man sie der Primärstrahlung aussetzen, die gleiche Lichtleistung transportiert werden würde, wie in eben jenen Raumwinkelbereich gestreut wird. Diese *imaginäre Fläche* ist dann dem Streuquerschnitt identisch. Eine experimentelle Bestimmung des Streuquerschnitts erfordert also, neben der Kenntnis von I_i , eine Messung der Streulichtleistung, was sich mit modernen Photodioden - nach entsprechender Kalibrierung - gut realisieren lässt.

Ist der differentielle Streuquerschnitt bekannt, lässt sich nach

$$p(\theta, \phi) = \frac{4\pi}{\sigma_{4\pi}} \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right) \quad (3.7)$$

die auf 4π normierte Phasenfunktion $p(\theta, \phi)$ definieren (Einheit: sr^{-1}), aus der sich die Winkelabhängigkeit der Streulichtintensität für gegebene Streuparameter (Wellenlänge, Polarisation, Größe, Form und Brechungsindex des Targets) ergibt.

Das Konzept des Streuquerschnitts lässt sich auch auf die Absorption übertragen. Analog zu Gl. 3.5 lässt sich nach

$$\sigma_{\text{abs}} = \frac{P_{\text{abs}}}{I_i} \quad (3.8)$$

ein Absorptionsquerschnitt definieren. P_{abs} steht hierbei für die gesamte vom Partikel absorbierte Lichtleistung. Die Schwächung der Intensität der einfallenden Primärstrahlung durch Wechselwirkung mit einem Teilchen ergibt sich als Summe aus Absorption und Streuung und wird als Extinktion bezeichnet,

$$\sigma_{\text{ext}} = \sigma_{4\pi} + \sigma_{\text{abs}}. \quad (3.9)$$

Um Streu-, Absorptions- und Extinktionseffekte in Relation zur Teilchengröße zu untersuchen, können entsprechende Effizienzfaktoren, Q , nach

$$Q_{\text{ext}} = \frac{\sigma_{\text{ext}}}{A_{\text{proj}}}, \quad Q_{\text{streu}} = \frac{\sigma_{4\pi}}{A_{\text{proj}}}, \quad Q_{\text{abs}} = \frac{\sigma_{\text{abs}}}{A_{\text{proj}}}, \quad (3.10)$$

eingeführt werden, die über

$$Q_{\text{ext}} = Q_{\text{streu}} + Q_{\text{abs}} \quad (3.11)$$

in Zusammenhang stehen. A_{proj} ist hierbei die auf eine Ebene senkrecht zum einfallenden Licht projizierte Fläche des Partikels. Die Bezeichnung der Q als Effizienzfaktoren lässt vermuten, dass stets Werte ≤ 1 zu erwarten wären. Dies trifft aber nicht zu. Wie später gezeigt wird, können beispielsweise Streuquerschnitte deutlich größer ausfallen als die auf den Strahlquerschnitt projizierte Teilchenfläche A_{proj} . Dies verdeutlicht einmal mehr, dass sich Alltagsbeobachtungen auf Basis großer räumlicher Skalen in der Regel nicht ohne Weiteres auf kleinere Skalen übertragen lassen.

3.3 Berechnung des Streuquerschnitts

Im vorherigen Abschnitt wurde gezeigt, dass sich aus einer Messung der Streuleistung bei konstanter Intensität der Primärstrahlung der sondenspezifische Streuquerschnitt des Targets (σ_{Probe}) prinzipiell als direkter Messwert ergibt (Gl. 3.6). Um aus σ_{Probe} weitere Rückschlüsse auf Eigenschaften des Targets zu ermöglichen, müssen diese Zusammenhänge zunächst im Rahmen der Elektrodynamik bestimmt werden. Von besonderem Interesse ist dabei der funktionale Zusammenhang

$$\sigma_{\text{Probe}}(D_p)|_{\text{Form},n} , \quad (3.12)$$

also die Abhängigkeit des sondenspezifischen Streuquerschnitts vom Partikeldurchmesser (D_p) bei gegebener Partikelform und bekanntem Brechungsindex.

Da in dieser Arbeit präzise gefertigte Kugeln zur Sondenkalibrierung verwendet werden, muss dieser Zusammenhang zunächst für sphärische Partikel im Rahmen der Mie-Theorie berechnet werden. Ziel der Kalibrierung ist es, aus nativen Sondenmesswerten ($\propto P_{\text{Detektor}}$) auf die entsprechenden Streuquerschnitte der Targets schließen zu können.

Nach erfolgter Kalibrierung können somit die σ_{Probe} der im Flugexperiment detektierten atmosphärischen Aerosol- und Eispartikel bestimmt werden. Um weiter auf die Größe dieser Teilchen schließen zu können, muss Gl. 3.12 in einem zweiten Schritt für deren Brechungsindizes und Partikelformen (i. A. asphärisch) bestimmt werden. In dieser Arbeit werden Resultate aus T-Matrix-Rechnungen verwendet, um der Asphärität junger Eispartikel in Kondensstreifen Rechnung zu tragen und eine sinnvolle Bineinteilung der Partikelgrößen zu ermöglichen.

Das folgende Diagramm soll die Strategie zur Größenbestimmung asphärischer (Eis-) Partikel kurz zusammenfassen:

$$\text{Nat. Messwert } (\propto P_{\text{Detektor}}) \xleftarrow[\text{(Mie-Theorie)}]{\text{Kalibrierung}} \sigma_{\text{Probe}} \xleftarrow[\text{(T-Matrix)}]{\text{Binning}} D_p|_{\text{Form},n}$$

Ein solches zweistufiges Verfahren zur Größenbestimmung von Eispartikeln in Kondensstreifen über den Zwischenschritt der σ_{Probe} -Berechnung ist notwendig, da sich kein Kondensstreifen mit bekannten Eigenschaften im Labor zu Kalibrationszwecken erzeugen lässt.

Um das Einzelpartikel-Streuproblem mathematisch anzugehen, also gestreute (Indizes „s“) mit einfallenden (Indizes „i“) Feldern zu verknüpfen wird die *Amplitudenstreuematrix* S_A (Bohren & Huffman 1983, Wendisch & Yang 2012) nach

$$\begin{pmatrix} E_{\parallel s} \\ E_{\perp s} \end{pmatrix} = \frac{e^{ik(r-z)}}{-ikr} \underbrace{\begin{pmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{pmatrix}}_{S_A} \begin{pmatrix} E_{\parallel i} \\ E_{\perp i} \end{pmatrix} \quad (3.13)$$

eingeführt, wobei (o.B.d.A) in z-Richtung einfallendes ($\vec{k}_i = k \hat{e}_z$) und dabei in x-Richtung polarisiertes Licht ($\vec{E}_i = E_{i,x} \hat{e}_x$) betrachtet wird. Die Indizes \parallel und \perp

verweisen auf Feldanteile parallel und orthogonal zur Streuebene. Weiter bezeichnen $k = 2\pi/\lambda$ die Wellenzahl und r den radialen Abstand zum Koordinatenursprung in dem sich das Target befindet. I. A. hängen die Elemente von \mathbb{S}_A vom Streuwinkel (θ) sowie vom azimutalen Winkel (ϕ) ab. Weiter lässt sich in hinreichend großem Abstand zum Target ($k \cdot r \gg 1$) das Fernfeldverhalten explizit parametrisieren (Jackson 1975). Führt man nach

$$\vec{E}_s = \frac{e^{ik(r-z)}}{-ikr} \vec{X} E_{i,x} \quad (3.14)$$

die vektorielle Streuamplitude, \vec{X} , ein, so gilt $\hat{e}_r \cdot \vec{X} = 0$ und aus einem Vergleich mit Gl. 3.13 folgt

$$\vec{X} = (S_2 \cos \phi + S_3 \sin \phi) \hat{e}_{\parallel s} + (S_4 \cos \phi + S_1 \sin \phi) \hat{e}_{\perp s}. \quad (3.15)$$

Um weiter σ_{tot} nach Gl. 3.5 zu bestimmen, muss zunächst $P_{4\pi}$ aus Integration des Poynting-Vektors des gestreuten Feldes über eine Kugeloberfläche nach

$$P_{4\pi} = \int_{4\pi r^2} dA \hat{e}_r \cdot \vec{S}_{P,s} \quad (3.16)$$

bestimmt werden. $\vec{S}_{P,s}$ ergibt sich dabei gemäß Gl. 3.4, wobei \vec{B}_s und \vec{E}_s über

$$\vec{B}_s = \frac{k}{\omega} (\hat{e}_r \times \vec{E}_s) \quad (3.17)$$

voneinander abhängen. Wird Gl. 3.16 evaluiert indem \vec{E}_s und \vec{B}_s in Abhängigkeit von \vec{X} sowie \vec{E}_i parametrisiert werden, ergibt sich nach einiger Rechnung für den Streuquerschnitt

$$\sigma_{4\pi} = \int_{4\pi} d\Omega \frac{|\vec{X}|^2}{k^2}, \quad (3.18)$$

womit sich schließlich der Integrand als differentieller Streuquerschnitt des Problems identifizieren lässt,

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right) = \frac{|\vec{X}|^2}{k^2}. \quad (3.19)$$

Die Berechnung des differentiellen Streuquerschnitts lässt sich damit auf eine Bestimmung der Elemente der Amplitudenstreuamatrix zurückführen, welche sich bei Kenntnis von \vec{E}_s aus Gl. 3.13 berechnen lassen.

3.3.1 Sphärische Partikel

Die Berechnung des Zusammenhangs zwischen gestreutem Feld (\vec{E}_s) und Primärfeld (\vec{E}_i) nach Gl. 3.13 vereinfacht sich für sphärische Targets symmetriebedingt. So wird u.a. die Amplitudenstreuamatrix (\mathbb{S}_A) diagonal und die verbleibenden Elemente (S_1, S_2) hängen nicht mehr von ϕ ab. Da sich in der Literatur ausführliche Herleitungen und Diskussionen des Zusammenhangs aus Gl. 3.12 für den Fall sphärischer Partikel finden,

sollen hier nur kurz ein Lösungsweg skizziert und für diese Arbeit relevante Ergebnisse besprochen werden.

Zur Berechnung der gestreuten Felder müssen die Maxwell-Gleichungen unter Berücksichtigung der dem Problem eigenen Randbedingungen gelöst werden. Da an dieser Stelle alle Medien als linear, isotrop und homogen angenommen werden, müssen physikalisch realisierbare Felder Lösungen der Wellengleichung sein. Naturgemäß eignen sich sphärische Polarkoordinaten zur Beschreibung des Streuvorgangs an runden Partikeln. Ein Ansatz nach dem Prinzip der Variablenseparation führt schließlich zu den gesuchten Lösungen der Maxwell-Gleichungen. Hierbei ergeben sich die \vec{E} - und \vec{B} -Felder als Reihenentwicklung in den allgemeinen Lösungen der Feldgleichungen (*Vector Spherical Harmonics*), die ihrerseits ein vollständiges Orthonormalsystem bilden. Die θ -Abhängigkeit der Felder wird hierbei von *assozierten Legendre Polynomen* bestimmt, die Radialabhängigkeit von *sphärischen Besselfunktionen*.

Nach diesem allgemeinen Vorgehen, das die mathematische Struktur der Felder vorgibt, werden die Entwicklungskoeffizienten aus physikalischen Notwendigkeiten bestimmt. Soll die Energie im System erhalten sein, gehen damit Forderungen bzw. Randbedingungen an die Felder einher. Neben deren Endlichkeit müssen so zudem die Tangentialkomponenten der Felder an der Grenzfläche zweier Medien stetig sein. Auf diese Weise lässt sich ein Gleichungssystem aufstellen, aus dem sich die Entwicklungskoeffizienten - und damit letztlich die Felder - bestimmen lassen. Wie aufwändig es ist diese Gleichungen zu lösen wird maßgeblich von der Geometrie des Targets bestimmt. Für sphärische Partikel wird die Stetigkeit der Tangentialkomponenten auf einer Kugeloberfläche gefordert. Mathematisch lässt sich dies vergleichsweise einfach darstellen, es existieren analytische Lösungsverfahren (Mie 1908).

Nach der Lösung des Gleichungssystems lässt sich, wie im vorangegangenen Abschnitt skizziert, der differentielle Streuquerschnitt aus den Feldern berechnen. Eine umfassende Darstellung dieses, hier nur angerissenen, Lösungsweges und entsprechender Ergebnisse findet sich in der einschlägigen Literatur zum Thema (Mie 1908, Van de Hulst 1957, Bohren & Huffman 1983). Weiter sei auf Wiscombe (1980) verwiesen, wo verschiedene Algorithmen im Hinblick auf begrenzte Rechenleistung geprüft werden. In dieser Arbeit wurden Streuquerschnitte sphärischer Partikel nach Rosenberg et al. (2012) und damit aufbauend auf Wiscombe (1980) berechnet.

In Abb. 3.1 ist die Größenabhängigkeit der Streuquerschnitte σ_{tot} und σ_{4-12° sphärischer, nicht-absorbierender Eispartikel ($n = 1.31 + i \cdot 0$) bei Bestrahlung mit Licht der Wellenlänge 658 nm nach der Mie-Theorie dargestellt. Der Streuwinkelbereich von $\theta = 4 - 12^\circ$ und $\lambda = 658$ nm wurden gewählt, da sie den Parametern der in dieser Arbeit verwendeten CAS-DPOL (s. Kap. 3.4) entsprechen. Für die Grenzfälle $D_p \ll \lambda$ ($D_p \gg \lambda$) lässt sich die Komplexität des Streuproblems reduzieren und die Ergebnisse der Mie-Theorie nähern sich asymptotisch denen der *Rayleigh*-Streuung (*Geometrischen Optik*). Für diese beiden Grenzfälle ist ebenfalls die Größenabhängigkeit $\sigma_{\text{tot}} \propto D_p^6$ ($\sigma_{\text{tot}} \propto D_p^2$) dargestellt. Im Größenbereich dazwischen sind die Kurvenverläufe von Mie-Resonanzen geprägt. Der charakteristische Abstand ΔD_p zwischen den Maxima (bzw. Minima) von $\sigma_{\text{tot}}(D_p)$ lässt sich dabei näherungsweise

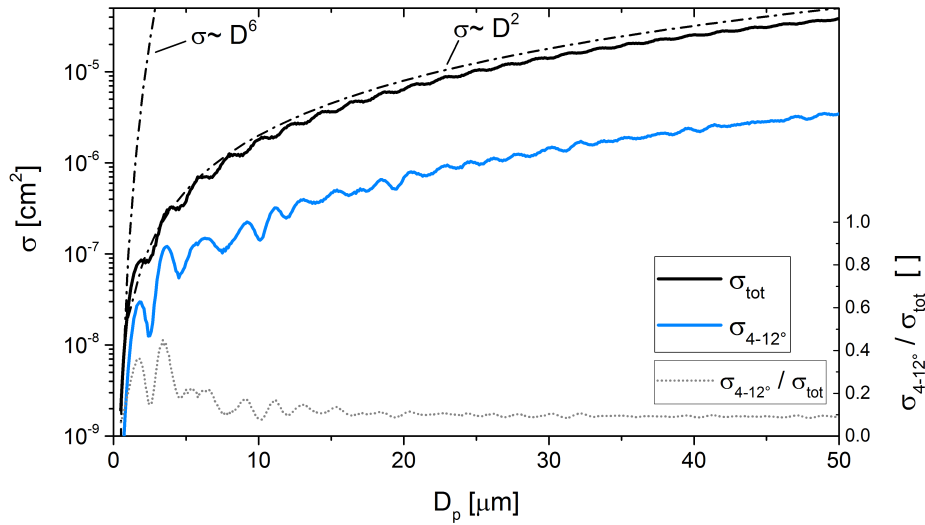


Abbildung 3.1 Größenabhängigkeit der Streuquerschnitte σ_{tot} und σ_{4-12° sphärischer Eispartikel nach der Mie-Theorie bei Primärstrahlung mit $\lambda = 658 \text{ nm}$. Zudem sind als Asymptoten die Abhängigkeiten für die Grenzfälle $D_p \ll \lambda$ (Rayleigh-Regime) und $D_p \gg \lambda$ (geometrische Optik) eingezeichnet. Weiter ist das Verhältnis $\sigma_{4-12^\circ} / \sigma_{\text{tot}}$ gezeigt.

durch eine einfache Energiebetrachtung bestimmen. So ergibt sich eine maximale (minimale) Streulichleistung für den Fall negativer (positiver) Interferenz zwischen der in Vorwärtsrichtung durch das Teilchen gelaufenen Welle und der ungestreuten Primärstrahlung. Da sich negative (positive) Interferenz ergibt, falls die Phasendifferenz $\Delta\Phi = 2\pi(D_p/\lambda)(n_{\text{Eis}} - 1)$ beider Wellen ungeradzahligem (geradzahligem) Vielfachen von π entspricht, folgt für den Abstand ΔD_p zwischen aufeinanderfolgenden Maxima (oder Minima)

$$\Delta D_p = \frac{\lambda}{n_{\text{Eis}} - 1} = 2.12 \mu\text{m}, \quad (3.20)$$

was im Einklang mit dem berechneten Verlauf von $\sigma_{\text{tot}}(D_p)$ aus Abb. 3.1 steht.

Wie erwartet liegen die Streuquerschnitte $\sigma_{4-12^\circ}(D_p)$ stets unterhalb $\sigma_{\text{tot}}(D_p)$. Interessant ist jedoch der Unterschied in der Resonanzstruktur zwischen beiden Kurven. So liegen die lokalen Extrema der beiden Kurven nicht zwangsläufig bei gleichen D_p . Im Gegensatz zu $\sigma_{\text{tot}}(D_p)$ geht in $\sigma_{4-12^\circ}(D_p)$ neben der Gesamtstreulichleistung auch die Winkelverteilung des Streulichts ein. So ist es z.B. möglich, dass bei wachsendem D_p zwar σ_{tot} steigt, aber wegen der sich ändernden Phasenfunktion die in den Winkelbereich von $4 - 12^\circ$ gestreute Lichtleistung abnimmt. Für die Bestimmung der Partikelgröße aus einem Streulichsignal ist es daher von großer Bedeutung den Streuwinkelbereich, auf den die Detektoren des Instruments sensitiv sind, genau zu kennen bzw. diesen zu vermessen. Weiter macht Abb. 3.1 deutlich, dass die Breite des D_p -Messbereichs durch den Messbereich des Streulichdetektors (Photodiode) vorgegeben wird. Zur Bestimmung von Partikelgrößen über zwei Größenordnungen im

Bereich der Mie-Resonanzen (in 1. Ordnung gilt $\sigma_{4-12^\circ} \propto D_p^2$) müssen die Photodioden des Instruments also Streulichtleistungen über vier Größenordnungen auflösen können.

Interessant ist es auch den relativen Anteil der in $\theta = 4 - 12^\circ$ gestreuten Lichtleistung ($\sigma_{4-12^\circ}/\sigma_{\text{tot}}$) zu betrachten. In einen von diesem Streuwinkelbereich aufgespannten Raumwinkel von

$$\Delta\Omega_{4-12^\circ} = \int_{4^\circ}^{12^\circ} d\theta \int_0^{2\pi} d\phi \sin\theta = 0.122 \text{ sr} \quad (\approx 1\% \text{ der Vollkugel}) \quad (3.21)$$

entfallen für Partikelgrößen im Bereich der Mie-Resonanzen dennoch bis zu 45 % der gesamten Streulichtleistung (s. Abb. 3.1 für $D_p = 3.4 \mu\text{m}$). Hin zu größeren D_p nimmt dieser Wert ab und pendelt sich bei etwa 9 % ein. Im Hinblick auf die Konstruktion von Streulichtspektrometern mit möglichst großem D_p -Messbereich ist ein geringes Verhältnis $\sigma_{4-12^\circ}/\sigma_{\text{tot}}$ bei großen D_p von Vorteil, da so von großen σ_{tot} nur ein geringer Teil (σ_{4-12°) durch die Photodetektoren aufgelöst werden muss. Je nach Anwendungsziel, kann es also durchaus vorteilhaft sein, in den Detektionsoptiken den Bereich der Vorwärtsstreuung großzügiger, als zur reinen Blockade der ungestreuten Primärstrahlung nötig, auszublenden (im Beispiel $\theta_{\text{mask}} = 0 - 4^\circ$). Allerdings fällt auch auf, dass im Vergleich zu σ_{tot} die Resonanzstrukturen für σ_{4-12° stärker ausgeprägt sind, was die Partikelgrößenbestimmung im Bereich der Resonanzen beeinträchtigt (s. Kap. 3.3.2).

In Abb. 3.2 sind differentielle Streuquerschnitte ($d\sigma/d\Omega$) für eine Auswahl verschiedener D_p im Bereich von 1 bis $20 \mu\text{m}$ aufgetragen. Es zeigen sich deutlich komplexere Streulichtmuster hin zu größeren D_p mit einer kontinuierlich dichter werdenden Abfolge von Nebenmaxima und -minima. Zudem prägt sich das Hauptmaxima in Vorwärtsrichtung ($\theta \approx 0^\circ$) immer stärker aus. Anschaulich wird klar, wie bei einer sukzessiven D_p -Erhöhung Nebenmaxima und -minima in einen vorgegebenen Streuwinkelbereich $[\theta_1, \theta_2]$ hinein als auch heraus wandern können, was Ursache für die im Vergleich zu $\sigma_{\text{tot}}(D_p)$ geänderte Resonanzstruktur in $\sigma_{\theta_1-\theta_2}(D_p)$ ist (s. Abb. 3.1 für σ_{4-12°). Im Hinblick auf die Detektion möglichst kleiner Partikel macht Abb. 3.2 deutlich, dass es bei gegebener Intensität der Primärstrahlung und gegebener Detektorsensitivität vorteilhaft ist, Streulicht nahe des Hauptmaximums bei kleinen θ zu detektieren¹. Je nachdem welcher Parameter des Targets primär ermittelt werden soll, denkbar sind z.B. auch Form oder Brechungsindex, können auch andere Geometrien der Detektionsoptik vorteilhaft sein.

Es sei angemerkt, dass Eispartikel ausschließlich in diesem Abschnitt als sphärisch betrachtet werden. Im weiteren Verlauf dieser Arbeit wird konsequent eine asphärische Form kleiner Eispartikel ($D_p \leq 20 \mu\text{m}$) zugrunde gelegt.

¹ Um auszuschließen, dass neben Streulicht auch ungestreutes Licht direkt von der Strahlungsquelle detektiert wird, muss hierbei ein gewisser Bereich um $\theta = 0^\circ$ ausgeblendet werden.

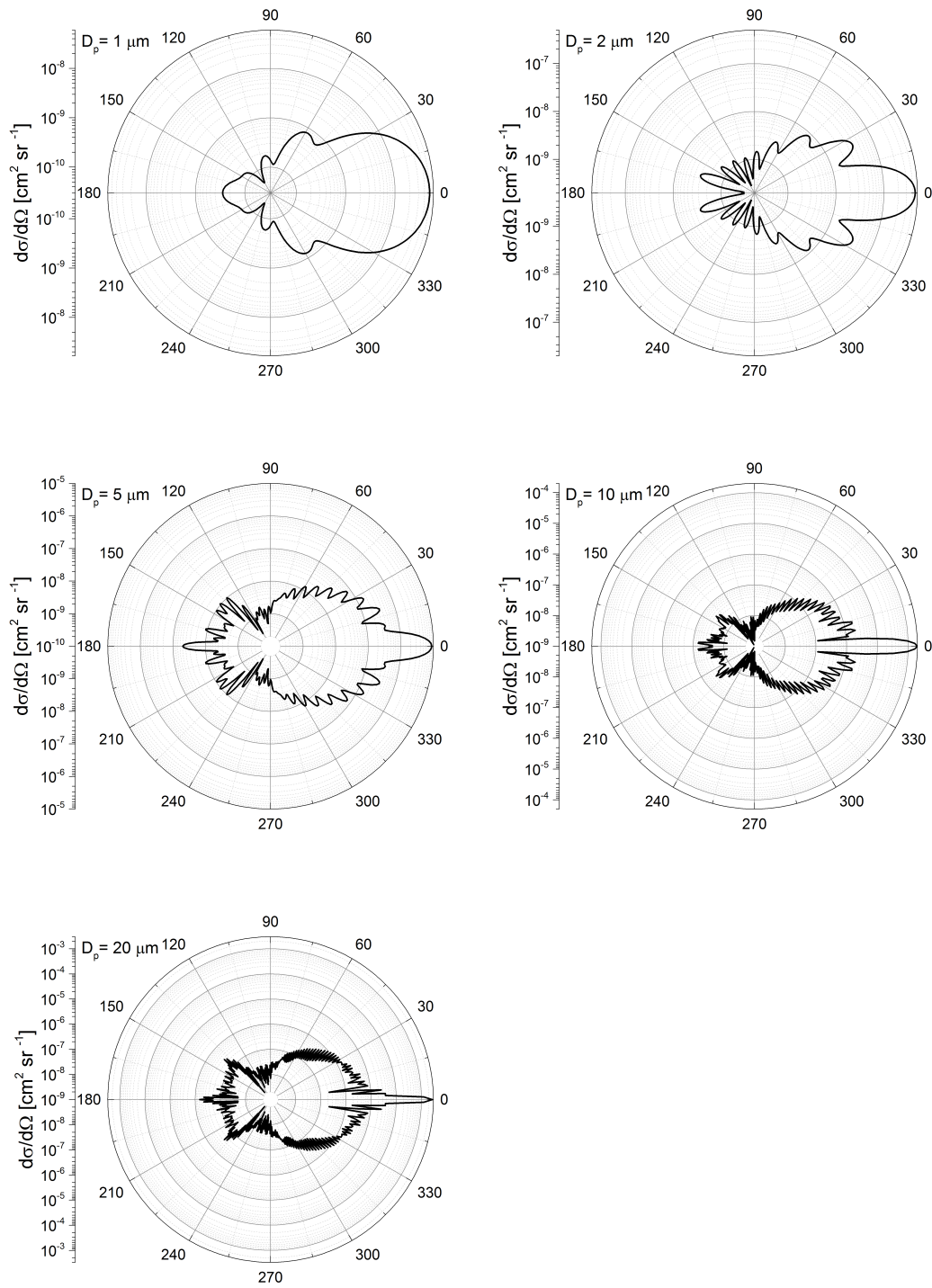


Abbildung 3.2 Polardiagramme des differentiellen Streuquerschnitts sphärischer Eispartikel der Durchmesser 1, 2, 5, 10 und $20 \mu\text{m}$ bei Primärstrahlung der Wellenlänge 658 nm als Funktion des Streuwinkels (θ), berechnet nach Mie-Theorie. Die Radialkoordinate ist logarithmisch aufgetragen.

3.3.2 Asphärische Partikel

Komplizierter gestalten sich entsprechende Rechnungen für Abweichungen von der sphärischen Partikelform, da die Randbedingungen nun auf mathematisch weniger einfach darstellbaren Oberflächen implementiert werden müssen. Um dieses Problem zu lösen, wurden numerische Methoden im Rahmen von T-Matrix-Rechnungen entwickelt (Waterman 1965, Mishchenko et al. 1996) und deren Anwendbarkeit zur Größenbestimmung kleiner, asphärischer Eispartikel beim Einsatz vorwärtsgerichteter Streulichtspektrometer nachgewiesen (Borrmann et al. 2000). In dieser Arbeit wird die Form kleiner, asphärischer Eispartikel ($D_p \simeq 0.5 - 20 \mu\text{m}$) zur Berechnung der Streulichtsignale durch Rotationsellipsoide mit einem gewissen Längenverhältnis der Halbachsen (AR , für *Aspect Ratio*) angenähert. Die Teilchengröße wird anhand des volumen-äquivalenten Durchmesser parametrisiert, also dem Durchmesser einer Kugel mit zum Rotationsellipsoid identischem Volumen. Um die Nomenklatur einfach zu halten, werden auch diese volumen-äquivalenten Durchmesser im Folgenden mit D_p bezeichnet. Eine Verwechslung mit sphärischen D_p sollte aufgrund des jeweiligen Kontextes ausgeschlossen sein.

Entsprechende T-Matrix-Rechnungen für in dieser Arbeit relevante Instrumentenparameter und Eispartikel variabler AR s wurden von B. Luo¹ zur Verfügung gestellt und sind in Abb. 3.3 dargestellt. Wie bei sphärischen Partikeln ist auch bei Ro-

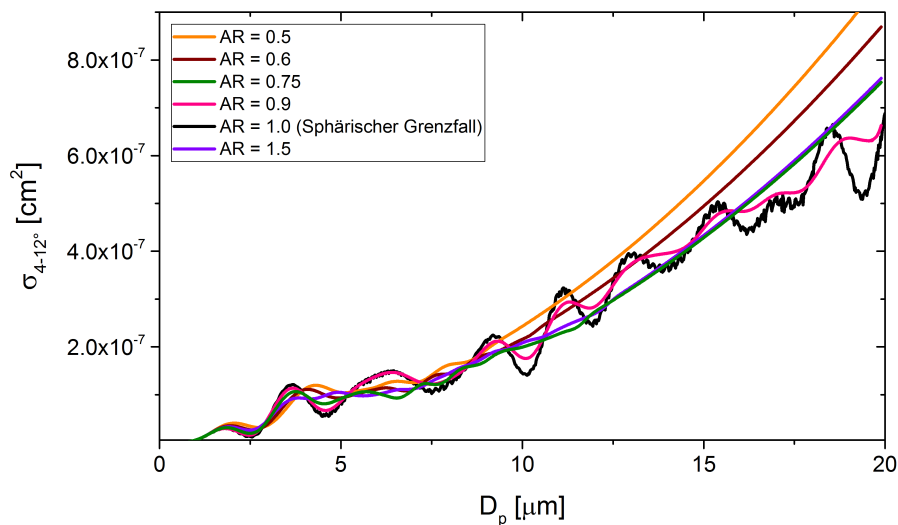


Abbildung 3.3 Größenabhängigkeit des Streuquerschnitts σ_{4-12° rotationselliptischer Eispartikel (gemittelter Orientierungen) nach T-Matrix-Rechnungen bei Primärstrahlung von $\lambda = 658 \text{ nm}$ (Datenquelle: B. Luo, ETH Zürich).

tationsellipsoiden der Kurvenverlauf $\sigma_{4-12^\circ}(D_p)$ von Resonanzstrukturen geprägt, was die Funktion $\sigma_{4-12^\circ}(D_p)$ über einen weiten Bereich nicht-umkehrbar macht und damit die Größenbestimmung erschwert. Wird beispielsweise ein Streuquerschnitt

¹ Pers. Kommunikation mit B. Luo, ETH Zürich, 2017

σ_{4-12° von $1 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^2$ gemessen, existieren je nach AR drei bis vier mögliche Partikelgrößen, die jeweils ein entsprechendes Streulichtsignal generieren würden. Da die Resonanzstruktur physikalischer Natur ist, lässt sich diesem Problem auch nicht technisch beikommen, z.B. durch Verwendung besser auflösender optischer Detektoren. Um dennoch verlässliche Größeninformationen zu gewinnen, müssen daher in den Resonanzbereichen relativ breite Größenbins eingeführt werden, was die Größenauflösung entsprechend reduziert. In Kap. 4 wird die Herleitung einer Größenzuordnung skizziert, die die Effekte der nicht-eindeutigen Größenzuteilung für asphärische Eispartikel junger Kondensstreifen minimieren soll. Die Beschränkung auf Eispartikel - mit bekanntem Brechungsindex - stellt dabei einen erheblichen Vorteil dar, da die Beschaffenheit der Resonanzstrukturen stark vom Brechungsindex der Teilchen abhängt.

Die Verwendung von T-Matrix-Rechnungen zur Größenbestimmung setzt voraus, dass eine hinreichend große Anzahl an zufällig orientierten Eispartikeln detektiert wird. Dies liegt daran, dass das Streulichtsignal *eines* asphärischen Eispartikels von dessen Orientierung relativ zur Primärstrahlung abhängt. In den Abb. 3.3 zugrunde liegenden T-Matrix-Rechnungen wurde über alle möglichen Orientierungen gemittelt, weshalb eine Nutzung der Ergebnisse erfordert, dass für jede Partikelgröße die Orientierungen statistisch gleichverteilt sind. Da anzunehmen ist, dass die Wirbeldynamik in jungen Kondensstreifen eine systematische Ausrichtung kleiner Eispartikel verhindert, ist die Bestimmung der Partikelgrößenverteilung (PSD) auf Basis der T-Matrix-Rechnungen gerechtfertigt, falls nur genügend Teilchen detektiert werden. Letzteres trifft für diese Arbeit zu, da aus Wirbelphasenmessungen mit hohen Eispartikelkonzentrationen ($\mathcal{O}(100) \text{ cm}^{-3}$) PSDs aus Zeitintervallen von mehreren Sekunden bestimmt werden. Bei typischen Fluggeschwindigkeiten ($\approx 200 \text{ m/s}$) vermisst die CAS-DPOL je Sekunde etwa 50 cm^3 , detektiert also in Kondensstreifen mehrere tausend Eispartikel je Sekunde.

3.4 Das Streulichtspektrometer CAS-DPOL

Ein weit verbreitetes Instrument, das lange den Standard unter den flugzeuggetragenen Streulichtspektrometern setzte, stellt die von *Particle Measuring Systems* entwickelte FSSP (*Forward Scattering Spectrometer Probe*) dar. Funktionsweise und Anwendungen der FSSP werden in der Literatur ausführlich behandelt (Knollenberg 1981, Dye & Baumgardner 1984, Baumgardner et al. 1992, Borrmann et al. 2000).

Auf Basis der FSSP entwickelte *Droplet Measurement Technologies* (DMT) das Streulichtspektrometer CAS-DPOL (Cloud and Aerosol Spectrometer with Depolarization Unit, oder kurz: CAS), um Größenverteilungen von Aerosol¹ und Wolkenbestandteilen im Bereich von etwa 0.5 bis $50 \mu\text{m}$ zu bestimmen. Die genauen Detektionsgrenzen hängen hierbei von Einstellungen der elektronischen Sondenhardware sowie den Brechungsindizes und Formen der jeweiligen Partikel ab.

¹ In dieser Arbeit wurde die CAS-DPOL ausschließlich zur Bestimmung der Eigenschaften der in Wolken und Kondensstreifen vorhandenen Eispartikel eingesetzt, der Bezug zu Aerosolmessungen wird im Folgenden nicht mehr explizit aufgeführt.

3.4.1 Sondenaufbau

Der Sondenaufbau (Baumgardner et al. 2001) ist schematisch in Abb. 3.4 dargestellt. Da die Sonde in einem sogenannten Knollenberg-Pylon an der Flugzeugaußenseite

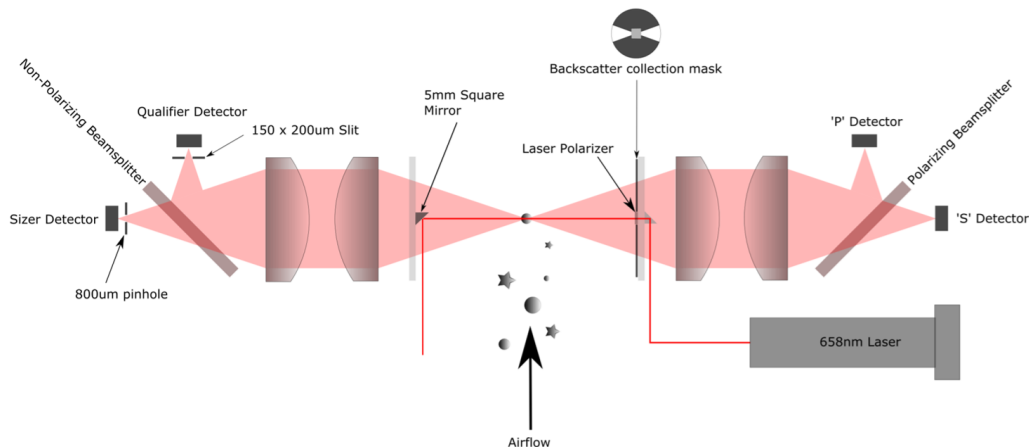


Abbildung 3.4 Schematischer Aufbau der CAS-DPOL. Die linke Hälfte stellt den sogenannten *Forward Scatter Block* dar, der Streulicht im Winkelbereich $4 - 12^\circ$ um die optische Achse detektiert. Die rechte Hälfte zeigt den *Back Scatter Block*, der auf den Winkelbereich $168 - 176^\circ$ sensitiv ist. Bildquelle: DMT

(unter dem Flügel oder am Rumpf) installiert ist, gelangen beim Durchflug durch eine Wolke deren Bestandteile aufgrund der Relativgeschwindigkeit zwischen Flugzeug und umgebender Luft entlang der Stromlinien in das sensitive Messvolumen der CAS. Dort werden die Partikel dem linear polarisierten Licht eines Diodenlasers ($\lambda = 658 \text{ nm}$, Leistung: 50 mW , Klasse: 3b) ausgesetzt, welches daraufhin an den Teilchen gestreut wird. Sowohl in Vorwärts- als auch in Rückwärtsrichtung wird das gestreute Licht nach dem Passieren einer Sammeloptik und eines Strahlteilers auf jeweils zwei Photodetektoren nachgewiesen bzw. registriert.

Um hierbei nur Streulicht aus einem definierten Winkelbereich um die optische Achse auf die Detektoren treffen zu lassen, wird der in Vorwärtsrichtung ungestreute Teil des Lichts durch Reflexion an einem Spiegel daran gehindert in die Sammeloptik zu gelangen. Ältere Ausführungen des Instruments nutzen hierzu statt des Spiegels ein lichtabsorbierendes Material („Dump Spot“) im zentralen Bereich um die optische Achse, was allerdings hinsichtlich der Erzeugung störender optischer Artefakte (Beugung am Rand des Absorbers) Nachteile gegenüber einer durch Spiegel realisierten Lösung bietet. In Rückwärtsrichtung sorgt eine installierte Blende für einen entsprechend selektiven Effekt auf das zu messende Streulicht. Im Fall der CAS lässt eine solche Ausführung der Instrumentenoptik nominell lediglich das in einen Winkelbereich von $4 - 12^\circ$ (Vorwärts-) und $168 - 176^\circ$ (Rückwärtsrichtung) um die optische Achse gestreute Licht auf die jeweiligen Detektoren treffen.

3.4.2 Funktionsprinzip der Sondenelektronik

In den durch Avalanche-Photodioden realisierten Detektoren erzeugen die auftreffenden Photonen des Streulichts freie Elektronen (Photoelektrischer Effekt), die ihrerseits, aufgrund der diodeninternen Feldstärkeverteilung, durch Stoßionisation eine Vielzahl weiterer freier Ladungsträger mobilisieren. Diese Ladungsträgerseparation erzeugt dabei eine Ausgangsspannung, U_{Ph} , die der Intensität des auf die Photodiode treffenden Streulichts proportional ist. U_{Ph} wird daraufhin verschiedenen Verstärkungsstufen sowie einem Analog-Digital-Wandler zugeführt und von der Sondenelektronik letztlich als A/D-Wert (ADC) ausgegeben. Im Folgenden soll auf diese Zusammenhänge etwas genauer eingegangen werden, um die Grundlagen der Sondenkalibrierung auszuarbeiten.

Detektorseitig äußert sich der Durchflug eines Teilchens durch das Messvolumen zunächst in einem generierten Strom- und daraufhin Spannungspuls. Prinzipiell wäre es vorteilhaft den gesamten zeitlichen Verlauf der Pulse für alle Partikel aufzuzeichnen¹, jedoch wird in der CAS über eine Analyse der Pulshöhe lediglich die Amplitude eines jeden Pulses aufgezeichnet. Zwar sind dadurch nützliche Informationen über die Pulsform keiner weiteren Analyse zugänglich, jedoch gestaltet sich aufgrund der deutlich reduzierten Menge an anfallenden Daten die technische Realisierung der Sonde einfacher.

Da die Intensität des in Vorwärtsrichtung gestreuten Lichts stark von der Größe der Partikel abhängt (in weiten Bereichen näherungsweise quadratisch, s. Abb. 3.1), muss die Detektorelektronik auf eine Intensitätsmessung in einem mehrere Größenordnungen umfassenden Bereich ausgelegt sein. Einerseits werden hierzu entsprechende Photodioden verwendet, die über einen Eingangsbereich der Streulichtleistung von vier Größenordnungen eine dazu proportionale Ausgangsspannung U_{Ph} liefern. Weiter gilt es, die Dynamik der U_{Ph} auch für kleine U_{Ph} möglichst gut aufgelöst in den ADC-Wertebereich abzubilden. Einen kritischen Punkt stellt hierbei die Auflösung des Eingangsspannungsbereichs der verbauten A/D-Wandler dar, die damit ein digital minimal auflösbares ΔU_{Ph} induzieren. Hier schafft eine geeignete Verschaltung dreier separat betriebener Verstärkerstufen mit sich deutlich unterscheidenden Verstärkungsfaktoren Abhilfe, da sich die Auflösung des A/D-Wandlers dann auf bereits verstärkte Signale (U_H , U_M , U_L) bezieht, womit ΔU_{Ph} sinkt. Die Indizes H , M und L kennzeichnen die drei Verstärkungsstufen, die im Folgenden mit „High Gain Stage“ (HGS), „Mid Gain Stage“ (MGS) und „Low Gain Stage“ (LGS) bezeichnet werden. Das *Signal-to-Noise Ratio* bleibt von der Verstärkung unberührt.

Im Hinblick auf die Größenbestimmung kleiner Partikel ermöglicht der Einsatz mehrerer Verstärkerstufen in einer geeigneten Verschaltung, einen relativ gut aufgelösten Wertebereich hoher Dynamik (U_{Ph} -Werte) auf einen schlechter aufgelösten Wertebereich (A/D-Wandler Eingangsspannungen) abzubilden und dabei insgesamt eine gute Auflösung resultierender A/D-Werte zu erzielen. Um hierbei den Eingangsspannungsbereich der A/D-Wandler möglichst optimal auszunutzen, werden die schwächeren

1 Dieses Prinzip findet bei Sonden der neuesten Generation Anwendung (z.B. FCDP, FFSSP).

Streulichtsignale kleinerer Partikel höher verstärkt als stärkere Signale größerer Teilchen. In der CAS durchläuft eine Spannung U_{Ph} zunächst separat alle drei Verstärkerstufen. Für jedes Detektorsignal ergeben sich somit drei Ausgangsspannungen, $U_{H,M,L}$, ein Wert je Verstärkerstufe. Die $U_{H,M,L}$ werden daraufhin baugleichen A/D-Wandlern zugeführt, die Spannungen im Bereich 0 – 3 V proportional auf A/D-Werte $\in \{1, 2, \dots, 3072\}$ abbilden und für 3 V übersteigende Spannungen einen Sättigungswert von 3072 ausgeben. Beginnend beim A/D-Wert der HGS, über den der MGS, zu dem der LGS, werden die A/D-Werte daraufhin addiert, wobei die Addition abbricht, nachdem ein A/D-Wert kleiner 3072 addiert wurde. Für die den Streulichtpulsen letztendlich zugewiesenen A/D-Werte ($ADC \in \{1, 2, \dots, 9216\}$) ergeben sich damit die in Tabelle 3.1 aufgeführten Wertebereiche final aufgezeichneter A/D-Werte.

Verstärkerstufe	A/D-Wert
HGS	$\in \{1, 2, \dots, 3072\}$
MGS	$\in \{3073, 3074, \dots, 6144\}$
LGS	$\in \{6145, 6146, \dots, 9216\}$

Tabelle 3.1 Intervalle möglicher A/D-Werte der drei CAS-Verstärkerstufen.

Zusammenfassend lässt sich die Funktion der Detektor- bzw. Sondenelektronik durch das Flussdiagramm 3.22 darstellen.

$$\frac{N_{\text{Photonen}}}{\Delta t} \propto P_{\text{Detektor}} \propto U_{Ph} \rightarrow \begin{Bmatrix} U_L \\ U_M \\ U_H \end{Bmatrix} \rightarrow \begin{Bmatrix} ADC_L \\ ADC_M \\ ADC_H \end{Bmatrix} \rightarrow ADC \quad (3.22)$$

Hierbei bezeichnen $N_{\text{Photonen}}/\Delta t$ die Amplitude des Photonenstroms und P_{Detektor} die damit verbundene Leistungsamplitude des Streulichtpulses auf die Oberfläche der Photodiode. Da jede der drei Verstärkerstufen linear arbeitet, ergibt sich für jede der drei Verstärkerstufen ein linearer Zusammenhang zwischen P_{Detektor} und dem resultierenden A/D-Wert. Da zudem P_{Detektor} und σ_{CAS} linear zusammen hängen (s. Gl. 3.6), existiert für jede der drei Verstärkerstufen ein separater linearer Zusammenhang zwischen Partikelstreuquerschnitten und gemessenen A/D-Werten,

$$\sigma_{\text{CAS}} = c_i \cdot \text{ADC} - a_i \quad , \quad \text{mit } i \in \{H, M, L\}. \quad (3.23)$$

Die Konstanten c_i und a_i lassen sich anhand einer Instrumentenkalibrierung (s. Kap. 4.1) bestimmen. Die c_i sind hierbei die Proportionalitätskonstanten, während die a_i der additiven Zusammensetzung resultierender A/D-Werte Rechnung tragen und zudem berücksichtigen, dass auf analoger sowie digitaler Seite zu überschreitende Schwellwerte für aufzuzeichnende Streulichtsignale gesetzt sind.

Sowohl der Laser als auch die Detektoren der Sonde sind Bauteile mit einer beschränkten Lebensdauer. Es ist davon auszugehen, dass sich Lichtausbeute sowie Detektoreffizienz während der Lebensdauer kontinuierlich verschlechtern. Ebenso kann sich die Instrumentenoptik beim Transport oder Flugeinsatz der Sonde dejustieren. Um einer damit einhergehenden Unterschätzung von Streuquerschnitten und fehlerhaften Größenbestimmung vorzubeugen, ist es nötig die Konstanten $\{c_i, a_i\}$ in regelmäßigen Abständen durch eine Kalibrierung zu bestimmen, um damit Alterungserscheinungen verschiedener Bauteile und der Optik berücksichtigen zu können.

3.4.3 Kriterium der Tiefenschärfe

Eine präzise Größenbestimmung der zu detektierenden Partikel setzt voraus, dass die verschiedenen Streulichtsignale stets aus Primärstrahlung gleicher Intensität generiert wurden. Da die Intensitätsverteilung moderner Diodenlaser typischerweise einem gaußförmigen Profil folgt, lässt sich der Zentralbereich um die optische Achse in guter Näherung als ein solcher Bereich homogener Intensität betrachten. Neben dieser Beschränkung auf Partikel, die den Laser nahe an seinem Zentrum passieren, muss zur präzisen Größenbestimmung weiter gewährleistet sein, dass die Optik eine scharfe Abbildung des Streulichts auf die Detektoren liefert. Dies trifft auf Partikel zu, die das Laserlicht relativ nahe an der Brennebene der Optik passieren.

Um sicherzustellen, dass nur Signale von Teilchen aufgezeichnet werden, die diese Bedingungen an die Trajektorie hinreichend gut erfüllen, wird in der CAS ein System aus zwei baugleichen Detektoren verwendet, dem *qualifizierenden* und dem *größenbestimmenden* Detektor, im Folgenden als Q- und S- Detektor bezeichnet (s. Abb. 3.4).

Durch die Verwendung eines Strahlteilers wird das Streulicht auf beide Detektoren aufgeteilt, wobei 70 % (30 %) des Streulichts auf den qualifizierenden (größenbestimmenden) Detektor entfallen. Welcher Anteil dieses Lichts letztendlich auf den entsprechenden Detektor fällt, wird auch von der Beschaffenheit der direkt vor dem Detektor angebrachten Blende bestimmt. Vor dem Q-Detektor ist diese als Schlitzblende mit den Maßen $150 \times 200 \mu\text{m}^2$ realisiert, während vor dem S-Detektor eine Lochblende (*Pinhole*) mit einem Durchmesser von $800 \mu\text{m}$ angebracht ist. Betrachtet man Partikel, die die sensitive Messfläche der CAS an verschiedenen Stellen passieren, also unterschiedliche Abstände zur Brennebene und zum Zentrum des Laserstrahls haben, so wird durch diese Ausführung der Detektorblenden erreicht, dass das Q-Signal bei zunehmenden Abständen stärker abfällt als das S-Signal. Abb. 3.5 veranschaulicht dies für unterschiedliche Abstände des Partikels zur Brennebene. Mit zunehmendem Abstand eines Teilchens zur Brennebene wird die Fokussierung des Streulichts schlechter und das Bild (am Ort der Detektoren) größer. Ab einem gewissen kritischen Abstand überragt die Bildgröße schließlich die Öffnung der Schlitzblende, was zu einem rapiden Abfallen der Spannung des Q-Detektors (U_Q) führt, während der S-Detektor noch das ganze Bild detektiert. Wird der Laser mit zunehmendem Abstand von seinem Zentrum passiert, so bewirkt die Kombination aus Sammeloptik und Schlitzblende ein ähnlich starkes Abfallen von U_Q .

Für eine gaußförmig angenommene Pulsform¹ des zeitlichen Verlaufs der Detektorspannungen (U_Q, U_S) sind diese sowie deren Quotient für je einen Fall guter und schlechter Fokussierung schematisch in Abb. 3.6 dargestellt.

Anhand des Quotienten U_Q/U_S beider Detektorspannungen lässt sich quantitativ für jedes Target beurteilen, inwieweit die Voraussetzungen für eine präzise Größenbestimmung erfüllt sind. Die Elektronik der CAS berücksichtigt dies, indem (auf analoger

¹ Real detektierte Pulse können deutlich von einem gaußförmigen Verlauf abweichen. Dies ist aber für die weitere qualitative Argumentation in diesem Abschnitt nicht entscheidend.



Abbildung 3.5 Skizzenhafte Darstellung der durch die Blenden gelangenden Anteile des Streulichts (rot) für identische Targets, bei guter (links) und schlechter (rechts) Fokussierung. Die Schlitzblende (rechteckig) des Q-Detektors und die Lochblende (kreisförmig) des S-Detektors sind (maßstabsgetreu) übereinanderliegend gezeichnet, um eine kompakte Darstellung zu ermöglichen.

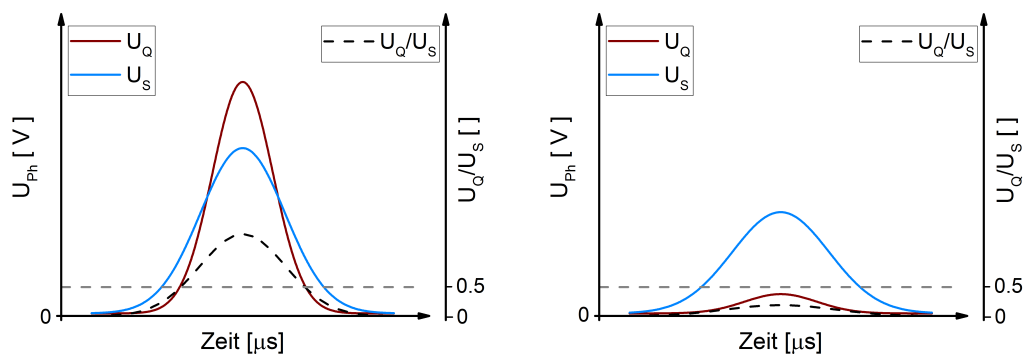


Abbildung 3.6 Schematische Darstellung des zeitlichen Verlaufs der Detektorspannungen U_Q (rot) und U_S (blau) sowie deren Quotient U_Q/U_S (schwarz) für Ereignisse guter (links) und schlechter (rechts) Fokussierung für ideale gaußförmige Pulse. Nur Ereignisse mit Quotienten $U_Q/U_S > 0.5$ werden gezählt und zur Größenbestimmung herangezogen.

Seite) geprüft wird, ob das *Tiefenschärfekriterium*¹

$$\frac{U_Q}{U_S} > \text{DoF}_{\text{crit}} = 0.5 \quad (3.24)$$

erfüllt ist, also das Verhältnis der von den Detektoren generierten Pulsamplituden den instrumentenspezifischen Schwellwert von 0.5 überschreitet. Nur in diesem Fall wird die Pulsamplitude des S-Detektors zur Größenbestimmung herangezogen und der resultierende A/D-Wert aufgezeichnet.

Die Forderung nach Erfüllung des Tiefenschärfekriteriums definiert dabei die *qualifizierende Messfläche* (SA_q) des Instruments, die lediglich einen Teil der Fläche SA_{ext} ausmacht, auf die die Detektoren sensitiv reagieren. Bei guter Justierung der Optik

¹ Engl.: *Depth-of-Field criterion*

liegt das Zentrum von SA_q dabei in der Brennebene am Ort maximaler Laserintensität. Der Partikelstrom bildet eine Flächennormale zu SA_q . Ein Partikel, das SA_q passiert, dessen Streulicht also das Tiefenschärfekriterium erfüllt, wird auch als *qualifiziert* bezeichnet.

Den Symmetrien der Instrumentenoptik folgend, ergibt sich die Erwartung an eine näherungsweise elliptische Form von SA_q . Der gemeinsame Einsatz von Schlitz- und Lochblende, der zu einem steilen Abfall von U_Q/U_S auf einem kleinen räumlichen Bereich führt, ermöglicht die Definition einer SA_q mit scharfen Grenzen, was in Abb. 3.7 qualitativ dargestellt ist. Weiter wird deutlich, dass ein geänderter Schwellwert DoF_{crit} direkte Auswirkungen auf die Größe der SA_q hat. So reduziert sich beispielsweise SA_q bei Wahl eines höheren Schwellwerts DoF_{crit} . Die Möglichkeit im Nachprozessieren DoF_{crit} manuell anzupassen existiert jedoch nur bei Instrumenten der neuesten Baureihe. Bei den in dieser Arbeit verwendeten Ausführungen der CAS war stets ein Schwellwert von $\text{DoF}_{\text{crit}} = 0.5$ auf analoger Seite fest eingestellt.

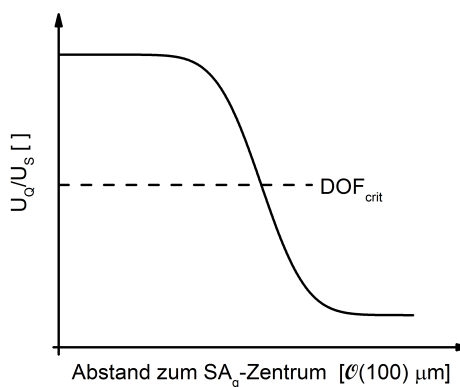


Abbildung 3.7 Qualitative Darstellung des räumlichen Verlaufs von U_Q/U_S .

Weitere Parameter, die die Größe von SA_q beeinflussen, stellen die Beschaffenheit des Strahlteilers sowie die Blendenkonfiguration dar. Während alle von DMT hergestellten CAS mit dem gleichen Strahlteiler (70/30) arbeiten¹, existieren Varianten mit verschieden großen Lochblenden vor dem S-Detektor. Bei gleichem Strahlteiler und DoF_{crit} ist zu vermuten, dass die Größe von SA_q vom Durchmesser der verwendeten Lochblende abhängt, was kurz anhand eines Gedankenexperiments verdeutlicht werden soll.

Betrachtet man Teilchen, die bei gegebener Lochblendengröße SA_q nahe an deren Rand passieren ($U_Q/U_S \approx 0.5$) und verkleinert nun gedanklich die Lochblendengröße, so reduziert sich U_S ebenfalls, womit der Quotient U_Q/U_S wächst. Bei unveränderter Trajektorie hat das Teilchen also SA_q in einer - relativ betrachtet - größeren Distanz zum Rand² durchquert, woraus sich schließen lässt, dass die Größe von SA_q zugenommen hat. Diesem Gedanken folgend, wird die Hypothese aufgestellt, dass die Verwendung kleinerer (größerer) Lochblenden größere (kleinere) SA_q bedingt.

Nach diesen qualitativen Überlegungen, die Zusammenhänge zwischen Blendenform, Blendengröße, SA_{ext} , Schwellwert DoF_{crit} , Strahlteiler und SA_q betreffend, bleibt festzuhalten, dass eine sondenspezifische Vermessung der SA_q notwendig ist, um eine präzise Bestimmung von Partikelkonzentrationen zu ermöglichen. Da jede Änderung

¹ M. Freer (DMT), pers. Kommunikation, 2017

² Der Rand ist durch $U_Q/U_S = 0.5$ definiert.

an der Instrumentenoptik (auch eine Dejustierung) direkte Auswirkungen auf SA_q hat, sollte solch eine Vermessung in regelmäßigen Abständen wiederholt erfolgen. Da die CAS zudem vom Hersteller mit verschiedenen Lochblenden angeboten wird, ist Vorsicht geboten, wenn SA_q verschiedener Instrumente miteinander verglichen werden. Eine detaillierte Analyse instrumentenspezifischer SA_q wird in Kapitel 4.2 vorgestellt.

Da die Sondenelektronik bereits auf analoger Seite sämtliche Streulichtsignale verwirft, die das Tiefenschärfekriterium nicht erfüllen, werden im Rahmen der Datenerfassung ausschließlich die Detektorsignale qualifizierter Partikel weiter verarbeitet. Das gesamte Nachprozessieren der Rohdaten bezieht sich damit stets auf qualifizierte Partikel.

3.4.4 Analyse des Streulichts in Rückwärtsrichtung

Durch Analyse des in Rückwärtsrichtung gestreuten Lichts lassen sich zudem Aussagen zur Form der detektierten Partikel machen (Freudenthaler et al. 1996). Zum einen wurde durch T-Matrix-Rechnungen gezeigt, dass die Phasenfunktion im Bereich der Rückwärtsstreuung sehr sensitiv auf Änderungen der Partikelform reagiert. Eine weitere Aufspaltung nach Polarisationszuständen zeigt zudem, dass bei Verwendung linear polarisierten Lichts der Einfluss der Partikelform auf eine Änderung des ursprünglichen Polarisationszustandes des in Rückwärtsrichtung gestreuten Lichts auch sehr deutlich ausgeprägt ist (Baumgardner et al. 2005, Yang et al. 2013).

Zur experimentellen Bestimmung des Polarisationszustandes des in Rückwärtsrichtung gestreuten Lichts wird in der CAS-DPOL ein polarisierend wirkender Strahlteiler verwendet. Eine solche Zerlegung des rückwärts gestreuten Lichts in seine Komponenten parallel und senkrecht zum ursprünglichen linearen Polarisationszustand, gefolgt von separater Detektion beider Komponenten (via „P“- und „S“-Detektor) sowie anschließendem Vergleich beider Detektorsignale macht eine Änderung des Polarisationszustandes direkt messbar. Die *Depolarisation* des Laserlichts, die sich hierbei durch Signale im S-Detektor¹ äußert, kann dabei als Maß für die Aspherizität der Wolkenpartikel herangezogen werden (Mishchenko & Sassen 1998, Sassen & Hsueh 1998). Eine größere Aspherizität geht dabei mit erhöhter Depolarisation einher. Eine Analyse der Depolarisation erlaubt es beispielsweise Wolken hinsichtlich der Aspherizität ihrer Bestandteile zu klassifizieren, also Flüssigwasser- von Eiswolken zu unterscheiden (Meyer 2013). Inwieweit mit der CAS-DPOL Rückschlüsse auf die Form kleiner Eispartikel ($\approx 2\ \mu\text{m}$) in jungen Kondensstreifen gezogen werden können, ist Gegenstand aktueller Forschung.

3.4.5 Datensystem

Parameter, die direkten Bezug zur Berechnung der Partikel-Größenverteilung (PSD) und zum Betriebszustand der Sonde haben, werden in zwei separaten Dateien aufgezeichnet.

¹ Manchmal werden diese auch als „Cross-Counts“ bezeichnet.

Das Kernstück der sogenannten *Bulk*-Datei stellt die Zeitreihe der gemessenen σ_{CAS} in Histogrammform dar. Die zeitliche Auflösung lässt sich dabei über die Taktung der Sondenelektronik anpassen. Zur Erzeugung des Histogramms werden sämtliche im jeweiligen Takt detektierten Streuquerschnitte einem der maximal 30 - vom Benutzer in A/D-Werten zu definierenden - Kanäle (bzw. σ_{CAS} -Bins) zugewiesen und dort als Ereignis gezählt. Aus Kenntnis der exakten Dauer des jeweiligen Takts lassen sich Zählraten binweise berechnen. Zudem werden in der Bulk-Datei von der Sonde lokal bestimmte atmosphärische Parameter wie z.B. statischer Druck (p_s), Umgebungstemperatur (T_{amb}) oder Strömungsgeschwindigkeit (PAS) gespeichert. Um im Verlauf der weiteren Auswertung stets Informationen über den Betriebszustand der Sonde zu haben, werden auch *Housekeeping*-Daten aufgenommen. Diese umfassen neben den Werten sondeninterner Temperatursensoren z.B. auch Baseline-Spannungen sämtlicher Verstärkungsstufen sowie den Stromfluss durch die Laserdiode.

In der *Particle-by-Particle*-Datei (PbP-Datei) werden die Daten der Einzelpartikelmessung gespeichert. Für die als qualifiziert befundenen Partikel umfasst diese die A/D-Werte des größtenbestimmenden Detektors (Vorwärtsrichtung) sowie die des S- und P-Detektors (Rückwärtsrichtung). Zudem wird für jedes Teilchen die Inter-Partikel-Zeit (IPT) bestimmt. Sie ist die Zeit, die zwischen der Detektion zweier aufeinanderfolgender Partikel vergeht. Insgesamt werden dabei jedoch nur die Daten der ersten 292 detektierten Teilchen eines jeden Takts aufgezeichnet. Bei einer Betriebsfrequenz von 1 Hz entspricht dies den jeweils ersten 292 Partikeln, die in einer Sekunde detektiert werden. Da in diesem Fall bei sehr hohen Konzentrationen ein gewisser Teil der von der Sonde erhobenen Daten nicht in der PbP-Datei aufgezeichnet wird, empfiehlt es sich die Betriebsfrequenz zu erhöhen. Die CAS erlaubt das bis zu 10 Hz, was es auch bei hohen atmosphärischen Konzentrationen möglich macht in der PbP-Datei eine statistisch signifikante Zahl an Einzelpartikeldaten zu erfassen. Die PbP-Datei ergänzt die Histogrammdateien in vielerlei Hinsicht. Da sich aus der gemessenen IPT und der Flugzeuggeschwindigkeit eine Inter-Partikel-Distanz berechnen lässt, können beispielsweise Rückschlüsse auf wolkeninterne Inhomogenitäten der Partikelkonzentration gezogen werden, die sich aus den zeitlich bzw. räumlich grob aufgelösten Histogrammdateien nicht rekonstruieren lassen. Zudem steigert die Kenntnis exakter A/D-Werte einzelner Partikel die Qualität der Kalibrierung der Größenbestimmung. Desweiteren lassen sich durch statistische Analyse der einzelnen IPTs Artefakte wie *Shattering* (s. Kap. 3.4.8) identifizieren und deren Einfluss auf die Größenverteilung korrigieren. Werden im Falle moderater Partikelkonzentrationen die Signale aller Partikel in der PbP-Datei aufgezeichnet, lassen sich die Histogrammdateien aus den PbP-Daten rekonstruieren.

Die eigentliche Datenübertragung von der Sonde zu einem Computer in der Kabine erfolgt über eine serielle RS-422 Schnittstelle und diesem Standard entsprechende Twisted-Pair Kabel. So werden Datenraten bis ca. 56 kbit/s bei gleichzeitig kleinen Signalamplituden und geringer elektromagnetischer Störanfälligkeit ermöglicht.

Die Datenerfassung und Erzeugung der oben besprochenen Dateien erfolgt durch ein vom Hersteller bereitgestelltes Programm (PADS - Particle Analysis and Display System) auf Basis von LabVIEW, welches durch die Nutzung eines USB-Dongles

während jedem Einsatz freigeschaltet werden muss. Bei jedem Programmstart lädt PADS zur Initialisierung eine Konfigurationsdatei. In dieser kann die Erzeugung von Nutzeroberflächen für verschiedene DMT-Sonden veranlasst werden. Für jede Sonde lassen sich zudem sondenspezifische Parameter einstellen. Diese umfassen z.B. die Betriebsfrequenz, Kalibrationskonstanten der Druck- und Temperatursensoren sowie frei wählbare Schwellwerte bzw. Bingrenzen für A/D-Werte. Letztere bilden die Grundlage zur Erzeugung der Historamm-Datei, was für den Fall hoher Partikelkonzentrationen (mehr als 292 Partikel je Sekunde) einen irreversiblen Prozess darstellt. ADC-Bingrenzen sollten deshalb vor jeder Messung stets mit Bedacht gewählt werden, um Einzelpartikeldaten nicht in einer möglicherweise ungeeigneten Binstruktur zu „kondensieren“. Ein geeignetes Vorgehen für Kondensstreifenmessungen wird in Kapitel 4 diskutiert.

Um Flexibilität und freie Kapazitäten bzgl. der Datenerfassung bei zukünftigen Messkampagnen zu haben, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein 19-zoll Rackeinschub (*OPC-Einschub*) konzipiert¹, der über vier interne Industrie-PCs mit jeweils zwei Ethernet- und vier seriellen Schnittstellen sowie zwei internen Mini-PCIE-Steckplätzen verfügt.

3.4.6 Bestimmung der Größenverteilung

Um aus den Rohdaten eine Größenverteilung (PSD) der detektierten Partikel zu bestimmen, wird zunächst - wie in Kap. 3.3 beschrieben - aus den gemessenen sondenspezifischen Streuquerschnitten (σ_{CAS}) eine Teilchengröße abgeleitet. Je nach Teilchenform und Brechungsindex werden hierzu σ_{CAS} -Bins in korrespondierende Größenbins umgerechnet. Im Hinblick auf Kondensstreifenmessungen wird dieses Verfahren in Kapitel 4.1 detailliert diskutiert.

Wird daraufhin die Anzahl (A_i) der in einem beliebigen Größenbin (i) in einem Zeitintervall Δt detektierten Teilchen durch das von der Sonde in Δt vermessene Volumen (SV) dividiert, ergibt sich die Teilchenkonzentration N_i im Größenbin i nach

$$N_i = \frac{A_i(\Delta t)}{SV(\Delta t)}. \quad (3.25)$$

SV lässt sich hierbei näherungsweise berechnen, indem die *effektive* Messfläche (SA_{eff}) der CAS mit der in Δt zurückgelegten Strecke multipliziert wird. SA_{eff} ergibt sich dabei aus SA_q nach Korrektur um auf SA_q variierende Detektionseffizienzen, worauf in Kap. 4.2 näher eingegangen wird. Laut Herstellerangabe beträgt *die*² SA der CAS $0.25 (\pm 0.05) \text{ mm}^2$. Die große relative Unsicherheit von $\pm 20\%$ lässt sich dadurch erklären, dass diese Aussage aus Laboranalysen verschiedener Instrumente gewonnen wurde, deren Optiken vermutlich alle unterschiedlich präzise justiert waren und die insbesondere mitunter verschiedene Blendenkonfigurationen besaßen. Zudem ist

1 Die Konzeption erfolgte in Zusammenarbeit mit D. Sauer (DLR, IPA), die Fertigung wurde durch Enviscope GmbH übernommen.

2 An dieser Stelle differenziert der Hersteller nicht weiter zwischen SA_q und SA_{eff} .

unklar, ob die Detektoren zum Zeitpunkt der Messungen alle identische Effizienzen aufwiesen. Da sich Unsicherheiten in SA_{eff} direkt als Unsicherheiten in SV und abgeleiteten mikrophysikalischen Parametern widerspiegeln, ist es notwendig SA_{eff} des jeweils verwendeten Instruments genau zu bestimmen (s. Kap. 4.2).

Zudem muss beachtet werden, dass die CAS bei den durchgeführten Messflügen in einer Unterflügelstation der Falcon angebracht war. Da der Flügel Auftrieb erzeugt, sind statischer und dynamischer Druck, statische Temperaturen und Strömungsgeschwindigkeiten in der Nähe seiner Oberflächen stark positionsabhängig und weichen insbesondere von entsprechenden Werten relativ zur ungestörten Atmosphäre ab. Werden zusätzlich noch Instrumente in Unterflügelstationen angebracht und damit der Luftstrom weiter gestört, ergibt sich ein kompliziertes und schwer berechenbares Strömungsmuster im Bereich der Sonde, wo die Messung stattfindet. Da die CAS jedoch mit Druck-, Temperatur- und Geschwindigkeitssensoren ausgestattet ist, lassen sich diese Effekte quantifizieren, was es ermöglicht aus den von der Sonde gemessenen Partikelkonzentrationen, die in der ungestörten Atmosphäre tatsächlich vorliegenden zu berechnen. So zeigt sich z.B. auf einer Flughöhe von 10 km an der Unterflügelstation eine gegenüber der Flugzeuggeschwindigkeit (TAS) um etwa 30 % reduzierte Strömungsgeschwindigkeit (PAS). Damit werden auch Kompressionseffekte unter dem Flügel, im Bereich der Sonde relevant. In Weigel et al. (2016) wird ein Verfahren vorgestellt, das diese Effekte berücksichtigt und in dieser Arbeit verwendet wird. Danach berechnet sich das vermessene Volumen der ungestörten Atmosphäre nach

$$SV_{\text{amb}} = SA_{\text{eff}} \cdot \text{PAS} \cdot \Delta t \cdot \xi^{-1} \quad (3.26)$$

mit dem dimensionslosen Korrekturfaktor ξ ,

$$\xi = \frac{p_{s,\text{amb}}}{p_{s,\text{Probe}}} \cdot \left(1 + \frac{1}{T_{\text{amb}} \cdot 2008 \frac{\text{J}}{\text{kg} \cdot \text{K}}} \left(\text{TAS}^2 - \text{PAS}^2 \right) \right). \quad (3.27)$$

In Gl. 3.27 wurden die Resultate aus Weigel et al. (2016) schon im Hinblick auf Messungen im Kondensstreifen dargestellt, welche von Partikeln mit Durchmessern kleiner $20 \mu\text{m}$ dominiert werden. In Weigel et al. (2016) wird zudem angeführt, dass die dort veröffentlichten Ergebnisse für Sonden mit offen zugänglichem Messvolumen (Open Path Instrumente) auf dem Forschungsflugzeug HALO hergeleitet und evaluiert wurden und sich für andere Instrumente und andere Messplattformen Abweichungen ergeben können. Die Anwendung von Gl. 3.26 in dieser Arbeit sollte somit als eine Näherung für eine entsprechende Korrektur der Sonde CAS auf der Falcon des DLR verstanden werden. Eine Analyse des Korrekturfaktors ξ für die in dieser Arbeit untersuchten Flüge zeigt dabei sehr gute Übereinstimmung mit den in Weigel et al. (2016) vorgestellten Abhängigkeiten, was als Indiz für eine gute Qualität dieser Näherung bzw. deren Übertragbarkeit auf den Anwendungsbereich dieser Arbeit verstanden werden kann.

Sind die Teilchenkonzentrationen N_i der Größenbins mit den unteren (oberen) Bingen $D_{i,l}$ ($D_{i,u}$) berechnet, lässt sich nach

$$\frac{dN(D_i)}{d \log D_p} := \frac{N_i}{\log \left(\frac{D_{i,u}}{D_{i,l}} \right)} \quad (3.28)$$

die Partikelgrößenverteilung berechnen, die bei doppellogarithmischer Auftragung einen guten Überblick über das Vorkommen von Partikeln über weite Größen- und Konzentrationsbereiche ermöglicht.

3.4.7 Diskussion von Unsicherheiten

Unsicherheiten in der von der CAS bestimmten Größenverteilung können technische Limitierungen zugrunde liegen oder auch schlicht physikalischer Natur sein. Neben den Ursachen ist auch die Art der jeweiligen Fehler relevant. Statistische Fehler sind verantwortlich für die *Präzision* bzw. Reproduzierbarkeit einer Messung, sind also ein Maß für die Streuung der Messwerte um einen Mittelwert. Systematische Fehler hingegen charakterisieren die *Richtigkeit*¹ (*Accuracy*) der Messung und können durch geeignete Analysen (z.B. Kalibrierungen) reduziert werden. Je nach Fehlerquelle können dabei Größen- und/oder Konzentrationsbestimmung betroffen sein, was im Folgenden im Detail erläutert wird.

Limitierungen der Größenbestimmung

Da die Intensitätsverteilung des Lasers über dessen Querschnitt nicht homogen ist, sondern näherungsweise einem gaußförmigen Profil folgt (Baumgardner et al. 1992), variiert die Lichtintensität der die Streutargets ausgesetzt sind in Abhängigkeit von deren Position in SA_{ext} . Die spezielle Beschaffenheit der beiden Detektormasken in Verbindung mit dem Tiefenschärfekriterium (s. Kap. 3.4.3) selektiert dabei lediglich die Teilchen, die den Laserstrahl hinreichend nahe an dessen Zentrum passieren. Damit wird die Variabilität der Lichtintensitäten der verschiedene Partikel ausgesetzt sind erheblich reduziert, dennoch verbleibt eine zu quantifizierende Restvarianz. Da die genaue Position der als qualifiziert befundenen Teilchen im SV jedoch nicht explizit bestimmt wird, wirkt sich diese Varianz als statistischer Fehler auf die Präzision der σ_{CAS} -Messung aus und bewirkt eine Verbreiterung gemessener gegenüber real vorliegender Größenverteilungen. Neben einem nicht-homogenen Intensitätsprofil tragen auch Effekte der Sammeloptik und insbesondere deren Dejustierung zu einer solchen Verbreiterung bei. So scheint es plausibel, dass auch der tatsächlich detektierte Streuwinkelbereich von der Position qualifizierter Partikel in SA_q abhängt. In Abschnitt 4.2 wird die spektrale Aufweitung detailliert im Zuge der Charakterisierung der SA_q analysiert.

Eine weitere potentielle Fehlerquelle optischer Spektrometer stellt die Taktung der Sonderelektronik dar. So fand Baumgardner (1987) bei der FSSP, dem Vorläufermodell der CAS, eine systematische Unterschätzung der Partikelgrößen bei hohen Fluggeschwindigkeiten ($TAS > 100$ m/s). Durch den Einsatz neuerer bzw. schnellerer elektronischer Bauteile, kann bei der CAS ein solcher Effekt jedoch bis zu Partikelkonzentrationen von ≈ 6500 cm⁻³ und $TAS \approx 200$ m/s ausgeschlossen werden, wie Abschätzungen von Baumgardner et al. (2001) zeigen. Totzeitkorrekturen, die bei älteren Streulichtspektrometern essentiell waren (Brenquier 1989), müssen im Rahmen dieser Arbeit nicht angebracht werden.

¹ Im Deutschen ist auch die Bezeichnung *Genauigkeit* anzutreffen.

Zudem muss sichergestellt werden, dass alle Messungen unter vergleichbaren Betriebstemperaturen der Sondenelektronik stattfinden, da sonst insbesondere die Detektoren geänderte Sensitivitäten aufweisen können, was sich wiederum direkt auf die Größenbestimmung auswirkt. Durch konsequentes Einschalten der Sondenheizungen im Flug, wurde jedoch die Temperatur der Elektronik auf typische Raumtemperaturen - wie sie auch bei der Größenkalibrierung im Labor vorlagen - gebracht und somit einer systematisch fehlerhaften Bestimmung von Teilchengrößen vorgebeugt.

Einen nicht zu unterschätzenden Faktor stellt das Reinigen der optischen Fenster dar. Verunreinigte Fenster führen zu einer systematischen Reduktion der Intensitäten von Primärstrahlung im Messvolumen und detektierter Streulichtleistung, was - auf Basis einer Kalibrierung mit sauberen Fenstern - eine systematische Unterschätzung der Partikelgrößen bewirkt. Aufgrund vergleichsweise hoher Aerosolbelastungen fördern insbesondere lange Flugpassagen in der planetaren Grenzschicht (PBL) eine verstärkte Kontamination der Fenster. Im Laufe des Fluges reduziert sich deren Transmissivität, womit sich der Effekt der Unterschätzung von Partikelgrößen verstärkt. Durch den Vergleich von Kalibrationsdaten mit sauberen (vor dem Flug) und dreckigen Fenstern (nach dem Flug) kann diese Systematik jedoch rechnerisch erheblich reduziert werden. Durch die typischen Flugprofile der ECLIF-Kampagne mit sehr kurzen Flugzeiten in der PBL haben sich Verunreinigungen der Fenster im Verlauf eines Fluges nicht bemerkbar gemacht; eine Korrektur musste nicht angebracht werden. Vor jedem Flug wurden zudem die Fenster gereinigt, um dem Zustand der Optik zum Zeitpunkt der detaillierten Labor-Kalibrierung (s. Kap. 4.1) möglichst nahe zu kommen. Zwischen zwei Flügen wurde meist eine verkürzte Kalibrierung durchgeführt, die relative Änderungen der Größenbestimmung aufspüren sollte und als Systemcheck diente.

Auch der Zusammenhang zwischen Laserstrom (I_L) und Intensität des Laserlichts muss analysiert werden. Prinzipiell sind zwei Szenarien denkbar. Idealerweise besitzt der Diodenlaser eine aktive interne Regelung, d.h. Abweichungen der Lichtintensität vom Sollwert werden erkannt, woraufhin der Strom I_L bis zum Erreichen des Sollwerts sukzessive geändert wird. In diesem Szenario berücksichtigt ein sich ändernder Laserstrom variable Betriebsbedingungen, um eine konstante Lichtintensität (und damit Größenbestimmung) zu gewährleisten. Ohne die Existenz einer präzisen aktiven Regelung hingegen, sind Abweichungen des Stroms I_L vom Sollwert Indiz für geänderte Intensitäten des ausgesandten Laserlichts, die sich in einer veränderten bzw. fehlerhaften Größenbestimmung manifestieren. Unabhängig davon, welches dieser Szenarien der Sondenkonstruktion zu Grunde liegt, kann nur ein Experiment Systematiken der Strom-Intensitäts-Kennlinie des Lasers quantitativ erfassen. Eine solche Analyse wird in Kap. 4.1.1 vorgestellt.

Wie in Kap. 3.3 diskutiert, erfordern Mie-Resonanzstrukturen in $\sigma_{\text{CAS}}(D_p)$ die Einführung breiter Größenbins. Dieser Effekt ist physikalischer Natur und geht mit einer reduzierten D_p -Auflösung einher.

Durch den Fokus dieser Arbeit auf die Messung von Eispartikeln in Kondensstreifen kann der Brechungsindex als konstant behandelt werden. Allerdings bestimmt auch die Partikelform den Betrag und die Verteilung des Streulichts. Um Erkenntnisse

bisheriger Studien zu Partikelformen in jungen Kondensstreifen (Schröder et al. 1999, Voigt et al. 2011, Gayet et al. 2012) und mathematische Rahmenbedingungen der T-Matrix-Rechnungen (Mishchenko et al. 1996, Borrmann et al. 2000) zu berücksichtigen, wurde eine Bineinteilung hergeleitet, die speziell auf Kondensstreifenmessungen ausgelegt ist. Zur möglichst präzisen Größenbestimmungen werden dabei Effekte der Mie-Resonanzen für variable Partikelformen (AR) analysiert. Das Vorgehen wird in Kap. 4.1 im Detail vorgestellt.

Die angeführten Ursachen summieren sich nach Angaben des Sondenherstellers (DMT) auf eine Unsicherheit der Größenbestimmung von etwa $\pm 20\%$ auf. Diese Angabe kann als grober Richtwert für eine erste Einschätzung der Messergebnisse dienen, jedoch werden in Kap. 4 relevante Beiträge für die verwendeten Instrumente genauer quantifiziert. Insbesondere der Mie-Resonanzbereich muss dabei gut verstanden sein, da hier bei unpräziser Herangehensweise prinzipiell die Gefahr besteht, aus einer real unimodalen PSD eine bimodale Verteilung zu generieren, was evtl. zu falschen physikalischen Schlussfolgerungen führen kann.

Limitierungen der Konzentrationsbestimmung

Die Unsicherheit berechneter Konzentrationen hängt stark davon ab, wie genau SA_{eff} bestimmt werden kann. Wie in Kap. 3.4.6 diskutiert, sollte man hierbei nicht unbedacht auf den groben Richtwert des Sondenherstellers vertrauen, sondern eine instrumentenspezifische Analyse vornehmen (s. Kap. 4.2).

Weitere beitragende Faktoren erbeben sich aus der Berechnung von SV nach Gl. 3.26. Da der Zeitschritt Δt auf 10^{-6} s genau bestimmt wird, ist die Unsicherheit in Bezug auf 1-Hz-Daten vernachlässigbar. Um systematische Abweichungen der Druckmessungen der CAS zu reduzieren, wurden die Drucksensoren kalibriert. Schätzt man die verbleibende Unsicherheit mit $\Delta p_{s,\text{CAS}} = \pm 10$ hPa konservativ ab, resultieren daraus für typische Flughöhen dieser Arbeit ($p_{s,\text{CAS}} \simeq 260$ hPa) Unsicherheiten der berechneten Luftdichte ($\pm 3.8\%$), der PAS ($\mp 1.9\%$), in ξ ($\mp 3.6\%$) und folglich in SV_{amb} ($\pm 1.8\%$). Schätzt man weiter die Genauigkeit der PAS-Bestimmung aus der Differenzdruckmessung konservativ auf ± 10 m/s ab, ergibt sich für den Faktor PAS/ ξ insgesamt eine Unsicherheit von $\simeq 10\%$ unter für Kondensstreifenmessungen typischen Flugbedingungen. Nach Gl. 3.26 überträgt sich diese Unsicherheit direkt auf SV_{amb} .

Bei geringen Anzahlkonzentrationen gewinnen zudem statistische Unsicherheiten (*Counting Statistics*) an Bedeutung. Legt man 1-Hz-Daten und Fluggeschwindigkeiten von $\simeq 100$ m/s zugrunde, lässt sich für Konzentrationen von ≥ 13 cm^{-3} ein relativer Fehler von $\leq 5\%$ abschätzen (Lance et al. 2010). Da diese Arbeit jedoch auf Messungen deutlich höherer Konzentrationen ($\mathcal{O}(500)$ cm^{-3}) bei zugleich höheren Geschwindigkeiten (≈ 180 m/s) basiert und dieser Fehler reziprok mit der Quadratwurzel der Anzahl detektierter Partikel skaliert, ergibt sich eine deutlich reduzierte Unsicherheit von $\leq 1\%$.

3.4.8 Artefakte der Messtechnik

Auch nach sorgfältiger Analyse potentieller Fehlerquellen kann das Ergebnis einer Messung von Artefakten beeinflusst sein. Artefakte resultieren aus systematischen Schwachstellen der zugrunde liegenden Messtechnik in Bezug auf die jeweilige Anwendung. Generell gilt die Devise, Maßnahmen zu ergreifen, um Artefakte möglichst zu vermeiden oder zumindest zu reduzieren. Anhand geeigneter Kriterien sollte in jedem Fall geprüft werden in welchem Maß die Messungen von bekannten Artefakten beeinflusst sind. Werden Artefakte in den erhobenen Daten identifiziert, können daraufhin Strategien zur Korrektur entwickelt bzw. angewandt werden. Sollte sich herausstellen, dass eine starke Verfälschung der aufgenommenen Daten vorliegt, die weder quantifizierbar noch korrigierbar ist, müssen diese Daten letztendlich verworfen werden.

Im Folgenden werden zwei für die CAS wesentliche Artefaktquellen, Koinzidenz und Shattering, und der Umgang mit diesen vorgestellt.

Koinzidenz

Bei zunehmend steigenden Anzahlkonzentrationen und damit geringer werdenden räumlichen Abständen zwischen den Teilchen steigt die Wahrscheinlichkeit, dass Streulichtsignale verschiedener Partikel nicht mehr sauber voneinander getrennt aufgezeichnet werden können. Vereinfacht formuliert befinden sich mehrere Teilchen gleichzeitig im Messvolumen der Einzelpartikelmessung, was als Koinzidenz bezeichnet wird. Die Bedeutung der Koinzidenz für Streulichtspektrometer wurde schon früh erkannt und diskutiert (Baumgardner et al. 1985, Brenguier 1989). Lance (2012) unterteilt Koinzidenzeffekte dabei in zwei Kategorien, die *klassische* und *erweiterte Koinzidenz*.

Bei der klassischen Koinzidenz passieren mehrere Partikel SA_q in sehr kurzen zeitlichen Abständen, sodass sich ihre Detektorpulse überlagern und nicht voneinander separiert analysiert werden können. Statt mehrerer wird lediglich ein Partikel gezählt, Anzahlkonzentrationen werden unterschätzt, während Partikelgrößen, gewonnen aus der Pulshöhenanalyse der additiven Streulichtsignale, tendenziell überschätzt werden¹. Bei typischen Fluggeschwindigkeiten ($\simeq 180$ m/s) und einer Ausdehnung des detektorsensitiven Messvolumens in Flugrichtung von $\simeq 200$ μm für die CAS, ergibt sich eine Pulsbreite von $\simeq 1.1$ μs . Mit zunehmend steigenden Anzahlkonzentrationen reduzieren sich mittlere IPTs zweier Partikel entsprechend und erreichen schließlich die Größenordnung der Pulsbreite der Einzelpartikelmessung. In diesem Fall werden Partikelkonzentrationen signifikant unterschätzt. Aus obigen Werten ergibt sich mit $SA_q \approx 0.25$ mm^2 , dass aus klassischer Koinzidenz resultierende Artefakte bei atmosphärischen Anzahlkonzentrationen von über 2000 cm^{-3} relevant werden können.

¹ Wie stark diese Überschätzung ausgeprägt ist, wird wesentlich von der Art der Pulsanalyse und der diesbezüglichen zeitlichen Auflösung bestimmt. So sind bei einer zeitlich gut aufgelösten Pulshöhenanalyse des Instruments andere Eigenschaften zu erwarten als bspw. bei einer Analyse mit integrativem Anteil.

Als erweiterte Koinzidenz wird die Beeinflussung der Detektorpulse (prinzipiell) qualifizierter Partikel durch das Streulicht nicht-qualifizierter Partikel bezeichnet. Ursächlich hierfür zeigt sich die Blendenkonfiguration, die eine größere Ausdehnung der sensitiven Fläche des S-Detektors (SA_{ext}) im Vergleich zu SA_q bedingt. Passieren neben einem qualifizierten Partikel (Trajektorie durch SA_q) weitere nicht-qualifizierte Partikel SA_{ext} in hinreichend kurzem zeitlichen Abstand, so werden deren S-Detektor-Beiträge (U_S) dem qualifizierten Partikel zugeordnet. Im Vergleich zum S-Detektor ist der Q-Detektor mit einer Blende wesentlich geringeren Ausmaßes versehen, weshalb dessen Signale (U_Q) in guter Näherung unbeeinflusst von entsprechenden Beiträgen bleiben. Letztendlich resultieren erhöhte Pulsbreiten¹ bei geänderter Pulsform und erhöhte Pulsamplituden des S-Detektors. Letztere können eine systematische Überschätzung der Partikelgröße des qualifizierten Partikels bewirken, oder die komplette Verwerfung der Partikelmessung, falls das DoF-Kriterium (Gl. 3.24) wegen erhöhter U_S nicht mehr erfüllt ist. Analog zur klassischen Koinzidenz, sind auch bei der erweiterten Koinzidenz systematische Überschätzungen von Partikelgrößen und Unterschätzungen von atmosphärischen Anzahlkonzentrationen potentielle Folgen. Wegen der - im Vergleich zu SA_q - deutlich größeren SA_{ext} können diese Artefakte jedoch schon bei geringeren Anzahlkonzentrationen ($< 1000 \text{ cm}^{-3}$) in Erscheinung treten.

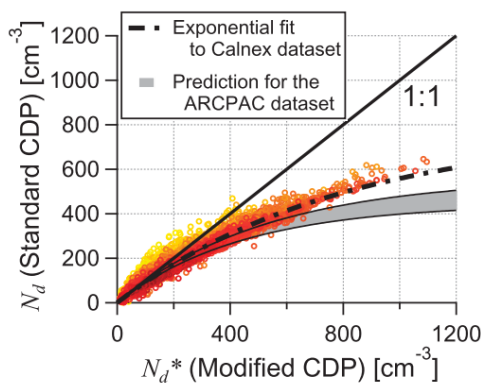


Abbildung 3.8 Vergleich der mit S-CDP (N_d) und M-CDP (N_d^*) bestimmten Anzahlkonzentrationen aus Lance (2012).

der S-CDP systematisch unterschätzt, wobei sich dieser Effekt hin zu großen N_d^* verstärkt. Abb. 3.9 zeigt die zugehörigen mittleren Partikel-Transitzeiten aus S-CDP (t_{avg}) und M-CDP (t_{avg}^*) Messungen. Bedingt durch den Einfluss von Koinzidenz steigt t_{avg} im Bereich bis $N_d^* \approx 1100 \text{ cm}^{-3}$ um etwa einen Faktor 5, während t_{avg}^* kein solches Verhalten zeigt. Daraus lässt sich schließen, dass durch die nachträgliche Installation der 800- μm -Lochblende vor dem S-Detektor Koinzidenzartefakte der CDP drastisch reduziert werden können und von der M-CDP gemessene Konzentrationen $\leq 1100 \text{ cm}^{-3}$ nicht von Koinzidenz-Artefakten betroffen sind. Diese

Analysen von Lance (2012) zeigen anhand von Vergleichsmessungen zweier Cloud Droplet Probes (CDPs), wie sehr die Ausprägung von Koinzidenzeffekten von der Blendenkonfiguration der Sonde bestimmt wird. Hierzu wurde neben einer CDP in Standardkonfiguration (S-CDP, ohne Blende vor dem S-Detektor) auch eine modifizierte CDP (M-CDP, 800- μm -Durchmesser Lochblende vor dem S-Detektor) im Flugexperiment betrieben. Abb. 3.8 zeigt den direkten Vergleich der von S-CDP (N_d) und M-CDP (N_d^*) im Flug gemessenen Anzahlkonzentrationen von Wolkentröpfchen $> 3 \mu\text{m}$. Konzentrationen ab etwa 200 cm^{-3} werden von

¹ Pulsbreiten entsprechen Transitzeiten der Partikel durch das Messvolumen.

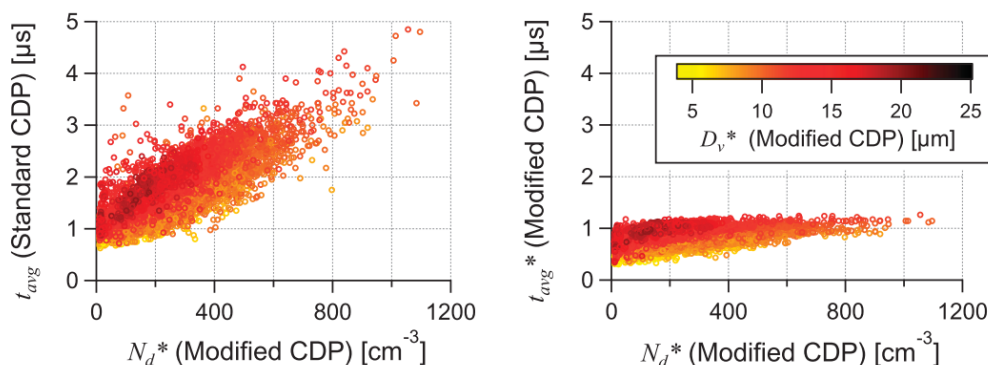


Abbildung 3.9 Durchschnittliche Partikel-Transitzeiten (t_{avg}, t_{avg}^*) in Abhängigkeit gemessener Anzahlkonzentrationen (N_d^*) für S-CDP (links) und M-CDP (rechts) mit farbkodiertem MVD aus Lance (2012).

drastische Reduktion der Koinzidenz-Anfälligkeit lässt sich dabei auf die deutliche Reduktion von SA_{ext} bei Verwendung einer (kleineren) Lochblende zurückführen. So wiesen Labormessungen (Lance 2012) eine durch diese CDP-Modifikation verursachte Größenänderung der charakteristischen Flächen SA_{ext} (SA_q) um -84% ($+15\%$) nach.

Da der Aufbau der CAS in Bezug auf die Streulichtdetektion in Vorwärtsrichtung dem der CDP sehr ähnlich ist, kann davon ausgegangen werden, dass vergleichbare Systematiken auch für die CAS gelten. Allerdings zeichnet die CAS keine Transitzeiten, sondern lediglich IPTs der als qualifiziert befundenen Partikel auf. Dieser gemessenen, also bekannten, IPT-Verteilung liegen dabei die IPT-Verteilungen der prinzipiell qualifizierten Partikel (die SA_q passieren) und der koinzidenten Partikel (die SA_{ext} passieren) zugrunde. Kenntnis der beiden letzteren Verteilungen wäre für eine weiterführende Analyse von Koinzidenzeffekten relevant, diese werden jedoch von der aktuell betriebenen Detektorelektronik nicht separat aufgezeichnet und bleiben damit unbekannte Größen.

Um dennoch Koinzidenzsystematiken zu untersuchen und zu korrigieren, werden in dieser Arbeit Daten zweier CAS mit unterschiedlichen Blendenkonfigurationen im Instrumentenvergleich analysiert. Das Verfahren sowie die resultierende, empirisch gewonnene Funktion zur Koinzidenzkorrektur werden in Kap. 4.3 vorgestellt.

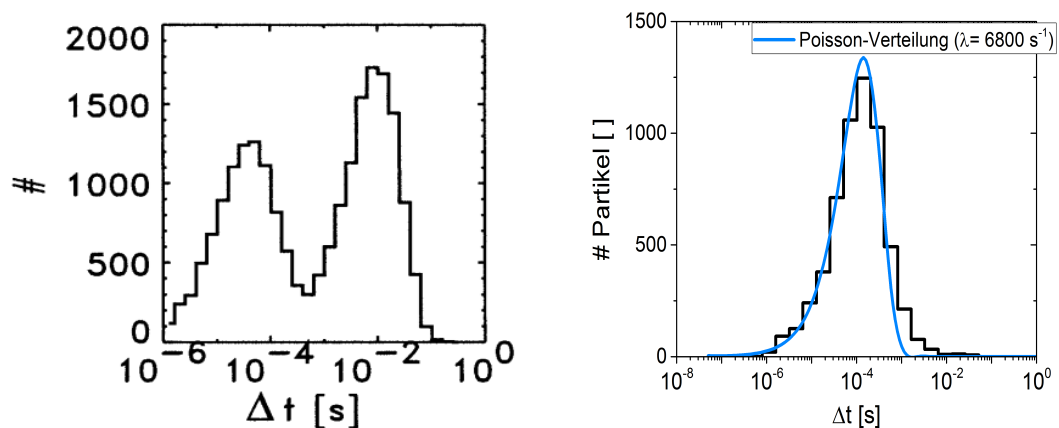
Shattering

Da jede Messung auch einen Eingriff in das zu vermessende System darstellt, stellt sich immer die Frage, inwieweit Messergebnisse den ungestörten Systemzustand repräsentieren. In Bezug auf Eispartikelmessungen beschreibt Shattering (Field et al. 2006) das Zerbersten einzelner Eiskristalle bei deren Auftreffen auf die Sondenoberfläche. Statt eines großen Kristalls gelangt ein gewisser Anteil der deutlich kleineren Bruchstücke in das Messvolumen der Sonde, was zu einer Überschätzung der Konzentrationen kleiner Partikel führt.

Der Auswirkungsgrad dieses Artefakts lässt sich anhand einer IPT-Analyse bestimmen. Das voneinander unabhängige Eintreffen zufällig verteilter Eispartikel bei gegebener, konstanter mittlerer Konzentration und damit mittleren Rate, wird mathematisch durch einen Poisson-Prozess beschrieben. Die Wahrscheinlichkeit, P_i , hierbei für ein beliebiges Partikel eine IPT, Δt_i , in einem gegebenen IPT-Bin, i , mit einem unteren (oberen) IPT-Limit von Δt_{il} (Δt_{iu}) zu finden ergibt sich nach Field et al. (2003) zu

$$P_i(\Delta t_{il} < \Delta t_i < \Delta t_{iu}) = \exp(-\lambda \Delta t_{il}) - \exp(-\lambda \Delta t_{iu}). \quad (3.29)$$

Hierbei steht λ für die mittlere IPT des Poisson-Prozesses, was dem Erwartungswert der entsprechenden Poisson-Verteilung entspricht. Nach Multiplikation von Gl. 3.29 mit der Zahl detektierter Teilchen, ergibt sich aus der Wahrscheinlichkeitsverteilung ein IPT-Histogramm des Poisson-Prozesses, das sich gut mit real gemessenen IPTs vergleichen lässt.



(a) IPT-Histogramm einer FFSSP beim Durchflug durch natürliche Zirren mit Partikeldurchmessern $\leq 800 \mu\text{m}$ (Field et al. 2003).

(b) Repräsentatives IPT-Histogramm der CAS bei Kondensstreifenmessungen (ECLIF) mit Partikeldurchmessern $\leq 20 \mu\text{m}$ (schwarz) im Vergleich zum idealen Poisson-Prozesses (blau).

Abbildung 3.10 Vergleich zweier IPT-Histogramme zur Diskussion von Shattering-Effekten.

Abb. 3.10 zeigt zwei solche Histogramme für exponentiell wachsend gewählte IPT-Intervallbreiten ($\Delta t_{iu} = 2 \cdot \Delta t_{il}$). Abb. 3.10a zeigt eine IPT-Verteilung, die mit einer FFSSP in Eiswolken mit Kristalldurchmessern $\leq 800 \mu\text{m}$ gemessen wurde (Field et al. 2003). Die gefundene Bimodalität stellt dabei einen starken Indikator für Shattering-Artefakte dar (Field et al. 2006). Die Mode bei kleineren IPTs wird den Fragmenten zerbrochener Kristalle zugeordnet, während die Mode bei großen IPTs die reale Wolkenstruktur widerspiegelt. Das Verwerfen der Ereignisse mit IPTs unterhalb eines fallspezifisch zu definierenden Schwellwerts stellt einen geeigneten Filtermechanismus dar, durch dessen Anwendung betroffene Eiswolken-Datensätze um Shattering-Artefakte korrigiert werden können. Abb. 3.10b zeigt repräsentativ eine IPT-Verteilung aus Kondensstreifenmessungen im Rahmen von ECLIF. Diese stimmt gut mit dem theoretisch erwarteten Verlauf einer Poisson-Verteilung überein. Wegen

der unimodalen Form können Einflüsse von Shattering ausgeschlossen werden. Weitere stichprobenartige Analysen von IPT-Histogrammen lieferten allesamt keine Hinweise auf Shattering-Effekte in den für diese Arbeit relevanten Kondensstreifenmessungen.

Um Shattering-Artefakte in Streulichtspektrometern hervorzurufen, ist es notwendig, dass Eiskristalle nicht den Stromlinien um bzw. durch das Instrument folgen, sondern auf die Sondenoberfläche treffen. Zudem müssen die Fragmente zur Detektion noch Streuquerschnitte oberhalb des unteren Detektionslimits der Sonde aufweisen. Da beide Kriterien eher von großen Kristallen als von kleinen erfüllt werden, liefert dies eine schlüssige Erklärung dafür, dass die Messungen kleiner Eispartikel ($D_p \leq 20 \mu\text{m}$) in jungen Kondensstreifen nicht signifikant von Shattering beeinflusst werden.

3.5 Partikeldetektion durch Schattenabbildung mit der 2D-S Sonde

Zur Detektion und Bestimmung der Eigenschaften größerer Partikel ($\mathcal{O}(100 \mu\text{m})$) eignet sich das Prinzip der Schattenabbildung. Die Konzeption geht auf Knollenberg (1970) zurück und entsprechende Instrumente wurden seither kontinuierlich weiterentwickelt. Im Rahmen der in dieser Arbeit diskutierten Kondensstreifenmessungen wurde eine *Two Dimensional-Stereo Probe* (2D-S) (Lawson et al. 2006) der Firma SPECinc verwendet, die Schattenabbildungen von Eispartikeln im nominellen Größenbereich von 10 bis $1280 \mu\text{m}$ bei einer Auflösung von $10 \mu\text{m}$ komprimiert aufzeichnet. Bei Kenntnis der Fluggeschwindigkeit kann im Nachprozessieren die PSD dieses Größenbereichs bestimmt werden.

Die grundlegende Funktionsweise der 2D-S ist schematisch in Abb. 3.11a skizziert. Eine lineare Anordnung von 128 Photodioden (Photodiodenarray¹) wird dauerhaft vom Licht eines fokussierten Lasers beleuchtet. Bewegen sich Teilchen durch das Messvolumen, werden einzelne Dioden abgeschattet was sich in einer reduzierten Diodenspannung äußert. Prinzipiell sind verschiedene Schwellwerte für Abschattungen denkbar, bei denen eine Photodiode vom Zustand „beleuchtet“ über etwaige Schattierungsstufen auf „abgeschattet“ springt. Bei der verwendeten 2D-S wird mit einem Schwellwert von 50 % lediglich zwischen den beiden Zuständen „beleuchtet“ und „abgeschattet“ unterschieden.

Der Abschattungszustand aller Photodioden wird hierbei in hoher Frequenz abgetastet, um aus den einzelnen Bildsequenzen letztendlich ein zweidimensionales Gesamtbild eines jeden Teilchens zusammensetzen. Um hierbei auch in Flugrichtung die maximale Auflösung des Photodiodenarrays (\perp Flugrichtung) von $10 \mu\text{m}$ zu erzielen, muss während dem Messflug eine Abtastrate von $f_{\text{clock}} \approx \text{PAS}/(10 \mu\text{m})$ sichergestellt sein. Dieser Zusammenhang ist als Näherung zu betrachten, da die Fähigkeit einzelner Partikel auf Änderungen der Strömungsgeschwindigkeit zu reagieren maßgeblich von deren Größe (bzw. Stokes-Zahl) bestimmt wird (Weigel et al. 2016). Bei der 2D-S wird dieses bildgebende Verfahren erweitert, indem es auf zwei, zueinander um 90° gedrehte, Raumrichtungen angewandt wird (s. Abb. 3.11b), womit sich

¹ Man spricht auch von der Instrumentenklasse der *Optical Array Probes*.

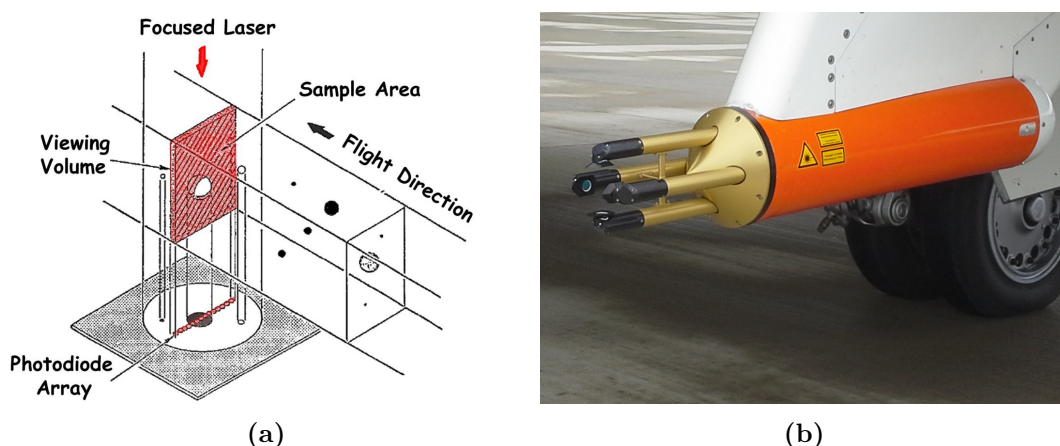


Abbildung 3.11 Funktionsprinzip (a) der 2D-S (Baumgardner & Korolev 1997) sowie Foto (b) der 2D-S im Pylon der linken, inneren Unterflügelstation der Falcon beim Einsatz während ECLIF.

prinzipiell dreidimensionale Bilder simultan detektierter Teilchen konstruieren lassen. Eine tiefere Diskussion der Funktionsweise und entsprechender Limitierungen dieser Messtechnik findet sich in der Literatur (Korolev et al. 1998, Korolev 2007), wo auch spezifisch auf die 2D-S eingegangen wird (Gurganus & Lawson 2018).

Die Integration der 2D-S auf der Falcon im Rahmen der ECLIF-Vorbereitungen war Bestandteil des ersten Jahres dieser Arbeit. Insgesamt betrachtet hat die 2D-S gut funktioniert, jedoch, wie sich herausstellen sollte, in einem Größenbereich, der für die weitere Auswertung der Eispartikelmessungen in jungen Kondensstreifen nicht besonders relevant ist. So hat sich gezeigt (s. Kap. 5), dass in jungen Kondensstreifen Eispartikel mit $D_p < 20 \mu\text{m}$ die PSD dominieren. In diesem Größenbereich liefert die CAS belastbare Ergebnisse, während die 2D-S mit einer Auflösung von $10 \mu\text{m}$ lediglich eine grobe Größen- und Konzentrationsbestimmung liefert. Die Auflösung der 2D-S bewirkt zudem eine Reduktion der Detektionseffizienzen kleiner Partikel am unteren Rand des Messbereichs. So hängt es von der jeweiligen Trajektorie durch das Messvolumen ab, ob ein $10 \mu\text{m}$ großes Teilchen keine, eine, oder gar zwei Dioden zu $\geq 50\%$ abschattet. Eine solide Bestimmung der PSD nahe der unteren Detektionsgrenze der 2D-S, also dem in dieser Arbeit interessierenden Bereich, bedarf einer tiefgehenden statistischen Analyse, auf die an dieser Stelle verzichtet wird. Stattdessen wird die CAS im Folgenden genau charakterisiert und deren Ergebnisse zur Auswertung herangezogen. Der Betrieb der 2D-S erwies sich dennoch als nützlich, denn so konnte sichergestellt werden, dass die CAS tatsächlich den kompletten relevanten Größenbereich abdeckt. Bei ECLIF wurden von der 2D-S keine Eismoden bei Größen $> 50 \mu\text{m}$ in jungen Kondensstreifen detektiert.

3.6 Berechnung mikrophysikalischer und optischer Parameter

Die fundamentale Messgröße der vorgestellten Spektrometer stellt die PSD dar. Ist diese präzise bestimmt und um Artefakte korrigiert worden, können daraus

weitere mikrophysikalische und optische Parameter von Wolken und Kondensstreifen berechnet werden. Die in dieser Arbeit verwendeten Berechnungsgrundlagen sollen im Folgenden kurz dargestellt werden. Es sei erwähnt, dass sich alle berechneten Konzentrationen auf Umgebungsbedingungen beziehen, also den vom Messflugzeug ungestörten Zustand der Atmosphäre widerspiegeln. Auch wird auf eine Umrechnung in STP-Werte, also in Vergleichswerte die sich durch Kompression und Erwärmung des vermessenen Volumens auf Bedingungen am Boden der Standard Atmosphäre ergäben, konsequent verzichtet.

Anzahlkonzentration

Als Anzahlkonzentration wird die absolute Zahl der in einem gegebenen Größenbereich detektierten Teilchen pro vermessenem Volumen bezeichnet. Sie ergibt sich aus Summation der Teilchenkonzentrationen (N_i) der verschiedenen zu diesem Größenbereich beitragenden Bins (i) nach

$$N_{\tilde{x}} = \sum_i N_i, \quad (3.30)$$

wobei \tilde{x} die untere Grenze des betrachteten Größenbereichs in μm bezeichnet, während die obere Grenze in dieser Arbeit konstant bei $50\mu\text{m}$ liegt.

Extinktion

Sind Größenverteilung und Extinktionseffizienzen (Q_{ext}) bekannt, berechnet sich der Extinktionskoeffizient (b_{ext}) des Partikelensembles nach

$$b_{\text{ext}} = \sum_i \left(\frac{dN(D_i)}{d \log D_p} \right) \cdot \log \left(\frac{D_{i,u}}{D_{i,l}} \right) \cdot Q_{\text{ext}}(n, \alpha_i) \cdot A_{\text{proj}}(D_i) \quad (3.31)$$

für den Fall diskreter (bzw. gemessener) Größenverteilungen. Hierbei läuft die Summe über die Bins des betrachteten Größenbereichs, n steht für den Brechungsindex und α für den Größenparameter der Teilchen. Grundlage dieser Berechnung ist die Annahme, dass die Streueigenschaften eines Teilchenensembles sich aus der Summe der Beiträge der einzelnen Partikel ergeben. Dies trifft zu, falls die mittleren Abstände zwischen Partikeln groß gegen deren Dimensionen sind, was für nahezu alle typischen atmosphärischen Bedingungen gilt. Auch in jungen Kondensstreifen ist diese Berechnungsgrundlage noch hinreichend gut erfüllt. Bei einem Alter von etwa 60s wurden maximale Konzentrationen von $\approx 1000\text{ cm}^{-3}$ gefunden (s. Kap. 5). Der sich ergebende mittlere Partikelabstand ist mit $\approx 0.1\text{ cm}$ groß gegen den mittleren Durchmesser von $\approx 2\mu\text{m}$.

Zur Auswertung von Gl. 3.31 wurde Q_{ext} für sphärische Eispartikel ($n = 1.31 + i \cdot 0$) variablen Durchmessers bei der für solare Strahlung typischen Wellenlänge von 550 nm berechnet. Q_{ext} zeigt dabei die charakteristischen Mie-Oszillationen, erreicht bei $D_p \approx 1.4\mu\text{m}$ einen Maximalwert von 3.95 und nähert sich für große D_p (geometrische Optik, $D_p \gg \lambda$) asymptotisch einem Wert von 2. Da die Asphärizität junger Eispartikel bereits in der Größenverteilung implizit enthalten ist und damit auch in b_{ext} eingeht, entspricht dieses Vorgehen einer Näherung 1. Ordnung für sphärische Partikel.

Eiswassergehalt

Da die Größenbestimmung asphärischer Eispartikel auf T-Matrix-Rechnungen basiert, handelt es sich bei angegebenen Durchmessern, D_p , um volumen-äquivalente Durchmesser. Damit trägt der nach

$$IWC = \sum_i \left(\frac{dN(D_i)}{d \log D_p} \right) \cdot \log \left(\frac{D_{i,u}}{D_{i,l}} \right) \cdot \rho_{\text{Eis}} \cdot \frac{4}{3} \pi \left(\frac{D_i}{2} \right)^3 \quad (3.32)$$

berechnete Eiswassergehalt (IWC) der Asphärität - unter der Annahme einer rotationselliptischen Eispartikelform - voll Rechnung. Die Dichte von Eis, ρ_{Eis} , beträgt 917 kg m^{-3} .

Effektivdurchmesser und mittlerer Volumendurchmesser

Je nach Aufgabenstellung kann es hilfreich sein, Wolkeneigenschaften auf einen deutlich reduzierten Parameterraum zu projizieren. In Strahlungstransferrechnungen oder auch in Methoden der Fernerkundung stellt der effektive Durchmesser (D_{eff}) einer Größenverteilung einen wichtigen Parameter dar. In der Literatur finden sich verschiedene, zum Teil voneinander abweichende, Definitionen, die in McFarquhar & Heymsfield (1998) einander gegenübergestellt werden. In dieser Arbeit werden D_{eff} nach Foot (1988) bzw. Francis et al. (1994) berechnet,

$$D_{\text{eff}} = \frac{3 IWC}{2 \rho_{\text{Eis}} \tilde{A}_c} \quad (3.33)$$

wobei IWC und \tilde{A}_c für die kumulierten Werte von Eiswassergehalt und Querschnittsfläche der Eispartikel der betreffenden PSD stehen.

Weiter kann der mittlere Volumendurchmesser (MVD) eingeführt werden. Er ergibt sich als Durchmesser der Kugel, deren Volumen dem mittleren Volumen aller Partikel entspricht und wird nach

$$MVD = \left(\frac{6 IWC}{\pi \rho_{\text{Eis}} N_{\text{Eis}}} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (3.34)$$

berechnet.

Fehlerbetrachtung

Da die obigen Berechnungen von b_{ext} und IWC auf Kenntnis der PSD beruhen, pflanzen sich deren Fehler entsprechend fort. Beispielsweise beträgt bei einer relativen D_p -Unsicherheit von $\pm 10\%$ der Fehler in b_{ext} $\pm 21\%$ und im IWC bereits $\pm 33\%$. Relative Unsicherheiten der Konzentrationsbestimmung übertragen sich unverändert auf b_{ext} und IWC . Diese Zusammenhänge verdeutlichen einmal mehr die Relevanz einer präzisen Kalibrierung.

3.7 Das Aerosolmesssystem zur Detektion von Rußpartikeln

Zur Bestimmung der Rußpartikelkonzentrationen in den vermessenen Kondensstreifen, wird auf Daten des Aerosolmesssystems zurück gegriffen. Funktional lässt sich dieses System in die drei Teilsysteme Aerosoleinlass, Thermodenuder (TD) und Kondensationskernzähler (CPC) gliedern, welche nacheinander von den zu detektierenden Partikeln passiert werden. Eine Vakuumpumpe am Auslassende des Systems treibt hierbei den Partikelstrom an. Mit dem verwendeten System können integrale Anzahlkonzentrationen nicht-volatiler Partikel (nvPM) im Größenbereich von 10 nm bis etwa 1.9 µm bestimmt werden. Im Folgenden soll kurz auf die drei Teilsysteme eingegangen und deren Zusammenspiel verdeutlicht werden. Charakterisierung und Betrieb des Aerosolsystems erfolgten durch D. Sauer (DLR, IPA).

3.7.1 Vorwärtsgerichteter Aerosoleinlass

Um mit in der Kabine installierten Instrumenten kleinste Aerosolpartikel (z. B. Ruß) detektieren zu können, müssen diese über einen Einlass und angeschlossene Leitungen dem Instrument zugeführt werden. Ideal wäre es, hierbei eine von der Teilchengröße unabhängige Transmissionseffizienz, \mathcal{T} , zu erzielen. Praktisch ist dies jedoch nicht realisierbar, da jede Biegung oder Querschnittsflächenänderung des Leitungssystems gekrümmte Stromlinien bewirkt. Teilchen ab einer gewissen Größe können diesen nicht mehr folgen, impaktieren an den Leitungswänden und werden damit aus dem Probenfluss entfernt. Eine detaillierte Analyse verschiedener Prozesse (i), die je nach Beschaffenheit des Leitungssystems größenabhängige Transmissionseffizienzen $\mathcal{T}_i(D_p)$ bewirken, findet sich in Von der Weiden et al. (2009). Dort wird auch ein zur Charakterisierung des Leitungssystems hilfreiches Softwaretool bereitgestellt, um resultierende Transfereffizienzen, $\mathcal{T}(D_p) = \prod_i \mathcal{T}_i(D_p)$, zu bestimmen. So lässt sich für jedes Einlasssystem eine charakteristische Funktion $\mathcal{T}(D_p)$ rechnerisch ableiten, welche typischerweise ein Plateau im mittleren Größenbereich ($D_p \approx 100 - 1000$ nm) aufweist und deutliche Leitungsverluste für größere und kleinere Partikel zeigt.

Abb. 3.12 skizziert den Aufbau des verwendeten vorwärtsgerichteten Aerosoleinlasses. Dieser war auf dem Dach der Falcon angebracht, wobei die eigentliche Probennahme in 30 cm Entfernung vom Flugzeugrumpf und damit außerhalb der Grenzschicht erfolgt. Um näherungsweise isoaxiale Bedingungen bei typischen Anstellwinkeln der Falcon im Flug zu erreichen, ist das Einlassrohr relativ zur Flugzeuglängsachse leicht geneigt. Weiter ist es von Vorteil, wenn die Strömungsgeschwindigkeit im Einlass (v_{in}) der Flugzeuggeschwindigkeit (TAS) entspricht (isokinetische Bedingungen). Gilt dies, so folgen Partikel aller Größen gleichermaßen den sich parallel ausbildenden Stromlinien. Hingegen spricht man für

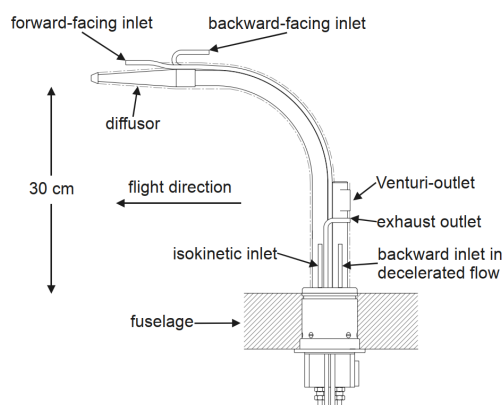


Abbildung 3.12 Aufbau des eingesetzten in Flugrichtung orientierten Aerosoleinlasses. Bildquelle: Weinzierl (2008)

$v_{in} < \text{TAS}$ ($v_{in} > \text{TAS}$) von unterisokinetischen (überisokinetischen) Bedingungen, die dafür sorgen, dass sich axial divergente (konvergente) Stromlinien ausbilden, wodurch effektiv betrachtet kleine (große) Partikel aus dem Probenfluss entfernt - und damit in ihrer Anzahl unterschätzt - werden. Allerdings bilden sich bei zunehmend höheren Strömungsgeschwindigkeiten in der Leitung turbulente Bedingungen aus, welche mit Partikelverlusten durch Impaktieren einhergehen. Um dennoch auch für typische Flugbedingungen ($\text{TAS} \approx 200 \text{ m/s}$) isokinetische Bedingungen erreichen zu können, wird durch den Einsatz eines Diffusors der Probenfluss zunächst aufgeweitet und damit verlangsamt, um danach aus dessen Mitte eine Probe näherungsweise isokinetisch gewinnen zu können. Hierzu wurde der Volumenfluss entsprechend geregelt, sodass isokinetische bis leicht unterisokinetische Bedingungen vorlagen.

Die Fähigkeit eines Aerosolpartikels dem Luftstrom im Einlass zu folgen lässt sich durch die Stokes-Zahl, N_{St} , berechnet nach

$$N_{St} = \frac{D_p^2 \rho_p C_c v_{in}}{18 \mu L}, \quad (3.35)$$

parametrisieren. Hierbei bezeichnen D_p den Durchmesser des Teilchens, ρ_p dessen Dichte, C_c den Cunningham-Faktor zur Slip-Korrektur, μ die Luftviskosität und L den Rohrrinnendurchmesser. Je kleiner N_{St} desto besser kann das betreffende Teilchen dem Luftstrom folgen. In Fiebig (2001) wird das verwendete Aerosoleinlasssystem detailliert analysiert. Insbesondere wird der funktionale Zusammenhang $\mathcal{T}(N_{St})$ für Partikel mit $D_p > 100 \text{ nm}$ im Flug durch eine Kalibrierung explizit ermittelt.

Im Zuge der Kondensstreifenanalysen dieser Arbeit, wurde nach Gl. 3.35 die Stokes-Zahl für Eispartikel im Einlass, $N_{St}(D_p)$, für die jeweiligen Flug- und Betriebsbedingungen berechnet. Insgesamt konnte damit die größenabhängige Transfereffizienz der Eispartikel durch den Aerosoleinlass, $\mathcal{T}(D_p)$, bestimmt werden. Abb. 3.13 zeigt $\mathcal{T}(D_p)$ exemplarisch für ECLIF-typische Parameter. Der starke Abfall von $\mathcal{T}(D_p)$ zwischen 1 und $4 \mu\text{m}$ fällt dabei auf einen für junge Kondensstreifen charakteristischen Eispartikelgrößenbereich (Voigt et al. 2011, Jeßberger et al. 2013). Dies macht deutlich, dass prinzipiell auch ein signifikanter Teil der Eispartikel junger Kondensstreifen durch den Einlass und das angeschlossene Leitungssystem transmittiert werden kann. Nachdem die Eispartikel in den Leitungen verdampft sind, werden deren Rußresiduen - falls vorhanden - ebenso detektiert, wie Rußpartikel, die in der ursprünglichen Probe interstitiell¹ vorlagen.

Bei zunehmender Leitungslänge werden zudem Diffusionsverluste kleiner Partikel ($< 100 \text{ nm}$) relevant. Hervorgerufen durch Brownsche Bewegung, entwickelt sich ein Netto-Partikelfluss von Orten höherer zu Orten geringerer Konzentrationen. Bezogen auf das Leitungssystem entsteht so ein Netto-Transport kleiner Partikel von innen nach außen, wo die Partikel auf die Rohrwand treffen und aus dem Probenfluss entfernt werden. Neben einem oberen, impliziert das Leitungssystem also auch einen unteren 50 % Cutoff-Durchmesser, $D_{\text{cutoff},1}$. Da in der Falcon verlegte Leitungen jedoch

¹ Interstitieller Ruß bezeichnet die Rußpartikel im Kondensstreifen, die in Reinform vorliegen, auf deren Oberflächen also insbesondere kein kondensiertes Wasser vorzufinden ist.

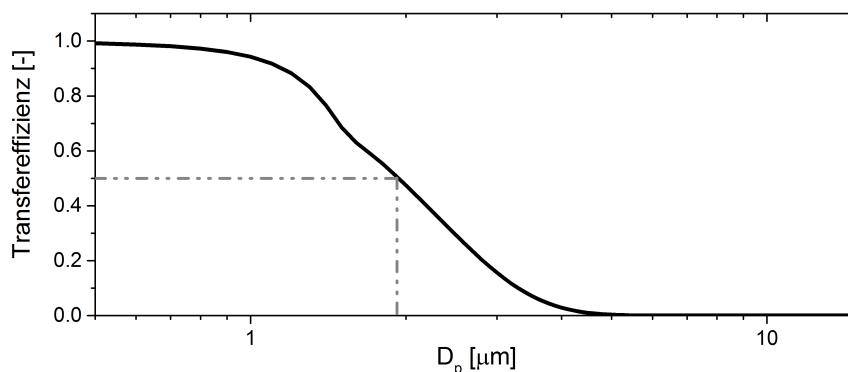


Abbildung 3.13 Größenabhängige Transfereffizienz, $\mathcal{T}(D_p)$, des Aerosoleinlasses für Eispartikel unter ECLIF-typischen Flugbedingungen (schwarz); $p_{\text{amb}} = 240$ hPa, $T_{\text{amb}} = 215$ K, TAS = 180 m/s. Zudem ist der obere 50 % Cutoff-Durchmesser von $D_{\text{cutoff,u}} = 1.9$ μm eingezeichnet (grau).

vergleichsweise kurz sind, wird der untere Cutoff-Durchmesser des Gesamtsystems wesentlich vom CPC bestimmt (s. Kap. 3.7.3). Diffusionsverluste kleinster Rußpartikel ($D_p \leq 20$ nm) im Leitungssystem können mit 5 – 10 % abgeschätzt werden¹ und reduzieren sich für größere Rußpartikel zunehmend. Für integrale Rußpartikelkonzentrationen liegen Diffusionsverluste damit deutlich unterhalb der genannten 5 – 10 % und tragen zur Messunsicherheit der bestimmten Anzahlkonzentrationen bei.

3.7.2 Der Thermodenuder

Durch den Einsatz eines Thermodenuders (TD) werden volatile Partikel aus der Probe entfernt, sodass lediglich nicht-volatile Bestandteile verbleiben. Hierzu wird die Aerosolprobe zunächst auf einer beheizten Leitungsstrecke auf über 500 K erhitzt, wodurch volatile Partikel verdampfen. Auf einem anschließend zu durchlaufenden gekühlten Streckenteil rekondensieren volatile Bestandteile an der Leitungswand und werden somit effektiv aus dem Probenfluss entfernt.

Eine solche Differenzierung zwischen volatilen und nicht-volatilen Partikeln hängt naturgemäß von der Referenztemperatur auf der beheizten Strecke ab. Bei der bei ECLIF gewählten Temperatur von 520 K sind insbesondere ultrafeine, wasserlösliche Schwefelaerosole, die sich durch homogene Nukleation aus ihren gasförmigen Vorläuferspezies bilden, den volatilen Partikeln zuzuordnen. Ruß oder Mineralstaub hingegen erfüllen die Kriterien an nicht-volatile Partikel und verbleiben im Probenfluss.

Weiterführende Analysen des verwendeten Thermodenuders finden sich in Fritzsche (2002) und Walser (2017), die insbesondere auch durch Thermodiffusion verursachte Verluste nicht-volatiler Partikel im TD untersuchen. Diese, in Walser (2017) auf 17.9 ± 1.2 % quantifizierten Verluste, weisen dabei im Größenbereich von 10 nm bis 2 μm keine

¹ D. Sauer (DLR, IPA), pers. Kommunikation (2018)

signifikante Größenabhängigkeit auf und können weiter für den Anwendungsbereich in dieser Arbeit als druckunabhängig betrachtet werden. Daten, die Eingang in die vorliegende Arbeit fanden, wurden um diese Verluste korrigiert.

3.7.3 Der Kondensationskernzähler (CPC)

Vom Thermodenuder wird der Probenfluss zu einem Kondensationskernzähler (CPC, TSI 3010) geleitet, wo integrale Anzahlkonzentrationen nicht-volatiler Partikel (N_{nvPM}) mit Durchmessern über 10 nm bestimmt werden. Abb. 3.14 illustriert das Funktionsprinzip des verwendeten CPCs.

Da zur Detektion sehr kleiner Partikel (< 100 nm) Methoden der direkten Streulichtanalyse technisch erheblich limitiert sind, wird stattdessen deren Fähigkeit als Kondensationskern zu dienen ausgenutzt. So wird im CPC die Aerosolprobe zunächst beim Passieren einer Sättigungsstrecke mit Butanoldampf gesättigt und auf einer anschließenden Kondensationsstrecke um etwa 25 – 30 K abgekühlt. Typischerweise werden hierbei Übersättigungen von einigen hundert Prozent erreicht.

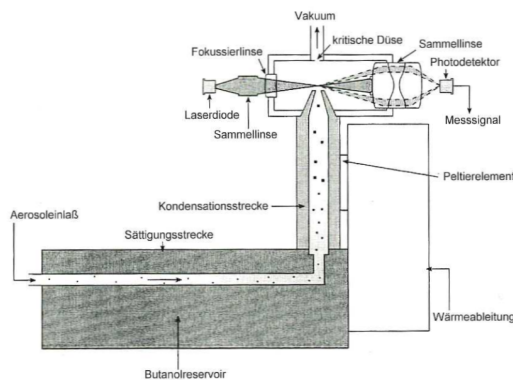


Abbildung 3.14 Funktionsprinzip des verwendeten CPCs. Bildquelle: Fiebig (2001)

Hierdurch werden selbst sehr kleine Partikel aktiviert und wachsen durch Kondensation des Butanols auf deren Oberfläche um etwa zwei bis drei Größenordnungen an. Diese, nun deutlich größeren Partikel, werden daraufhin mit optischen Methoden detektiert. Die mit diesem Verfahren minimal detektierbare Partikelgröße, D_{min} , wird maßgeblich von der erzielten Übersättigung, S_B , bestimmt. Die Kelvin-Formel (Seinfeld & Pandis 2016, Hinds 1999) beschreibt dies quantitativ; es gilt $D_{\text{min}} \propto (\ln S_B)^{-1}$. Um auch möglichst kleine Partikel zu aktivieren und in detektierbare Größenbereiche anwach-

sen zu lassen, bedarf es also hinreichend großer Temperaturunterschiede zwischen Sättigungs- und Kondensationsstrecke, um die hohen erforderlichen Übersättigungen zu erreichen. Da real erzielte Übersättigungen jedoch im räumlichen Verlauf der Kondensationsstrecke zu einem gewissen Grad variieren, existiert keine scharf definierte untere Detektionsgrenze D_{min} . Vielmehr ergeben sich größenabhängige Zähleffizienzen des CPCs, $\mathcal{E}(D_p)$, mit charakteristischem S-förmigen Verlauf gegen einen asymptotischen Wert \mathcal{E}_a hin zu großen D_p (Banse et al. 2001). Der Partikeldurchmesser, bei dem die Zähleffizienz 50 % beträgt, wird als $D_{\text{cutoff},l}$ bezeichnet, es gilt $\mathcal{E}(D_{\text{cutoff},l}) = 0.5$. In Bezug auf Rußmessungen und den Betriebszustand des CPCs bei ECLIF, gilt für den in dieser Arbeit relevanten CPC $D_{\text{cutoff},l} = 10$ nm, was im Rahmen von Laborkalibrierungen¹ herausgefunden wurde.

Die Genauigkeit, mit der aus Zählraten detektierter Partikel atmosphärische An-

¹ Laborkalibrierungen wurden von D. Sauer (DLR, IPA, 2017) durchgeführt.

zählkonzentrationen berechnet werden können, hängt maßgeblich von einer genauen Kenntnis des Probenflusses durch den CPC ab. Um dies zu erreichen, wird im System zwischen CPC und Auslasspumpe eine kritische Düse betrieben, sodass unabhängig von sich ändernden Druckverhältnissen in der CPC-Zuleitung ein konstanter Volumenfluss durch den CPC sichergestellt ist.

Prinzipiell können durch die CPC-Technik sehr hohe atmosphärische Anzahlkonzentrationen ($\geq 10^3 \text{ cm}^{-3}$) gemessen werden. Limitiert wird dies allerdings durch reduzierte Detektionseffizienzen bei zunehmend größeren Konzentrationen. Ursächlich hierfür zeigen sich zum einen Koinzidenz-Effekte, als auch eine nicht ausreichende Butanolzufuhr, was ein Anwachsen aller Partikel auf nachweisbare Größen verhindert. Da diese Arbeit jedoch auf maximal gemessenen Konzentration von $\approx 6000 \text{ cm}^{-3}$ basiert, spielen diese Effekte beim verwendeten CPC eine untergeordnete Rolle. Dennoch werden vom CPC initial gemessene Konzentrationen, N_{CPC} , durch die Instrumentensoftware implizit nach

$$N_{\text{nvPM}} = N_{\text{CPC}} \cdot \exp(N_{\text{nvPM}} \cdot q_{\text{CPC}} \cdot t_{\text{Puls}}) \quad (3.36)$$

um Koinzidenz-Effekte korrigiert, womit sich N_{nvPM} ergibt. Hierbei stehen q_{CPC} für den Probenfluss durch den CPC und t_{Puls} für Dauer aufgezeichneter Partikelpulse.

Allerdings zeigt sich, dass für $D_p \gg D_{\text{cutoff},1}$ die Detektionseffizienz des CPCs zwar gegen einen festen Wert \mathcal{E}_a geht, dieser Wert jedoch vom Druck in der Einlassleitung des CPCs (und damit von p_{amb}) abhängt und im Flugbetrieb deutlich kleiner 1 sein kann (Noone & Hansson 1990). Dies liegt an einer verzögerten Tröpfchenaktivierung bei niedrigen Drücken auf der Kondensationsstrecke, wodurch auf der verbleibenden Leitungsstrecke nicht mehr alle Partikel auf nachweisbare Größen anwachsen können. Durch Labormessungen wurden die $\mathcal{E}_a(p)$ bestimmt, wobei sich für typische ECLIF-Flughöhen Werte von etwa 80 % ergeben. Nach einer entsprechenden Korrektur der Daten, ergibt sich für die CPC-Messungen eine verbleibende Unsicherheit ΔN_{nvPM} von $\pm 15 \%$ für den Konzentrationsbereich $\leq 6000 \text{ cm}^{-3}$.

Die in diesem Abschnitt (Kap. 3.7) diskutierten Arbeiten zur Charakterisierung des Aerosolmesssystems, dessen Betrieb während ECLIF sowie anschließendes Nachprozessieren der Daten wurden von D. Sauer (DLR, IPA) durchgeführt. Die Analyse der Rußemissionen der vorliegenden Arbeit basiert auf den von D. Sauer bereitgestellten 1-Hz-Zeitreihen für N_{nvPM} .

3.8 Spurengasmessung

Um möglichst umfassende Informationen zur Bildung und Zusammensetzung von Kondensstreifen zu gewinnen, werden auch Instrumente zur Bestimmung der Konzentrationen von Kohlenstoffdioxid (CO_2) und Wasserdampf eingesetzt, deren Funktionsweisen im Folgenden kurz beschrieben werden sollen.

3.8.1 Messung von Kohlenstoffdioxid

Zur Bestimmung der Konzentrationen von CO_2 im Flugzeugnachlauf bzw. in den sich gebildeten Kondensstreifen wurde ein *Cavity-Ringdown-Spektrometer* von Picarro Inc.

betrieben (Crosson 2008). Hierbei wird ausgenutzt, dass CO_2 eine Absorptionsbande bei Wellenlängen von etwa $1.6\ \mu\text{m}$ besitzt. Somit kann durch Messung des Absorptionsvermögens einer Gasprobe bezüglich Laserlichts einer geeigneten Wellenlänge ($1603\ \text{nm}$) auf die CO_2 -Konzentration geschlossen werden. Um dabei eine möglichst hohe Sensitivität zu erreichen, wird der optische Weg in der Messzelle durch den Einsatz von Spiegeln auf mehrere Kilometer verlängert.

In der ECLIF-Konfiguration war das Picarro- CO_2 an einen rückwärtsgerichteten Spurengaseinlass angeschlossen, der sich auf dem Dach der Falcon in unmittelbarer Nähe zum Aerosoleinlass befand. Da zur Bestimmung der Eis- und Rußemissionsindizes relative Erhöhungen der CO_2 -Konzentrationen über dem atmosphärischen Hintergrund, ΔCO_2 , relevant sind, wird die Unsicherheit berechneter Emissionsindizes in Bezug auf die CO_2 -Messung vom Präzisionsfehler des Instruments und räumlich variablen CO_2 -Hintergrundkonzentrationen bestimmt. Für den Präzisionsfehler gibt der Hersteller einen Richtwert von etwa $\pm 0.1\ \text{ppmv}$ an.

Um eine möglichst akkurate CO_2 -Messung zu ermöglichen, muss der Zellendruck konstant gehalten werden. Hierzu regelt das Instrument den Zellendruck automatisch nach, was sich jedoch im Flugbetrieb - und insbesondere bei Kondensstreifenmessungen - als Herausforderung erweist und größere Präzisionsfehler bedingen kann. Allerdings zeigen die aufgenommenen Daten keine Anzeichen für signifikant erhöhte Präzisionsfehler. So oszillieren die bei ECLIF bestimmten CO_2 -Hintergrundniveaus typischerweise mit Amplituden von etwa $\pm 0.1\ \text{ppmv}$. Da Emissionsindizes zudem aus der zeitlichen Integration der peakförmigen Partikel- und CO_2 -Konzentrationserhöhungen über mehrere Sekunden bestimmt werden, wird ein Einfluss potentiell erhöhter Präzisionsfehler, die auf kürzeren Zeiträumen ($\sim 1\ \text{s}$) Fluktuationen hervorrufen, auf berechnete Emissionsindizes deutlich reduziert. Insgesamt kann somit für die Bestimmung von Emissionsindizes ein Präzisionsfehler von $\pm 0.1\ \text{ppmv}$ zugrunde gelegt werden.

CO_2 -Zeitreihen, die Eingang in diese Arbeit finden, wurden von M. Scheibe (DLR, IPA) aufgezeichnet, nachprozessiert und zur Verfügung gestellt.

3.8.2 Messung von Wasserdampf

Um Bildungsmechanismen von Kondensstreifen analysieren zu können, muss der Zustand der vom emittierenden Flugzeug unbeeinflussten Atmosphäre möglichst genau bekannt sein. Besonderes Augenmerk liegt dabei auf der relativen Feuchte über Eis, RH_i , da diese maßgeblich die weitere Entwicklung initial gebildeter ($T_{\text{amb}} < T_{\text{SA}}$) Kondensstreifen bestimmt. RH_i ergibt sich als Quotient aus Wasserdampfpartialdruck ($p_{\text{H}_2\text{O}}$) und dem Sättigungsdampfdruck über Eis (p_i) nach

$$RH_i = \frac{p_{\text{H}_2\text{O}}}{p_i} \cdot 100\ \%. \quad (3.37)$$

Nach Murphy & Koop (2005) hängt p_i dabei in guter Näherung nach¹

$$p_i = \exp\left(-5723.265 \cdot T^{-1} + 9.550426 + 3.53068 \cdot \ln(T) - 0.00728332 \cdot T\right) \quad (3.38)$$

¹ p_i und T sind in Einheiten Pa bzw. K einzusetzen.

nur von der Temperatur (T) ab, wobei sich dieser Zusammenhang als Fit an numerische Lösungen der Clausius-Clapeyron-Gleichung ergibt. Weiter kann zur Quantifizierung der Wasserdampfkonzentration das Mischungsverhältnis, $\mu_{\text{H}_2\text{O}}$, nach

$$\mu_{\text{H}_2\text{O}} = \frac{\eta_{\text{H}_2\text{O}}}{\eta_{\text{tot}}} = \frac{p_{\text{H}_2\text{O}}}{p_{\text{tot}}} \quad (3.39)$$

als Quotient der Wasserdampfstoffmenge ($\eta_{\text{H}_2\text{O}}$) zur Gesamtstoffmenge (η_{tot}) bzw. des Wasserdampfpartialdrucks zum Gesamtdruck (p_{tot}) eingeführt werden (Seinfeld & Pandis 2016).

Zur Bestimmung von RH_i wurde bei ECLIF der Tau- bzw. Frostpunktspiegel CR-2 (Busen & Buck 1995, Voigt et al. 2011) eingesetzt, der zur Gasphasenmessung an einen rückwärtsgewandten Einlass auf dem Dach der Falcon angeschlossen war. Durch aktive Regelung der Spiegeltemperatur wird erreicht, dass sich auf dem Spiegel in der Messzelle eine Eisschicht konstant bleibender Dicke ausbildet. Dazu werden Änderungen der Schichtdicke über sich ändernde Spiegelreflektivitäten gemessen und als Eingangsparameter für eine entgegenwirkende Temperaturregelung verwendet. Ist ein Gleichgewichtszustand mit konstanter Schichtdicke erreicht, entspricht der Wasserdampfpartialdruck an der Spiegeloberfläche dem Sättigungsdampfdruck und die Spiegeltemperatur kann mit dem Frostpunkt T_f identifiziert werden. Nach Gl. 3.38 ergibt sich damit $p_{\text{H}_2\text{O}}$ in der Messzelle als $p_i(T_f)$. Da zudem der Gesamtdruck in der Messzelle gemessen wird, kann nach Gl. 3.39 das Mischungsverhältnis in der Messzelle berechnet werden, welches eine Erhaltungsgröße bezüglich des Gastransports durch das Leitungssystem darstellt und somit dem atmosphärischen Mischungsverhältnis entspricht. Sind weiter atmosphärischer Druck und Temperatur bekannt, kann zunächst $p_{\text{H}_2\text{O}}$ nach Gl. 3.39 und daraufhin RH_i nach Gl. 3.37 und 3.38 berechnet werden.

Intuitiv ist klar, dass das Erreichen eines Gleichgewichtszustands mit konstant bleibender Eisschichtdicke auf dem Spiegel eine gewisse Zeit in Anspruch nimmt und damit die zeitliche Auflösung des CR-2 limitiert¹. Insbesondere in der oberen Troposphäre, für die geringe $\mu_{\text{H}_2\text{O}}$ charakteristisch sind, impliziert dies lange instrumentelle Ansprechzeiten von bis zu 1 min. Solch große Ansprechzeiten erschweren es erheblich, belastbare Vertikalprofile von RH_i im Kondensstreifen aus CR-2 Daten zu generieren, da die typischen Zeitintervalle, in denen die Falcon Kondensstreifen in der Vertikale vermessen hat, auch bei etwa 1 min - manchmal auch darunter - lagen. In dieser Arbeit wird deshalb nicht der Versuch unternommen, RH_i -Profile im Kondensstreifen abzuleiten. Vielmehr werden RH_i -Profile des atmosphärischen Hintergrunds bestimmt, die aus Perioden mit nahezu gleichbleibenden Falcon-Flughöhen stammen und es erlauben, RH_i aus CR-2 Daten auf $\pm 15\%$ genau zu quantifizieren (Gayet et al. 2012).

Die Bereitstellung von RH_i -Zeitreihen zur weiteren Verwendung in dieser Arbeit erfolgte durch S. Kaufmann (DLR, IPA).

¹ Diese Limitierung ist physikalisch bedingt. Höhere elektronisch erzielte Auflösungen werden damit irrelevant.

3.9 Messplattform: DLR Falcon 20-E5

Im Rahmen von ECLIF wurden die vorgestellten Instrumente auf dem DLR-Forschungsflugzeug Falcon 20-E5 eingesetzt. Um die verschiedenen Kabinen- und Unterflügelinstrumente betreiben zu können, wurde das Flugzeug speziellen Modifizierungen unterzogen. Diese umfassen u. a. die Installation der Aerosol- und Spurengaseinlässe auf dem Dach sowie die Montage von vier Knollenberg-Pylonen unter den Flügeln zum Betrieb optischer Spektrometer. Abb. 3.15 illustriert die räumliche Anordnung der integrierten Messsysteme. Hervorzuheben ist, dass die Positionen von CO₂- und Aerosoleinlass bezüglich der generierten 1-Hz-Messungen (räumliche Auflösung ≈ 180 m entlang der Flugrichtung) als identisch behandelt werden können, während sich die CAS etwa 4 m (\perp Flugrichtung) vom CO₂-Einlass entfernt befindet. Vom bordeigenen

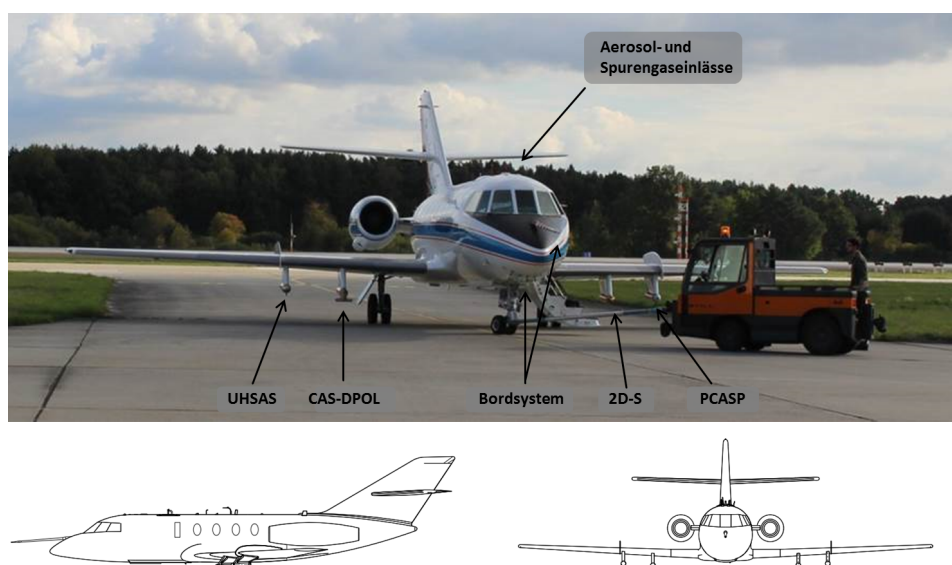


Abbildung 3.15 Foto der DLR-Falcon 20-E5 bei der Bodenabfertigung in Manching, sowie skizzierte Seiten- und Frontalprofile. Die Positionen der Flügelsonden und Einlässe sind gekennzeichnet.

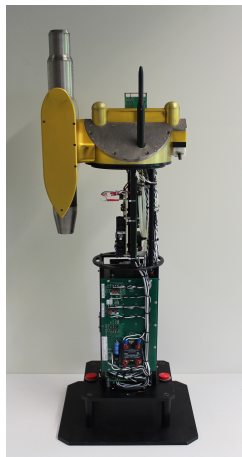
Sensorsystem werden zudem für die Einordnung der Messungen relevante Parameter, wie insbesondere statischer Druck und Temperatur mit Unsicherheiten von ± 0.5 hPa bzw. ± 0.5 K (Kaufmann et al. 2014) ermittelt. Weiter werden Fluggeschwindigkeit (TAS), Flughöhe sowie Positionsdaten geliefert. Wie bei modernen Flugzeugen üblich, werden dabei Flughöhe (z.B. Druckhöhe, GPS-Höhe) und Flugzeugposition (z.B. Trägheitsnavigationssystem (INS)-, GPS-, Flight Management System (FMS)-Positionen) auf Basis verschiedener Berechnungsgrundlagen ermittelt und aufgezeichnet.

Zur Tätigkeit atmosphärischer Messungen erlaubt die Falcon den Transport einer Nutzlast von ca. 1100 kg für die Dauer von etwa 3 – 4 Stunden auf Höhen von bis zu 42000 ft und Geschwindigkeiten (TAS) von bis zu 200 m/s. Nicht zuletzt wegen ihrer robusten Bauweise eignet sie sich damit prinzipiell bestens als Messplattform zur in-situ Vermessung von Kondensstreifen, wenn auch bei der direkten Verfolgung moderner Linienflugzeuge mitunter höhere Endgeschwindigkeiten vorteilhaft wären.

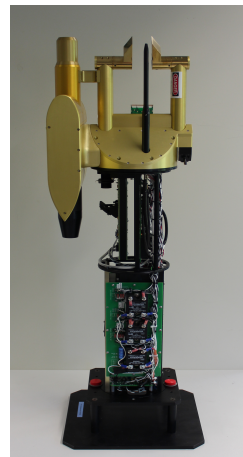
KAPITEL 4

Charakterisierung zweier CAS und Berechnung von Emissionsindizes

Während in Kap. 3 die theoretischen Grundlagen der Methodik zur Eispartikelmessung mit der CAS ausgearbeitet werden, sollen in Kap. 4 die konkret durchgeführten instrumentellen Arbeiten zur Verbesserung der Datenqualität vorgestellt werden. Im Fokus steht dabei die separate Kalibrierung und Charakterisierung zweier nahezu baugleicher Instrumente (CAS, CAS[†]), die sich lediglich hinsichtlich der Größe ihrer vor dem S-Detektor installierten Lochblenden unterscheiden. So ist die CAS des DLR mit einer 800- μm -Lochblende ausgestattet, während die von British Antarctic Survey (BAS) geliehene CAS[†] eine 500- μm -Lochblende besitzt. Durch einen Vergleich beider Instrumente wird der Einfluss der Lochblendenkonfiguration auf die Größe der effektiven Messfläche untersucht. Zudem werden Koinzidenz-Artefakte der bei ECLIF eingesetzten CAS quantifiziert und eine entsprechende Funktion zur Korrektur abgeleitet. Basierend auf den instrumentellen Erkenntnissen, wird abschließend die Berechnung der Eis- und Rußemissionsindizes im Detail vorgestellt.



(a) CAS des DLR, 800- μm -Lochblende



(b) CAS[†], BAS Leihgabe, 500- μm -Lochblende

Abbildung 4.1 Die beiden charakterisierten CAS im Labor. In die CAS[†] ist zur Detektion größerer Eiskristalle zusätzlich eine *Cloud Imaging Probe* (CIP) integriert.

4.1 Kalibrierung der Größenbestimmung

Zur Kalibrierung der Größenbestimmung von Eispartikeln soll das in Kap. 3.3 vorgestellte zweistufige Verfahren angewandt werden,

$$\text{ADC} \xleftarrow[\text{(Mie-Theorie)}]{\text{Kalibrierung}} \sigma_{4-12^\circ} \xleftarrow[\text{(T-Matrix)}]{\text{Binning}} D_p|_{AR,n} \quad .$$

Im Rahmen einer Laborkalibrierung mit sphärischen Partikeln wird zunächst der funktionale Zusammenhang zwischen aufgezeichneten Messwerten (ADC) und korrespondierenden Streuquerschnitten (σ_{4-12°) ermittelt. Anschließend werden Resultate aus T-Matrix-Rechnungen herangezogen, um von den σ_{4-12° auf die Größen sphärischer Eispartikel schließen zu können.

Zur Kalibrierung der Streuquerschnittsmessung über den gesamten Messbereich der CAS (bzw. CAS[†]) wurden monodisperse Kalibrierkugeln in einen im Labor erzeugten Luftstrom durch die Messvolumina beider Instrumente injiziert. Verwendung fanden dabei Kugeln aus Polystyrol-Latex (PSL, $n=1.59$, $D_p=\{0.71, 0.90, 1.36, 1.59, 1.75, 2.0\} \mu\text{m}$), Borosilikatglas ($n=1.56$, $D_p=\{1.9, 5.4, 7.7, 9.9, 15.9, 18.2\} \mu\text{m}$), sowie Kalknatronglas ($n=1.43$, $D_p=\{29.5, 42.3, 49.0\} \mu\text{m}$) der in Klammern angegebenen Brechungsindizes und mittleren Durchmesser. Dabei ist die aus dem Herstellungsprozess resultierende Varianz der Durchmesser bekannt. Da die Glaskugeln als trockenes Pulver vorliegen, können diese direkt in den Luftstrom eingespeist werden. Hingegen wurde die wässrige Emulsion der PSL-Partikel zunächst verdünnt, bevor sie über einen Niederdruckzerstäuber versprüht wurde. Nach dem Passieren eines Diffusionstrockners wurden die PSL-Kugeln in das CAS-Messvolumen geleitet und detektiert.

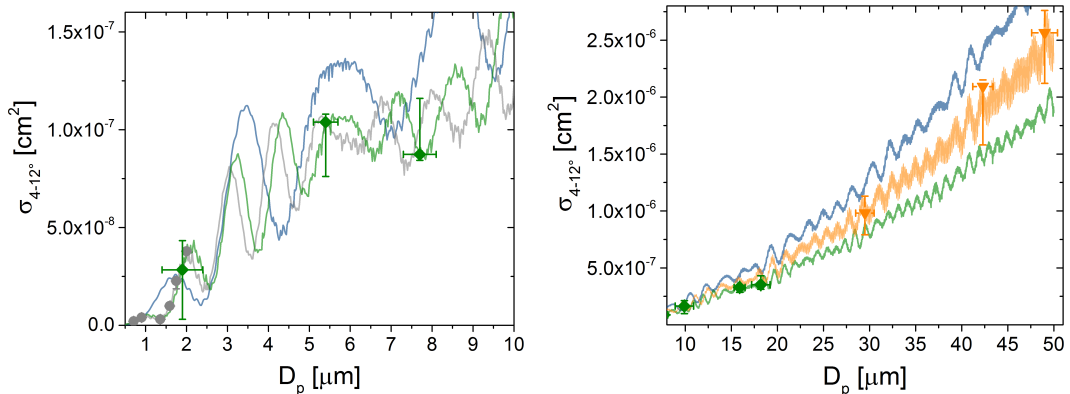


Abbildung 4.2 Sondenspezifische Streuquerschnitte, σ_{4-12° , der zur Kalibration verwendeten Kugeln aus PSL (grau), Borosilikatglas (grün) und Kalknatronglas (orange). Weiter sind die $\sigma_{4-12^\circ}(D_p)$ für die entsprechenden Brechungsindizes sowie - zum Vergleich - für flüssige Wassertropfen (blau) dargestellt. D_p -Fehlerbalken stammen aus Angaben des Kugelherstellers zur Produktgüte und bedingen - je nach lokalem Verlauf von $\sigma_{4-12^\circ}(D_p)$ - unsymmetrische Fehler resultierender σ_{4-12° . Fehlerbalken für PSL-Kugeln sind zu klein, um in dieser Darstellung aufgelöst zu werden.

In Abb. 4.2 sind die nach Rosenberg et al. (2012) berechneten sondenspezifischen Streuquerschnitte σ_{4-12° der verwendeten Kugeln dargestellt. Die eingezeichneten

Fehlerbalken machen deutlich, dass die Fertigungstoleranzen bei der Kugelherstellung aus Borosilikatglas deutlich über denen aus PSL liegen. Für eine gute Qualität der Kalibrierung der HGS und MGS ist eine Verwendung von PSL-Kugeln bei der Kalibrierung daher essentiell.

Bei der Durchführung der Kalibrationsarbeiten wurde darauf geachtet, dass sich die CAS (bzw. CAS[†]) in einem stabilen Betriebszustand mit konstant bleibenden Temperaturen der Bordelektronik befindet, was einige Minuten nach dem Anschalten im Labor der Fall war. Um zudem einen potentiell störenden Einfluss von Koinzidenzeffekten auf die Größenkalibrierung zu minimieren, wurde mit sehr geringen Zählraten ($\leq 20 \text{ s}^{-1}$) gearbeitet. Bei den im Vergleich zu Fluggeschwindigkeiten deutlich geringeren im Labor erzielten Strömungsgeschwindigkeiten von einigen m/s, wurden damit Partikelkonzentrationen $\leq 100 \text{ cm}^{-3}$ generiert. Im Folgenden werden die Kalibrationsergebnisse für CAS und CAS[†] separat vorgestellt.

4.1.1 Kalibrierung der Streuquerschnittsmessung der CAS

Abb. 4.3 zeigt die für die CAS aus den verwendeten Kalibrierpartikeln gewonnenen ADC-Verteilungen. Auffallend ist zunächst, dass der Peak der 1360-nm-PSL-Kugeln bei kleineren A/D-Werten liegt als derjenige der kleineren 903-nm-PSL-Kugeln, was eindrucksvoll die Auswirkungen der Mie-Resonanzen illustriert. Die im Vergleich zu Borosilikat- und Kalknatronglas deutlich geringeren Größenvarianzen der PSL-Kugeln spiegeln sich in schärfer definierten Peaks wider. Insbesondere die Verwendung der 1.9- μm -Borosilikatglaskugeln gestaltet sich problematisch. Die vergleichsweise große D_p -Varianz dieser Kugeln in Verbindung mit dem lokalen Verlauf von $\sigma_{4-12^\circ}(D_p)$, welcher an 1.9 μm eine steile Flanke besitzt (grüne Kurve in Abb. 4.2), führt zu einer sehr großen Varianz in σ_{4-12° . Damit zeigen sich die 1.9- μm -Borosilikatglaskugeln als wenig brauchbar zur Kalibration der MGS und HGS. Die aus diesen gewonnenen Daten werden im Folgenden zwar dargestellt, gehen jedoch nicht in weiterführende Berechnungen ein.

Weiter hat sich in den Labormessungen gezeigt, dass der ADC-Bereich < 220 vom Rauschen aller - aber vor allem der größeren - Partikel dominiert wird. Die Ursache hierfür konnte nicht eindeutig geklärt werden, denkbar sind elektronische Ursachen (Netzteil, Erdung) oder auch Auswirkungen der geringen Partikelgeschwindigkeiten. Da dieses Rauschen jedoch in den ADC-Bereich fällt, der unter dem aufgelösten Partikelgrößenbereich (beginnend bei nominal 0.5 μm) liegt und zudem in Flugmessungen nicht auftritt, wird dieser Bereich der Übersichtlichkeit wegen in Abb. 4.3 nicht dargestellt.

Um weiter die in Kap. 3.4.2 hergeleiteten linearen Zusammenhänge zwischen sondenspezifischen Streuquerschnitten und A/D-Werten,

$$\sigma_{4-12^\circ} = c_i \cdot \text{ADC} - a_i \quad , \text{ mit } i \in \{H, M, L\} , \quad (4.1)$$

für die drei Verstärkungsstufen der CAS zu bestimmen, werden in Abb. 4.4 die berechneten σ_{4-12° der Kalibrierkugeln gegen die A/D-Werte der jeweiligen Peakmaxima aufgetragen.

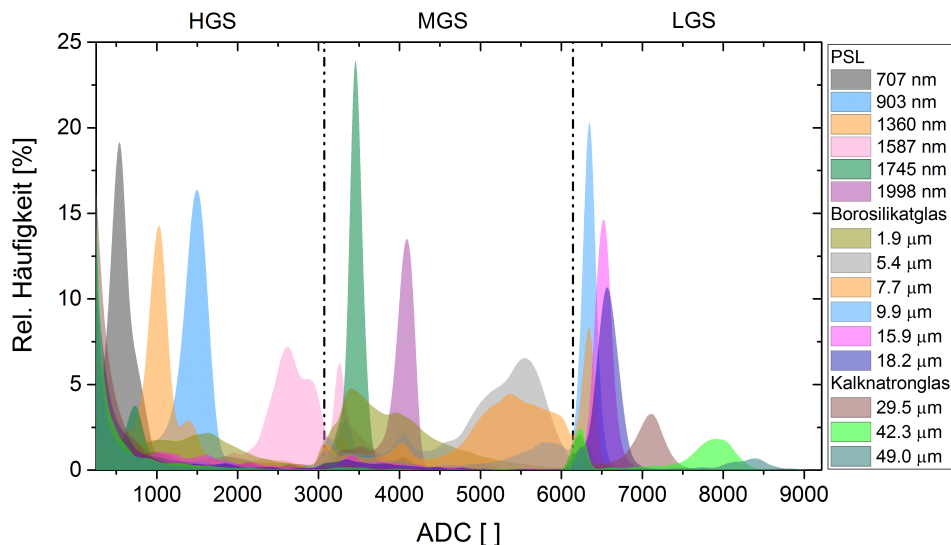


Abbildung 4.3 Verteilungen der aufgezeichneten A/D-Werte genutzter Kalibrierkugeln für die CAS des DLR. Größenangaben der Legende beziehen sich auf Durchmesser. Zudem sind die oberen ADC-Schwellwerte der HGS (3072) und MGS (6144) schwarz markiert.

Da die aus den Größenunsicherheiten (ΔD_p) der Borosilikat- und Kalknatronglaskugeln rechnerisch abgeleiteten ADC-Unsicherheiten gut mit den Halbwertsbreiten der zugehörigen Peaks der ADC-Verteilungen aus Abb. 4.3 übereinstimmen, bestätigt dies quantitativ, dass die breiten, unsymmetrischen ADC-Verteilungen dieser Kugeln weitestgehend durch die D_p -Fertigungstoleranzen sowie dem jeweiligen lokalen Verlauf von $\sigma_{4-12^\circ}(D_p)$ erklärt werden können. Weiter wird offensichtlich, dass die 1.9- μm -Borosilikatglaskugeln zur Kalibration eher ungeeignet sind. Für die kleinen PSL-Partikel zeichnet sich hingegen ein etwas anderes Bild. Aus ΔD_p abgeleitete ΔADC sind teilweise zu klein, um in Abb. 4.4 dargestellt zu werden und liegen damit deutlich unter den gemessenen Peakbreiten, scheiden also als Erklärung für diese aus. Es sei vorweggenommen, dass sich in diesen Fällen die gemessenen Peakbreiten der ADC-Verteilungen auf Präzisionsfehler der Streuquerschnittsmessung zurückführen lassen, was in Kap. 4.2.1 quantitativ untersucht wird.

Zur Bestimmung der $\{c_i, a_i\}$ aus Gl. 4.1 wurden Regressionsgeraden (s. Abb. 4.4) berechnet, wobei Daten der 1.9- μm -Borosilikatglaskugeln nicht berücksichtigt wurden. Die resultierenden Werte der drei Verstärkungsstufen sind in Tab. 4.1 aufgeführt. Die $\{c_i, a_i\}$ können dabei als Ergebnis der Kalibration aufgefasst werden, da sie nach Gl. 4.1 den Schluss von nativen Messwerten (ADC) zu sondenspezifischen Streuquerschnitten vermessener Partikel ermöglichen.

Weiter wird deutlich, dass die Art und Weise der Konstruktion eines resultierenden A/D-Wertes eines jeden Partikels aus den drei zugrunde liegenden A/D-Werten der drei Verstärkungsstufen (beschrieben in Kap. 3.4.2) zu ADC-Bereichen führt, in

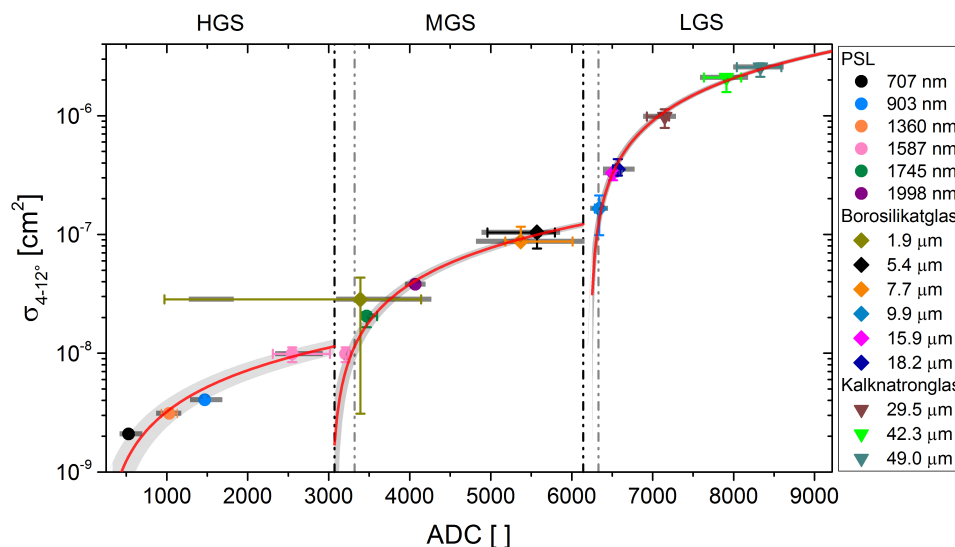


Abbildung 4.4 Für die Kalibrierkugeln berechnete Streuquerschnitte $\sigma_{4-12^\circ}(D_p)$ aufgetragen gegen experimentell bestimmte A/D-Werte (ADC) der zugehörigen Peakmaxima (farbige Datenpunkte). Eingezeichnete Fehlerbalken ergeben sich aus den herstellungsbedingten ΔD_p der Kalibrierkugeln durch Fehlerfortpflanzung. Den Datenpunkten hinterlegte ADC-Bereiche (grau) illustrieren aus Abb. 4.3 bestimmte Halbwertsbreiten der jeweiligen Peaks. Regressionsgeraden (rot) erscheinen wegen der logarithmisch gewählten Darstellung ebenfalls logarithmisch. Schwarze vertikale Linien zeigen maximale A/D-Werte der HGS (3072) und MGS (6144), während die A/D-Schwellwerte, ab denen MGS (3320) und LGS (6330) bezüglich der Datenaufzeichnung aktiv werden, grau dargestellt sind.

die - theoretisch betrachtet - keine Ereignisse fallen. Diese, im Folgenden als *tote Zonen* bezeichneten Bereiche, lauten für das betrachtete Instrument [3073, 3319] für die MGS und [6145, 6329] für die LGS; es gilt $\sigma_{4-12^\circ}(3320) = \sigma_{4-12^\circ}(3072)$ und $\sigma_{4-12^\circ}(6330) = \sigma_{4-12^\circ}(6144)$. Für Partikel deren Streuquerschnitt einem A/D-Wert in einer dieser toten Zonen entspricht existiert immer auch ein kleinerer A/D-Wert der nächsthöheren Verstärkungsstufe mit identischem Streuquerschnitt, welcher letztlich zur Aufzeichnung herangezogen wird. Diese aus Kalibrationsdaten bestimmten Dimensionen der toten Zonen konnten durch Daten aus Flugmessungen unabhängig bestätigt werden. Ein einfaches Histogramm (nicht gezeigt) aller im Flug aufgezeichneten A/D-Werte der PbP-Datei weißt identische tote Zonen auf.

Zur Bestimmung von Partikelzählraten werden deshalb nur Streulichtsignale mit A/D-Werten in Bereichen, auf denen die Größenbestimmung definiert ist (Tab. 4.1), herangezogen. Demgegenüber werden Messartefakte in den Bereichen des Rauschens oder der toten Zonen nicht berücksichtigt. Es sei angemerkt, dass - vereinzelt und abhängig von der Blendenkonfiguration - auch im Flug solche Artefakte auftreten können, die in aller Regel mit der Existenz großer Eiskristalle außerhalb des Messbereichs ($> 50 \mu\text{m}$) korrelieren und vermutlich von diesen verursacht werden.

Verstärkerstufe	c_i/cm^2	a_i/cm^2	Definitionsbereich
HGS	$3.958 \cdot 10^{-12}$	$7.4 \cdot 10^{-10}$	$\text{ADC} \in \{219, 220, \dots, 3072\}$
MGS	$3.911 \cdot 10^{-11}$	$1.184 \cdot 10^{-7}$	$\text{ADC} \in \{3320, 3321, \dots, 6144\}$
LGS	$1.168 \cdot 10^{-9}$	$7.272 \cdot 10^{-6}$	$\text{ADC} \in \{6330, 6331, \dots, 9216\}$

Tabelle 4.1 Aus linearer Regression bestimmte Konstanten $\{c_i, a_i\}$ der drei Verstärkerstufen für die CAS des DLR.

In der bisherigen Diskussion wurde implizit davon ausgegangen, dass der für das Instrument nominal angegebene detektorsensitive Streuwinkelbereich von $4 - 12^\circ$ dem tatsächlich realisierten entspricht. Dies ist jedoch nicht notwendigerweise der Fall, da Ungenauigkeiten bei der Sondenherstellung oder auch eine Dejustierung diesbezüglich gravierende Einflüsse haben können. Ein fehlerhaft angenommener sensitiver Streuwinkelbereich - insbesondere von θ_{\min} - stellen jedoch eine falsche Berechnungsgrundlage sondenspezifischer Streuquerschnitte dar, auf denen die Kalibrierung aufbaut. Analog zu den in Abb. 4.2 gezeigten σ_{4-12° wurden daher auch sondenspezifische Streuquerschnitte der Kalibrierkugeln für variable θ_{\min} berechnet und gegen experimentell bestimmte A/D-Werte aufgetragen (analog zu Abb. 4.4). Entspricht dabei die Wahl des Streuwinkelbereichs dem tatsächlich vorliegenden, so ist ein maximaler Korrelationskoeffizient zu erwarten. Tab. 4.2 stellt die Ergebnisse dieser Analysen zusammen. Als Ergebnis kann festgehalten werden, dass der nominal angegebene Bereich von $4 - 12^\circ$ in der CAS gut realisiert ist. Erst nach dieser Betrachtung kann folglich der sondenspezifische Streuquerschnitt mit σ_{4-12° identifiziert werden; es gilt $\sigma_{\text{CAS}} = \sigma_{4-12^\circ}$.

Streuwinkelbereich	Mittlerer Korrelationskoeffizient
$3.0^\circ - 12.0^\circ$	0.983
$3.5^\circ - 12.0^\circ$	0.988
$4.0^\circ - 12.0^\circ$	0.990
$4.5^\circ - 12.0^\circ$	0.988
$5.0^\circ - 12.0^\circ$	0.985
$6.0^\circ - 12.0^\circ$	0.938

Tabelle 4.2 Mittelwert der Korrelationskoeffizienten der drei Verstärkerstufen in Abhängigkeit des sensitiven Streuwinkelbereichs der CAS.

Aus den im Zuge der Regression berechneten Unsicherheiten der $\{c_i, a_i\}$ ergeben sich die nach der Kalibrierung verbleibenden systematischen Fehler der Bestimmung sondenspezifischer Streuquerschnitte individuell für die drei Verstärkerstufen. Lässt man Mie-Resonanzen unberücksichtigt und nähert die Abhängigkeiten zwischen σ_{4-12° und D_p , wie in Abb. 3.1 veranschaulicht, durch ein Potenzgesetz, $\sigma_{4-12^\circ} \propto (D_p)^x$, mit $x = 6$ ($x = 2$) für $D_p < 1 \mu\text{m}$ ($> 1 \mu\text{m}$), so lassen sich verbleibende systematische Fehler der Größenbestimmung ableiten. Diese Unsicherheiten betragen $\pm 4.5\%$, $\pm 3.4\%$ und $\pm 2.5\%$ für aus HGS, MGS und LGS bestimmte D_p . Statistische Unsicherheiten und auch in Mie-Resonanzen physikalisch begründete Unsicherheiten sind hierbei noch nicht berücksichtigt.

Wie in Kap. 3.4.7 erläutert, basiert eine präzise Größenbestimmung auf Kenntnis des diesbezüglichen Einflusses sich ändernder Laserströme (I_L). Für die CAS pendelt sich I_L typischerweise schnell nach dem Einschalten auf einen Wert von etwa 89 – 90 mA ein, jedoch sind gelegentlich auch höhere I_L zu beobachten. Der Frage, ob diese variierenden I_L geänderte Intensitäten des Laserlichts bewirken, oder vielmehr einer internen Regelung folgend diesem Effekt gerade vorbeugen, wurde im Zuge der Kalibrationsarbeiten nachgegangen. Abb. 4.5 zeigt gemessene A/D-Werte in Abhängigkeit von I_L für die Messungen, bei denen I_L in einem Bereich von etwa 89 bis 104 mA variierte.

Zudem sind resultierende Mittelwerte der I_L -Bins (Breite: 1 mA) sowie daraus berechnete Regressionsgeraden eingezeichnet. Die große Streuung der Daten der 7.7- μm -Kugeln lassen sich wiederum weitestgehend auf die Fertigungstoleranzen dieser Kugeln in Verbindung mit dem lokalen Verlauf von $\sigma_{4-12^\circ}(D_p)$ zurückführen (s. Abb. 4.2). Es kann festgehalten werden, dass kein signifikanter Trend zu beobachten ist. Dies zeigt, dass sondeninterne Regelungsmechanismen greifen und konstante Intensitäten des Laserlichts somit gewährleistet sind. Da die I_L in den analysierten Flugdaten mit $89.5 (\pm 0.6)$ mA zudem weitaus geringeren Schwankungen unterliegen, kann ein Effekt variierender I_L auf die Größenbestimmung von Eispartikeln während der ECLIF-Kampagne vernachlässigt werden.

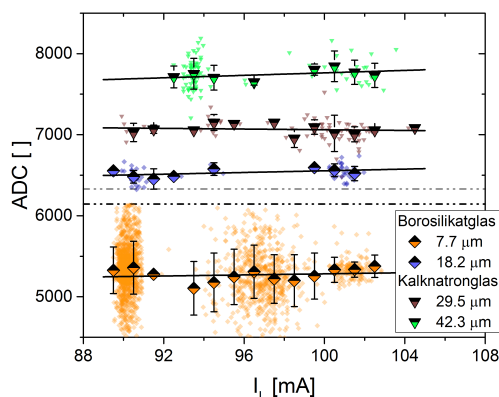


Abbildung 4.5 Abhängigkeit der σ_{CAS} -Messung vom Laserstrom (I_L). Gezeigt sind Messwerte, Mittelwerte der I_L -Bins und Ausgleichsgeraden für verschiedene Partikelgrößen.

4.1.2 Festlegung der CAS-Größenbins für Eispartikelmessungen in jungen Kondensstreifen

Nach erfolgter Kalibrierung ist es möglich, aus im Kondensstreifendurchflug gemessenen A/D-Werten detektierter Eispartikel auf deren sondenspezifische Streuquerschnitte σ_{4-12° zu schließen. Um aus Letzteren die Teilchengröße zu bestimmen, werden die Kap. 3.3.2 vorgestellten T-Matrix-Rechnungen herangezogen. Während der Brechungsindex für Eis bekannt ist, ist Bestimmung der Eispartikelformen in jungen Kondensstreifen Gegenstand aktueller Forschung, sodass an dieser Stelle eine Annahme getroffen werden muss. Motiviert von experimentellen Erkenntnissen (Schröder et al. 1999, Borrmann et al. 2000, Voigt et al. 2011, Gayet et al. 2012), werden Eispartikel junger Kondensstreifen in dieser Arbeit durch Rotationsellipsoide mit $AR = 0.75 \pm 0.1$ repräsentiert¹, deren Größen durch den Durchmesser einer volumen-äquivalenten Kugel, D_p , parametrisiert werden.

¹ Berechnungen für verschiedene AR s werden entsprechend einer Normalverteilung mit Mittelwert 0.75 und Standardabweichung 0.1 gewichtet.

Bin _n #	Bin _k #	$\sigma_{4-12^\circ}^l$ [cm ²]	$\sigma_{4-12^\circ}^u$ [cm ²]	D_p^l [μm]	D_p^u [μm]
1	-	-	-	-	-
2	1	$1.27 \cdot 10^{-10}$	$4.32 \cdot 10^{-10}$	0.50	0.62
3	2	$4.32 \cdot 10^{-10}$	$7.80 \cdot 10^{-10}$	0.62	0.69
4	3	$7.80 \cdot 10^{-10}$	$1.31 \cdot 10^{-9}$	0.69	0.76
5	4	$1.31 \cdot 10^{-9}$	$2.07 \cdot 10^{-9}$	0.76	0.83
6	5	$2.07 \cdot 10^{-9}$	$3.11 \cdot 10^{-9}$	0.83	0.90
7	6	$3.11 \cdot 10^{-9}$	$4.47 \cdot 10^{-9}$	0.90	0.97
8	7	$4.47 \cdot 10^{-9}$	$6.42 \cdot 10^{-9}$	0.97	1.05
9	8	$6.42 \cdot 10^{-9}$	$8.86 \cdot 10^{-9}$	1.05	1.13
10	9	$8.86 \cdot 10^{-9}$	$1.14 \cdot 10^{-8}$	1.13	1.20
11	-	-	-	-	-
12	10	$1.14 \cdot 10^{-8}$	$2.45 \cdot 10^{-8}$	1.20	2.76
13	10	$2.45 \cdot 10^{-8}$	$3.77 \cdot 10^{-8}$	1.52	2.92
14	11	$3.77 \cdot 10^{-8}$	$5.42 \cdot 10^{-8}$	2.92	3.08
15	12	$5.42 \cdot 10^{-8}$	$6.74 \cdot 10^{-8}$	3.08	3.19
16	13	$6.74 \cdot 10^{-8}$	$8.00 \cdot 10^{-8}$	3.19	4.65
17	13	$8.00 \cdot 10^{-8}$	$8.99 \cdot 10^{-8}$	3.29	4.99
18	13	$8.99 \cdot 10^{-8}$	$1.00 \cdot 10^{-7}$	3.39	5.24
19	13	$1.00 \cdot 10^{-7}$	$1.13 \cdot 10^{-7}$	3.50	5.64
20	14	$1.13 \cdot 10^{-7}$	$1.22 \cdot 10^{-7}$	5.64	7.11
21	-	-	-	-	-
22	-	-	-	-	-
23	15	$1.22 \cdot 10^{-7}$	$1.90 \cdot 10^{-7}$	7.11	9.16
24	16	$1.90 \cdot 10^{-7}$	$2.92 \cdot 10^{-7}$	9.16	12.05
25	17	$2.92 \cdot 10^{-7}$	$4.52 \cdot 10^{-7}$	12.05	15.0
26	18	$4.52 \cdot 10^{-7}$	$7.63 \cdot 10^{-7}$	15.0	20.0
27	19	$7.63 \cdot 10^{-7}$	$1.15 \cdot 10^{-6}$	20.0	25.0
28	20	$1.15 \cdot 10^{-6}$	$1.58 \cdot 10^{-6}$	25.0	30.0
29	21	$1.58 \cdot 10^{-6}$	$2.50 \cdot 10^{-6}$	30.0	40.0
30	22	$2.50 \cdot 10^{-6}$	$3.51 \cdot 10^{-6}$	40.0	50.3

Tabelle 4.3 Für rotationselliptische Eispartikel ($D_p \leq 20 \mu\text{m}$, $n = 1.31 + i \cdot 0$) mit $AR = 0.75 \pm 0.1$ hergeleitete Bingrenzen der CAS. Die Indizes n(k) stehen für native (kombinierte) Bin-Nummern. Weiter stehen $\sigma_{4-12^\circ}^l$ ($\sigma_{4-12^\circ}^u$) für untere (obere) Bingrenzen des Streuquerschnitts und D_p^l (D_p^u) für untere (obere) Bingrenzen der volumenäquivalenten Durchmesser. Die Größenordnung von Eispartikeln mit $D_p > 20 \mu\text{m}$ beruht auf der Annahme einer sphärischen Partikelform. ADC-Bereichen des Rauschens ($\text{Bin}_n = 1$) und toten Zonen ($\text{Bin}_n \in \{11, 21, 22\}$) wurden eigene Kanäle zugewiesen. Die den σ_{4-12° -Bingrenzen entsprechenden ADC-Werte, die in der Konfigurationsdatei der CAS hinterlegt wurden, ergeben sich aus Gl. 4.1.

Entsprechende Größenbins wurden daraufhin auf Basis der Resultate der T-Matrix-Rechnungen für diesen AR -Bereich (s. Abb. 3.3) hergeleitet. Die Ergebnisse sind in Tab. 4.3 aufgeführt.

Im Vordergrund stand dabei die Wahrscheinlichkeit fehlerhafter Binzuteilungen aufgrund Mie-Resonanzeffekten möglichst zu minimieren, was im Gegenzug relativ breite Größenbins im Bereich dieser Resonanzen bedingt. Den 30 vom Benutzer in ADC-Einheiten zu definierenden nativen Kanälen der CAS wurden über Gl. 4.1 A/D-Werte zugewiesen, die vorher festgelegten σ_{4-12° -Bingrenzen aus den T-Matrix-Rechnungen entsprechen. Dabei wurde so vorgegangen, dass der Bereich des Rauschens sowie tote Zonen separate Kanäle erhielten. Schließlich wurden native Bins zu größeren Bins zusammengefasst, um Resonanzeffekte zu berücksichtigen und eine eindeutige - wenn auch schlechter aufgelöste - Größenbestimmung zu ermöglichen.

Es sei angemerkt, dass die T-Matrix-Rechnungen nur für $D_p \leq 20 \mu\text{m}$ bzw. Streuquerschnitte $\sigma_{4-12^\circ} \leq 1 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^2$ vorlagen. Für größere D_p wurde deshalb auf Mie-Rechnungen für sphärische Partikel zurückgegriffen, um ein Binning über den gesamten σ -Messbereich festzulegen. Für die vorliegende Arbeit ist diese Inkonsistenz bzgl. der Partikelform nicht relevant, da Partikel $> 20 \mu\text{m}$ in den vermessenen Kondensstreifen praktisch nicht vorkamen. Weiter sei erwähnt, dass die Wahl von Bingrenzen stets subjektiv erfolgt und keinem vorgegebenen Regelwerk unterliegt. Je nach Aufgabenstellung kann sich eine andere Bineinteilung als sinnvoller erweisen. Bedingt durch Mie-Resonanzen ist jedoch eine Festlegung entsprechender Bingrenzen stets von dem Dilemma begleitet, dass eine - vermeintlich - gute Größenauflösung im Resonanzbereich zugleich die Wahrscheinlichkeit fehlerhafter Binzuteilungen erhöht. Hier muss ein sinnvoller Kompromiss gefunden werden, der den jeweiligen Anforderungen genügt.

4.1.3 Kalibrierung der Streuquerschnittsmessung der CAS[†]

Da die Größenkalibrierung der CAS[†] in den wesentlichen Punkten derjenigen der CAS gleicht, werden die CAS[†]-Ergebnisse im Folgenden in Kurzform mit Fokus auf instrumentelle Unterschiede zur CAS präsentiert.

Abb. 4.6 zeigt die für die CAS[†] gewonnenen ADC-Verteilungen der verwendeten Kalibrierkugeln, welche denen von der CAS bestimmten (Abb. 4.3) stark ähneln. Die Diskussion der ADC-Verteilungen entspricht derjenigen für die CAS, wesentliche Unterschiede sind nicht auszumachen. Da auch das Rauschverhalten der CAS[†] dem der CAS entspricht, also das Rauschen nur im Labor und kaum im Flug auftritt, bestätigt dies den Verdacht, dass es sich hierbei um ein Artefakt der Labormessung handelt.

In Abb. 4.7 sind die sich ergebenden Zusammenhänge zwischen berechneten σ_{4-12° und gemessenen A/D-Werten der jeweiligen Peakmaxima entsprechender Kalibrierkugeln graphisch dargestellt. Für Borosilikat- und Kalknatronglaskugeln stimmen die aus den herstellungsbedingten ΔD_p durch Fehlerfortpflanzung berechneten ΔADC wieder gut mit den gefundenen Halbwertsbreiten der jeweiligen ADC-Verteilungen überein, wobei insbesondere auch gefundene Asymmetrien durch die Rechnungen bestätigt

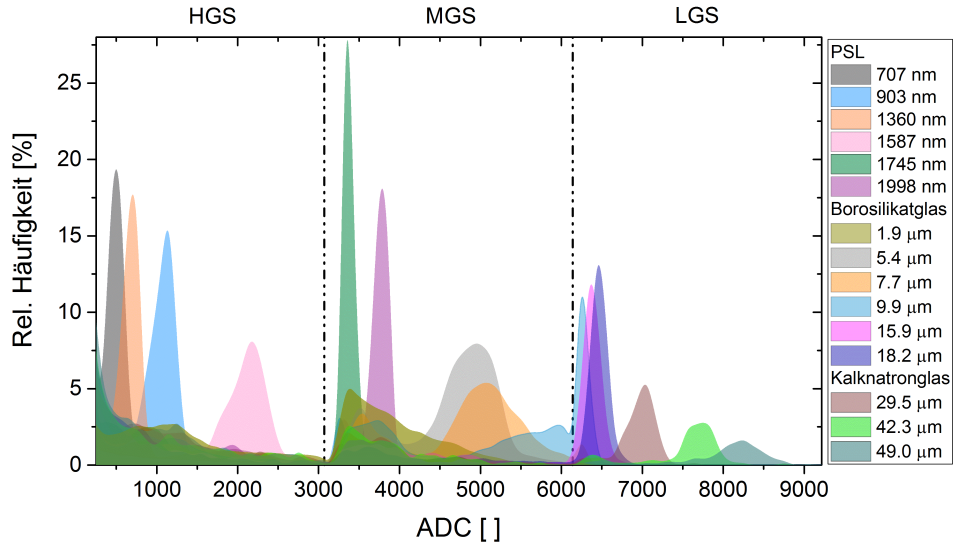


Abbildung 4.6 Verteilungen der aufgezeichneten A/D-Werte genutzter Kalibrierkugeln für die CAS[†]. Größenangaben der Legende beziehen sich auf Durchmesser. Zudem sind die oberen ADC-Schwellenwerte der HGS (3072) und MGS (6144) schwarz markiert.

werden. Allerdings wird auch wieder deutlich, dass die für die kleinen PSL-Kugeln gemessenen Peakbreiten der ADC-Verteilungen ihren Ursprung nicht in den ΔD_p haben können.

Die durch Gl. 4.1 festgelegten $\{c_i, a_i\}$ ergeben sich als Parameter einer linearen Regression und sind in Tab. 4.4 aufgeführt. Wieder fanden Daten der 1.9- μm -Borosilikatglas-kugeln keine Berücksichtigung bei den Berechnungen. Für alle drei Verstärkerstufen weist die CAS[†] gegenüber der CAS höhere Verstärkungsfaktoren auf. Die gegenüber der CAS reduzierten Ausdehnungen der toten Zonen lauten für die CAS[†] [3073, 3209] für die MGS und [6145, 6238] für die LGS. Es gilt $\sigma_{4-12^\circ}(3210) = \sigma_{4-12^\circ}(3072)$ und $\sigma_{4-12^\circ}(6239) = \sigma_{4-12^\circ}(6144)$.

Verstärkerstufe	c_i/cm^2	a_i/cm^2	Definitionsbereich
HGS	$4.572 \cdot 10^{-12}$	$4.305 \cdot 10^{-10}$	$\text{ADC} \in \{191, 192, \dots, 3072\}$
MGS	$4.571 \cdot 10^{-11}$	$1.331 \cdot 10^{-7}$	$\text{ADC} \in \{3210, 3211, \dots, 6144\}$
LGS	$1.205 \cdot 10^{-9}$	$7.37 \cdot 10^{-6}$	$\text{ADC} \in \{6239, 6240, \dots, 9216\}$

Tabelle 4.4 Aus linearer Regression bestimmte Konstanten $\{c_i, a_i\}$ der drei Verstärkerstufen für die CAS[†].

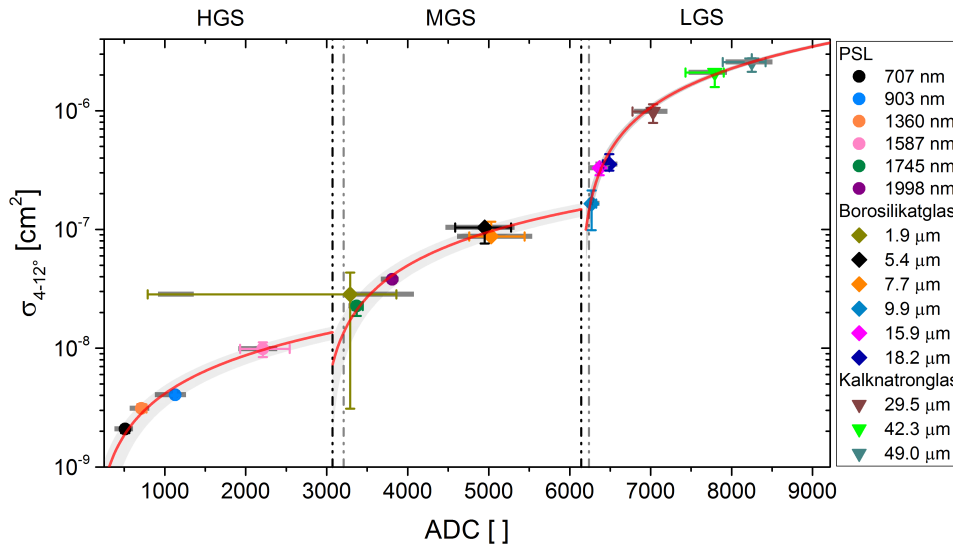


Abbildung 4.7 Für die Kalibrierkugeln berechnete Streuquerschnitte σ_{4-12° aufgetragen gegen experimentell bestimmte A/D-Werte (ADC) der zugehörigen Peakmaxima (farbige Datenpunkte). Eingezeichnete Fehlerbalken ergeben sich aus den herstellungsbedingten ΔD_p der Kalibrierkugeln durch Fehlerfortpflanzung. Den Datenpunkten hinterlegte ADC-Bereiche (grau) illustrieren die aus Abb. 4.6 bestimmten Halbwertsbreiten der jeweiligen Peaks. Regressionsgeraden (rot) erscheinen wegen der logarithmisch gewählten Darstellung ebenfalls logarithmisch. Schwarze vertikale Linien zeigen maximale A/D-Werte der HGS (3072) und MGS (6144), während die A/D-Schwellwerte, ab denen MGS (3210) und LGS (6239) bezüglich der Datenaufzeichnung aktiv werden, grau dargestellt sind.

Streuwinkelbereich	Mittlerer Korrelationskoeffizient
$3.0^\circ - 12.0^\circ$	0.9883
$3.5^\circ - 12.0^\circ$	0.9930
$4.0^\circ - 12.0^\circ$	0.9932
$4.5^\circ - 12.0^\circ$	0.9812
$5.0^\circ - 12.0^\circ$	0.9655
$6.0^\circ - 12.0^\circ$	0.9486

Tabelle 4.5 Mittelwert der Korrelationskoeffizienten der drei Verstärkerstufen in Abhängigkeit des sensitiven Streuwinkelbereichs der CAS[†].

Analog zur CAS wurde auch für die CAS[†] der detektorsensitive Streuwinkelbereich untersucht. Die Ergebnisse sind in Tab. 4.5 zusammengefasst. Auch für die CAS[†] ergibt sich die beste Korrelation für den nominalen Streuwinkelbereich von $4 - 12^\circ$, womit sich der Zusammenhang $\sigma_{\text{CAS}^\dagger} = \sigma_{4-12^\circ}$ bestätigt.

Die für die CAS[†] nach der Kalibrierung verbleibenden systematischen Fehler der Größenbestimmung betragen $\pm 3.2\%$, $\pm 8.5\%$ und $\pm 2.1\%$ für aus HGS, MGS und LGS bestimmte D_p . Die Berechnung dieser Werte erfolgt analog zur CAS (s. Kap. 4.1.1), wobei statistische Unsicherheiten und auch in den Mie-Resonanzen physikalisch

begründete Unsicherheiten in diesen Werten nicht enthalten sind.

4.1.4 Festlegung der CAS[†]-Größenbins für Eispartikelmessungen in jungen Kondensstreifen

Bin _n #	Bin _k #	$\sigma_{4-12^\circ}^l$ [cm ²]	$\sigma_{4-12^\circ}^u$ [cm ²]	D_p^l [μm]	D_p^u [μm]
1	-	-	-	-	-
2	1	$4.32 \cdot 10^{-10}$	$7.80 \cdot 10^{-10}$	0.62	0.69
3	2	$7.80 \cdot 10^{-10}$	$1.31 \cdot 10^{-9}$	0.69	0.76
4	3	$1.31 \cdot 10^{-9}$	$2.07 \cdot 10^{-9}$	0.76	0.83
5	4	$2.07 \cdot 10^{-9}$	$3.11 \cdot 10^{-9}$	0.83	0.90
6	5	$3.11 \cdot 10^{-9}$	$4.47 \cdot 10^{-9}$	0.90	0.97
7	6	$4.47 \cdot 10^{-9}$	$6.15 \cdot 10^{-9}$	0.97	1.04
8	7	$6.15 \cdot 10^{-9}$	$8.21 \cdot 10^{-9}$	1.04	1.11
9	8	$8.21 \cdot 10^{-9}$	$1.06 \cdot 10^{-8}$	1.11	1.18
10	9	$1.06 \cdot 10^{-9}$	$1.36 \cdot 10^{-8}$	1.18	1.26
11	-	-	-	-	-
12	10	$1.36 \cdot 10^{-8}$	$2.45 \cdot 10^{-8}$	1.26	2.76
13	10	$2.45 \cdot 10^{-8}$	$3.77 \cdot 10^{-8}$	1.52	2.92
14	11	$3.77 \cdot 10^{-8}$	$5.42 \cdot 10^{-8}$	2.92	3.08
15	12	$5.42 \cdot 10^{-8}$	$6.74 \cdot 10^{-8}$	3.08	3.19
16	13	$6.74 \cdot 10^{-8}$	$8.99 \cdot 10^{-8}$	3.19	4.99
17	13	$8.99 \cdot 10^{-8}$	$1.13 \cdot 10^{-7}$	3.39	5.64
18	14	$1.13 \cdot 10^{-7}$	$1.22 \cdot 10^{-7}$	5.64	7.11
19	15	$1.22 \cdot 10^{-7}$	$1.38 \cdot 10^{-7}$	7.11	8.03
20	15	$1.38 \cdot 10^{-7}$	$1.48 \cdot 10^{-7}$	8.03	8.20
21	-	-	-	-	-
22	16	$1.48 \cdot 10^{-7}$	$2.23 \cdot 10^{-7}$	8.20	10.60
23	17	$2.23 \cdot 10^{-7}$	$3.20 \cdot 10^{-7}$	10.60	12.53
24	18	$3.20 \cdot 10^{-7}$	$4.52 \cdot 10^{-7}$	12.53	15.0
25	19	$4.52 \cdot 10^{-7}$	$7.63 \cdot 10^{-7}$	15.0	20.0
26	20	$7.63 \cdot 10^{-7}$	$1.15 \cdot 10^{-6}$	20.0	25.0
27	21	$1.15 \cdot 10^{-6}$	$1.58 \cdot 10^{-6}$	25.0	30.0
28	22	$1.58 \cdot 10^{-6}$	$2.03 \cdot 10^{-6}$	30.0	35.0
29	23	$2.03 \cdot 10^{-6}$	$2.50 \cdot 10^{-6}$	35.0	40.0
30	24	$2.50 \cdot 10^{-6}$	$3.51 \cdot 10^{-6}$	40.0	50.3

Tabelle 4.6 Für rotationselliptische Eispartikel ($D_p \leq 20 \mu\text{m}$, $n = 1.31 + i \cdot 0$) mit $AR = 0.75 \pm 0.1$ hergeleitete Bingrenzen der CAS[†]. Die Indizes n(k) stehen für native (kombinierte) Bin-Nummern. Weiter stehen $\sigma_{4-12^\circ}^l$ ($\sigma_{4-12^\circ}^u$) für untere (obere) Bingrenzen des Streuquerschnitts und D_p^l (D_p^u) für untere (obere) Bingrenzen der volumenäquivalenten Durchmesser. Die Größenordnung von Eispartikeln mit $D_p > 20 \mu\text{m}$ beruht auf der Annahme einer sphärischen Partikelform. ADC-Bereichen des Rauschens ($\text{Bin}_n = 1$) und toten Zonen ($\text{Bin}_n \in \{11, 21\}$) wurden eigene Kanäle zugewiesen. Die den σ_{4-12° -Bingrenzen entsprechenden ADC-Werte, die in der Konfigurationsdatei der CAS[†] hinterlegt wurden, ergeben sich aus Gl. 4.1.

Analog zur CAS wurden auch für die CAS[†] für Eiskristallmessungen in jungen Kondensstreifen optimierte Bineinteilungen vorgenommen, welche in Tab. 4.6 aufgeführt werden. Da die Verstärkungsstufen beider Instrumente unterschiedliche Verstärkungsfaktoren aufweisen, diese aber bestimmen auf welche σ_{4-12° die Übergänge zwischen den jeweiligen Verstärkungsstufen fallen, weichen für die CAS[†] gewählte σ_{4-12° -Bingrenzen in einigen Fällen von denen der CAS ab.

Zum Zweck eines Instrumentenvergleichs zwischen CAS und CAS[†] wurden die Bingrenzen zudem so gewählt, dass sich Partikelkonzentrationen eines identischen Streuquerschnitt- bzw. Größenbereichs aus beiden Instrumenten bestimmen lassen. Für die vorgestellten Bingrenzen beider Sonden beginnt dieser Bereich bei $0.62 \mu\text{m}$. Als obere Grenze des $\text{Bin}_n = 30$ der CAS[†] wurde mit 8992 ein A/D-Wert < 9216 eingestellt, um ein zur CAS identisches oberes Detektionslimit zu erzeugen.

4.2 Bestimmung der effektiv wirksamen Messfläche

Wie bereits erläutert, basiert eine genaue Bestimmung von Partikelkonzentrationen auf präziser Kenntnis der aktiven Messfläche des Instruments. Die Forderung nach Erfüllung des Tiefenschärfekriteriums (s. Kap. 3.4.3) reduziert dabei den Bereich der detektorsensitiven Messfläche (SA_{ext}) auf die wesentlich kleinere und schärfer definierte qualifizierte Messfläche (SA_q). Da vermutlich aber realisierte Detektionseffizienzen Werte ≤ 1 aufweisen¹, räumlich variieren und insbesondere in Randbereichen abfallen, soll an dieser Stelle die effektiv wirksame Messfläche (SA_{eff}) eingeführt werden, um diesen Effekten Rechnung zu tragen. SA_{eff} entspricht dabei keiner realen, im klassischen Sinne ausmessbaren Fläche, sondern muss vielmehr als konzeptionelle Größe zur Konzentrationsbestimmung aufgefasst werden. SA_{eff} ergibt sich dabei aus dem Flächenintegral über räumlich variable Detektionseffizienzen, $\mathcal{D}(SA_q)$, nach

$$SA_{\text{eff}} = \int_{SA_q} dA \mathcal{D}(SA_q). \quad (4.2)$$

$\mathcal{D}(SA_q)$ lässt sich dabei aus Labormessungen an geeigneten Kalibrationsständen bestimmen.

4.2.1 Bestimmung der effektiven Messfläche der CAS

Die Bestimmung der Messfläche der CAS basiert auf Rohdaten, die im Kalibrationsstand bei DMT im Juli 2015 aufgezeichnet und zur Auswertung im Rahmen der vorliegenden Arbeit bereitgestellt wurden. Hierbei erzeugte ein Tröpfchengenerator mit einer Frequenz von 250 Hz Wassertropfen mit Durchmessern von etwa $40 \mu\text{m}$, die über zwei gegeneinander verschiebbare, auf μm -Basis arbeitende Positionierungssysteme einem Raster folgend dem Messvolumen der CAS zugeführt wurden. Die Messfläche wurde systematisch mit Schrittweiten von $\Delta x = 50 \mu\text{m}$ parallel und

¹ A priori ist dies nicht klar, da (theoretisch) unerwünschte elektronische Artefakte (z.B. Verstärkernachschrängen) Effizienzen > 1 erzeugen können.

$\Delta y = 25 \mu\text{m}$ orthogonal zur Ausbreitungsrichtung des Laserlichts abgetastet (Pixelfläche $= 1250 \mu\text{m}^2$), wobei der Tröpfchengenerator auf jedem Pixel 4 s verweilt. Aus dem Verhältnis von detektierten zu erzeugten Tropfen konnte damit für jedes Pixel die Detektionseffizienz berechnet und die Funktion $\mathcal{D}(x, y)$ ermittelt werden. SA_q entspricht dabei der Fläche, für die $\mathcal{D}(x, y) > 0$ gilt.

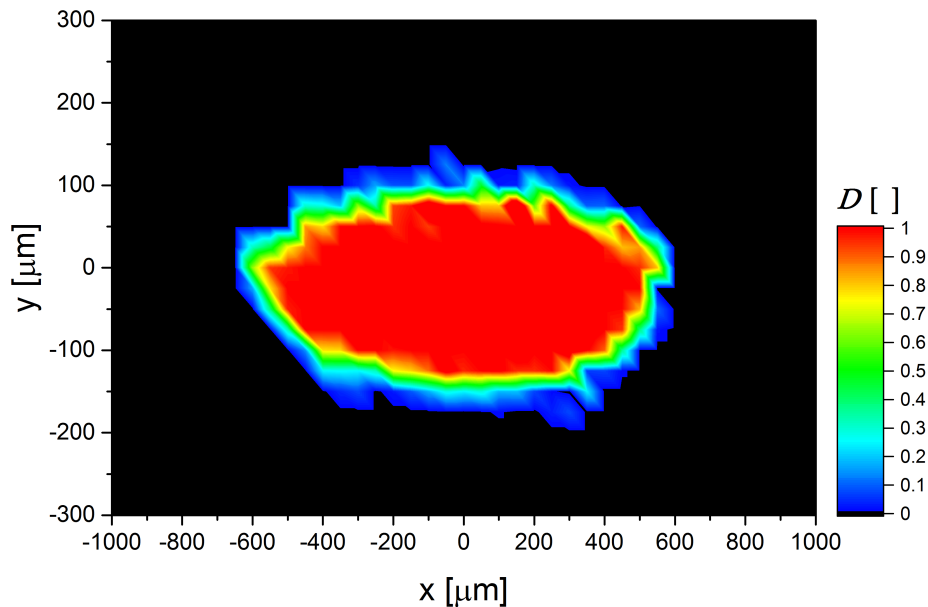


Abbildung 4.8 Für die CAS aus den Detektionseffizienzen der Pixel ($\Delta x = 50 \mu\text{m}$, $\Delta y = 25 \mu\text{m}$) durch Interpolation berechnete Funktion $\mathcal{D}(x, y)$. Die Dimension x (y) entspricht paralleler (orthogonaler) Orientierung relativ zur Ausbreitung des Laserlichts. Die Gesamtfläche des farbigen Bereichs ($\mathcal{D} > 0$) entspricht SA_q . Es folgt $SA_{\text{eff}} = 0.21 \text{ mm}^2$.

Abb. 4.8 visualisiert das Ergebnis der Berechnung von $\mathcal{D}(SA_q)$. Es zeigt sich eine näherungsweise elliptische Form von SA_q mit maximalen Effizienzen nahe dem Idealwert von 1, welche zu den Rändern hin abfallen. Nach Ausführung der Integration (s. Gl. 4.2) ergibt sich $SA_{\text{eff}} = 0.21 \text{ mm}^2$, mit einer aus der Pixelauflösung abgeleiteten Unsicherheit von $\pm 0.015 \text{ mm}^2$, was einem relativen Fehler von etwa $\pm 7\%$ entspricht.

Die in Abb. 4.8 dargestellte Funktion $\mathcal{D}(SA_q)$ bezieht sich dabei ausschließlich auf Streulichtsignale mit A/D-Werten in dem durch die Größenkalibrierung bestimmten Wertebereich möglicher A/D-Werte (s. Tab. 4.1), womit Artefakte der Labormessung, also Rauschen oder Ereignisse in toten Zonen, verworfen werden und nicht zu $\mathcal{D}(SA_q)$ beitragen. In einer genauen Analyse der Messartefakte, die A/D-Werte in toten Zonen generieren, zeigt sich, dass diese nahezu ausschließlich von Tropfen mit Positionen außerhalb der in Abb. 4.8 farbig hervorgehobenen SA_q stammen¹. Das ist insofern relevant, als diese Ereignisse ja erst *nach* erfolgter Größenkalibrierung eindeutig als

¹ Im konkreten Fall würde eine Berücksichtigung dieser Artefakte SA_q um etwa 35 % unter Beibehaltung der elliptischen Form vergrößern. SA_{eff} würde um etwa 8 % wachsen.

Artefakte¹ identifiziert und daraufhin verworfen werden können. Da die Bestimmung von Zählraten und die Vermessung von SA_q bzw. SA_{eff} konsistent erfolgen muss, dürfen Artefakte, die nicht gezählt werden, auch nicht zur Bestimmung der Messflächen beitragen. Insgesamt wird damit deutlich, dass eine Charakterisierung der Messflächen stark von einer präzisen Kalibrierung der Größenbestimmung profitiert. Erklärt werden könnten die hervorgerufenen Artefakte z.B. durch elektronischen Rauschen, das in den Randbereichen von SA_q , in denen das Tiefenschärfekriterium Werte nahe des Schwellwerts von 0.5 annimmt, deutlich an Einfluss gewinnt. Es sei erwähnt, dass sich bei der Untersuchung potentieller Artefakte eine IPT-Analyse meist als hilfreich erweist.

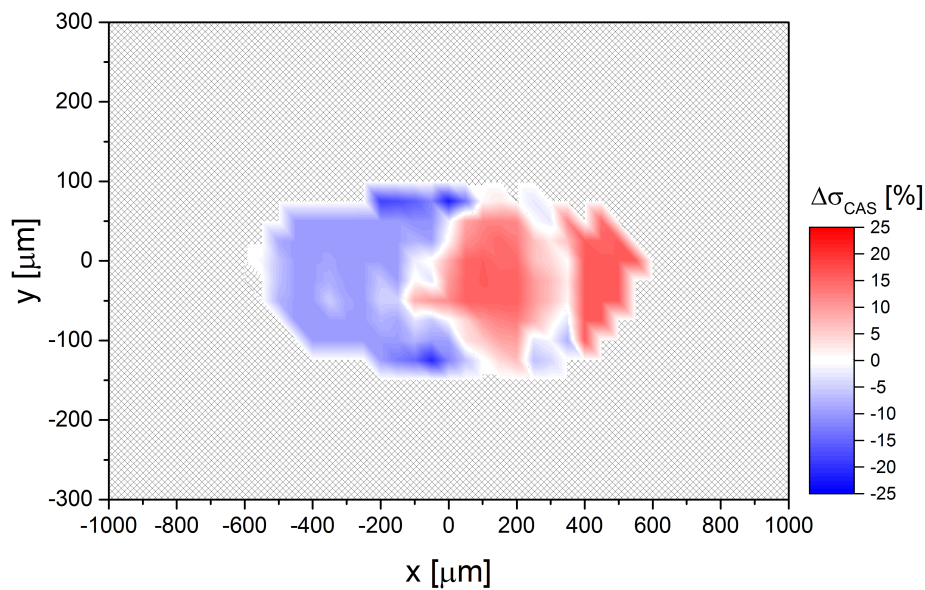


Abbildung 4.9 Relative Abweichung ($\Delta\sigma_{\text{CAS}}$) der lokal (pro Pixel) bestimmten mittleren Streuquerschnitte zu dem über SA_q gemittelten Streuquerschnitt der generierten Tröpfchen.

Zur Abschätzung des Präzisionsfehlers der Größenbestimmung wurde zudem bestimmt, wie mittlere A/D-Werte der etwa $40\ \mu\text{m}$ großen Tropfen über SA_q variieren. Basierend auf Gl. 4.1 wurden daraus Abweichungen des lokal (auf jedem Pixel) gemittelten Streuquerschnitts zu dem über SA_q gemittelten bestimmt. Die räumliche Verteilung dieser relativen Abweichungen ($\Delta\sigma_{\text{CAS}}$) ist in Abb. 4.9 dargestellt. Für einen zeitlich konstant arbeitenden Tröpfchengenerator, dessen Tropfendurchmesser einer Normalverteilung mit gewissem Mittelwert und Standardabweichung folgen, sind für ein ideales Instrument - zumindest bei den hier realisierten 1000 Tropfen pro Pixel - keine Abweichungen der lokal gemittelten Werte zu dem über SA_q gemittelten Wert zu erwarten. Zwar wurde die Größe einzelner Tröpfchen nicht synchron durch ein unabhängiges Messverfahren ermittelt, jedoch zeigen kurz zuvor getätigte Messungen

¹ Den A/D-Werten der Artefakte entspräche ein Durchmesser von etwa $1\ \mu\text{m}$, was um den Faktor 40 falsch ist.

an diesem Tropfengenerator bei identischen Betriebsparametern mit einem nahezu identischen Streulichtspektrometer¹ keine Hinweise auf eine Systematik sich zeitlich ändernder mittlerer Tropfengrößen. Die Annahme von zeitlich konstant erzeugten mittleren Tropfengrößen scheint damit gerechtfertigt.

Die gefundenen Abweichungen $\Delta\sigma_{\text{CAS}}$ im Bereich von -21% bis $+18\%$ sind folglich als Eigenschaft des Instruments zu interpretieren und bewirken, dass das größenbestimmende Signal des S-Detektors davon abhängt, an welchem Ort ein Teilchen gegebener Größe SA_q passiert. Da sich jedoch keine Informationen zur Trajektorie detektierter Partikel durch SA_q aus den erhobenen Daten gewinnen lassen, induziert dieser Effekt einen Präzisionsfehler, der zu einer Verbreiterung gemessener gegenüber tatsächlich vorliegenden Größenverteilungen führt. Nähert man den Zusammenhang $\sigma_{\text{CAS}}(D_p)$ unter Vernachlässigung der Mie-Resonanzstrukturen gemäß dem in Kap. 4.1.1 beschriebenen Potenzgesetz, lässt sich für $D_p < 1\ \mu\text{m}$ eine statistische Unsicherheit der D_p -Bestimmung von -3.9% bis $+2.8\%$ abschätzen, während sich für $D_p > 1\ \mu\text{m}$ Werte von -11.1% bis $+8.6\%$ ergeben. Diese Angaben beziehen sich dabei auf eine reduzierte Datenbasis, die ausgehend vom Zentrum 95% von SA_q abdeckt. Da die $\Delta\sigma_{\text{CAS}}$ -Verteilung jedoch keiner Normalverteilung folgt², können diese Werte zwar nicht ohne Weiteres als Abweichungen im $\pm 2\sigma$ -Intervall um den Mittelwert 0 interpretiert werden, repräsentieren aber nichtsdestotrotz die maximalen statistischen D_p -Unsicherheiten von 95% aller detektieren Partikel.

Aus dem ermittelten Präzisionsfehler $\Delta\sigma_{\text{CAS}}$ lässt sich zudem nach Gl. 4.1 auf die statistischen Fehler der ADC-Messung der zur Streuquerschnittskalibrierung verwendeten Kugeln schließen. Ja nach Verstärkerstufe ergeben sich relative Abweichungen der A/D-Werte von -4.2% bis $+3.6\%$ (LGS), -7.6% bis $+6.5\%$ (MGS) und -18.6% bis $+15.9\%$ (HGS), die dem Präzisionsfehler zuzuordnen sind. Diese Zahlen sind insofern interessant, als sie eine quantitative Abschätzung des Anteils des Präzisionsfehlers an den gemessenen Breiten der ADC-Verteilungen (s. Abb. 4.3) erlauben. So kann erklärt werden, wieso gemessene Breiten teilweise über den aus den herstellungsbedingten D_p -Varianzen der Kalibrierkugeln durch Fehlerfortpflanzung berechneten (Fehlerbalken in Abb. 4.4) liegen. Insbesondere anhand der sehr genau gefertigten PSL-Kugeln ($\Delta D_p \approx \pm 1\%$) lässt sich dies gut demonstrieren. So ist z.B. der aus ΔD_p resultierende Fehler für die 903-nm-PSL-Kugeln zu klein, um in Abb. 4.4 aufgelöst zu werden. Die gemessene Peakbreite von knapp 500 ADC ergibt sich hingegen aus den für die HGS bestimmten Werten des Präzisionsfehlers und der Lage des Peakmaximums (bei 1490 ADC). Dies zeigt eindrucksvoll, dass nicht nur die SA_q -Charakterisierung von Erkenntnissen aus der Größenkalibrierung profitiert, sondern auch der Umkehrschluss gilt, beide Arbeiten also gegenseitig voneinander profitieren können.

1 Konkret wurde dasselbe Instrument (CAS des DLR) jedoch mit einer 500- μm -Lochblende vor dem S-Detektor vermessen, wobei sich $SA_{\text{eff}} = 0.29\ \text{mm}^2$ mit im Vergleich zu Abb. 4.9 deutlich reduzierten $|\Delta\sigma_{\text{CAS}}|$ ergab.

2 Qualitativ: Die SA_q entsprechende Fläche in Abb. 4.9 wird bei geringem Weißanteil von den Farben rot und blau dominiert. Es liegt also eine bimodale Verteilung der $\Delta\sigma_{\text{CAS}}$ vor.

4.2.2 Bestimmung der effektiven Messfläche der CAS[†]

Die Charakterisierung der Messfläche der CAS[†] folgt dem Verfahren, das bei der CAS angewandt wurde. Da in der Zwischenzeit jedoch ein Tröpfchengenerator im Rahmen einer Masterarbeit (Hahn 2019) am DLR konzipiert, aufgebaut und erfolgreich in Betrieb genommen wurde, konnte hierbei auf einen von Hahn (2019) mit der CAS[†] aufgezeichneten Datensatz zurückgegriffen werden. Der Aufbau gleicht im Wesentlichen dem des bei DMT betriebenen Generators, mit dem Unterschied, dass hier die mittleren Tropfendurchmesser ($\approx 18\mu\text{m}$) und die Betriebsfrequenz (100 Hz) niedriger gewählt wurden. In voreingestellten Schrittweiten ($\Delta x=100\mu\text{m}$, $\Delta y=50\mu\text{m}$) wurde die Messfläche systematisch parallel (x) und orthogonal (y) zur Ausbreitungsrichtung des Laserlichts abgetastet. Hierbei wurde auf jeder Position eine Verweildauer von 2 s gewählt.

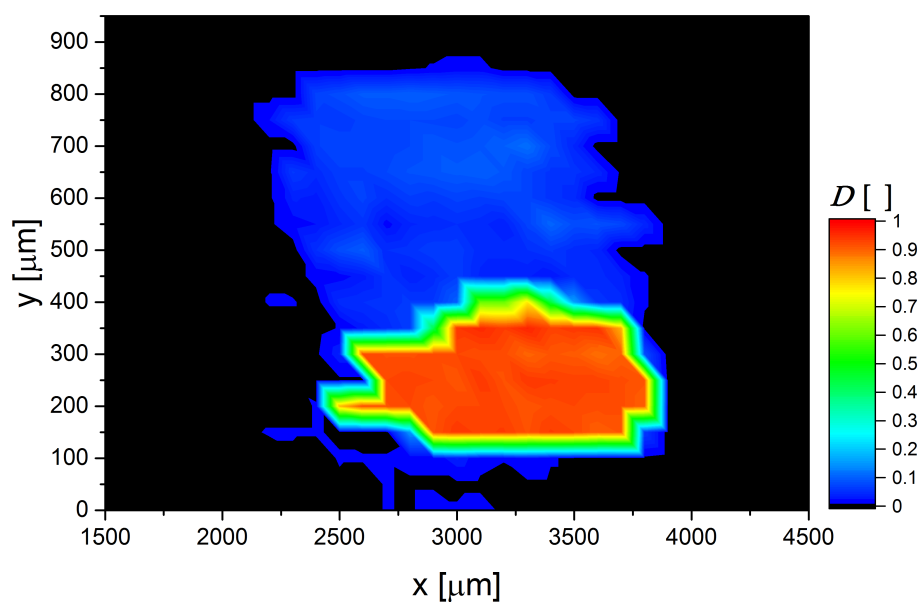


Abbildung 4.10 Für die CAS[†] aus den Detektionseffizienzen der Pixel ($\Delta x=100\mu\text{m}$, $\Delta y=50\mu\text{m}$) durch Interpolation berechnete Funktion $\mathcal{D}(x, y)$. Die Dimension x (y) entspricht paralleler (orthogonaler) Orientierung relativ zur Ausbreitung des Laserlichts. Die Gesamtfläche des farbigen Bereichs ($\mathcal{D} > 0$) entspricht SA_q . Es folgt $SA_{\text{eff}} = 0.30\text{mm}^2$.

Abb. 4.10 zeigt den Verlauf von $\mathcal{D}(SA_q)$ für die CAS[†]. Analog zur CAS zeigt sich auch für die CAS[†] eine näherungsweise elliptische Form von Bereichen mit signifikant erhöhten Detektionseffizienzen. Zentrumsnah erreicht \mathcal{D} Werte nahe 1, welche zu den Rändern hin abfallen. Aus der Integration über SA_q ergibt sich $SA_{\text{eff}}=0.30\text{mm}^2$, mit einer aus der Pixelauflösung abgeleiteten Unsicherheit von $\pm 0.034\text{mm}^2$, was einem relativen Fehler von etwa $\pm 11\%$ entspricht. Der zu großen y hin ausgedehnte breite Schweif mit geringen \mathcal{D} trägt - aufgrund der geringen \mathcal{D} - nur einen vergleichsweise kleinen Teil ($\approx 9\%$) zu SA_{eff} bei.

Artefakte, die sich als Rauschen oder Ereignisse in den toten Zonen äußern, wurden -

im Hinblick auf Konsistenz bezüglich der Bestimmung von Zählraten und Größenverteilungen - bei der Bestimmung von $\mathcal{D}(x, y)$ nicht berücksichtigt. Wie schon bei der CAS, zeigt sich auch für die CAS[†], dass jene Tropfen, die Artefakte in toten Zonen hervorrufen, die Messfläche außerhalb der in Abb. 4.10 farbig hervorgehobenen SA_q passieren¹.

Vergleicht man die experimentell bestimmten SA_{eff} der CAS ($SA_{\text{eff}}=0.21 \text{ mm}^2$, 800- μm -Lochblende) und der CAS[†] ($SA_{\text{eff}}=0.30 \text{ mm}^2$, 500- μm -Lochblende), zeigt sich, dass die Sonde mit der größeren Lochblende vor dem S-Detektor die kleinere Messfläche besitzt. Da beide Sonden mit gleichen Strahlteilern und DoF_{crit} arbeiten, bestätigen die Messungen somit die in Kap. 3.4.3 aufgestellte Hypothese und sind ein weiteres Indiz dafür, dass zwischen Blendenkonfiguration und Messflächengröße ein direkter Zusammenhang besteht. Interessanterweise spannen die SA_{eff} beider Sonden damit den vom Sondenhersteller pauschal mit $0.25 (\pm 0.05) \text{ mm}^2$ angegebenen Bereich der Erfahrungswerte auf.

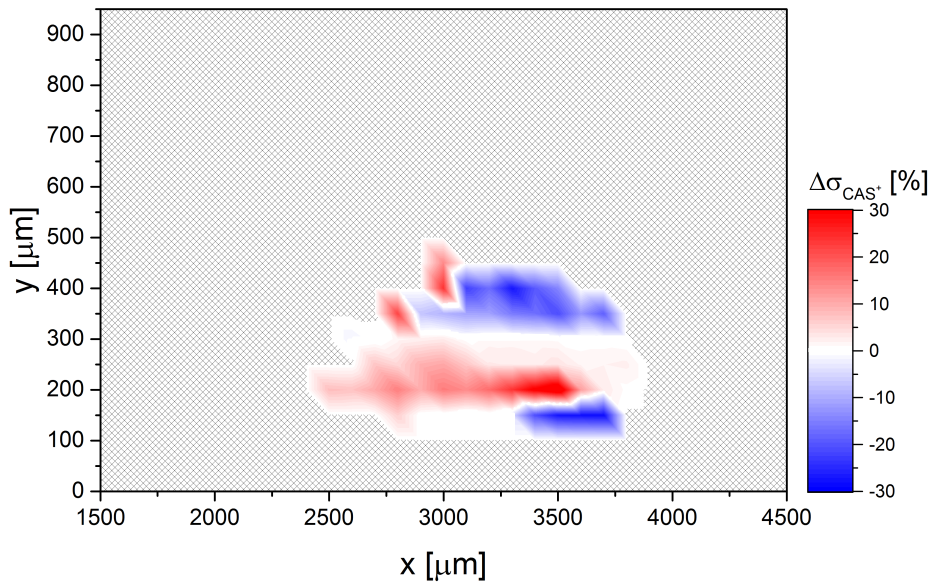


Abbildung 4.11 Relative Abweichung ($\Delta\sigma_{\text{CAS}^\dagger}$) der lokal (je Pixel) bestimmten mittleren Streuquerschnitte zu dem über SA_q gemittelten Streuquerschnitt der generierten Tröpfchen.

Analog zum Vorgehen bei der CAS, wurde auch für die CAS[†] der Präzisionsfehler der Größenbestimmung aus den am Tropfengenerator gewonnenen Daten abgeleitet. Abb. 4.11 zeigt den räumlichen Verlauf der relativen Abweichungen ($\Delta\sigma_{\text{CAS}^\dagger}$) von lokal gemittelten zu über SA_q gemittelten Streuquerschnitten der generierten Tropfen. Da davon ausgegangen werden kann, dass erzeugte Tropfengrößen einer Normalverteilung um einen festen Mittelwert ($D_p \approx 18 \mu\text{m}$) folgen² und mit 200 Tropfen je Pixel eine

¹ Eine Berücksichtigung dieser Artefakte würde SA_q um 9.6% und SA_{eff} um 3.8% vergrößern.

² Unabhängig bestätigt durch eine entsprechend auflösende Kamera (Hahn 2019).

hinreichend große Zahl an Tropfen erzeugt wurde, sind $|\Delta\sigma_{\text{CAS}^\dagger}| > 0$ als Eigenschaft der CAS^\dagger zu deuten.

Betrachtet man wieder die zentrumsnahen 95 % der detektierten Tropfen, ergeben sich für $\Delta\sigma_{\text{CAS}^\dagger}$ maximale Werte von -30% bis $+25\%$. Die daraus abgeleiteten statistischen Unsicherheiten der D_p -Bestimmung ergeben sich bei der CAS^\dagger für $D_p < 1\ \mu\text{m}$ zu -5.8% bis $+3.8\%$ und für $D_p > 1\ \mu\text{m}$ zu -16.3% bis $+11.8\%$ und fallen damit größer aus als bei der CAS. Da die $\Delta\sigma_{\text{CAS}^\dagger}$ -Verteilung in guter Näherung einer Normalverteilung folgt¹, können diese Werte als Abweichungen im $\pm 2\sigma$ -Intervall um den Mittelwert (≈ 0) aufgefasst werden, decken also die maximalen statistischen D_p -Unsicherheiten von 95 % aller detektierten Partikel ab. Es sei erwähnt, dass sich im $\pm 1\sigma$ -Intervall für $\Delta\sigma_{\text{CAS}^\dagger}$ maximale Werte von -12.5% bis $+17.5\%$ ergeben.

Weiter ergeben sich die nach Gl. 4.1 abgeschätzten Präzisionsfehler der ADC-Messungen für die CAS^\dagger zu -6.2% bis $+5.2\%$ (LGS), -11% bis $+9.4\%$ (MGS) und -28% bis $+23\%$ (HGS). Wie schon bei der CAS erläutert, lassen sich auch für die CAS^\dagger breite ADC-Verteilungen in den Kalibrationsdaten (vgl. Abb. 4.6), die sich nicht auf herstellungsbedingte D_p -Varianzen der Kalibrierkugeln zurückführen lassen, durch diesen instrumentenspezifischen Präzisionsfehler quantitativ erklären.

Insgesamt zeigt sich, dass es sowohl für die CAS als auch für die CAS^\dagger Bereiche in SA_q gibt, aus denen - relativ betrachtet - mehr oder weniger Streulicht vom S-Detektor erfasst wird, was Ausdruck von über SA_q variierenden Laserintensitäten sein kann. Eine alternative Erklärung wäre, dass der sensitive Streuwinkelbereich des S-Detektors über SA_q variiert und sich nur im Mittel über SA_q der Bereich von $4-12^\circ$ ergibt. Entgegen der - sich auf eine ideal arbeitende Instrumentenoptik beziehenden - Erwartung eines gaußförmigen Profils der $\Delta\sigma_{\text{CAS}^\dagger}$ über SA_q , mit maximal positiven Werten im Zentrum und maximal negativen Werten an den Rändern, zeigt sich bei beiden Sonden ein abweichendes, komplizierteres Muster, dessen Ursache vermutlich in den angesprochen Effekten liegt.

4.3 Empirische Herleitung einer Funktion zur Koinzidenzkorrektur

Da Eiskristallkonzentrationen in jungen Kondensstreifen durchaus einige hundert bis tausend Partikel pro cm^3 betragen können, muss sichergestellt sein, dass diese Konzentrationen vom verwendeten Messgerät auch aufgelöst werden können. Insbesondere Koinzidenz-Effekte (s. Kap. 3.4.8) erweisen sich als kritisch. Die Ausprägung dieses Messartefakts wird wesentlich von der Blendenkonfiguration der Instrumentenoptik bestimmt (Lance 2012). Da die Eispartikelmessungen im Rahmen von ECLIF mit der CAS (800- μm -Lochblende) erfolgten, muss zunächst geklärt werden, inwieweit in den aufgezeichneten Daten Koinzidenz-Artefakte implizit enthalten sind.

Zu diesem Zweck wurde - den Ergebnissen von Lance (2012) Rechnung tragend - in der auf ECLIF folgenden Messkampagne (WeCare²) zusätzlich zur CAS die bereits

¹ Qualitativ: Die SA_q entsprechende Fläche in Abb. 4.11 hat einen hohen Anteil von Weiß- sowie schwachen Rot- und Blautönen. Starke Rot- und Blautöne kommen nur vereinzelt vor.

² DLR-Projekt WeCare: Klima- und ökoeffizientes Fliegen (2013-2017)

vorgestellte CAS[†] zur Messung von Eispartikeln in Kondensstreifen eingesetzt. Im Vergleich zur CAS sollten bei der CAS[†], aufgrund der deutlich kleineren 500- μm -Lochblende, Koinzidenz-Effekte drastisch reduziert sein. Ein direkter Vergleich der Daten beider Instrumente sollte daher eine Abschätzung der Koinzidenz-Anfälligkeit der CAS ermöglichen.

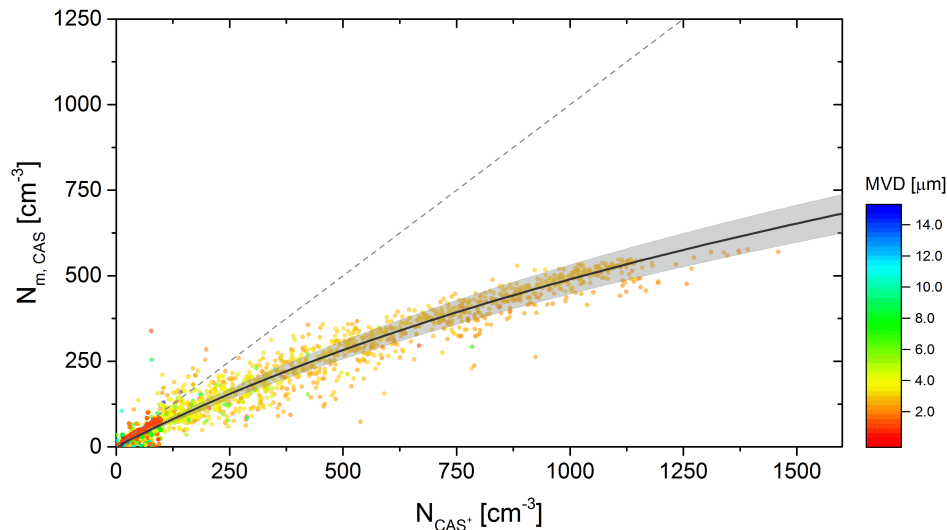


Abbildung 4.12 Direkter Vergleich der bei WeCare von CAS und CAS[†] im Kondensstreifen synchron gemessenen Anzahlkonzentrationen $N_{m,CAS}$ bzw. N_{CAS^\dagger} . Zudem sind mittlere Volumendurchmesser (MVD , farbkodiert) der zugrunde liegenden Größenverteilungen sowie ein exponentieller Fit an die Datenpunkte gezeigt.

In der WeCare-Konfiguration wurden CAS und CAS[†] an den beiden inneren Flügelstationen der Falcon installiert, was symmetriebedingt gleiche Strömungsverhältnisse an beiden Sondenpositionen gewährleistet. Dem Kampagnenziel folgend wurden relativ junge Kondensstreifen (Alter ≈ 5 min) verschiedener Boeing 747 auf typischen Reiseflughöhen untersucht. Atmosphärische Bedingungen und Eigenschaften der Eispartikel bzw. resultierender Größenverteilungen sind damit denen bei ECLIF hinreichend ähnlich, was die Anwendung der instrumentellen Erkenntnisse aus WeCare im Rahmen von ECLIF rechtfertigt. Abb. 4.12 zeigt die von CAS und CAS[†] bei WeCare synchron gemessenen Eispartikelkonzentrationen, $N_{m,CAS}$ bzw. N_{CAS^\dagger} , im direkten Vergleich. Dabei wurde die Untergrenze des eingehenden Größenbereichs für die CAS auf $0.62\ \mu\text{m}$ gesetzt, um einen zur CAS[†] identischen Partikelgrößenbereich in die Konzentrationsbestimmung einzubeziehen (vgl. Tab. 4.3 und 4.6). Mittlere Volumendurchmesser (MVD , farbkodiert) repräsentieren das mittlere Volumen der Partikel der zum jeweiligen Zeitpunkt bestimmten Größenverteilung.

Während von CAS und CAS[†] synchron gemessene Konzentrationen im Bereich $\leq 80\ \text{cm}^{-3}$ keine systematischen Abweichungen voneinander zeigen, wird im direkten Vergleich deutlich, dass die CAS-Messungen höhere Eispartikelkonzentrationen signifikant unterschätzten. Tab. 4.7 stellt die numerischen Werte für einige Konzentrationen explizit dar. Insgesamt wird damit deutlich, dass der bei ECLIF mit der

$N_{\text{CAS}\dagger}$ [cm^{-3}]	$N_{m,\text{CAS}}$ [cm^{-3}]	N -Unterschätzung der CAS [%]
250	154	38
500	283	43
800	413	48
1000	490	51

Tabelle 4.7 Unterschätzung der CAS-Konzentrationsmessung für ausgewählte Konzentrationen.

CAS aufgezeichnete Datensatz massiv von Koinzidenz-Artefakten betroffen ist. Andererseits ermöglicht die bei WeCare vorgefundene Korrelation zwischen $N_{m,\text{CAS}}$ und $N_{\text{CAS}\dagger}$ die Herleitung einer Funktion zur systematischen Korrektur der im ECLIF Datensatz impliziten Koinzidenz-Artefakte. Hierzu wurde ein exponentieller Kurvenverlauf an die Datenpunkte gefittet (s. Abb. 4.12) und zur Koinzidenzkorrektur der CAS-Daten herangezogen. Um Koinzidenz-Effekte korrigierte Anzahlkonzentrationen, N_{CAS} , ergeben sich damit nach

$$N_{\text{CAS}} = \alpha \left(e^{\beta N_{m,\text{CAS}}} - 1 \right), \quad \alpha = 1135.43 \text{ cm}^{-3}, \quad \beta = 1.29 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^3, \quad (4.3)$$

aus den von der CAS bei ECLIF gemessenen Konzentrationen, $N_{m,\text{CAS}}$, mit einer Unsicherheit von $\pm 12\%$. Die der Korrekturfunktion zugrunde liegende Datenbasis schränkt dabei deren Anwendungsbereich auf $N_{m,\text{CAS}} \leq 570 \text{ cm}^{-3}$ ein, was einem Wertebereich von $N_{\text{CAS}} \leq 1233 \text{ cm}^{-3}$ entspricht¹. Höhere $N_{m,\text{CAS}}$ können nicht nach Gl. 4.3 korrigiert werden, da für diese Konzentrationsbereiche bei der CAS nicht quantifizierbare Sättigungseffekte auftreten.

Voraussetzung für die Gültigkeit der vorgestellten Methode zur Koinzidenzkorrektur der CAS-Daten ist, dass die CAS[†] ihrerseits im relevanten Konzentrationsbereich nicht von Koinzidenz-Artefakten betroffen ist. Durch die (mit 500 μm) kleiner gewählte Lochblende kann bei der CAS[†] zwar das Auftreten von Koinzidenz-Effekten zu größeren Konzentrationen hin verschoben, jedoch keineswegs vollständig eliminiert werden. Hilfreich zur Beurteilung potentiell vorhandener Koinzidenz-Artefakte der CAS[†] erweisen sich aktuelle Studien (Braga et al. 2017, Jurkat-Witschas et al. 2019). So wurde gezeigt, dass von einer² CAS mit installierter 500- μm -Lochblende gemessene Anzahlkonzentrationen im Bereich $\leq 1500 \text{ cm}^{-3}$ sehr gut mit den von einer CDP simultan gemessenen übereinstimmen. Da eine unabhängige Analyse von Partikel-Transitzeiten der betreffenden CDP für Konzentrationen $\leq 1500 \text{ cm}^{-3}$ zudem keine Hinweise auf Koinzidenz liefert (Molleker 2013), kann geschlossen werden, dass dies auch für CAS-Instrumente mit installierten 500- μm -Lochblenden zutrifft, was damit das vorgestellte Korrekturverfahren rechtfertigt.

¹ Bei dem dieser Arbeit zugrunde liegenden ECLIF-Datensatz wurden diese Werte lediglich für eine Dauer von insgesamt 4 s beim Messflug am 22.09.2015 (F02) überschritten, welche in der Folge nicht weiter berücksichtigt wurden.

² Konkret: CAS des DLR, die zum Zeitpunkt jener Messungen (2014) mit einer 500- μm -Lochblende betrieben wurde. Die Installation der 800- μm -Lochblende erfolgte im Juli 2015.

Es sei erwähnt, dass die für die CAS ermittelten Werte der Unterschätzung vorliegender Eispartikelkonzentrationen (Tab. 4.7) erstaunlich gut mit den Abschätzungen aus Lance (2012) für flüssige Wassertropfen ($> 3 \mu\text{m}$) übereinstimmen. Letztgenannte Studie kommt für die darin verwendete CAS¹ zu dem Schluss, dass bei einer atmosphärischen Wolkentropfenkonzentration von 800 cm^{-3} die CAS-Messungen diese Konzentration um 49 % unterschätzen.

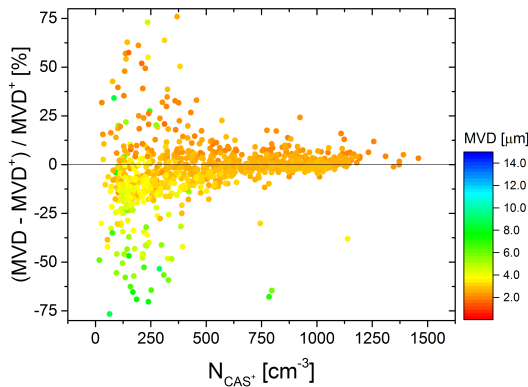


Abbildung 4.13 Relative Abweichungen der von CAS und CAS[†] bestimmten MVD in Abhängigkeit der Eispartikelkonzentration.

MVD^{\dagger} für große $N_{\text{CAS}^{\dagger}}$ gut überein, was auch als Indiz einer guten Größenkalibrierung beider Instrumente aufgefasst werden kann. Dass die Streuung der Datenpunkte für kleine $N_{\text{CAS}^{\dagger}}$ bzw. größere MVD zunimmt, liegt vermutlich an einer Kombination aus reduzierter Stichprobengröße und sich in Randbereichen oder alternden Kondensstreifen ausbildenden Inhomogenitäten. Im Gegensatz zu gemessenen Anzahlkonzentrationen, müssen von der CAS bestimmte Größen der Eispartikel in jungen Kondensstreifen also keiner Koinzidenzkorrektur unterzogen werden.

Im Gegensatz zu den Erfahrungen von Lance (2012) für CDP-Messungen flüssiger Wassertropfen ($> 3 \mu\text{m}$) kann hingegen im WeCare-Datensatz keine systematische Überschätzung der von der CAS bestimmten Eispartikelgrößen in Kondensstreifen ausgemacht werden. Abb. 4.13 zeigt relative Abweichungen der von CAS und CAS[†] simultan bestimmten mittleren Volumendurchmesser, MVD bzw. MVD^{\dagger} , in Abhängigkeit der Eispartikelkonzentration. Signifikante systematische Unterschiede zwischen MVD und MVD^{\dagger} sind über den gesamten Konzentrationsbereich nicht zu erkennen. Vielmehr stimmen MVD und

4.4 Bedeutung dieser Ergebnisse für Eispartikelmessungen in jungen Kondensstreifen (bei ECLIF)

Nach der ausführlichen Instrumentencharakterisierung, sollen die zentralen Ergebnisse für die CAS und die damit verbundenen Eispartikelmessungen in jungen Kondensstreifen bei ECLIF kurz zusammengefasst werden.

Betrachtet man die Unsicherheiten der der SV -Berechnung zugrunde liegenden Parameter, ergibt eine Abschätzung des systematischen Maximalfehlers einen Wert von $\pm 17\%$ für ΔSV der CAS. Nach Berücksichtigung der Unsicherheit der Funktion zur Koinzidenzkorrektur, folgt ein maximaler systematischer Fehler von $\pm 29\%$ für berechnete Partikelkonzentrationen $\leq 1200 \text{ cm}^{-3}$.

¹ Lochblendenkonfiguration (leider) nicht näher spezifiziert. Vermutung: 800- μm -Lochblende

Die für die Größenbestimmung der CAS abgeleiteten statistischen Fehler bewirken eine Verbreiterung und damit einhergehende Abflachung der Moden gemessener gegenüber atmosphärischer Größenverteilungen. Aus dem bestimmten Präzisionsfehler lässt sich abschätzen, dass eine typische PSD von Eispartikeln in Kondensstreifen (Peak bei $D_p \approx 2 - 4 \mu\text{m}$) im Mittel eine relative Aufweitung von etwa -2% hin zu kleineren und $+5\%$ hin zu größeren D_p erfährt. Da diese PSD-Verbreiterungen damit auf weiten D_p -Bereichen deutlich unter dem Auflösungsvermögen der - durch Mie-Resonanzen bedingt - breiten D_p -Bins liegen, relativiert sich die Auswirkung des Präzisionsfehlers in der Praxis der Kondensstreifenmessungen.

Der nach der Kalibrierung verbleibende systematische Fehler der Größenbestimmung gibt die Restunsicherheit an, inwieweit eine gemessene gegenüber einer atmosphärischen PSD verschoben sein kann. Aus dem Mittel der Werte der drei Verstärkerstufen für den relevanten Größenbereich ($\leq 20 \mu\text{m}$) ergibt sich ein Fehler von maximal $\pm 4\%$. Insgesamt beziffert sich damit die Größenunsicherheit bestimmter PSDs auf etwa $\pm 10\%$. Die maximalen Fehler für b_{ext} ($\pm 50\%$) und IWC ($\pm 62\%$) ergeben sich aus den zugrunde liegenden Unsicherheiten der Konzentrations- und Partikelgrößenbestimmung.

4.5 Berechnung der Emissionsindizes

Der Emissionsindex (EI) einer Größe gibt an, wie hoch deren Emissionen pro kg verbranntem Treibstoff sind. Für eine zu 100% effiziente Verbrennung ergibt sich der CO_2 -Emissionsindex, EI_{CO_2} , direkt aus dem H/C-Verhältnis des verbrannten Treibstoffs (Schulte & Schlager 1996). Ist EI_{CO_2} bekannt, können zudem Partikelkonzentrationen ($N_{\text{Eis}}, N_{\text{nvPM}}$) über eine gleichzeitige Messung der CO_2 -Erhöhung über dem atmosphärischen Hintergrund (ΔCO_2) zur Menge des verbrannten Treibstoffs in Relation gesetzt werden. Damit können resultierende Anzahl-Emissionsindizes nach

$$EI_N = \left(\frac{\Delta N}{\Delta\text{CO}_2} \right) \cdot \left(\frac{M_{\text{air}}}{M_{\text{CO}_2} \rho_{\text{air}}} \right) \cdot EI_{\text{CO}_2} \quad (4.4)$$

berechnet werden (Beyersdorf et al. 2014). Hierbei gehen neben den Erhöhungen der jeweiligen Partikel- und CO_2 -Konzentrationen über dem atmosphärischen Hintergrund (ΔN , ΔCO_2) die molaren Massen von Luft (M_{air}), CO_2 (M_{CO_2}), die Luftdichte (ρ_{air}) sowie der CO_2 -Emissionsindex (EI_{CO_2}) ein. In dieser Arbeit werden ΔN und ΔCO_2 aus zeitlicher Integration über Peakstrukturen der zugrunde liegenden Zeitreihen bestimmt. Diese - auf den Peakflächen beruhende - Berechnung trägt implizit unterschiedlichen instrumentellen Ansprechzeiten Rechnung und liefert dabei für jeden ΔN - bzw. ΔCO_2 -Peak ein EI -Wertepaar ($AEI_{\text{Eis}}, EI_{\text{nvPM}}$). Da Eispartikel nicht emittiert werden, sondern sich erst im Nachlauf bilden, wird für diese vom *scheinbaren Emissionsindex*¹, AEI , gesprochen. Während für konventionellen Treibstoff typischerweise ein Wert von 3160 g/kg für EI_{CO_2} angesetzt wird, werden in dieser Arbeit treibstoffspezifisch berechnete EI_{CO_2} genutzt. Auf Basis der explizit bestimmten H/C-Verhältnisse der verwendeten Treibstoffe (Schripp et al. 2018) ergeben sich EI_{CO_2} im Bereich von $3141 - 3166 \text{ g/kg}$ (s. Tab. 5.1).

¹ AEI = Apparent Emission Index

Wertet man Gl. 4.4 durch das Einsetzen bekannter Parameter teilweise aus, ergibt sich nach

$$EI_N [\text{kg}^{-1}] = 1.888 \cdot 10^9 \cdot \left(\frac{\Delta N [\text{cm}^{-3}]}{\Delta \text{CO}_2 [\text{ppmv}]} \right) \cdot \left(\frac{T_{\text{amb}} [\text{K}]}{p_{\text{amb}} [\text{hPa}]} \right) \cdot EI_{\text{CO}_2} [\text{g kg}^{-1}] \quad (4.5)$$

eine Darstellung, die auf die direkten Messgrößen abgestimmt ist.

Da es sich bei CO_2 um einen passiven Tracer handelt, können nach Gl. 4.4 berechnete EI s gewissermaßen als Mischungsverhältnisse¹ aufgefasst werden. Damit repräsentieren EI s um Mischung induzierte Verdünnungsprozesse korrigierte Partikelkonzentrationen, was sich im Kontext dynamischer Wirbelphasenmessungen als sehr hilfreich erweist. Insbesondere lassen sich damit gemessene Partikelkonzentrationen - unabhängig vom spezifischen Verdünnungsgrad der Stichprobe - direkt miteinander vergleichen und etwaige systematische Differenzen auf mikrophysikalische Prozesse im analysierten Kondensstreifen zurückführen.

Für die (koinzidenzkorrigierten) CAS-Messungen ergeben sich nach Gl. 4.4 die Eispartikelemissionen (AEI_{Eis}) im Größenbereich $0.5 - 50 \mu\text{m}$,

$$AEI_{\text{Eis}} = AEI_{\text{CAS}} \quad , \quad D_p \in [0.5, 50] \mu\text{m}. \quad (4.6)$$

Schwieriger hingegen gestaltet sich die Berechnung der Rußemissionen auf Basis der nvPM-Messungen in Kondensstreifen. Wie in Kap. 3.7.1 beschrieben, passiert neben Aerosolpartikeln auch ein signifikanter Anteil kleiner Eispartikel den Aerosoleinlass ($D_{\text{Cutoff}} \approx 1.9 \mu\text{m}$) und gelangt in das zum CPC führende Leitungssystem. Neben in der ursprünglichen Probe interstitiell vorliegendem Ruß tragen damit auch Rußresiduen von in der Leitung sublimierten Eispartikeln zu EI_{nvPM} bei,

$$EI_{\text{nvPM}} \quad , \quad D_p \in [0.01, 1.9] \mu\text{m}, \quad (4.7)$$

was grundlegende Bedeutung für die weitere Interpretation der Daten hat. Von Modellrechnungen (Kärcher & Yu 2009) motiviert, wird an dieser Stelle hypothetisch angenommen, dass auch in den bei ECLIF untersuchten Kondensstreifen die Eisbildung rußkontrolliert abläuft, also nahezu alle Eispartikel Rußresiduen besitzen. Dies würde bedeuten, dass Eispartikel mit $D_p \in [0.5, 1.9] \mu\text{m}$ sowohl von der CAS als auch vom CPC detektiert werden. Eine Berechnung der gesamten Rußkonzentration durch einfache Addition von N_{nvPM} und N_{CAS} würde damit den Anteil (f_{05}) der Eispartikel mit $D_p > 0.5 \mu\text{m}$, die den Aerosoleinlass mit der größenabhängigen Transfereffizienz $\mathcal{T}(D_p)$ passieren, doppelt zählen. Um die Doppelzählung zu vermeiden, wurde f_{05} durch Integration des Produkts aus normierter Größenverteilung der Eispartikel und deren Transfereffizienz berechnet,

$$f_{05} = \frac{1}{N_{\text{CAS}}} \cdot \int_{0.5 \mu\text{m}}^{\infty} \mathcal{T}(D_p) \cdot \frac{dN_{\text{CAS}}}{d \log D_p} \quad d \log D_p. \quad (4.8)$$

¹ Mischungsverhältnis bzgl. der CO_2 -Konzentration bzw. der verbrannten Treibstoffmasse.

Dabei wurde f_{05} für jede im Kondensstreifen genommene Stichprobe auf Basis der gemessenen PSD und der für die jeweils vorherrschenden Bedingungen berechneten $\mathcal{T}(D_p)$ explizit bestimmt.

Damit ergibt sich nach

$$EI_{\text{Ruß}} = EI_{\text{nvPM}} - f_{05} \cdot AEI_{\text{Eis}} \quad , \quad D_p \in [0.01, 0.5] \mu\text{m} \quad , \quad (4.9)$$

der Rußemissionsindex $EI_{\text{Ruß}}$, zu dem neben interstitiell vorliegenden Rußpartikeln $> 10 \text{ nm}$ auch Rußresiduen aller Eiskristalle mit $D_p < 0.5 \mu\text{m}$ beitragen. $EI_{\text{Ruß}}$ und AEI_{Eis} erhalten ihre Beiträge also aus disjunkten Partikelgrößenbereichen. Die Festlegung des Grenzdurchmessers zu $0.5 \mu\text{m}$ wird durch den Messbereich der CAS motiviert, ist also instrumentell begründet.

Es sei betont, dass es sich aus experimenteller Sicht bei der obigen Annahme der von Ruß kontrollierten Eisbildung um eine Hypothese handelt, die im Rahmen der ECLIF-Messungen untersucht werden soll. Anhand der eingeführten Variablen EI_{nvPM} , $EI_{\text{Ruß}}$ und AEI_{Eis} wird geprüft, ob sich diese Hypothese experimentell verifizieren oder widerlegen lässt. Dazu wird in der weiteren Auswertung angenommen, dass μm -kleine Teilchen und CO_2 -Moleküle in großskaligen turbulenten Bedingungen bzw. Wirbeln gleichermaßen vermischen, was aus fluiddynamischer Perspektive gerechtfertigt erscheint.

KAPITEL 5

Die Flugzeugmesskampagne ECLIF

Primäres Ziel der Kampagne ECLIF (Emissions and Climate Impact of Alternative Fuels) ist es, durch in-situ Messungen zu untersuchen, ob eine Reduktion des Aromatengehalts von Treibstoffen zu systematisch geringeren mittleren Eispartikelkonzentrationen in Kondensstreifen führt. Zwar stellen globale Modelle insgesamt einen deutlichen Trend zu reduzierten Klimawirkungen von Kondensstreifen (-Zirren) mit geringeren Eispartikelkonzentrationen fest, die Rechnungen sind jedoch mit erheblichen Unsicherheiten behaftet. Um die bestehenden Unsicherheiten weiter zu reduzieren, sind die Modelle auf die genaue Charakterisierung der Triebwerks- bzw. Eisemissionen sowie der im Nachlauf ablaufenden Prozesse (Eispartikelbildung und -sublimation) angewiesen, was die ECLIF-Messungen weiter motiviert.

Im Vordergrund der Messungen steht dabei die Quantifizierung der Eispartikelemissionen während der Wirbelphase, da es die Eigenschaften des Kondensstreifens in diesem jungen Stadium sind, die seine weitere Entwicklung zum Kondensstreifen-Zirrus und folglich auch die Klimawirkung maßgeblich bestimmen. Eine ergänzende Rußpartikelmessung soll Aufschluss darüber geben, inwiefern die Hypothese der von Ruß kontrollierten Eisbildung der experimentellen Überprüfung standhält, oder ob vielmehr ein Einfluss von organischem und Sulfataerosol in Betracht gezogen werden muss. Idealerweise ermöglicht die umfangreiche Instrumentierung zur Messung von Eispartikeln (CAS, 2D-S), Rußpartikeln (CPC) und Spurengasen (H_2O : CR-2, CO_2 : Picarro) dabei direkte Einblicke in im Kondensstreifen ablaufende mikrophysikalische Prozesse, sodass sich insgesamt ein schlüssiges Bild, von den Triebwerksemissionen bis hin zur Struktur der Kondensstreifen am Ende der Wirbelphase, zeichnen lässt. Auf Basis des gewonnen Prozessverständnisses soll letztlich die Analyse der potentiellen Treibstoffabhängigkeit der AEI_{Eis} und $EI_{\text{Ruß}}$ erfolgen.

5.1 Durchführung der Flugzeugmesskampagne

Um die aufgeworfenen Fragen experimentell anzugehen, wurden im Herbst 2015 (22.09 - 09.10) insgesamt 11 Messflüge durchgeführt. Die in Oberpfaffenhofen stationierte Falcon diente dabei als Messplattform zur in-situ Vermessung von Kondensstreifen, die sich im Nachlauf des DLR Advanced Technology Research Aircraft (ATRA) vom Typ Airbus A320 gebildet haben. Der mit zwei IAE V2527-A5 Triebwerken ausgestattete

ATRA war in Manching stationiert und wurde vor jedem Flug mit den zu testenden Treibstoffen betankt.

Insgesamt standen sechs Treibstoffe mit unterschiedlichen chemischen Zusammensetzungen zur Verfügung (Schripp et al. 2018). Tab. 5.1 zeigt ausgewählte Eigenschaften der für diese Arbeit relevanten Treibstoffe. Durch Mischen zweier gewöhnlicher petroleumbasierter Jet A-1 Referenztreibstoffe (Ref1, Ref2) mit einem im Fischer-Tropsch-Prozess hergestellten vollsynthetischen, paraffinbasierten Treibstoff (SPK), wurden semisynthetische Treibstoffe unterschiedlicher Aromatengehalte (SSJF1,2,3) gewonnen. Die Her- und Bereitsstellung sowie die chemischen Analysen der Treibstoffe erfolgten durch das Institut für Verbrennungstechnik (DLR, Stuttgart).

Treibstoff	Ref1	Ref2	SSJF3	SSJF1
H/C-Verhältnis (ASTMD7171) []	1.887	1.896	1.941	1.998
Aromaten [vol%]	18.8	18.4	15.7	11.1
Schwefel [mass%]	0.117	0.135	0.159	0.057
EI_{CO_2} [g kg ⁻¹]	3166	3164	3154	3141
EI_{H_2O} [g kg ⁻¹]	1223	1228	1253	1284
Verbrennungswärme [kJ g ⁻¹]	42.8	43.2	43.3	43.5

Tabelle 5.1 Ausgewählte Eigenschaften der für diese Arbeit relevanten Treibstoffe auf Basis von Schripp et al. (2018). Hierbei beziehen sich das H/C-Verhältnis auf die Stoffmengen, der Aromatengehalt auf den Volumen- und der Schwefelgehalt auf den Massenanteil.

Die Ausarbeitung und Verwirklichung einer durchdachten Messstrategie ist nicht trivial, da verschiedene Aspekte gleichermaßen berücksichtigt werden müssen. Insbesondere gilt es, neben instrumentellen und operationellen Überlegungen auch solche der Flugsicherheit in die Flugplanung einzubeziehen. Die Strategie während ECLIF bestand darin, an Tagen, an denen mit der Bildung persistenter Kondensstreifen zu rechnen war (großflächig eisübersättigte Gebiete vorhergesagt), die beiden ATRA Triebwerke gleichen Treibstoff verbrennen zu lassen und Kondensstreifen im Alter von etwa 1-2 min zu vermessen. War hingegen nicht mit der Bildung langlebiger Kondensstreifen zu rechnen, wurden bei $T_{amb} < T_{SA}$ initial gebildete Kondensstreifen im Nahfeld (Alter 1-2 s) vermessen. Da im Nahfeld (Flugzeugabstand ≈ 200 m) die Zuordnung der Emissionen zu einem der beiden Triebwerke problemlos möglich ist, wurden bei dieser Strategie mitunter auch unterschiedliche Treibstoffe in den beiden Triebwerken verbrannt.

Da sich jedoch herausgestellt hat, dass die CAS bei den Nahfeldmessungen von Koinzidenz hervorgerufene Sättigungseffekte zeigt, also hohe Eispartikelkonzentrationen ($> 10^4$ cm⁻³, Kärcher et al. (1996)) in sehr jungen (1-2 s) Kondensstreifen nicht auflösen kann, werden in dieser Arbeit ausschließlich Wirbelphasenmessungen bei Altern von 1-2 min behandelt. Bei letzteren wurden initial hohe Konzentrationen nukleierter Eispartikel durch Verdünnungsprozesse bereits signifikant reduziert, sodass die Wirbelphasenmessungen einen Konzentrationsbereich abdecken, in dem die CAS - nach erfolgter Koinzidenzkorrektur - belastbare Daten liefert.



Abbildung 5.1 Die beiden bei ECLIF beteiligten Flugzeuge in Manching. Der ATRA (links) erzeugte Kondensstreifen, die von auf der Falcon (rechts) installierten Instrumenten vermessen wurden. Die Treibstofftanks (Hintergrund) dienen zur Lagerung der eigens für ECLIF hergestellten Treibstoffe.

Abb. 5.2 zeigt die Falcon GPS-Koordinaten der drei Messflüge (F02, F10, F11), bei denen sich auf Flughöhen > 10 km langlebige bzw. persistente Kondensstreifen bildeten, die in der Wirbelphase vermessen werden konnten. Da Falcon (Oberpfaffenhofen) und ATRA (Manching) an unterschiedlichen Orten stationiert waren, fand das Rendezvous beider Flugzeuge in einem von der Flugsicherung für die Messflüge freigegebenen Luftraum (TRA¹ Allgäu oder TRA Sachsen) statt. Den Vorgaben einer vorab erfolgten Risikoeinschätzung zu Wirbelphasenmessungen hinter dem ATRA folgend, tauchte die Falcon ab Mindestabständen beider Flugzeuge von etwa 5 nm (1 Seemeile = 1852 m) in den Kondensstreifen ein, woraufhin sich diese Distanz, aufgrund der im Vergleich zum ATRA geringeren Geschwindigkeit der Falcon, sukzessive vergrößerte. Um das von der Flugsicherung freigegebene Gebiet nicht zu verlassen, fanden die Verfolgungsflüge in Schleifen statt. Im Anschluss an jeden Messflug wurden zudem die Triebwerksemissionen des ATRA am Boden für verschiedene Lastzustände und die jeweils im Flug verbrannten Treibstoffe vermessen (Schripp et al. 2018).

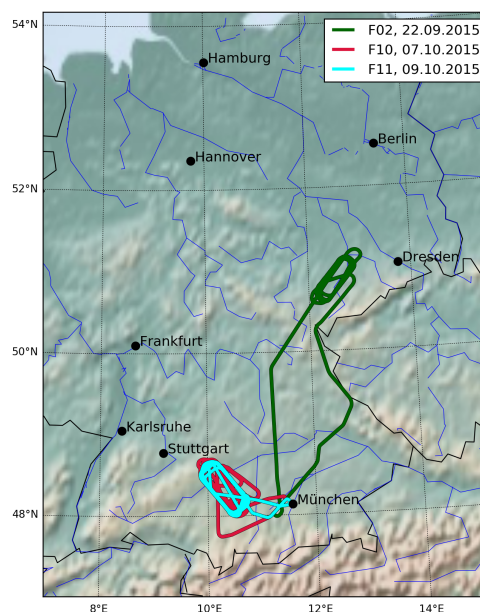


Abbildung 5.2 Übersicht über die Routen der drei Messflüge (F02, F10, F11), bei denen Wirbelphasenmessungen möglich waren.

Da die von der Falcon und vom emittierenden ATRA bestimmten Druckhöhen systematische Unterschiede aufweisen², wird im Weiteren die relative Position der

¹ TRA = Temporary Reserved Airspace

² Das ist nicht weiter verwunderlich, da kommerziell eingesetzte Altimeter einen für wissenschaftliche Zwecke sehr großen Toleranzbereich von etwa 100 ft auf 10 km Höhe besitzen.

Falcon im Kondensstreifen auf Basis der GPS-Daten ermittelt. So können relative vertikale (horizontale) Positionen zwischen beiden Flugzeugen mit Unsicherheiten von ± 15 (10) m bestimmt werden¹. Insbesondere für die Vertikalposition konnte die angegebene Unsicherheit im Rahmen der Nahfeldmessungen experimentell als oberes Limit bestätigt werden. Taucht die Falcon von oben in den Nachlauf des ATRA ein, so zeigen CPC- und CAS-Zählraten in dem Moment einen sprunghaften Anstieg, in dem der visuelle Eindruck aus dem Cockpit auf etwa gleiche Flughöhen beider Flugzeuge schließen lässt, was synchron mit - im Rahmen der angegebenen Unsicherheit - übereinstimmenden GPS-Höhen einhergeht.

Im Folgenden werden Wirbelphasenmessungen der drei Flüge (F10, F02, F11), bei denen sich in einer hinreichend feuchten Atmosphäre Kondensstreifen mit Lebensdauern ≥ 2 min gebildet haben, zunächst separat vorgestellt und diskutiert. Ausgehend von Zeitreihen der Eis-, Ruß- und CO₂-Messungen werden entsprechende Vertikalprofile abgeleitet. Um mikrophysikalische Prozesse gezielt zu untersuchen, liegt der Fokus dabei auf einer Analyse vertikaler Strukturen der Eis- und Rußemissionsindizes sowie auf den Größenverteilungen der Eispartikel. Da sich die Hintergrundfeuchten der drei Flüge recht deutlich unterscheiden, ermöglichen es die Messungen, Kondensstreifenstrukturen in eisübersättigten (F10) und -untersättigten (F11) Umgebungen direkt miteinander zu vergleichen. Nach der Identifikation und Charakterisierung der in der Wirbelphase relevanten Prozesse wird der Einfluss des Treibstoffs auf die Zahl emittierter Eis- bzw. Rußpartikel bestimmt.

Vorweg sei angemerkt, dass es keinesfalls trivial ist, einem Kondensstreifen, der seinerseits eine zeitlich und räumlich sehr inhomogene Struktur aufweist, mittlere Werte gewisser Messgrößen zuzuordnen. So ist es in der Praxis der in-situ Messungen kaum möglich das Querschnittsprofil eines Kondensstreifens homogen zu vermessen, geschweige denn dies für verschiedene Alter zu erreichen. Vielmehr müssen vereinzelt gewonnene Stichproben unter Berücksichtigung intern ablaufender (mikrophysikalischer und dynamischer) Prozesse in einem gemeinsamen Kontext betrachtet werden. Insbesondere sollte die Problematik bedacht werden, dass es leicht passieren kann, Artefakte einer unterschiedlich erfolgten Stichprobennahme fälschlicherweise als physikalischen Effekt zu deuten. Nichtsdestotrotz kann es nach einer gründlichen Auseinandersetzung mit den Daten durchaus zweckmäßig sein, einen Durchschnitt zu bilden, wobei vermutlich je nach Einsatzzweck eine andere Art der Durchschnittsbildung zu präferieren sein wird.

5.2 Kondensstreifen aus konventionellem Jet A-1 Treibstoff (Ref2)

Während dem Messflug F10 am 07.10.2015 verbrannte der ATRA Jet A-1 Referenztreibstoff Ref2 in beiden Triebwerken und erzeugte in der TRA Allgäu auf einer Druckhöhe von 35 000 ft (≈ 10.7 km) bei einer Umgebungstemperatur von 215.5 K persistente Kondensstreifen. Dabei variierten die mittleren Umgebungsfeuchten (RH_i) in der Messregion auf dem ATRA Fluglevel in der vom Kondensstreifen unbeeinflussten Atmosphäre zwischen 115 und 125 %. Mit einer für den ATRA angenommenen

¹ V. Dreiling (DLR, FX), pers. Kommunikation (2017)

Antriebseffizienz (*Propulsion Efficiency*) von 0.3 ergibt sich $T_{SA} = 224.9 \pm 0.7$ K, womit die Kondensstreifenbildung bei Umgebungstemperaturen von etwa 9 K unterhalb T_{SA} erfolgte.

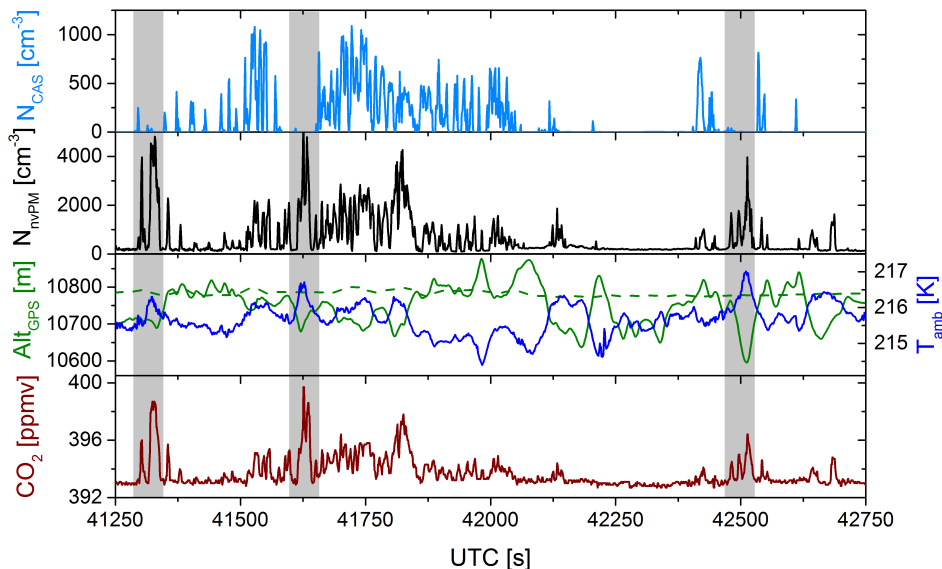


Abbildung 5.3 1-Hz-Zeitreihen der 25-minütigen Sequenz der Wirbelphasenmessungen im Kondensstreifen des Ref2 verbrennenden ATRA. Gezeigt sind Konzentrationen von Eispartikeln mit $D_p > 0.5 \mu\text{m}$ (N_{CAS}) und nicht-volatiler Partikel des Größenbereichs $0.01\text{-}1.9 \mu\text{m}$ (N_{nvPM}), Falcon GPS-Höhe und Umgebungstemperatur (durchgezogene Linien), ATRA GPS-Höhe (gestrichelte Linie), sowie CO_2 -Konzentrationen. Auffallend ist, dass lokale Minima der Flughöhe der Falcon mit maximalen N_{nvPM} und minimalen N_{CAS} einhergehen (graue Bereiche). Konstante Schubeinstellungen des ATRA resultierten in einem mittleren Treibstoffverbrauch von 1180 kg h^{-1} je Triebwerk. Quelle: Kleine et al. (2018)

Abb. 5.3 zeigt Zeitreihen der Wirbelphasenmessungen, die bei Kondensstreifenaltern von 39-132 s bzw. Flugzeugabständen von 6.9-27.1 km stattfanden. Die Falcon beprobte den Kondensstreifen in seinem gesamten vertikalen Profil und deckte dabei einen Höhenbereich von etwa 150 m um bzw. unter der Flughöhe des ATRA ab. Typischerweise resultieren aus den jeweiligen Kondensstreifenpassagen peakförmige Signalstrukturen unterschiedlicher Dauer ($\approx 3\text{-}20$ s), die einerseits auf Inhomogenitäten im Kondensstreifen zurückzuführen sind, aber vor allem widerspiegeln, dass es für die Piloten eine Herausforderung darstellt, die Falcon bei Wirbelphasenmessungen dauerhaft im Kondensstreifen zu positionieren. Gegenüber dem atmosphärischen Hintergrund wurden maximal erhöhte Werte von etwa 1100 cm^{-3} (ΔN_{CAS}), 4500 cm^{-3} (ΔN_{nvPM}) und 6 ppmv (ΔCO_2) gemessen. Dabei werden Datenpunkte dem Kondensstreifen zugeordnet, falls simultan erhöhte Konzentrationen von Eispartikeln ($\geq 1 \text{ cm}^{-3}$) und CO_2 ($\geq 1 \text{ ppmv}$) vorliegen.

Das Einhergehen maximaler N_{nvPM} mit minimalen N_{CAS} und lokalen Minima der Falcon Flughöhe (grau hervorgehobene Bereiche in Abb. 5.3) motiviert eine tiefere Analyse der vertikalen Kondensstreifenstruktur. Insbesondere soll die Hypothese der

Eispartikelsublimation im absinkenden, sich erwärmenden Wirbelsystem untersucht werden. Qualitativ wird dabei der obere (untere) Teil des Kondensstreifens als sekundärer (primärer) Nachlauf bezeichnet, während die quantitative Analyse auf Basis der Absinktiefe des Wirbels unter die ATRA Flughöhe ($\Delta z > 0$) erfolgt.

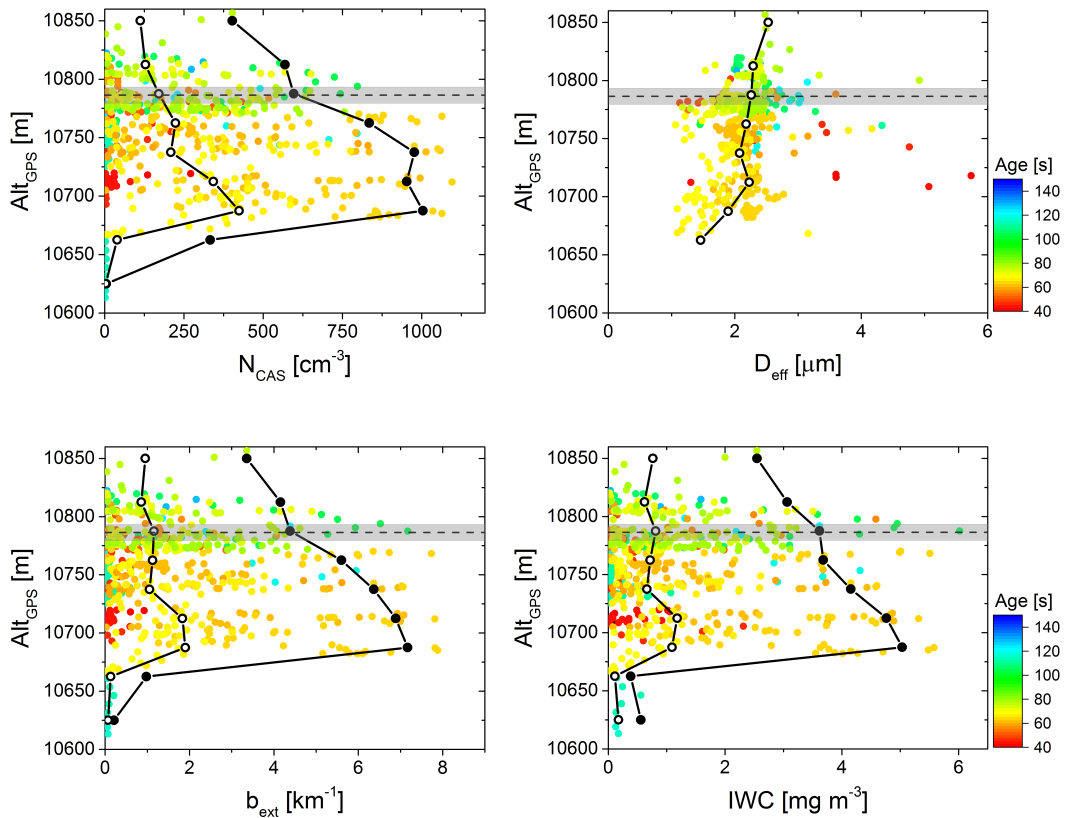


Abbildung 5.4 Vertikalprofile der Eispartikelkonzentrationen mit $D_p > 0.5 \mu\text{m}$ (N_{CAS}) und daraus abgeleitete Profile von D_{eff} , b_{ext} und IWC , jeweils in Abhängigkeit des Kondensstreifenalters (farbkodiert) und auf die GPS-Flughöhe des ATRA bezogen ($10786 \pm 7 \text{ m}$, grau). Weiter sind 95%-Perzentile (ausgefüllte Punkte) und Mediane (offene Punkte) der Höhenbins eingezeichnet.

In Abb. 5.4 sind Vertikalprofile verschiedener Größen gezeigt, die auf Grundlage der von der CAS zu unterschiedlichen Kondensstreifenaltern gemessenen PSDs berechnet wurden (s. Kap. 3.6). Das Kondensstreifenalter wurde aus den jeweiligen Flugzeugabständen unter Berücksichtigung der Winddrift bestimmt. Die typischerweise peakförmig erhöhten Konzentrationsverläufe (s. Abb. 5.3) liegen dabei meist horizontal orientiert in den Vertikalprofilen, d.h. bei etwa gleichbleibender Höhe bzw. Absinktiefe erhöht sich N_{CAS} ausgehend vom Wert des Hintergrunds auf einen Maximalwert, um dann wieder abzufallen. Um diese Peakstrukturen in den Vertikalprofilen abzubilden, sind neben 1-Hz-Daten auch Mediane und 95%-Perzentile der Höhenbins eingezeichnet. Während Mediane mittlere Messwerte im Kondensstreifen repräsentieren, spiegeln sich in den 95%-Perzentilen zentrumsnahe Maximalwerte wider. Es zeigt sich, dass der Kondensstreifen bei einem Alter $\leq 132 \text{ s}$ in der Verti-

kale einen Bereich aufspannt, der von etwa 120 m unterhalb bis 25 m oberhalb des Emissionslevels reicht (systemtische Unsicherheit ± 15 m). Maximale N_{CAS} wurden bei Altern ≈ 70 s unterhalb der ATRA Flughöhe, also im primären Nachlauf bei positiven Δz , gefunden. Im sekundären Nachlauf wurden bei etwas höheren Altern (≈ 100 s) geringere Maximalwerte von N_{CAS} gemessen. Für Extinktion und Eiswassergehalt ergeben sich auf Basis der Mediane und 95%-Perzentile zu N_{CAS} ähnliche Vertikalprofile. Maximal gemessene Werte für b_{ext} und IWC betragen 7.8 km^{-1} bzw. 6.0 mg m^{-3} , wobei diesbezüglich kein signifikanter Unterschied zwischen sekundärem und primärem Nachlauf auszumachen ist.

Da alle gezeigten Stichproben dem Kondensstreifen zuzuordnen sind, also simultan erhöhte ΔN_{CAS} und ΔCO_2 aufweisen, können die großen Unterschiede zwischen minimalen Werten, Medianen und 95%-Perzentilen in den Höhenbins auf Konzentrationsabfälle vom Zentrum des Kondensstreifens hin zu dessen Rand zurückgeführt werden. Zu einem gewissen Teil können die Unterschiede auch durch die verschiedenen Kondensstreifenalter oder Inhomogenitäten entlang der Flugrichtung¹ verursacht worden sein. Diese Diskussion lässt schon erahnen, wie schwierig sich ein belastbarer Vergleich verschiedener Kondensstreifen anhand stichprobenartig gemessener absoluter Konzentration gestalten kann, da letztere selbst in einem einzigen Kondensstreifen schon deutlich variieren können.

Zur besseren Einordnung der Messungen ist in Abb. 5.5 das aus den CR-2-Daten abgeleitete RH_i -Profil der vom Kondensstreifen unbeeinflussten Atmosphäre gezeigt. Hierbei fanden alle in der Messregion vor, nach und zwischen den Kondensstreifenpassagen aufgezeichneten Daten Eingang, die keine synchron erhöhten N_{CAS} , N_{ivPM} und CO_2 -Konzentrationen zeigten.

Dargestellt sind Mediane (offene Punkte), 25%- bzw. 75%-Perzentile (grauer Bereich) sowie 5%- bzw. 95%-Perzentile (blauer Bereich) in den Höhenbins. Es zeigt sich, dass das Absinken der Wirbel beginnend auf der Flughöhe des ATRA bis hin zu Absinktiefen von ≈ 120 m in einer eisübersättigten Umgebung erfolgt, während für Höhen unterhalb ≈ 10650 m Eisuntersättigung vorliegt. In der Gegenüberstellung des RH_i -Profils mit den Eispartikelmessungen wird deutlich, dass der Kondensstreifen gerade jenen Bereich unterhalb der ATRA Flughöhe aufspannt, in dem eisübersättigte Umgebungsbedingungen vorliegen. Inwieweit sich die breite Streuung der vom CR-2 bestimmten RH_i auf in der Messregion räumlich variierende RH_i zurückführen lässt,

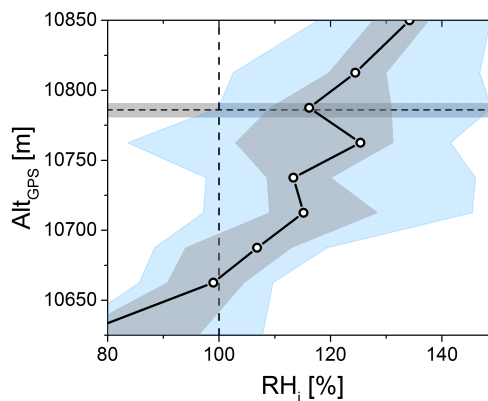


Abbildung 5.5 RH_i -Profil des atmosphärischen Hintergrunds in der Messregion.

¹ Diese können auf Skalen ≥ 180 m aufgelöst werden.

oder vielmehr durch die langsame instrumentelle Ansprechzeit¹ bedingt ist, kann nicht abschließend geklärt werden.

Effektivdurchmesser (s. Abb. 5.4) spannen einen Bereich von etwa 1.5 bis $3\ \mu\text{m}$ auf. Dabei zeigen die D_{eff} einen deutlichen Trend zu kleineren Werten für größere Absinktiefen. Dies ist als starkes Indiz der Eispartikelsublimation im absinkenden Wirbel zu werten, da es aus fluiddynamischen Gesichtspunkten unplausibel erscheint, dass die Prozessierung kleiner Partikel ($\approx 2\ \mu\text{m}$) in absinkenden Wirbeln (Dimension von einigen Metern) größenselektiv erfolgt. Es sei erwähnt, dass Sublimationsprozesse im absinkenden Wirbel einerseits und dessen Einbettung in einer eisübersättigten Atmosphäre andererseits, durchaus miteinander vereinbar sind, sofern die Einmischung des atmosphärischen Hintergrunds in den Wirbel ein gewisses Maß nicht übersteigt. Die Ausreißer sehr großer D_{eff} haben ihren Ursprung in vereinzelt anzutreffenden großen Eiskristallen ($\geq 25\ \mu\text{m}$) bei zugleich geringen N_{CAS} und sind vermutlich Ausdruck eines schwachen Zirrenhintergrunds.

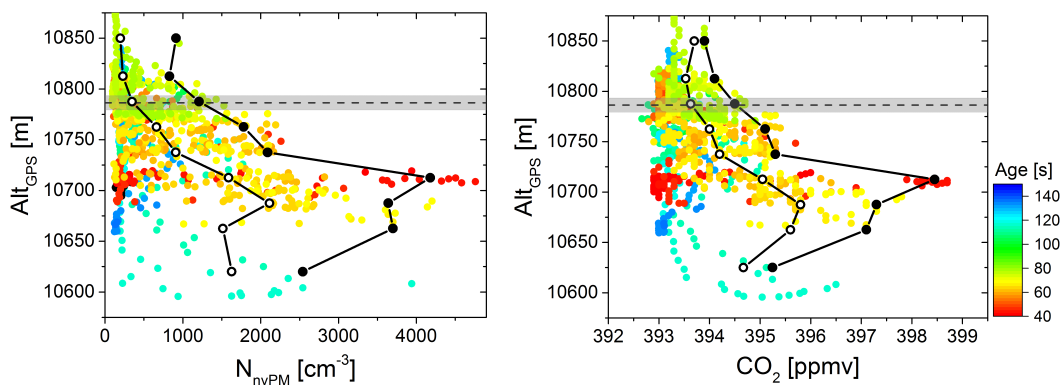


Abbildung 5.6 Vertikalprofile von N_{nvPM} und der CO_2 -Konzentration, jeweils in Abhängigkeit des Kondensstreifenalters (farbkodiert) und bezogen auf die GPS-Flughöhe des ATRA ($10786 \pm 7\ \text{m}$, grau). Weiter sind 95%-Perzentile (ausgefüllte Punkte) und Mediane (offene Punkte) der Höhenbins eingezeichnet.

Abb. 5.6 zeigt gewonnene Vertikalprofile von N_{nvPM} und der CO_2 -Konzentration. Im Vergleich zu den Konzentrationen der Eispartikel zeigt sich anhand der N_{nvPM} - und CO_2 -Profile noch deutlicher, dass der Großteil der zum Ende der Jetphase vorliegenden Triebwerksemissionen in die sich ausbildenden Wirbel eingemischt und gewissermaßen abgekapselt nach unten prozessiert wird. Maximale N_{nvPM} und CO_2 -Konzentrationen werden im primären Wirbel bei Absinktiefen von etwa $80\ \text{m}$ und den geringsten vermessenen Altern ($\approx 40\ \text{s}$) gefunden. Dem steht eine deutlich erhöhte Einmischung des atmosphärischen Hintergrunds im sekundären Nachlauf gegenüber, was sich in

¹ Der RH_i -Bestimmung liegen gewissermaßen zwei Zeitskalen zugrunde. Während einige Umgebungsparameter ($T_{\text{amb}}, p_{\text{amb}}$) sekundlich vorliegen, kann es mitunter Minuten bis zur Ausbildung einer konstant dicken Eisschicht dauern, auf welcher die $\mu_{\text{H}_2\text{O}}$ -Messung beruht. Zeitreihen von RH_i sind damit von einem Nachschwingverhalten betroffen, das sich in den Vertikalprofilen als Hysterese-bedingte Verbreiterung manifestiert.

erhöhten Verdünnungen der Stichproben und damit reduzierten Konzentrationen widerspiegelt.

Eine Auswertung der Bilder der Falcon-Cockpitkamera liefert keine Hinweise darauf, dass es systematische Unterschiede bei der Stichprobennahme zwischen Messungen im sekundären und primären Nachlauf gab. Bei allen Absinktiefen erfolgten die Messungen sehr nahe am Kondensstreifenzentrum, wobei die zahlreichen Einflüge und Durchquerungen des Kondensstreifens in etwa zufällig orientiert erfolgten. Insbesondere kann ausgeschlossen werden, dass die vergleichsweise geringen Konzentrationen im sekundären Nachlauf auf möglicherweise systematisch am Rand erfolgte Messungen (Artefakt der Stichprobennahme) zurückführbar wären. Damit lässt sich die Interpretation der gemessenen Konzentrationsunterschiede als Eigenschaft des Kondensstreifens rechtfertigen. Inwieweit neben Ein- und Ausmischungsprozessen in den bzw. aus dem Wirbel auch das tendenziell höhere Kondensstreifenalter bei den Messungen im sekundären Nachlauf ursächlich für diese Beobachtung ist, lässt sich jedoch nicht abschließend klären.

Insgesamt vermitteln die Daten einen Eindruck der dreidimensionalen Struktur des Kondensstreifens, die durch deutliche Unterschiede absoluter Partikel- und CO_2 -Konzentrationen je nach Alter und Messposition im Querschnittsprofil des Kondensstreifens geprägt ist. Um die weitere Diskussion der Partikelemissionen zu erleichtern und mikrophysikalische Prozesse gezielt zu untersuchen, soll im Folgenden der Einfluss verschiedener Verdünnungsgrade der Stichproben berücksichtigt werden. Zu diesem Zweck werden nach Gl. 4.4 Emissionsindizes berechnet, die durch den Bezug der Partikelkonzentrationen zu simultan gemessenen CO_2 -Konzentrationen gewissermaßen als Mischungsverhältnisse definiert - und damit unabhängig von Verdünnungsprozessen - sind. Insbesondere sollten Emissionsindizes passiver Tracer unabhängig von der Prozessierung im Wirbel sein und folglich unabhängig vom Ort der Stichprobennahme im Kondensstreifen konstante Werte annehmen. Im Umkehrschluss sind sich im Wirbelverlauf systematisch ändernde EI einer Größe ein eindeutiger Hinweis auf im Wirbel ablaufende mikrophysikalische (oder chemische) Prozesse.

Abb. 5.7 zeigt resultierende Vertikalprofile von AEI_{Eis} und EI_{NVPM} . Für AEI_{Eis} ergeben sich höchste Werte bei kleinen Absinktiefen mit einem Maximum von $3.7 \times 10^{15} \text{ kg}^{-1}$ bei $\Delta z = -12 \text{ m}$. Weiter ist ein deutlicher Trend zu kleineren AEI_{Eis} für größere Absinktiefen zu erkennen, der, in Verbindung mit dem für D_{eff} gefundenen Vertikalprofil (s. Abb. 5.4), einen experimentellen Nachweis der Eispartikelsublimation im absinkenden Wirbel darstellt. Gegenüber dem Emissionsniveau reduzieren sich die AEI_{Eis} im betrachteten Wirbel durch Eispartikelsublimation um etwa 75 % für maximal vorgefundene Absinktiefen von etwa 100 m. Dem Vertikalprofil der vom Kondensstreifen unbeeinflussten Umgebungfeuchte (Abb. 5.5) nach zu urteilen, liegen bis zu einer Absinktiefe von $\approx 120 \text{ m}$ eisübersättigte Bedingungen vor. Die beobachteten Sublimationsverluste können damit eindeutig auf adiabatische Erwärmung im absinkenden Wirbel und damit einhergehende reduzierte RH_i zurückgeführt werden. Das Einmischen eisuntersättigter Luft in den Wirbel scheidet als mögliche Erklärung aus.

Im Vergleich zu AEI_{Eis} ergibt sich ein leicht entgegengesetzter Δz -Trend für EI_{NVPM} ,

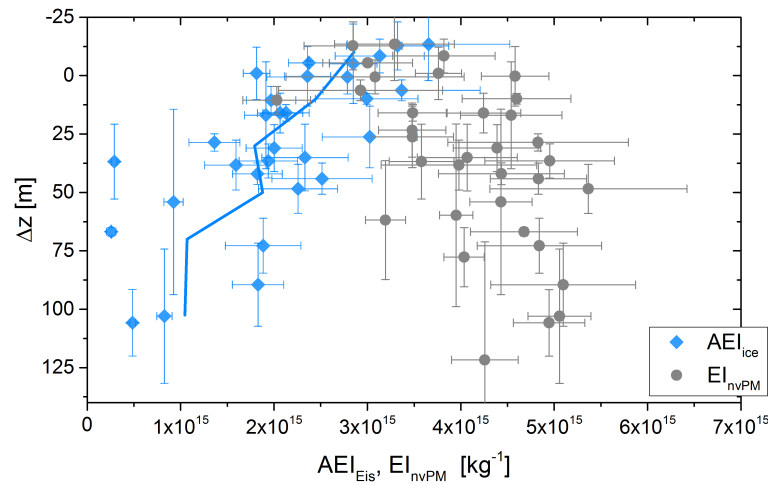


Abbildung 5.7 Vertikalprofile von simultan gemessenen AEI_{Eis} (blaue Rauten) und EI_{nvPM} (graue Punkte). $\Delta z > 0$ stehen für positive Absinktiefen und entsprechen Höhen unterhalb der ATRA Flughöhe. Letztere liegt bei $\Delta z = 0$. Für AEI_{Eis} sind Mittelwerte der Δz -Bins verbunden (blaue Linie). Die Δz wurden als $N_{\text{CAS,nvPM}}$ -gewichtete Mittelwerte berechnet, wobei entsprechende Fehlerbalken den von der Falcon während der Datennahme durchquerten Höhenbereich abdecken. Fehlerbalken für Emissionsindizes repräsentieren die jeweiligen Unsicherheiten bei der Bestimmung des CO_2 - und $N_{\text{CAS,nvPM}}$ -Hintergrunds.

gekennzeichnet von zunehmend größeren Werten von bis zu $5.3 \times 10^{15} \text{ kg}^{-1}$ im absinkenden Primärwirbel. Insgesamt betrachtet fallen die EI_{nvPM} höher als die AEI_{Eis} aus. Da prinzipiell davon ausgegangen werden muss, dass nur ein gewisser Teil vorhandener Nukleationskerne aktiviert wird und sich initial gebildete Eispartikelkonzentrationen in der Folge durch Sublimation reduzieren können, ist dies ein starkes Indiz für eine rußkontrolliert ablaufende Eisbildung. Weiter lässt sich das Einhergehen reduzierter AEI_{Eis} mit erhöhten EI_{nvPM} für größere Absinktiefen nur durch eine rußkontrollierte Eisbildung konsistent erklären. So ergibt sich ein schlüssiges Bild, da durch die Sublimation von Eispartikeln (reduzierte AEI_{Eis}) deren Rußresiduen frei und damit vom CPC detektierbar werden (erhöhte EI_{nvPM}). Ein signifikanter Beitrag volatiler Partikel zur Eispartikelbildung würde nicht zur beobachteten Antikorrelation zwischen AEI_{Eis} und EI_{nvPM} führen. Weiter scheint denkbaren Messartefakten, bei denen Kondensstreifeneispartikel auf den Aerosoleinlass treffen und dabei nvPM-Rückstände abschlagen, die künstlich erhöhte EI_{nvPM} generieren, aufgrund der beobachteten Antikorrelation, keine wesentliche Bedeutung zuzukommen.

Da allerdings bei Umgebungstemperaturen von $T_{\text{SA}} - 9 \text{ K}$ nahezu alle Rußpartikel aktiviert worden sein sollten (Kärcher et al. 2015) und aufgrund der Umgebungsfeuchten von $RH_i \approx 120 \%$ ein Verdampfen von Eiskristallen bei $\Delta z \approx 0$ ausgeschlossen werden kann, stellt sich jedoch die Frage, wieso AEI_{Eis} und EI_{nvPM} im sekundären Nachlauf in etwa gleiche Werte annehmen, was suggeriert, dass im sekundären Nachlauf Eis- und nvPM-Mode gleichermaßen besetzt wären. Aufschluss liefert die Charakterisie-

zung des Aerosoleinlasses (s. Kap. 3.7.1), die gezeigt hat, dass ein signifikanter Teil kleiner Kondensstreifeneispartikel in das Leitungssystem gelangt, woraufhin deren Rußresiduen - neben in der ursprünglich genommenen Probe interstitiell vorliegendem Ruß - zu EI_{nvPM} beitragen.

Um diesen Effekt quantitativ zu erfassen und Beiträge aus dem überlappenden Partikelgrößenbereich zu AEI_{Eis} und EI_{nvPM} zu bestimmen, wurde für jede Stichprobe der Anteil (f_{05}) der Eispartikel mit $D_p > 0.5 \mu\text{m}$, die den Aerosoleinlass passieren, nach Gl. 4.8 explizit berechnet. Für f_{05} berechnete Werte reichen von 51 % im sekundären bis 80 % im primären Nachlauf. Dabei ist es nachvollziehbar, dass sich bei größeren Absinktiefen, für die kleinere D_{eff} beobachtet wurden, größere f_{05} ergeben. Weiter wurde auf Basis der f_{05} , AEI_{Eis} und EI_{nvPM} nach Gl. 4.9 der Emissionsindex $EI_{\text{Ruß}}$ berechnet, in den neben in der ursprünglichen Stichprobe interstitiell vorliegendem Ruß auch Rußresiduen aller Eiskristalle mit $D_p < 0.5 \mu\text{m}$ eingehen. Damit erhalten AEI_{Eis} ($0.5 - 50 \mu\text{m}$) und $EI_{\text{Ruß}}$ ($0.01 - 0.5 \mu\text{m}$) ihre Beiträge aus disjunkten Partikelgrößenbereichen. Abb. 5.8 zeigt resultierende Vertikalprofile für AEI_{Eis} , $EI_{\text{Ruß}}$, sowie deren Summe, AEI_{tot} .

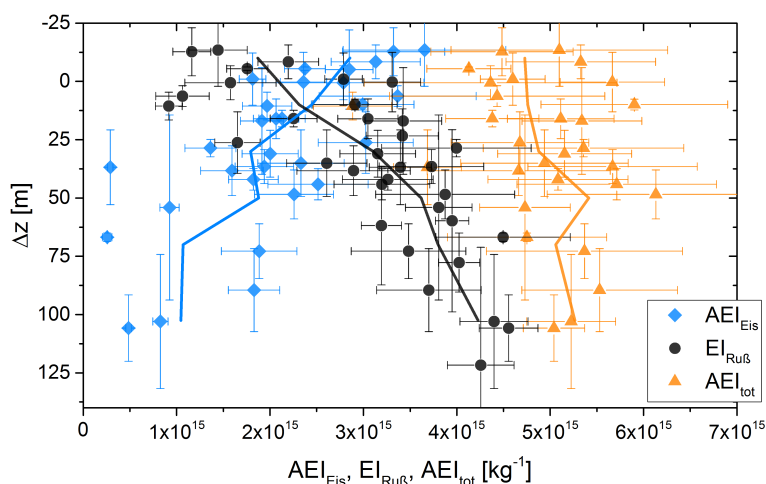


Abbildung 5.8 Vertikalprofile berechneter AEI_{Eis} (blaue Rauten), $EI_{\text{Ruß}}$ (schwarze Punkte) und AEI_{tot} (orangene Dreiecke). $\Delta z > 0$ stehen für positive Absinktiefen und entsprechen Höhen unterhalb der ATRA Flughöhe. Letztere liegt bei $\Delta z = 0$. Linien verbinden Mittelwerte der Δz -Bins. Die Δz wurden als konzentrationsgewichtete Mittelwerte berechnet, wobei entsprechende Fehlerbalken den von der Falcon während der Datennahme durchquerten Höhenbereich abdecken. Fehlerbalken für Emissionsindizes repräsentieren Unsicherheiten der Bestimmung der Hintergrundkonzentrationen (CO_2 , N_{CAS} , N_{nvPM}). Quelle: Kleine et al. (2018)

Basierend auf Beiträgen aus unabhängigen Partikelgrößenbereichen weisen die AEI_{Eis} - und $EI_{\text{Ruß}}$ -Profile eine deutliche Antikorrelation auf, wobei deren Summe, AEI_{tot} , von Wirbelprozessen unbeeinflusst - im Rahmen der eingezeichneten Messunsicherheiten - konstant bleibt. $EI_{\text{Ruß}}$ zeigt einen deutlichen Anstieg mit zunehmenden Absinktiefen im primären Wirbel und erreicht einen maximalen Wert von $4.6 \times 10^{15} \text{kg}^{-1}$ bei

$\Delta z = 105$ m. Die beobachtete Antikorrelation zwischen AEI_{Eis} und EI_{RuB} erweitert dabei den - bereits qualitativ geführten - Nachweis der rußkontrollierten Eisbildung im vermessen Kondensstreifen um die quantitative Komponente. Im absinkenden Wirbel reduziert sich die Größe eines Teils der vorhandenen Eispartikel durch Sublimation auf Größen, die unterhalb der Nachweisgrenze der CAS liegen bis hin zum vollständigen Verdampfen. Da sowohl Eispartikel mit $D_p < 0.5 \mu\text{m}$ als auch verbleibende Rußresiduen nicht zu AEI_{Eis} , sondern zu EI_{RuB} beitragen, bedingt die Sublimation während des Absinkens sich reduzierende AEI_{Eis} . Da diese mit in äquivalentem Maß erhöhten EI_{RuB} einhergehen und insbesondere kein Δz -Trend der AEI_{tot} zu beobachten ist, kann geschlossen werden, dass nahezu alle Eiskristalle Ruß enthalten und die Eisbildung damit rußkontrolliert erfolgt sein muss.

Weiter ermöglichen die Messungen eine Abschätzung des Anteils (f_*) der Rußpartikel, die wasseraktiviert wurden und zur Eisbildung beigetragen haben. Hierzu werden die maximal gemessenen AEI_{Eis} , die im sekundären Nachlauf nahe des Emissionslevels bei Umgebungsfeuchten $RH_i \approx 120\%$ nicht signifikant von Sublimation betroffenen sein können, zum maximalen EI_{RuB} im primären Wirbel in Relation gesetzt. Da allerdings Eispartikel mit $D_p < 0.5 \mu\text{m}$ zu EI_{RuB} - und nicht zu AEI_{Eis} - beitragen, kann auf der vorliegenden Datenbasis lediglich eine Mindestaktivierungsrate von 81 % abgeschätzt werden. Berücksichtigt man, dass die CAS wegen ihrer unteren Abschneidegrenze ($0.5 \mu\text{m}$) etwa 10 % der Eispartikel nicht detektiert (vgl. Abb. 5.9), ergibt sich im untersuchten Kondensstreifen eine Aktivierungsrate von etwa 90 %, was dem Ergebnis prozessbasierter Modellrechnungen von 96 % (Kärcher et al. 2018) durchaus nahe kommt.

Bezüglich der Bestimmung der Triebwerksemissionen aus Wirbelphasenmessungen liefern die Beobachtungen hilfreiche Erkenntnisse. So zeigt sich, dass eine isolierte Betrachtung der Eis- oder Rußemissionen jeweils nur einen variablen Teil der Gesamtemissionen umfasst. Sich durch Wirbelprozessierung reziprok zueinander ändernde AEI_{Eis} und EI_{RuB} sind Ausdruck sich entsprechend ändernder Besetzungszahlen von Eis- und Rußmoden, die durch Übergänge von Partikeln von der einen zur anderen Mode hervorgerufen werden. Auf Grundlage der sich ausbildenden Vertikalprofile der AEI_{Eis} und EI_{RuB} ist die Berechnung mittlerer Emissionsindizes nicht trivial, vielmehr kommt der genauen Definition des Mittelwerts eine entscheidende Bedeutung zu. Demgegenüber scheint AEI_{tot} das geeignetere Maß zur Quantifizierung der totalen Rußemissionen aus Wirbelphasenmessungen rußreicher ($> 10^{15} \text{kg}^{-1}$) Kondensstreifen zu sein, aus dem sich über $f_* \cdot AEI_{\text{tot}}$ auf die Jetphasen-Eisemissionen schließen lässt. Über Δz gemittelt ergibt sich $AEI_{\text{tot}} = 4.9 \times 10^{15} \text{kg}^{-1}$ mit einer empirischen Standardabweichung von $\pm 7 \times 10^{14} \text{kg}^{-1}$. Die im Vergleich zu AEI_{Eis} für EI_{RuB} erhöhten minimalen und maximalen Werte sind sehr wahrscheinlich darauf zurückzuführen, dass einerseits nicht alle Rußpartikel aktiviert wurden und andererseits Eiskristalle mit $D_p < 0.5 \mu\text{m}$ zu EI_{RuB} beitragen. Darüber hinaus stellt das Hochmischen bereits abwärtsprozessierter (teilweise bis vollständig) sublimierter Eispartikel und zugehöriger Rußresiduen eine mögliche Erklärung dar. So ist davon auszugehen, dass eine durch Aufwärtsprozessierung bedingte Kondensation von Wasserdampf bevorzugt auf bereits vorhanden, vergleichsweise großen Eispartikeln erfolgt. Im Gegensatz zur Abwärtsprozessierung, für die ein starker Einfluss auf gemessene

Emissionsindizes AEI_{Eis} bzw. $EI_{\text{Ruß}}$ beobachtet wird, ist ein signifikanter Einfluss der Aufwärtsprozessierung nicht zu erwarten.

Für die beobachtete Streuung der Datenpunkte ist vermutlich eine Kombination verschiedener Ursachen verantwortlich. So liegen beispielsweise keine Informationen über die vor der Messung erfolgten Wirbelprozessierungen der Stichproben vor. Es bleibt unklar, ob eine auf einer bestimmten Absinktiefe gemessene Stichprobe auf direktem Weg vom Emissionslevel dorthin gelangte, oder vielmehr bei zuvor erreichten größeren Absinktiefen ausgemischt und daraufhin aufwärts prozessiert wurde. In letzterem Fall wäre die Stichprobe stärker von Sublimationseffekten betroffen, was geänderte AEI_{Eis} bzw. $EI_{\text{Ruß}}$ zur Folge hätte und eine Varianz der Emissionsindizes bei gleichen Absinktiefen impliziert. Da zudem CAS-, nvPM- und CO_2 -Messungen nicht am selben Ort erfolgten, tragen auch räumliche Inhomogenitäten im Kondensstreifenquerschnitt zur Streuung berechneter AEI_{Eis} und $EI_{\text{Ruß}}$ bei. Im Rahmen von Bodenmessungen (Schripp et al. 2018) wurde zudem festgestellt, dass sich die Anzahl der von beiden Triebwerken emittierten Rußpartikel (am Boden) um bis zu 20 % unterscheiden kann. Da es auf Basis der Wirbelphasenmessungen allerdings nicht möglich ist zu beurteilen, zu welchem Grad eine Stichprobe einem der beiden Triebwerke zuzuordnen ist, sind diese Emissionsunterschiede - sofern auch im Flug realisiert - ein weiterer zur Streuung beitragender Faktor. Vergewahrtigt man sich zudem die anzunehmende radiale Variabilität der Bedingungen unter denen die Eiskondensation erfolgt, sowie deren Einfluss auf die Anzahl gebildeter Eiskondenspartikel (Kärcher 1994), erscheint ein gewisses Maß an Streuung gemessener Emissionsindizes durchaus plausibel.

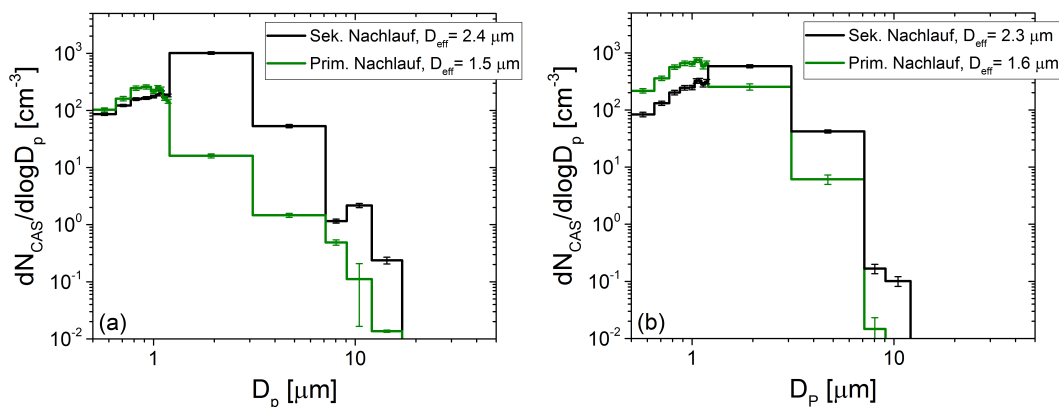


Abbildung 5.9 Gegenüberstellung von Eis-PSDs vergleichbarer Alter aber unterschiedlicher Absinktiefen. (a) Messungen im sekundären (primären) Nachlauf bei Altern von 57 (43) s, Absinktiefen $\Delta z=8$ (73) m, $N_{\text{CAS}}=490$ (75) cm^{-3} , $D_{\text{eff}}=2.4$ (1.5) μm , gemittelt über einen Zeitraum von 17 (13) s. (b) Messungen im sekundären (primären) Nachlauf bei Altern von 77 (67) s, $\Delta z=8$ (105) m, $N_{\text{CAS}}=324$ (281) cm^{-3} , $D_{\text{eff}}=2.3$ (1.6) μm , gemittelt über 39 (29) s. Eingezeichnete Fehlerbalken beziehen sich auf die Standardabweichung der Binmittelwerte. (b) wurde aus Kleine et al. (2018) übernommen.

Um den Sublimationsprozess näher zu untersuchen, werden im Folgenden die von der CAS gemessenen PSDs der Eiskondenspartikel genauer betrachtet. Dazu werden Sequenzen

herangezogen, bei denen die Falcon den Kondensstreifen in kurzer zeitlicher Abfolge (und damit bei vergleichbaren Altern) bei sich deutlich unterscheidenden Absinktiefern vermessen hat.

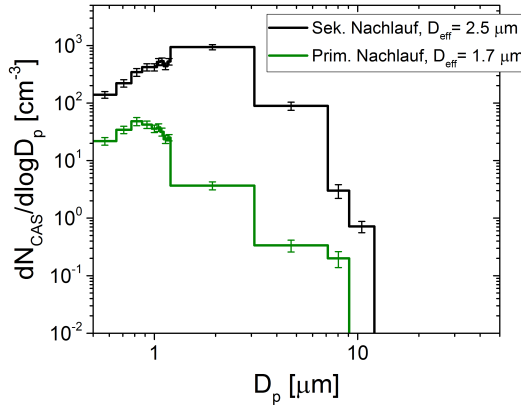


Abbildung 5.10 Messungen im sekundären (primären) Nachlauf bei Altern von 104 (111) s, $\Delta z = -13$ (23) m, $N_{CAS} = 534$ (14.1) cm^{-3} , $D_{\text{eff}} = 2.5$ (1.7) μm , gemittelt über 12 (13) s.

Normalverteilung folgt, lässt sich aus den Messungen abschätzen, dass die CAS im Mittel etwa 90 % der vorhandenen Eispartikel detektiert hat. Im Vergleich zum sekundären Nachlauf weisen die im primären Nachlauf erfolgten Messungen bei etwa gleichen Kondensstreifenaltern geringere Konzentrationen und eine Verschiebung hin zu kleineren Partikelgrößen auf. Um hierbei eine möglichst umfangreiche Datenbasis einzubeziehen, wurde jeweils über möglichst lange Messperioden (12-39 s) gemittelt. Gefundene Konzentrationsunterschiede lassen sich dabei - zu einem gewissen Grad - auf unterschiedliche Verdünnungsgrade der verglichenen Stichproben zurückführen. Jedoch lässt sich in Kombination mit der deutlichen Reduktion der Konzentration großer ($> 1 \mu\text{m}$) Eispartikel und den damit einhergehenden geringeren D_{eff} schließen, dass zudem ein signifikanter Teil der Eispartikel während des Abwärtsprozessierens (teilweise bis vollständig) verdampft sein muss. Diese Schlussfolgerung wird dabei von Simulationen zur PSD-Entwicklung während der Wirbelphase bekräftigt. So führt der in verschiedenen Modellen implementierte Einfluss der Sublimation auf im Wirbelprozessierte Eispartikel zu prognostizierten PSDs, die den beobachteten sehr ähnlich sind (Vgl. Abb. 3 in Unterstrasser & Sölch (2010); Abb. 7b in Naiman et al. (2011); Abb. 18 in Picot et al. (2015); Abb. S1 in Kärcher & Voigt (2017)).

Die Analysen machen deutlich, dass bei der Interpretation der Partikelmessungen während der Wirbelphase zwei Effekten - gewissermaßen in Superposition - elementare Bedeutung zukommt. So bestimmen einerseits Mischungsprozesse den Verdünnungsgrad einzelner Stichproben, welcher sich anhand passiver Tracer (z.B. CO_2) bestimmen lässt. Darüber hinaus haben Sublimationseffekte im absinkenden und letztlich aufbrechenden Wirbel entscheidenden Einfluss auf realisierte Konzentrationen bzw. Größenverteilungen. Zu welchem Grad die Sublimation hierbei auf adiabatisches Erwärmen oder das Einmischen eisuntersättigter Umgebungsluft zurückzuführen ist,

Abb. 5.9 zeigt eine direkte Gegenüberstellung für verschiedene Δz gemessene PSDs bei Altern von etwa 50 s (a) und 70 s (b), während in Abb. 5.10 entsprechende PSDs des auf > 100 s gealterten Kondensstreifens dargestellt sind. Für die drei untersuchten Altersklassen ergeben sich unimodale PSDs, die von Partikelgrößen $\leq 10 \mu\text{m}$ dominiert werden. Gegenüber den sehr hohen Konzentrationen ($> 10^4 \text{cm}^{-3}$), die kurz nach der Eispartikelbildung vorgelegen haben müssen (Kärcher et al. 1996), zeigen sich in der Wirbelphase gemessene Konzentrationen deutlich reduziert. Unter der Annahme, dass die PSD der Eiskristalle näherungsweise einer logarithmischen

hängt von den spezifischen atmosphärischen Bedingungen ab, spielt für die Analysen dieser Arbeit aber eine untergeordnete Rolle.

Basierend auf dem Zusammenspiel aus günstigen atmosphärischen Bedingungen und der erfolgreichen Vermessung des gesamten Vertikalprofils des sich ausbildenden persistenten Kondensstreifens, gewährt der im Referenzflug gewonnene Datensatz tiefe Einblicke in die dynamische Struktur des Kondensstreifens. Da die Daten der im Anschluss vorgestellten Messflüge im Kontext der Ergebnisse des Referenzflugs diskutiert werden, sollen letztere nochmals kurz zusammengestellt werden. So konnte die Hypothese der rußkontrollierten Eisbildung im rußreichen Regime bestätigt werden, wobei auch eine Abschätzung des Anteils der zu Eispartikeln aktivierten Rußpartikel (f_*) erfolgte, was letztlich die Jetphasen-Eisemissionen widerspiegelt. Darüber hinaus konnte in den absinkenden Wirbeln die Sublimation von Eispartikeln nachgewiesen, quantifiziert und auf den Prozess der adiabatischen Erwärmung zurückgeführt werden. Zudem wurde gezeigt, dass AEI_{Eis} und $EI_{\text{Ruß}}$ antikorrelierte Δz -Abhängigkeiten aufweisen, während AEI_{tot} diesbezüglich eine Erhaltungsgröße und damit geeignet zur Quantifizierung totaler Ruß- bzw. Jetphasen-Eisemissionen aus Wirbelphasenmessungen ist.

Diese Konstanz der AEI_{tot} erweist sich als äußerst vorteilhafte Eigenschaft in Bezug auf einen direkten Vergleich der in verschiedenen Kondensstreifen gemessenen Emissionen. So muss bei einem Vergleich basierend auf isoliert betrachteten AEI_{Eis} oder $EI_{\text{Ruß}}$ sehr genau darauf geachtet werden, dass die zugrunde liegenden Stichproben auch tatsächlich miteinander vergleichbar sind¹. Nur so kann sichergestellt werden, dass sich systematische Abweichungen bei der Stichprobennahme nicht als Artefakte im Vergleich der AEI_{Eis} bzw. $EI_{\text{Ruß}}$ manifestieren. Basiert die Gegenüberstellung der Emissionen hingegen auf berechneten AEI_{tot} , einer Erhaltungsgröße, so entfällt diese Problematik, was die Diskussion erheblich vereinfacht.

5.3 Kondensstreifen aus semisynthetischem Treibstoff (SSJF1)

Um den Einfluss reduzierter Aromatengehalte bzw. erhöhter H/C-Verhältnisse synthetischer Treibstoffe auf sich bildende Kondensstreifen zu untersuchen, wurde während dem Messflug F02 am 22.09.2015 in der TRA Sachsen von beiden ATRA Triebwerken SSJF1 verbrannt. Auf einer Druckhöhe von 34 000 ft (≈ 10.4 km) erfolgte die Kondensstreifenbildung bei mittleren Umgebungstemperaturen von 220.2 K. Vom CR-2 bestimmte mittlere RH_i des atmosphärischen Hintergrunds auf der ATRA Flughöhe variieren dabei in der Messregion zwischen 108 und 115 %. Unter Berücksichtigung der systematischen Messunsicherheit (± 15 %) lässt sich also auf übersättigte bis leicht untersättigte RH_i schließen. Wie eine explizite Berechnung der Schmidt-Appelman-Temperatur zeigt, $T_{\text{SA}} = 225.1 \pm 0.7$ K, liegt diese etwa 5 K über der Umgebungstemperatur auf Emissionsniveau. Im Folgenden werden die Messungen

¹ Dazu müsste sichergestellt werden, dass verglichene Stichproben ein identisches Maß an Sublimation erfahren haben, also bspw. identische Umgebungsbedingungen vorlagen, die Wirbelprozessierung gleichermaßen erfolgte und die Stichproben bei selben Absinktiefern genommen wurden.

des Flugs mit SSJF1 im Kontext der Ergebnisse des Referenzflugs präsentiert, wobei der Fokus auf der Diskussion beobachteter Unterschiede liegen soll.

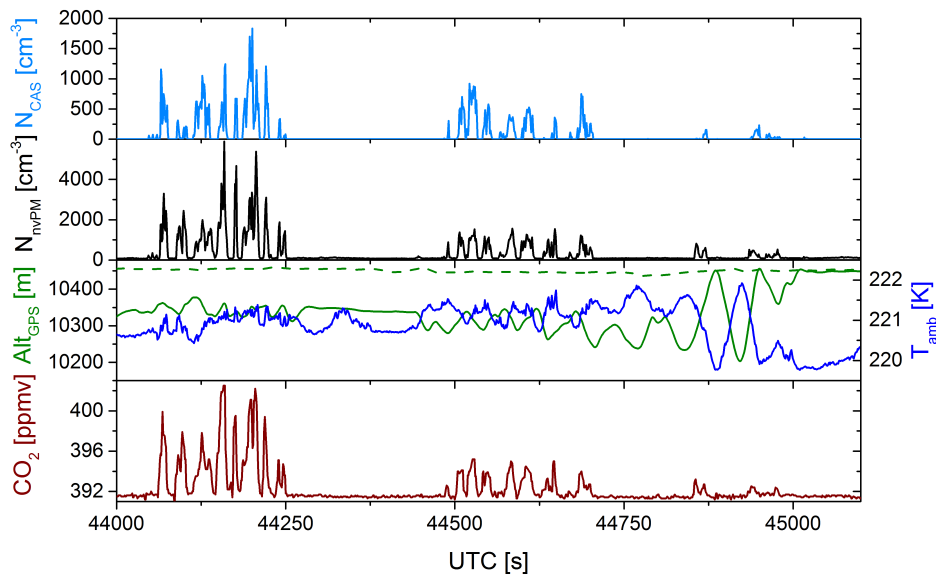


Abbildung 5.11 1-Hz-Zeitreihen der etwa 17-minütigen Sequenz der Wirbelphasenmessungen im Kondensstreifen des SSJF1 verbrennenden ATRA. Gezeigt sind Konzentrationen von Eispartikeln mit $D_p > 0.5 \mu\text{m}$ (N_{CAS}) und nicht-volatiler Partikel des Größenbereichs $0.01\text{-}1.9 \mu\text{m}$ (N_{nvPM}), Falcon GPS-Höhe und Umgebungstemperatur (durchgezogene Linien), ATRA GPS-Höhe (gestrichelte Linie), sowie CO_2 -Konzentrationen. Konstante Schubeinstellungen des ATRA resultierten in einem mittleren Treibstoffverbrauch von 820 kg h^{-1} je Triebwerk.

Abb. 5.11 zeigt Zeitreihen der Wirbelphasenmessungen, die bei Kondensstreifenaltern von 48-134s stattfanden. Im Gegensatz zum Referenzfall (F10) wurde von der Falcon nicht das gesamte Vertikalprofil des Kondensstreifens vermessen. So ist der Großteil der aufgezeichneten Daten dem primären Nachlauf mit Absinktiefen von bis zu 200 m zuzuordnen, während lediglich vereinzelte Messungen im sekundären Nachlauf des schon auf etwa 2 min gealterten Kondensstreifens vorliegen.

Wie schon im Referenzfall äußern sich Kondensstreifenpassagen in den Zeitreihen gemessener Konzentrationen als peakförmig erhöhte Signalstrukturen. Gegenüber dem atmosphärischen Hintergrund wurden maximal erhöhte Werte von bis zu etwa 1800 cm^{-3} (ΔN_{CAS}), 5700 cm^{-3} (ΔN_{nvPM}) und 11 ppmv (ΔCO_2) gemessen. Die Sequenzen¹ mit $N_{\text{CAS}} > 1233 \text{ cm}^{-3}$ resultieren aus der Anwendung der Funktion zur Koinzidenzkorrektur jenseits deren Gültigkeitsbereich (s. Kap. 4.3). Aufgrund der großen, kaum zu quantifizierenden Unsicherheit der N_{CAS} -Werte $> 1233 \text{ cm}^{-3}$, werden diese Sequenzen für weiterführende Analysen jedoch nicht herangezogen. Die Zuordnung aufgezeichneter Daten zum Kondensstreifen erfolgte wieder anhand

¹ Gesamtdauer: 4 s

simultan erhöhter Konzentrationen von Eispartikeln ($\geq 1 \text{ cm}^{-3}$) und CO_2 ($\geq 1 \text{ ppmv}$).

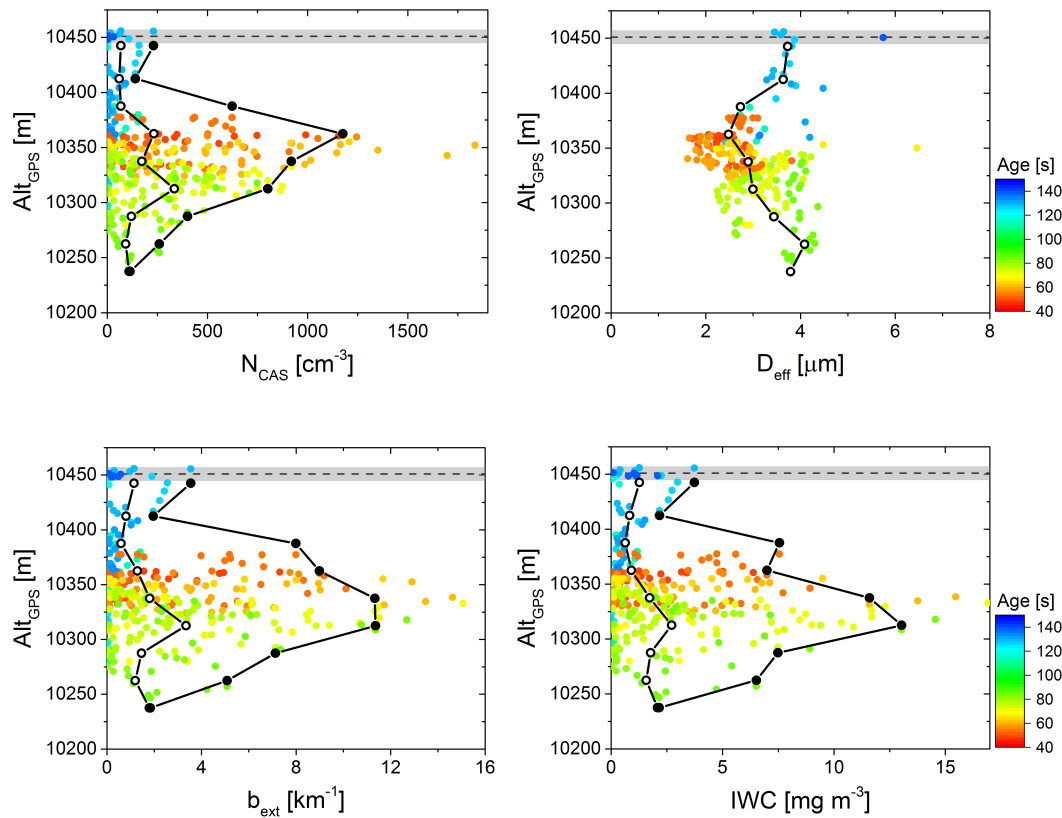


Abbildung 5.12 Vertikalprofile der Eispartikelkonzentrationen mit $D_p > 0.5 \mu\text{m}$ (N_{CAS}) und daraus abgeleitete Profile von D_{eff} , b_{ext} und IWC , jeweils in Abhängigkeit des Kondensstreifenalters (farbkodiert) und auf die GPS-Flughöhe des ATRA bezogen ($10451 \pm 6 \text{ m}$, grau). Weiter sind 95%-Perzentile (ausgefüllte Punkte) und Mediane (offene Punkte) der Höhenbins eingezeichnet.

Um eine möglichst gute Vergleichbarkeit zum Referenzfall (F10) zu ermöglichen, wurden auch in diesem Fall aus den Zeitreihen Vertikalprofile abgeleitet. In Abb. 5.12 sind aus CAS-Daten berechnete Vertikalprofile einiger mikrophysikalischer und optischer Parameter des Eispartikelensembles dargestellt. Im Unterschied zum Referenzfall fanden die Messungen für semisynthetischen Treibstoff hauptsächlich auf Höhen deutlich unterhalb des Emissionslevels statt. Dabei wurden punktuell Maximalewerte von $> 1233 \text{ cm}^{-3}$ (N_{CAS}), $\approx 15 \text{ km}^{-1}$ (b_{ext}) und $\approx 17 \text{ mg m}^{-3}$ (IWC) im Primärwirbel bei Absinktiefen im Bereich von 100-120 m und Altern von 60-70 s gefunden. Im Vergleich zu den vereinzelt angetroffenen Maximalwerten zeigen sich 95%-Perzentile und Mediane in den Höhenbins über das gesamte Vertikalprofil stark reduziert, was wiederum deutliches Zeichen einer zeitlich variierenden inhomogenen Struktur des Kondensstreifens ist. Niedrigste Werte wurden im sekundären Nachlauf bzw. bei Absinktiefen $< 100 \text{ m}$ und den höchsten Kondensstreifenaltern ($\approx 2 \text{ min}$) gemessen.

Es fällt auf, dass der Primärwirbel bei vergleichbaren Kondensstreifenaltern bereits deutlich tiefer abgesunken ist als dies beim Referenzflug der Fall war. Mitunter kann dies Ausdruck einer (bei F02) weniger stabil geschichteten Atmosphäre sein. Andererseits bewirken die im Vergleich zu F10 geringeren Schubeinstellungen des ATRA neben einem um etwa 30 % reduzierten Treibstoffverbrauch auch um etwa 10 % geringere Fluggeschwindigkeiten. Aus Gründen der Impulserhaltung bewirken letztere ein tieferes Auslenken durchflogener Luftmassen. Technisch gesehen geht dies - einer groben Abschätzung zufolge - mit um mindestens 20 % erhöhten Anstellwinkeln einher, um bei dem geänderten Anströmungsprofil einen gleichbleibenden¹ Auftrieb zu erzeugen. Auch aus dieser Perspektive sind damit die im Vergleich zu F10 größeren Absinktiefen durchaus nachvollziehbar.

Zur groben Einordnung der atmosphärischen Hintergrundfeuchte sollen wieder CR-2-Daten herangezogen werden. Abb. 5.13 zeigt das gewonnene RH_i -Vertikalprofil anhand

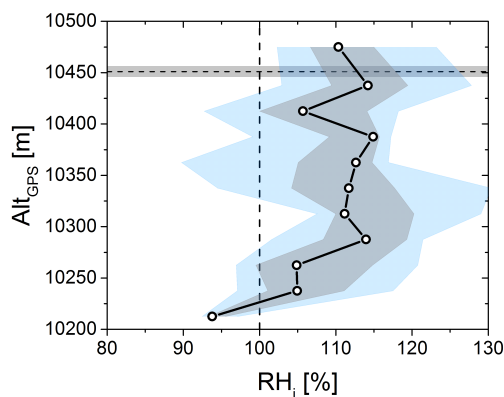


Abbildung 5.13 RH_i -Profil des atmosphärischen Hintergrunds in der Messregion.

sich gemessene RH_i kontinuierlich, wobei für Höhen < 10225 m Eisuntersättigung vorliegt. Wie ein Vergleich mit der Vertikalverteilung der Eispartikel (Abb. 5.12) zeigt, gehen Unterkante des Kondensstreifens und eisuntersättigte Umgebungsbedingungen - wie schon im Referenzfall - miteinander einher.

Effektivdurchmesser (s. Abb. 5.12) liegen in einem Bereich von etwa 2 bis $4\ \mu\text{m}$. Dabei ist eine gewisse Separation zwischen den bei verschiedenen Kondensstreifenaltern und Absinktiefen gewonnenen Daten zu beobachten. Kleinste D_{eff} werden für jüngste Alter (≈ 50 s) und Absinktiefen von etwa 100 m gefunden. Im auf > 100 s gealterten Kondensstreifen werden demgegenüber sowohl nahe des Emissionsniveaus als auch bei Absinktiefen ≈ 200 m höhere D_{eff} gemessen. Verglichen mit dem Referenzfall ($D_{\text{eff}}=1\text{-}3\ \mu\text{m}$) werden damit für SSJF1 deutlich größere D_{eff} gefunden, was insofern bemerkenswert ist, als der Flug mit SSJF1 von geringeren Umgebungsfeuchten gekennzeichnet ist. Die im Mittel größeren D_{eff} für SSJF1 lassen sich also nicht durch einen entsprechend erhöhten Beitrag atmosphärischen Wasserdampfs zum Eispartikelwachstum erklären. Hingegen kann diese Beobachtung als erster Hinweis

¹ Die Masse des ATRA war bei F10 und F02 in etwa gleich.

auf gegenüber Ref2 reduzierte AEI_{Eis} bzw. $EI_{\text{Ruß}}$ interpretiert werden. In diesem Szenario würde sich zur Verfügung stehender Wasserdampf¹ auf eine reduzierte Anzahl Kondensationskerne aufteilen, was erhöhte D_{eff} zur Folge hätte.

Weiter wird eine dem Referenzfall entsprechende Abnahme von D_{eff} mit zunehmender Absinktiefe lediglich bei Absinktiefen ≤ 100 m beobachtet, während bei größeren Absinktiefen gefundene D_{eff} wieder zunehmen. Betrachtet man die zu den Daten korrespondierenden Flugzeugpositionen, so zeigt sich, dass die Messungen vergleichsweise hoher D_{eff} bei Altern 80-100 s und Absinktiefen > 100 m in der südwestlichen Kurve des Flugmusters in der TRA Sachsen aufgezeichnet wurden. Gegenüber den anderen, ausschließlich aus dem Geradeausflug stammenden Messungen, ist dies ein Alleinstellungsmerkmal. Ein direkter Vergleich der Messungen (wie in Abb. 5.12) ist also mit Vorsicht zu genießen, da es plausibel scheint, dass sich die Dynamik der im Kurven- und Geradeausflug ausgebildeten Wirbel, und damit die Prozessierung vorhandener Eis- bzw. Rußpartikel, deutlich unterscheidet. Darüber hinaus ist denkbar, dass vergleichsweise hohe D_{eff} von $\approx 4 \mu\text{m}$ bei großen Absinktiefen im Kurvenflug Resultat lokaler erhöhter RH_i sein können. Allerdings lässt sich diese Vermutung auf Basis der vorliegenden CR-2-Daten und dessen technischen Limitierungen nicht näher untersuchen.

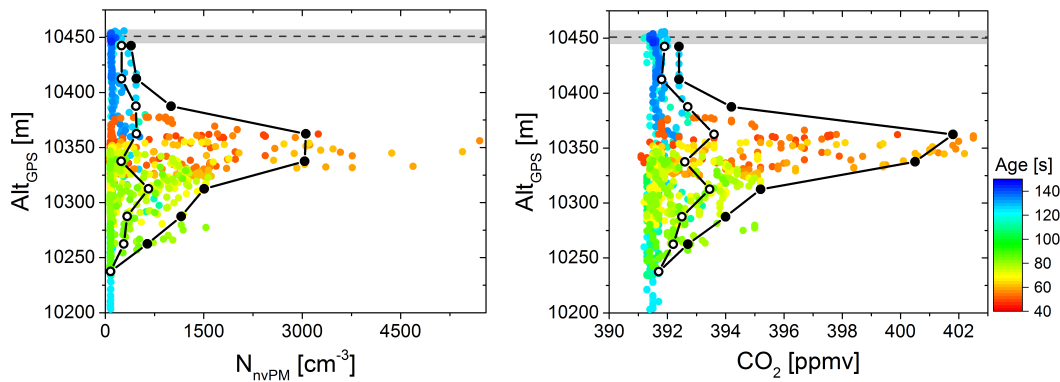


Abbildung 5.14 Vertikalprofile von N_{nvPM} und der CO_2 -Konzentration, jeweils in Abhängigkeit des Kondensstreifenalters (farbkodiert) und bezogen auf die GPS-Flughöhe des ATRA (10451 ± 6 m, grau). Weiter sind 95%-Perzentile (ausgefüllte Punkte) und Mediane (offene Punkte) der Höhenbins eingezeichnet.

In Abb. 5.14 sind gemessene Vertikalprofile von N_{nvPM} und der CO_2 -Konzentration dargestellt. Wie schon im Referenzfall werden maximal erhöhte Konzentrationen im Primärwirbel bei Absinktiefen von etwa 100 m und Altern ≤ 60 s gemessen. Im Gegensatz dazu zeigen sich im sekundären Nachlauf gefundene Konzentrationen des auf > 2 min gealterten Kondensstreifens deutlich reduziert. Dieser Kontrast legt wiederum nahe, dass ein Großteil der Emissionen zum Ende der Jetphase in die

¹ Dieser setzt sich aus Beiträgen der Triebwerksemissionen und des atmosphärischen Wasserdampfs zusammen.

beiden absinkenden Wirbel eingemischt und abwärts prozessiert wird. Dass die gemessenen ΔCO_2 mit bis zu 11 ppmv deutlich größer ausfallen als im Referenzfall (F10), spricht zudem dafür, dass im vorliegendem Fall (F02) der Wirbel zum Zeitpunkt der Messungen noch deutlich ausgebildet war und auch gut „erwischt“ wurde. Diese Feststellung wird weiter dadurch bekräftigt, dass der ATRA bei F02 einen gegenüber F10 um etwa 30 % reduzierten Treibstoffverbrauch bzw. CO_2 -Ausstoß aufwies.

Nach der Diskussion absolut gemessener Größen soll die weitere Analyse auf den leichter zu interpretierenden Emissionsindizes aufbauen. Korrigiert um den Einfluss variabler Verdünnungsgrade zugrunde liegender Stichproben, gewähren die EI einen direkten Blick auf in der Wirbelphase ablaufende mikrophysikalische Prozesse.

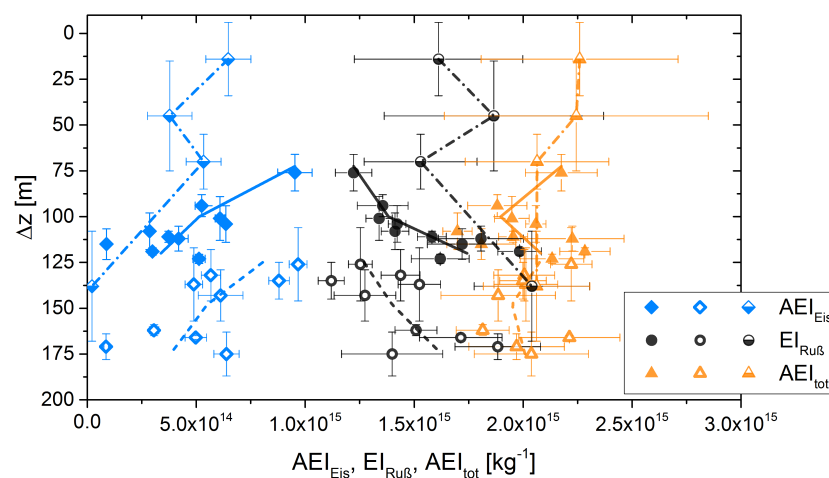


Abbildung 5.15 Vertikalprofile berechneter AEI_{Eis} (blaue Rauten), $EI_{\text{Ruß}}$ (schwarze Punkte) und AEI_{tot} (orangefarbene Dreiecke). Ausgefüllte (48-66 s, Geradeausflug in NO TRA), offene (68-84 s, Kurvenflug in SW TRA) und halboffene (112-134 s, Geradeausflug in NO TRA) Symbole kennzeichnen dabei verschiedene Kondensstreifenalter und den jeweiligen Ort der Messungen in der TRA Sachsen (Himmelsrichtungen: N,O,S,W). $\Delta z > 0$ stehen für positive Absinktiefen und entsprechen Höhen unterhalb der ATRA Flughöhe. Letztere liegt bei $\Delta z = 0$. Linien verbinden Mittelwerte der Δz -Bins. Die Δz wurden als konzentrationsgewichtete Mittelwerte berechnet, wobei entsprechende Fehlerbalken den von der Falcon während der Datennahme durchquerten Höhenbereich abdecken. Fehlerbalken für Emissionsindizes repräsentieren Unsicherheiten der Bestimmung der Hintergrundkonzentrationen (CO_2 , N_{CAS} , N_{nvPM}).

In Abb. 5.15 sind resultierende Vertikalprofile der Emissionsindizes AEI_{Eis} und $EI_{\text{Ruß}}$, selektiv nach Kondensstreifenalter bzw. dem Ort der Stichprobennahme in der TRA Sachsen, dargestellt. Im Gegensatz zum Referenzflug stammen die Stichproben für SSJF1 überwiegend aus dem Primärwirbel, wurden also bereits signifikant abwärts prozessiert. So zeigen sich insgesamt auch gegenüber den AEI_{Eis} generell erhöhte $EI_{\text{Ruß}}$. Maximal gemessene Werte betragen $9.7 \times 10^{14} \text{ kg}^{-1}$ (AEI_{Eis}) bzw. $2.0 \times 10^{15} \text{ kg}^{-1}$ ($EI_{\text{Ruß}}$) bei Absinktiefen im Bereich von etwa 75-140 m.

Eine Betrachtung der räumlich- und altersselektiven Untergruppen aller Stichproben

lässt ähnliche Systematiken erkennen, die auch den Kondensstreifen im Referenzfall kennzeichnen. So ist in allen drei Untergruppen eine separate, gut ausgebildete Antikorrelation zwischen AEI_{Eis} und $EI_{\text{Ruß}}$ zu erkennen. Die Feststellung, dass sich die Gesamtmenge der Stichproben nicht ohne Weiteres zu einem einheitlichen Bild zusammensetzt, legt nahe, dass die Proben voneinander abweichende Wirbelprozessierungen erfahren haben. Für die Daten aus dem SW-Kurvenflug (offene Symbole in Abb. 5.15) scheint sich eine im Vergleich zum Geradeausflug geänderte Wirbelprozessierung zu bestätigen, wobei - anhand der vorliegenden Datenbasis - die genaue Ursache nicht näher bestimmt werden kann. Unabhängig von den jeweils konkret ablaufenden Mechanismen, ergeben sich für die drei Fälle jeweils näherungsweise konstante und fallübergreifend übereinstimmende AEI_{tot} . Im Mittel über Δz ergibt sich AEI_{tot} zu $2.04 \times 10^{15} \text{ kg}^{-1}$ mit einer empirischen Standardabweichung von $\pm 1.6 \times 10^{14} \text{ kg}^{-1}$.

Insgesamt betrachtet lassen sich die für SSJF1 gewonnen Daten - ganz analog zum Referenzfall - ausschließlich für eine rußkontrolliert ablaufende Eisbildung in Verbindung mit anschließenden Sublimationsverlusten konsistent interpretieren. Hervorzuheben ist, dass sich die Schlussfolgerungen des Referenzfalls nicht nur bestätigen, sondern Ruß die Eisbildung vielmehr auch bei deutlich geringeren Rußemissionen von $\approx 2 \times 10^{15} \text{ kg}^{-1}$ kontrolliert. Da jedoch keine von Sublimation unbeeinflussten Messungen (nahe $\Delta z = 0$) vorliegen, ist eine experimentelle Abschätzung der Aktivierungsrate f_* im konkreten Fall nicht direkt möglich. Auf Basis maximal gemessener AEI_{Eis} und $EI_{\text{Ruß}}$ kann lediglich festgestellt werden, dass mindestens 50 % der Rußpartikel zur Eisbildung beigetragen haben müssen. Hingegen zeigt sich - separat für alle drei Fälle - ein deutlicher Einfluss der Eispartikelsublimation, der zu reduzierten (erhöhten) AEI_{Eis} ($EI_{\text{Ruß}}$) im Verlauf des Absinkens führt. Dabei fällt auf, dass ein Extrapolieren der beiden für den jungen ($\leq 84 \text{ s}$) Kondensstreifen gemessenen AEI_{Eis} -Profile hin zu geringen Absinktiefen ($\Delta z \rightarrow 0$) auf zu AEI_{tot} leicht geringere Werte von etwa $1.75 \times 10^{15} \text{ kg}^{-1}$ führt, woraus auf hohe Aktivierungsraten von etwa 90-95 % geschlossen werden kann. Dies gilt sowohl für die Messungen aus dem Geradeausflug (ausgefüllte Symbole) als auch für die des Kurvenflugs (offene Symbole). Da unter den gegebenen Rahmenbedingungen auch theoretisch davon ausgegangen werden kann, dass im untersuchten Kondensstreifen die meisten ($\geq 90 \%$) Rußpartikel Eis bilden (Kärcher et al. 2015), kann die Schlussfolgerung gezogen werden, dass sich die Sublimationsverluste über das gesamte Vertikalprofil auf etwa 80 % aufsummieren, also ähnlich hoch wie im Referenzfall ausfallen. Im Fall des auf etwa 2 min gealterten Kondensstreifens (halboffene Symbole) deuten vergleichsweise geringe AEI_{Eis} bzw. hohe $EI_{\text{Ruß}}$ bei geringen Δz ebenfalls auf ein hohes Maß an Sublimation hin. Als ursächlicher Prozess ist hier das Ausmischen und Aufwärtsprozessieren zuvor bereits abgesunkener Luftmassen denkbar, oder auch ein teilweises bis komplettes Verdampfen eines Teils der nahe des Emissionslevels verbliebenen Eispartikel bei (lokal) leicht eisuntersättigten Umgebungsbedingungen.

Wie schon im Referenzfall, soll der Einfluss der Eispartikelsublimation auf von der CAS gemessene PSDs untersucht werden. Zu diesem Zweck werden PSDs einander gegenübergestellt, die bei ähnlichen Kondensstreifenaltern, aber sich deutlich unterscheidenden Absinktiefen gemessen wurden. Abb. 5.16 zeigt zwei solche Gegenüberstellungen für Alter von etwa 50 s (a) bzw. 80 s (b). In Abb. 5.17 sind entsprechende PSDs

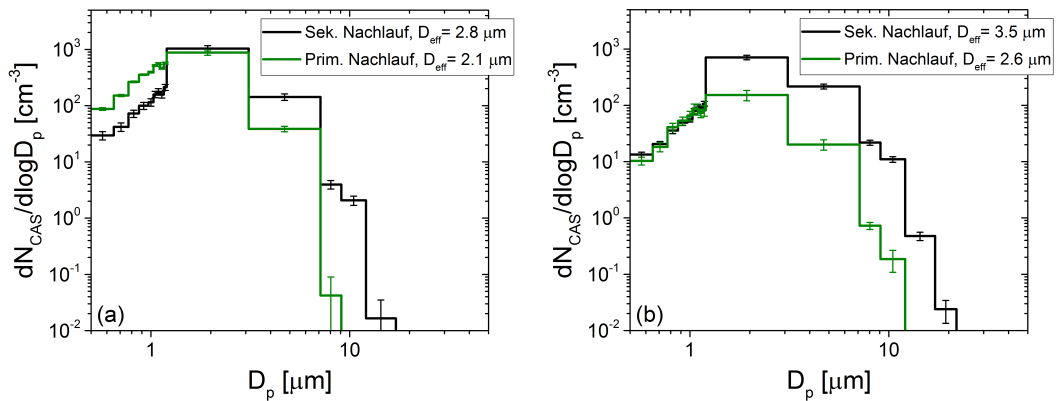


Abbildung 5.16 Gegenüberstellung von Eis-PSDs vergleichbarer Alter aber unterschiedlicher Absinktieffen. (a) Messungen im sekundären (primären) Nachlauf bei Altern von 53 (52) s, Absinktieffen $\Delta z=76$ (101) m, $N_{\text{CAS}}=509$ (472) cm^{-3} , $D_{\text{eff}}=2.8$ (2.1) μm , gemittelt über einen Zeitraum von 18 (24) s. (b) Messungen im sekundären (primären) Nachlauf bei Altern von 76 (79) s, $\Delta z=130$ (167) m, $N_{\text{CAS}}=389$ (84) cm^{-3} , $D_{\text{eff}}=3.5$ (2.6) μm , gemittelt über 37 (12) s. Eingezeichnete Fehlerbalken beziehen sich auf die Standardabweichung der Binmittelwerte. In Verbindung mit deutlichen Absinktieffen von ≥ 50 m soll die Bezeichnung „sekundärer Nachlauf“ lediglich verdeutlichen, dass diese Messungen oberhalb derjenigen mit „primär“ gekennzeichneten erfolgten.

des auf etwa 2 min gealterten Kondensstreifens zu sehen. Für die drei untersuchten Altersklassen ergeben sich wieder unimodale PSDs. Dominiert von Partikelgrößen $< 20 \mu\text{m}$, werden Konzentrationen von bis zu einigen hundert pro cm^3 gefunden.

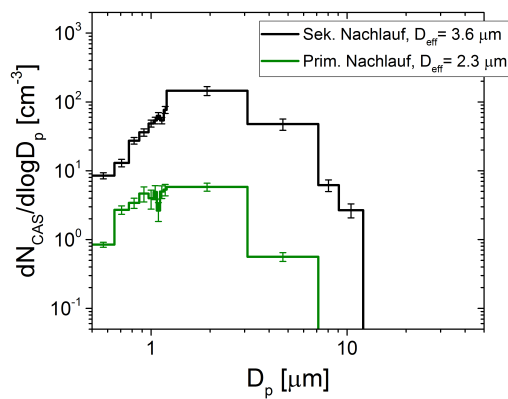


Abbildung 5.17 Messungen im sekundären (primären) Nachlauf bei Altern von 126 (112) s, $\Delta z = 14$ (138) m, $N_{\text{CAS}} = 89$ (3.7) cm^{-3} , $D_{\text{eff}} = 3.6$ (2.3) μm , gemittelt über 14 (8) s.

Die Diskussion der gemessenen PSDs folgt im Wesentlichen der des Referenzfalls. Vergleicht man PSDs ähnlicher Alter, zeigt sich, dass (im Mittel) größere Absinktieffen mit geringeren Konzentrationen der größeren ($> 1 \mu\text{m}$) Eispartikel einhergehen. Konzentrationsunterschiede sind teilweise durch variable Verdünnungsgrade der zugrunde liegenden Stichproben bedingt. Hingegen ist die deutliche Reduktion der Konzentration von Eispartikeln $> 1 \mu\text{m}$ (bzw. resultierender D_{eff}) mit zunehmenden Absinktieffen deutliches Indiz der Eispartikelsublimation. Im direkten Vergleich mit dem Referenzfall lassen sich keine grundsätzlich unterschiedlichen Systematiken erkennen, die auf abweichende mikrophysikalische Prozesse hindeuten könnten. Jedoch fällt auf, dass für SSJF1 - trotz trockenerer Umgebungsbedingungen - tendenziell größere Eispartikel gefunden wurden, was im Kontext der deutlich reduzierten Ruß- bzw. Eisemissionen durchaus plausibel scheint.

5.4 Kondensstreifen aus einer Mischung aus konventionellem und semisynthetischem Treibstoff (Ref1 & SSJF3)

Während dem letzten Messflug der Kampagne (F11 am 09.10.2015) verbrannten die beiden Triebwerke des ATRA unterschiedliche Treibstoffe. Während Triebwerk 1 (in Flugrichtung gesehen links) mit Ref1 betrieben wurde, verbrannte Triebwerk 2 SSJF3. Das Rendezvous beider Flugzeuge fand in der TRA Allgäu statt, in welcher der ATRA auf einer Druckhöhe von 35 000 ft (≈ 10.7 km) und einer mittleren Umgebungstemperatur von 215.2 K den vermessenen Kondensstreifen erzeugte. Auf Basis der CR-2-Daten ergeben sich in der Messregion auf der ATRA Flughöhe mittlere RH_i zwischen 102 % und 108 %, was - unter Berücksichtigung der systematischen Messunsicherheit - auf eine Mischung aus untersättigten und übersättigten Bedingungen hindeutet. Aus der Berechnung der Schmidt-Appleman-Temperatur, $T_{SA} = 224.1 \pm 0.2$ K, geht hervor, dass diese die Umgebungstemperatur um etwa 9 K übersteigt. Die weitere Diskussion der Messungen dieses Flugs soll in Anlehnung an die bereits diskutierten Flüge erfolgen, wobei der Fokus auf etwaigen Unterschieden liegen wird.

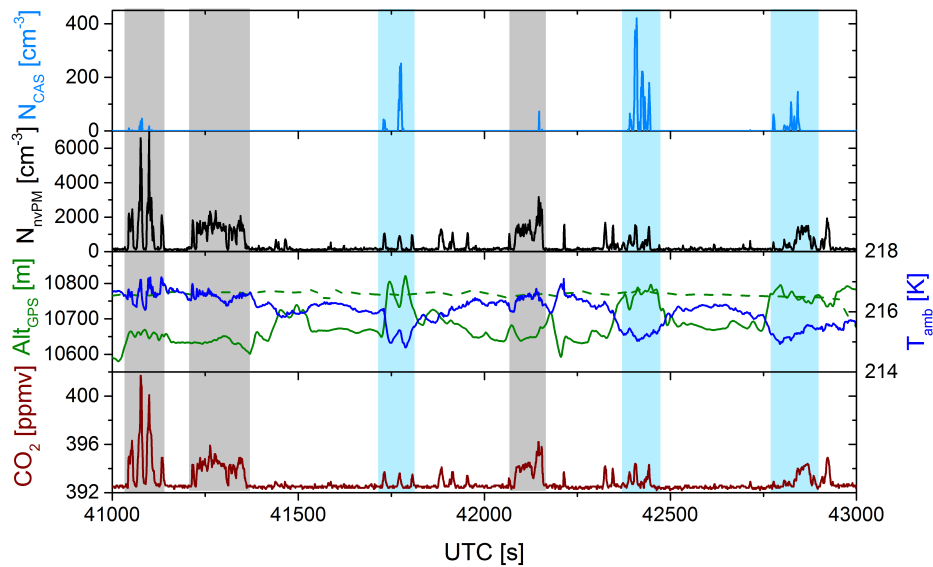


Abbildung 5.18 1-Hz-Zeitreihen der etwa 30-minütigen Sequenz der Wirbelphasenmessungen im Kondensstreifen des Ref1 (Triebwerk 1) und SSJF3 (Triebwerk 2) verbrennenden ATRA. Gezeigt sind Konzentrationen von Eispartikeln mit $D_p > 0.5 \mu\text{m}$ (N_{CAS}) und nicht-volatiler Partikel des Größenbereichs $0.01\text{-}1.9 \mu\text{m}$ (N_{nvPM}), Falcon GPS-Höhe und Umgebungstemperatur (durchgezogene Linien), ATRA GPS-Höhe (gestrichelte Linie), sowie CO_2 -Konzentrationen. Grau (blau) markierte Bereiche kennzeichnen Sequenzen in denen vergleichsweise niedrige (hohe) Falcon Flughöhen mit erhöhten N_{nvPM} (N_{CAS}) einhergehen. Phasenweise konstante Schubeinstellungen des ATRA resultierten in einem mittleren Treibstoffverbrauch von 820 (1190) kg h^{-1} je Triebwerk in der ersten (zweiten) Hälfte des dargestellten Zeitraums.

In Abb. 5.18 sind Zeitreihen der Wirbelphasenmessungen des auf 70-122 s gealterten Kondensstreifens dargestellt. Es zeigt sich, dass die Falcon den Nachlauf des ATRA

in seiner gesamten vertikalen Ausdehnung vermessen und dabei einen Höhenbereich von ≈ 170 m abgedeckt hat. Gegenüber dem atmosphärischen Hintergrund wurden maximal erhöhte Konzentrationen von 421 cm^{-3} (ΔN_{CAS}), 6610 cm^{-3} (ΔN_{nvPM}) und 9.7 ppmv (ΔCO_2) gemessen. Im direkten Vergleich mit den Zeitreihen der bereits analysierten Flüge (Abb. 5.3 und 5.11) fallen dabei zunächst die insgesamt deutlich reduzierten Konzentrationen der Eispartikel auf. Da sich diese Feststellung auf Messungen im primären als auch sekundären Nachlauf bezieht, deutet dies auf ein eisuntersättigtes Umfeld hin, für das signifikante Sublimationsverluste bzw. kurzlebige Kondensstreifen charakteristisch sind¹. Da die Sichtbarkeit des Kondensstreifens allerdings mit realisierten Eispartikelkonzentrationen skaliert, stellte es für die Piloten ein schwieriges Unterfangen dar, die Falcon möglichst zentral in den Nachlauf des ATRA zu manövrieren. In der Folge konnten nur bei kurzen zeitlichen Sequenzen stark erhöhte nvPM- bzw. CO_2 -Konzentrationen gemessen werden.

Trotz der nicht optimalen Begleitumstände gewähren die Messungen interessante Einblicke in die innere Struktur kurzlebiger Kondensstreifen. Wie schon beim Referenzfall zeigen sich auch hier unterschiedliche Charakteristika der Messungen, je nach Grad der Wirbelprozessierung bzw. Absinktiefe. So sind Messungen bei großen Absinktiefern (graue Bereiche in Abb. 5.18) von vergleichsweise geringen N_{CAS} und erhöhten N_{nvPM} gekennzeichnet, während für kleine Absinktiefern (blaue Bereiche in Abb. 5.18) ein umgekehrter Effekt zu beobachten ist. Es sei betont, dass es bei den Wirbelphasenmessungen nicht möglich ist, die Beiträge der einzelnen Triebwerke zu einer gewissen Stichprobe zu rekonstruieren. Da der visuelle Eindruck aus dem Cockpit aber darauf hindeutet, dass die Beiträge aus beiden Triebwerken in diesem Entwicklungsstadium des Nachlaufs bereits gut durchmischt sind, wird im Folgenden davon ausgegangen, dass entsprechende Messungen einen Mittelwert aus zugrunde liegenden Beiträgen von Ref1 und SSJF3 repräsentieren.

Auf Basis der CAS-Messungen wurden einige mikrophysikalische und optische Parameter der PSD_{Eis} berechnet. Entsprechende Vertikalprofile sind in Abb. 5.19 dargestellt. In der Gegenüberstellung mit entsprechenden Profilen der bereits analysierten Flüge fällt sofort auf, dass der Kondensstreifen eine deutlich geringere vertikale Ausdehnung aufweist. So zeigen sich Eispartikelkonzentrationen lediglich bis zu Absinktiefern von ≈ 50 m signifikant erhöht, während größere Absinktiefern mit einem drastischen Konzentrationsabfall einhergehen. Unabhängig davon, ob Mediane, 95%-Perzentile oder Maximalwerte betrachtet werden, ergeben sich für F11 stark reduzierte Werte von N_{CAS} , b_{ext} und IWC über das gesamte Vertikalprofil. Gefundene Maximalwerte betragen 421 cm^{-3} (N_{CAS}), 2.1 km^{-1} (b_{ext}) bzw. 1.2 mg m^{-3} (IWC) und wurden im sekundären Nachlauf, nahe des Emissionslevels, bei einem Alter von 110 s gemessen. Im direkten Vergleich zu den Vertikalprofilen der bereits diskutierten Flüge (F10, F02), wird im vorliegenden Fall die Wirbelprozessierung der Eispartikel von deutlich stärkeren Sublimationsverlusten geprägt.

¹ Dies steht in Einklang mit den Beobachtungen der Falcon Piloten, für die es beim Flug F11 eine Herausforderung darstellte, Restbestände der nur kurzlebigen Kondensstreifen visuell auszumachen.

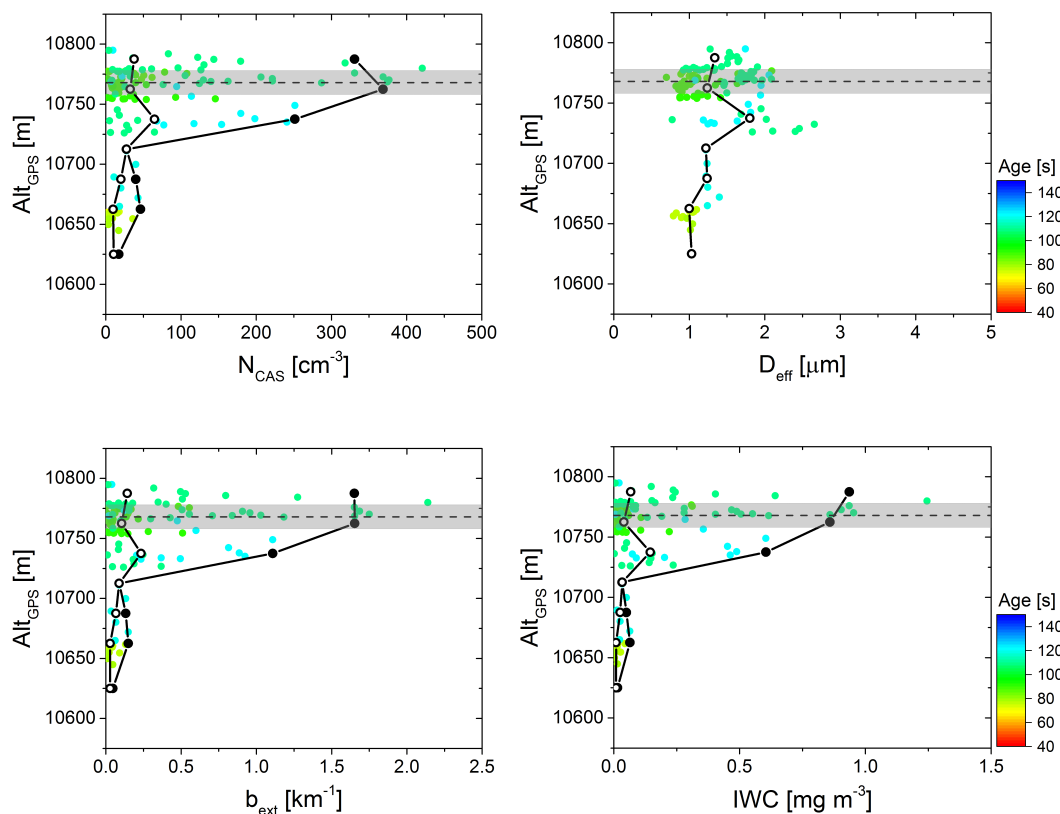


Abbildung 5.19 Vertikalprofile der Eispartikelkonzentrationen mit $D_p > 0.5\ \mu m$ (N_{CAS}) und daraus abgeleitete Profile von D_{eff} , b_{ext} und IWC , jeweils in Abhängigkeit des Kondensstreifenalters (farbkodiert) und auf die GPS-Flughöhe des ATRA bezogen (10768 ± 10 m, grau). Weiter sind 95%-Perzentile (ausgefüllte Punkte) und Mediane (offene Punkte) der Höhenbins eingezeichnet.

Um eine grobe Vorstellung der atmosphärischen Hintergrundfeuchte in der Messregion zu gewinnen, ist in Abb. 5.20 das aus CR-2-Daten abgeleitete RH_i -Vertikalprofil dargestellt. Aufgetragen sind höhenpezifisch berechnete Mediane (offene Punkte), 25%- bzw. 75%-Perzentile (grauer Bereich) sowie 5%- bzw. 95%-Perzentile (blauer Bereich). Hierbei wurde über alle in der Messregion aufgezeichneten Daten gemittelt, die keine Kondensstreifensignatur aufweisen. Einerseits wird deutlich, dass relative Feuchten in der Messregion auf der ATRA Flughöhe stark variieren. In Bezug auf die Eisknucleation bedeutet das, dass diese - je nach den lokalen Umgebungs-

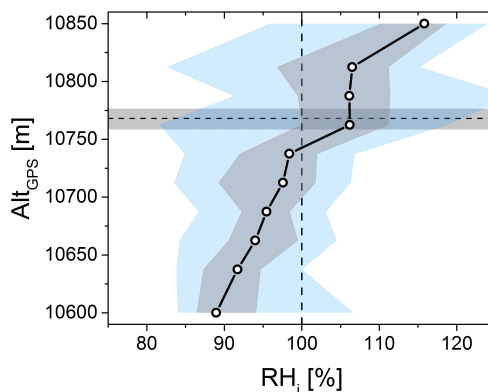


Abbildung 5.20 RH_i -Profil des atmosphärischen Hintergrunds in der Messregion.

bedingungen - eingebettet in einem untersättigten bis übersättigten Umfeld erfolgte. Weiter zeigen die CR-2-Daten, dass RH_i hin zu geringeren Höhen deutlich kleiner werden und bei Höhen ≤ 10740 m eisuntersättigte Bedingungen dominieren. Betrachtet man das Vertikalprofil von N_{CAS} , so zeigt sich, dass die stärksten Reduktionen der Eispartikelkonzentrationen auf den Höhenbereich entfallen, der vom Übergang tendenziell eisübersättigter zu eisuntersättigten Bedingungen gekennzeichnet ist. Damit wird der starke Abfall der N_{CAS} für größere Absinktiefen nachvollziehbar, da die Einmischung eisuntersättigter Luftmassen interne, durch adiabatische Erwärmung verursachte, Sublimationseffekte noch verstärkt.

Das Vertikalprofil der Effektivdurchmesser (Abb. 5.19) deckt sich weitestgehend mit dem Befund erhöhter Sublimationsverluste. Im Vergleich zu den anderen Flügen (F10, F02) ergeben sich deutlich geringere D_{eff} . Dabei spannen die D_{eff} einen Bereich von 1.0-1.8 μm (Mediane) bzw. 0.7-2.7 μm (1-Hz-Daten) auf. Inwieweit ein signifikanter Trend reduzierter D_{eff} für größere Absinktiefen vorliegt, kann auf Basis des vorliegenden Stichprobenumfangs kaum abschließend beurteilt werden. Erschwerend kommt hinzu, dass aus den CAS-Messungen bestimmte D_{eff} dem unteren Messbereich (0.5 μm) sehr nahe kommen, was eine systematische Überschätzung berechneter D_{eff} für Werte ≤ 1 μm vermuten lässt. Zusammenfassend kann festgehalten werden, dass vergleichsweise kleine D_{eff} im Kontext des beobachteten Feuchteprofils durchaus plausibel erscheinen. So fallen atmosphärische Beiträge zum initialen Eispartikelwachstum aufgrund geringer Übersättigungen auf Emissionsniveau relativ gering aus. Weiter ergeben sich erhöhte Sublimationsverluste im Verlauf der Wirbelphase, hervorgerufen durch die Kombination aus geringeren Partikelgrößen und relativ trockener eingemischter Umgebungsluft.

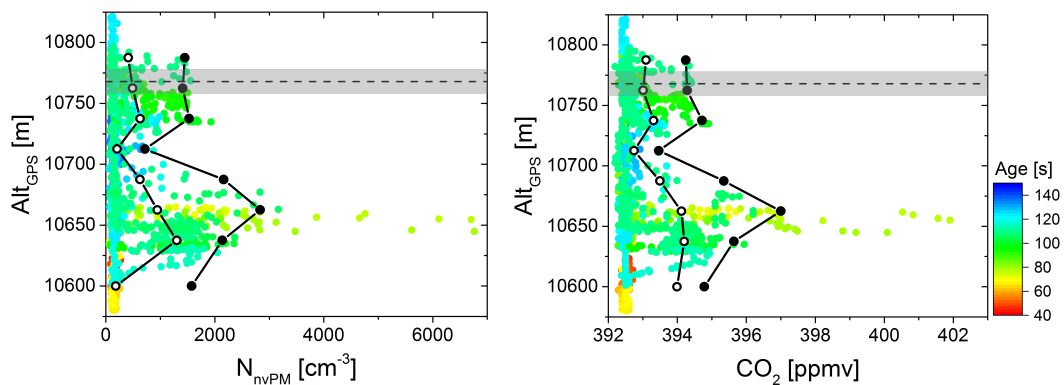


Abbildung 5.21 Vertikalprofile von N_{nvPM} und der CO_2 -Konzentration, jeweils in Abhängigkeit des Kondensstreifenalters (farbkodiert) und bezogen auf die GPS-Flughöhe des ATRA (10768 ± 10 m, grau). Weiter sind 95%-Perzentile (ausgefüllte Punkte) und Mediane (offene Punkte) der Höhenbins eingezeichnet.

Abb. 5.21 stellt gemessene Vertikalprofile von N_{nvPM} und der CO_2 -Konzentration dar. Maximal erhöhte Konzentrationen von 6610 cm^{-3} (ΔN_{nvPM}) bzw. 9.7 ppmv (ΔCO_2) werden dabei im Primärwirbel bei Absinktiefen von etwa 120 m und Altern ≈ 75 s gefunden. Demgegenüber wurden im sekundären Nachlauf bei etwas höheren Altern

(100-120 s) deutlich geringere Konzentrationen gemessen. Gewissermaßen in Analogie zu den Flügen F10 und F02 sind auch diese Vertikalprofile starkes Indiz dafür, dass der Großteil der in der Jetphase vorliegenden Emissionen in die Wirbel eingemischt und abwärts prozessiert wird. Da insbesondere die Messungen des passiven Tracers CO_2 zeigen, dass der Primärwirbel zentral vermessen wurde, unterstreicht dies den starken Einfluss der Sublimation auf die Eispartikel des untersuchten Kondensstreifens. Im Gegensatz zu den zuvor analysierten Flügen (F10, F02) werden für F11 im Primärwirbel keine signifikant erhöhten N_{CAS} gefunden, obwohl synchron gemessene ΔCO_2 mit knapp 10 ppmv hoch ausfallen.

Wieder soll die Analyse mit einem Blick auf das Vertikalprofil berechneter Emissionsindizes vervollständigt werden. Diese sind in Abb. 5.22 gezeigt, wobei in der Darstellung zwischen voneinander abweichenden Treibstoffflüssen unterschieden wird. Wie schon bei den zuvor untersuchten Flügen ergeben sich höchste AEI_{Eis} bei kleinen Δz , während für größere Absinktiefen erhebliche Eispartikelverluste charakteristisch sind. Der Abfall der AEI_{Eis} auf verschwindend geringe Werte erfolgt dabei auf Höhen vom Emissionsniveau bis etwa 50 m darunter, also in dem Bereich, in dem auch N_{CAS} und RH_i deutlich abnehmen. Für einen mittleren Treibstoffverbrauch von 1190 (820) kg h^{-1} je Triebwerk betragen bei $\Delta z = -4$ (23) m maximal gemessene AEI_{Eis} 1.2 (1.0) $\times 10^{15} \text{ kg}^{-1}$. Demgegenüber zeigen sich die $EI_{\text{Ruß}}$ über das gesamte Vertikalprofil deutlich erhöht. Dabei weisen die $EI_{\text{Ruß}}$ in dem Δz -Bereich, der von Eispartikelverlusten geprägt ist, einen Anstieg für zunehmende Δz auf. Für größere Absinktiefen ist hingegen - ganz analog zu den AEI_{Eis} - kein signifikanter Δz -Trend der $EI_{\text{Ruß}}$ auszumachen.

Die AEI_{tot} unterliegen im vertikalen Verlauf einer gewissen Varianz, die im Bereich der angegebenen Messunsicherheit liegt. Insgesamt ist kein signifikanter Δz -Trend der AEI_{tot} zu erkennen¹. Über Δz gemittelt ergeben sich für die beiden realisierten Treibstoffverbräuche von 1190 (820) kg h^{-1} für AEI_{tot} Werte von 3.9 (3.4) $\times 10^{15} \text{ kg}^{-1}$ mit einer empirischen Standardabweichung von ± 4.2 (3.6) $\times 10^{14} \text{ kg}^{-1}$.

Auf Basis der bereits gewonnen Erkenntnisse lassen sich die Messergebnisse gewissermaßen selbstkonsistent interpretieren. Wie schon in den zuvor analysierten Kondensstreifen weisen im Verlauf der Wirbelprozessierung abnehmende AEI_{Eis} einen starken Einfluss der Sublimation auf realisierte Eispartikelkonzentrationen nach. Im vorliegenden Fall scheinen sich interne, durch adiabatische Erwärmung des absinkenden Wirbels hervorgerufene, Sublimationsverluste durch das Einmischen eisuntersättigter Luft deutlich zu verstärken. Insgesamt zeigen sich damit die AEI_{Eis} über das gesamte Vertikalprofil deutlich von Sublimationsverlusten reduziert. Die Überlagerung der beiden zur Sublimation beitragenden Effekte verhindert eine Abschätzung der ausschließlich durch die Abwärtsprozessierung verursachten Verluste. Die im Bereich des sekundären Nachlaufs beobachtete Antikorrelation zwischen AEI_{Eis} und $EI_{\text{Ruß}}$ ist wiederum starkes Indiz für eine rußkontrolliert ablaufende Eisbildung, nach der

¹ Scheinbar erhöhte AEI_{tot} für geringere Δz , die sich in Abb. 5.22 für den Treibstoffverbrauch von 820 kg h^{-1} andeuten, basieren auf lediglich einem Datenpunkt, der seinerseits mit großen Unsicherheiten von $\pm 4 \times 10^{14} \text{ kg}^{-1}$ (ΔAEI_{tot}) bzw. $\pm 25 \text{ m}$ ($\Delta \Delta z$) behaftet ist.

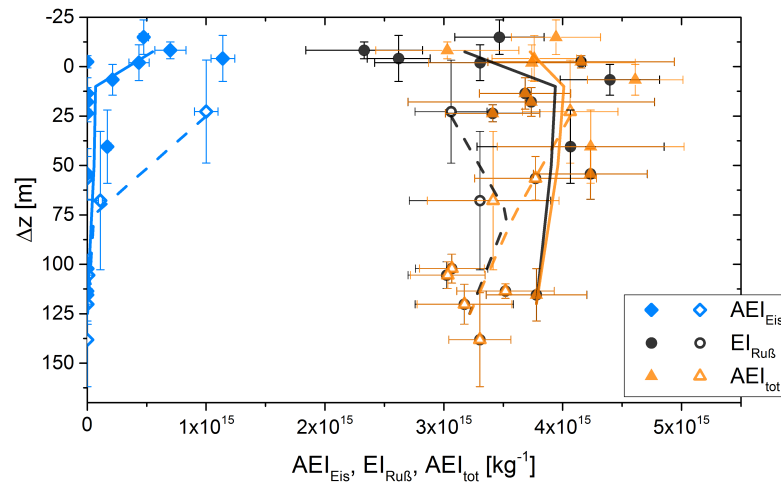


Abbildung 5.22 Vertikalprofile berechneter AEI_{Eis} (blaue Rauten), $EI_{\text{Ruß}}$ (schwarze Punkte) und AEI_{tot} (orangene Dreiecke). Ausgefüllte (1190 kg h^{-1}) und offene (820 kg h^{-1}) Symbole kennzeichnen Messungen bei verschiedenen mittleren Treibstoffflüssen des ATRA je Triebwerk, die sich als Resultat geänderter Schubeinstellungen ergaben. $\Delta z > 0$ stehen für positive Absinktiefen und entsprechen Höhen unterhalb der Flughöhe des ATRA. Letztere liegt bei $\Delta z = 0$. Für den Treibstoffverbrauch von 1190 (820) kg h^{-1} sind Mittelwerte der EI in Δz -Bins durch durchgezogene (gestrichelte) Linien verbunden. Die Δz wurden als konzentrationsgewichtete Mittelwerte berechnet, wobei entsprechende Fehlerbalken den von der Falcon während der Datennahme durchquerten Höhenbereich abdecken. Fehlerbalken der EI repräsentieren Unsicherheiten der Bestimmung der Hintergrundkonzentrationen (CO_2 , N_{CAS} , N_{ivPM}).

nahezu jeder Eiskristall einen Rußkern besitzt. Auf Basis der vorliegenden Daten kann für die Aktivierungsrate der Rußpartikel, f_* , nur eine sehr grobe Abschätzung einer Untergrenze erfolgen. So müssen mindestens 30 % der Rußpartikel aktiviert worden sein. Für eine restriktivere Einschätzung müssten von Sublimation unbeeinflusste Messungen (nahe $\Delta z=0$) vorliegen. Gemäß Modellrechnungen (Kärcher et al. 2015) ist für den untersuchten kalten Kondensstreifen eine Aktivierungsrate f_* von über 90 % zu erwarten, was wiederum den starken Einfluss der Sublimation - auch im sekundären Nachlauf - verdeutlicht.

Abschließend sollen von der CAS gemessene Eispartikel PSDs untersucht werden. Hierzu sind in Abb. 5.23 und 5.24 jeweils direkte Vergleiche von PSDs dargestellt, die bei ähnlichen Kondensstreifenaltern im Bereich von 85 bis 121 s gemessen wurden. Im Gegensatz zu den PSDs der bereits vorgestellten Flüge (F10, F02), die in einem feuchteren Umfeld erfolgten, weisen die für F11 gefundenen PSDs keine nennenswerten Konzentrationen von Eispartikeln mit $D_p > 10 \mu\text{m}$ auf. Der Prozess der Sublimation bewirkt also in erster Linie eine deutliche Reduktion der Konzentration vergleichsweise großer Eispartikel. Vergleicht man weiter die während F11 in einer relativ trockenen Atmosphäre gemessenen PSDs untereinander, zeichnet sich - im Vergleich zu eisübersättigten Bedingungen (F10, F02) - ein differenzierteres Bild. So zeigt sich einerseits,

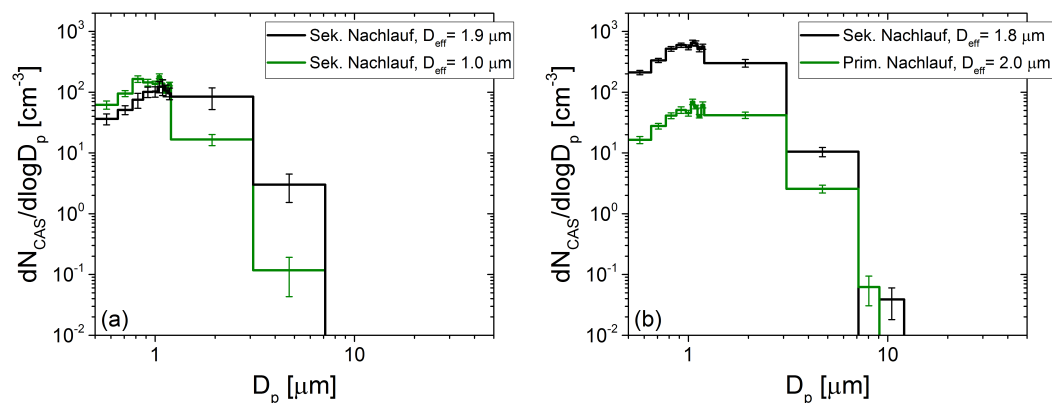


Abbildung 5.23 Gegenüberstellung von Eis-PSDs vergleichbarer Alter. (a) Messungen im sekundären Nachlauf bei Altern von 90 (85) s, Absinktiefen $\Delta z = -9$ (-8) m, $N_{CAS} = 63$ (49) cm^{-3} , $D_{\text{eff}} = 1.9$ (1.0) μm , gemittelt über einen Zeitraum von 4 (4) s. (b) Messungen im sekundären (primären) Nachlauf bei Altern von 109 (109) s, $\Delta z = 1$ (37) m, $N_{CAS} = 286$ (32) cm^{-3} , $D_{\text{eff}} = 1.8$ (2.0) μm , gemittelt über 9 (6) s. Eingezeichnete Fehlerbalken beziehen sich auf die Standardabweichung der Binmittelwerte.

dass Größen von Eispartikeln auch bei vergleichbaren Δz im sekundären Nachlauf eine deutliche Varianz aufweisen können (Abb. 5.23a). Bei Absinktiefen < 40 m konnten zudem leicht erhöhte Partikelgrößen im tiefer abgesunkenen Wirbel beobachtet werden (Abb. 5.23b). Diese Beobachtungen weichen von den Systematiken der auf Abwärtsprozessierung basierenden Sublimationsverluste, die im Rahmen der Flüge F10 und F02 in einem eisübersättigten Umfeld gefunden wurden, ab, scheinen auf Basis des während F11 gemessenen Feuchteprofils (Abb. 5.20) jedoch nachvollziehbar. So ist der Höhenbereich, der Absinktiefen < 50 m entspricht, von stark variierenden RH_i geprägt, was widerspiegelt, dass in der Messregion eine räumliche Verteilung eisübersättigter und -untersättigter Bedingungen vorlag. So können lokale Unterschiede der Hintergrundfeuchte durchaus einen größeren Einfluss auf die Eispartikelsublimation ausüben, als die Abwärtsprozessierung auf relativ kleinen Δz -Skalen. Für den auf ≈ 2 min gealterten und vertikal ausgedehnten Kondensstreifen (Abb. 5.24) korrelieren höhere Sublimationsverluste wiederum deutlich mit erhöhten Absinktiefen. Vor dem Hintergrund des Profils der Umgebungsfeuchte (Eisuntersättigung für $\Delta z > 50$ m) sind in diesem Fall die Eispartikelverluste wahrscheinlich auf eine Kombination aus adiabatischer Erwärmung des absinkenden Wirbels und der Einmischung eisuntersättigter Umgebungsluft

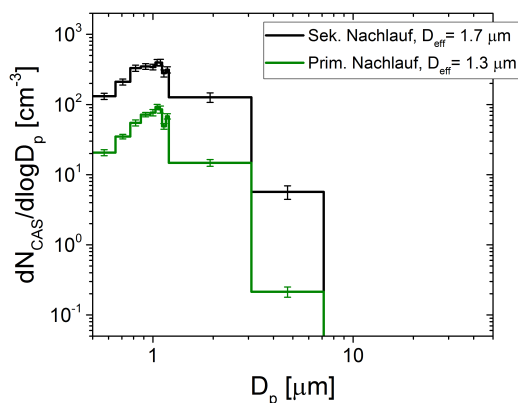


Abbildung 5.24 Messungen im sekundären (primären) Nachlauf bei Altern von 119 (121) s, $\Delta z = 29$ (86) m, $N_{CAS} = 151$ (24) cm^{-3} , $D_{\text{eff}} = 1.7$ (1.3) μm , gemittelt über 9 (6) s.

zurückzuführen. Als Fazit kann festgehalten werden, dass in einem im Mittel (höchstens) schwach eisübersättigten Umfeld mit räumlich deutlich variierenden RH_i der Einfluss lokal vorliegender Umgebungsbedingungen auf Sublimationsverluste wächst. Der Einfluss der Umgebung ist dabei dem internen Prozess der Sublimation durch adiabatische Erwärmung überlagert.

5.5 Treibstoffabhängigkeit der Eis- und Rußemissionen

Nach der Analyse der grundlegenden mikrophysikalischen Prozesse der Wirbelphase, sollen die für die verwendeten Treibstoffe gemessenen Eis- und Rußemissionen einander gegenübergestellt werden. Zu diesem Zweck werden in Abb. 5.25 zunächst die AEI_{tot} für die verschiedenen Treibstoffe und Treibstoffflüsse dargestellt.

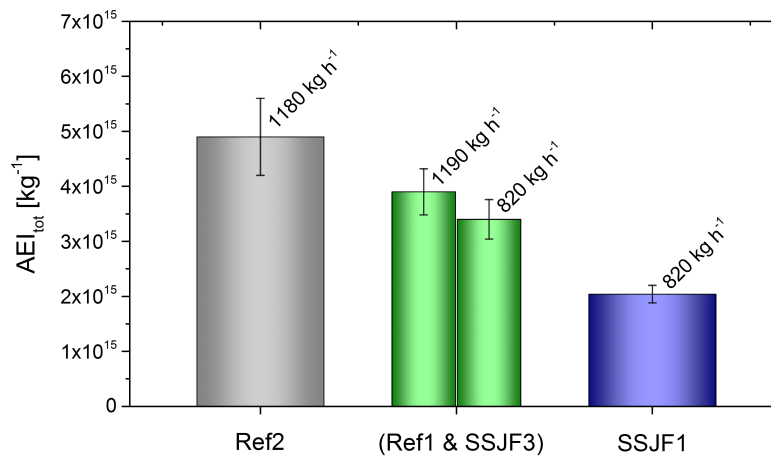


Abbildung 5.25 Gegenüberstellung der für die verschiedenen Treibstoffe bestimmten AEI_{tot} . Fehlerbalken repräsentieren die empirische Standardabweichung der Datenpunkte der zugrunde liegenden Vertikalprofile. Die angegebenen Treibstoffflüsse beziehen sich auf ein Triebwerk und wurden als Mittel über die jeweilige Messperiode berechnet.

Ein Vergleich auf Basis der AEI_{tot} bietet sich für die untersuchten Flüge bzw. Treibstoffe an, konnte doch in allen (drei) betrachteten Fällen die rußkontrollierte Eisbildung als dominierender Nukleationsprozess identifiziert werden. Per Definition ermöglichen es die AEI_{tot} , Stichproben verschiedener Aktivierungsraten f_* , Verdünnungs- und Sublimationsgrade direkt miteinander zu vergleichen. Bezogen auf Flugzeugmessungen im äußerst dynamischen Umfeld der Wirbelphase sowie variabler atmosphärischer Bedingungen und damit f_* , stellt dies einen entscheidenden Vorteil gegenüber einem Vergleich anderer Größen (wie z. B. auch AEI_{Eis}) dar. Hierbei repräsentieren die AEI_{tot} die totalen Rußemissionen der jeweiligen Treibstoffe, aus denen die Jetphasen-Eisemissionen nach $f_* \cdot AEI_{\text{tot}}$ hervorgehen.

Zwar unterliegen die f_* einer gewissen Abhängigkeit von den konkreten atmosphärischen Bedingungen (Kärcher et al. 2015), die vor allem nahe T_{SA} deutlich ausfällt,

jedoch ist dies unerheblich bei der Bestimmung des treibstoffseitigen Einflusses auf die Eisemissionen. Zur gezielten Feststellung des alleine dem Treibstoff zuzuschreibenden Effekts auf die Eisemissionen müssen die atmosphärischen Rahmenbedingungen ja gewissermaßen konstant gehalten werden. Bezieht man sich hierbei auf für den Großteil des globalen Luftverkehrs typische Reiseflugbedingungen, kann in guter Näherung von Aktivierungsraten von 90 % ausgegangen werden (s. Kap. 5.2, Kärcher et al. (2015), Bier & Burkhardt (2019)). Damit kann ein direkter Bezug der AEI_{tot} zu für die Jetphase repräsentativen AEI_{Eis} hergestellt werden.

Es zeigt sich, dass die AEI_{tot} für die verschiedenen Treibstoffe deutlich variieren. Insbesondere unterscheiden sich die für Ref2 ($4.9 (\pm 0.7) \times 10^{15} \text{ kg}^{-1}$ bei 1180 kg h^{-1}) und SSJF1 ($2.04 (\pm 0.16) \times 10^{15} \text{ kg}^{-1}$ bei 820 kg h^{-1}) bestimmten Werte signifikant.

Die AEI_{tot} der Treibstoffmischung aus Ref1 & SSJF3 liegen in dem von Ref2 und SSJF1 aufgespannten Bereich und erlauben zudem eine Abschätzung des Einflusses der Betriebspunkte des Triebwerks auf resultierende Partikelemissionen. So fallen die AEI_{tot} für den höheren Treibstofffluss von 1190 kg h^{-1} mit $3.9 (\pm 0.42) \times 10^{15} \text{ kg}^{-1}$ etwa 15 % höher aus als der für den geringeren Verbrauch von 820 kg h^{-1} zu $3.4 (\pm 0.36) \times 10^{15} \text{ kg}^{-1}$ bestimmte Vergleichswert. Die angegebenen Unsicherheiten beziehen sich jeweils auf die empirische Standardabweichung. Nutzt man diese Korrelation, um die für SSJF1 gemessenen AEI_{tot} auf den Referenzwert von 1180 kg h^{-1} zu skalieren,

ergibt sich der in Abb. 5.26 dargestellte Zusammenhang. So zeigt sich ein deutlicher Trend zu reduzierten Rußemissionen für höhere H/C-Verhältnisse. Letztere sind dabei Ausdruck der reduzierten Aromatengehalte von im Fischer-Tropsch-Prozess hergestellten Treibstoffen. Zur abschließenden Beurteilung, ob es sich beim beobachteten Trend um einen linearen oder nicht-linearen Prozess handelt, bedarf es weiterer Kondensstreifenmessungen unter Verwendung anderer Treibstoffe mit abweichenden H/C-Verhältnissen. Bezogen auf einen Verbrauch von 1180 kg h^{-1} belaufen sich die gegenüber Ref2 ermittelten Reduktionen der Rußemissionen auf 52 (± 3) % (SSJF1) bzw. 20 (± 5) % (Ref1, SSJF3). Die Unsicherheiten wurden dabei aus den jeweiligen Standardabweichungen der Mittelwerte bestimmt. Es sei erwähnt, dass - streng genommen - eine Skalierung auf den Energiegehalt der in einem gegebenen Zeitraum verbrannten Treibstoffmenge durchzuführen ist. Da die Unterschiede im Energiegehalt der bei ECLIF verwendeten Treibstoffe jedoch mit ≈ 1 % gering ausfallen (s. Tab. 5.1), wird an dieser Stelle darauf verzichtet.

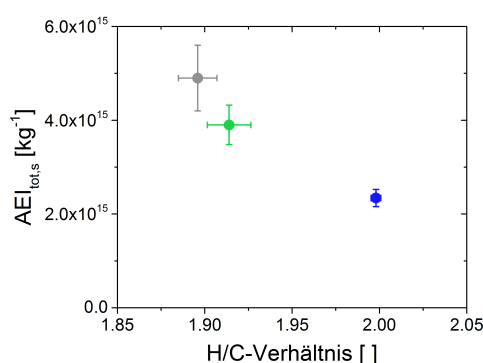


Abbildung 5.26 Abhängigkeit der AEI_{tot} vom H/C-Verhältnis der jeweiligen Treibstoffe. Hierbei wurden die AEI_{tot} für SSJF1 auf den Referenzwert von 1180 kg h^{-1} skaliert.

Im Hinblick auf die Modellierung der Klimawirkung von Kondensstreifen stellt sich die Frage, inwieweit für gegebene atmosphärische Bedingungen ein alleiniger Einfluss der chemischen Zusammensetzung des Treibstoffs auf zu einem bestimmten

Zeitpunkt¹ vorliegende Eispartikelkonzentrationen isoliert festgestellt werden kann. Die gemessenen AEI_{tot} bieten dabei einen direkten Zugang, um zur Klärung dieser Frage beizutragen, sind sie doch - per Konstruktion - weitestgehend unabhängig von atmosphärischen Einflüssen. Geht man davon aus, dass die Aktivierungsraten f_{\star} für den ermittelten Emissionsbereich von etwa $2 - 5 \times 10^{15} \text{ kg}^{-1}$ nicht substanziell vom Rußemissionsindex abhängen², entsprechen die relativen Reduktionen der während der Jetphase vorliegenden Eisemissionsindizes in guter Näherung den für die AEI_{tot} bestimmten relativen Reduktionen. Bezüglich von Sublimation unbeeinflussten Eisemissionsindizes, wie sie in einer eisübersättigten Atmosphäre zu Beginn der Wirbelphase auf Emissionsniveau vorliegen, ergeben sich damit gegenüber Ref2 um $50 (\pm 4) \%$ (SSJF1) bzw. $19 (\pm 6) \%$ (Ref1, SSJF3) reduzierte Werte. Diese Angaben beziehen sich auf den Referenztreibstofffluss von 1180 kg h^{-1} je Triebwerk und berücksichtigen eine leichte Abhängigkeit der Aktivierungsraten emittierter Rußpartikel von deren Emissionsindex nach Kärcher et al. (2015).

Stehen hingegen nach der Wirbelphase vorliegende Eispartikelzahlen im Fokus, müssen zudem während der Wirbelphase ablaufende Sublimationsmechanismen berücksichtigt werden. Im Fall einer eisübersättigten Atmosphäre, die Voraussetzung einer starken Klimawirkung des Kondensstreifens ist, bedingt die Abwärtsprozessierung Sublimationsverluste, die mit bis zu 80 % substanziell ausfallen können (s. Kap. 5.2). Da die Daten Hinweise auf den durchaus plausibel erscheinenden Zusammenhang zwischen reduzierten Rußemissionen und erhöhten Eispartikelgrößen liefern (s. Kap. 5.3), muss davon ausgegangen werden, dass sich für reduzierte Rußemissionen auch die relativen Sublimationsverluste der Eispartikel reduzieren. Bezogen auf die den Treibstoffen zuzuschreibenden relativen Unterschiede zwischen den Eisemissionen, die zu Beginn der Wirbelphase vorliegen, fallen die relativen Unterschiede nach der Wirbelphase daher vermutlich geringer aus. Um den diesbezüglichen Einfluss der Wirbelphase experimentell zu quantifizieren, müssten für sämtliche Treibstoffe komplette Vertikalprofile in einer eisübersättigten Umgebung vor *und* nach der Wirbelphase vorliegen. Da bei ECLIF kein solcher Datensatz gewonnen werden konnte, kann rein experimentell nicht näher quantifiziert werden, zu welchem Grad zu Beginn der Wirbelphase vorliegende Unterschiede der Eisemissionen im Verlauf der Wirbelphase reduziert werden. Dennoch soll an dieser Stelle durch eine Orientierung an den Ergebnissen einschlägiger LES-Studien eine erste, grobe Einordnung dieses Effekts für die vorliegenden Treibstoffe erfolgen. Unter Berücksichtigung der in Unterstrasser (2016) für $RH_i = 120 \%$ berechneten Abhängigkeit der Sublimationsverluste von den Rußemissionen, lassen sich am Ende der Wirbelphase gegenüber Ref2 um etwa 33 % (SSJF1) bzw. 8 % (Ref1, SSJF3) reduzierte Eisemissionen abschätzen. Es sei erwähnt, dass die treibstoffbedingten relativen Reduktionen der Eisemissionen, die sich nach der Wirbelphase ergeben, vermutlich sehr viel sensitiver auf Änderungen atmosphärischer Rahmenbedingungen oder des Flugzeugtyps reagieren, als dies für die relativen

1 Dieser Initialisierungszeitpunkt variiert dabei je nach Ansatz des Modells.

2 Da weder experimentelle (diese Arbeit) noch theoretische (Kärcher et al. 2015) Hinweise auf einen gegenteiligen Effekt hindeuten, scheint diese Annahme gerechtfertigt. Nach Kärcher et al. (2015) ergibt sich für gegebene $T_{\text{amb}} (< T_{\text{SA}})$ und die bei ECLIF ermittelten AEI_{tot} eine leichte AEI_{tot} -Abhängigkeit der f_{\star} von maximal 5 %, wobei geringere AEI_{tot} erhöhte f_{\star} bedingen.

Reduktion zu Beginn der Wirbelphase zu erwarten ist. Da die herangezogenen LES-Simulationen (Unterstrasser 2016) jedoch nicht an die konkreten Bedingungen der Messflüge bzw. den Flugzeugtyps (ATRA) angepasst sind, kann deren Verwendung nur einen ersten Eindruck der Wirbelphasenprozesse vermitteln.

Um eine genauere Einschätzung des Einflusses der Wirbelphase für die untersuchten Flüge bzw. Treibstoffe des ATRA zu ermöglichen, wird in Kap. 5.6 ein zu LES-Rechnungen alternativer, modellbasierter Ansatz vorgestellt. Eine separate Behandlung der Eispartikelverluste während der Wirbelphase ist notwendig, da diese Prozesse noch nicht abschließend in den zur Berechnung von Klimawirkungen genutzten globalen Modellen implementiert sind.

Grundsätzlich gestaltet sich die Untersuchung des Einflusses eines einzelnen Parameters auf in der Atmosphäre ablaufende Prozesse als schwierig, da in den seltensten Fällen sämtliche anderen Parameter sowie die Versuchsanordnung konstant gehalten werden können. Um den interessierenden Effekt isoliert untersuchen zu können, müssen daher verzerrende Einflüsse gewissermaßen herausgerechnet werden. In dieser Arbeit ermöglicht die Betrachtung der AEI_{tot} einen solchen, direkten Zugang zu den im Fokus stehenden Treibstoffeffekten. Dabei hätte der ECLIF-Datensatz sehr davon profitiert, wenn es möglich gewesen wäre, für mehrere Treibstoffsorten komplette Vertikalprofile von sich ausbildenden persistenten Kondensstreifen, die in einer eisübersättigten Umgebung überdauern, vermessen zu können.

5.6 Validierung der Sublimationsverluste während der Wirbelphase

Zur Beschreibung der Wirbeldynamik und um deren Einfluss auf die mikrophysikalischen Eigenschaften sich entwickelnder Kondensstreifen zu bestimmen, wurden verschiedene Modelle entwickelt, die sich hinsichtlich der Herangehensweise teilweise deutlich unterscheiden. Indes besteht weitestgehende Einigkeit darüber, dass sich im Wirbel abwärts prozessierte Luftmassen erwärmen und in der Folge Eispartikel sublimieren können. Allerdings wurden die wenigsten Modelle bezüglich der Stärke der prognostizierten Sublimationsverluste im Detail validiert. Dies hat sicherlich auch damit zu tun, dass die dafür notwendigen experimentellen Datensätze ein knappes Gut sind. So bedarf es zur Modellvalidierung Messungen mit einer guten räumlichen Auflösung, die neben Eispartikelkonzentrationen auch atmosphärische Hintergrundparameter umfassen und die idealerweise in einem eisübersättigten Umfeld erfolgen. Zudem muss eine gemeinsame „Sprache“ gefunden werden, indem Parameter identifiziert werden, die sowohl dem Experiment als auch dem Modell zugänglich sind.

Da insbesondere der ECLIF-Flug F10, bei dem der konventionelle Jet A-1 Treibstoff Ref2 verbrannt wurde, diese notwendigen Voraussetzungen erfüllt, wurden diese Daten herangezogen, um die Sublimationsverluste des in Kärcher & Voigt (2017) vorgestellten Modells zu validieren. Eine Übersicht der im Modell implementierten Prozesse ist in Abb. 5.27 dargestellt. Diese umfassen dabei alle relevanten mikrophysikalischen (Eisbildungs-, Wachstums-, Sublimations-) und dynamischen (Verdünnungs-) Prozesse

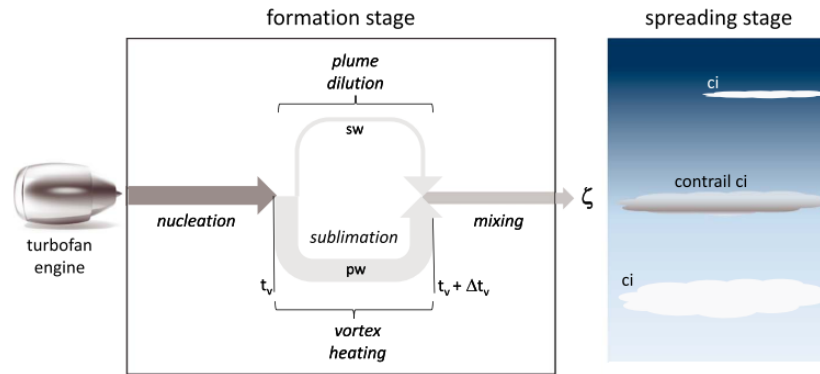


Abbildung 5.27 Schematische Darstellung der im Modell von Kärcher & Voigt (2017) implementierten Prozesse. Die Eiskonversionseffizienz, ζ , ergibt sich aus dem Verhältnis zwischen dem am Ende der Wirbelphase vorliegenden mittleren Eisemissionsindex, AEI_{avg} , und den initialen Rußemissionen, $EI_{\text{Ruß}}$. Es gilt $\zeta = AEI_{\text{avg}}/EI_{\text{Ruß}}$. Quelle: Kärcher & Voigt (2017)

der ersten 5 – 10 min der Kondensstreifenentwicklung. Ausgehend von der Modellinitialisierung, bei der die atmosphärischen Bedingungen, der Rußemissionsindex, sowie der Einmischungsgrad der Emissionen in den sekundären (sw) bzw. primären (pw) Nachlauf festgelegt werden, berechnet das Modell Vertikalprofile der Eisemissionsindizes im absinkenden Wirbelsystem. Letztere wurden zur Modellvalidierung den experimentellen Ergebnissen dieser Arbeit gegenübergestellt. Im Folgenden soll ein kurzer Überblick der Ergebnisse erfolgen, die detailliert in Kärcher et al. (2018) publiziert sind¹.

Das Modell wurde mit den bei F10 vorgefundenen atmosphärischen Rahmenbedingungen ($T_{\text{amb}} = T_{\text{SA}} - 9.5 \text{ K}$) und entsprechenden ATRA-Parametern initialisiert. Ausgehend von der Modellierung der Eisnukleation auf Ruß wird insbesondere der im Fokus stehende Einfluss der Wirbeldynamik auf die Eispartikelsublimation anhand des zeitlichen Verlaufs der Absinktiefen, z , untersucht. Auf Basis der Absinktiefen berechnet das Modell den akkumulierten Einfluss der Sublimation, woraus dann auf im absinkenden Primärwirbel maximal realisierte AEI geschlossen wird. Bezüglich des Vergleichs mit dem Experiment ergibt sich daher die Erwartung an die Kurvenform einer „Einhüllenden“.

Abb. 5.28a zeigt die Entwicklung der Eisemissionsindizes, AEI , während der ersten ≈ 2 min der Wirbelphase, in denen die Wirbel um z_{pw} absinken. Unter Berücksichtigung der Messergebnisse wurden Modellrechnungen angestellt (schwarze Kurven), die ausgehend von einem Rußemissionsindex von $4.5 \times 10^{15} \text{ kg}^{-1}$ den Sublimationsprozess für die bei F10 in der Messregion auf der ATRA Flughöhe gefundenen mittleren RH_i von 115 % und 125 % simulieren². Es zeigt sich, dass insbesondere im Bereich des

¹ Aus Konsistenzgründen zu Kärcher et al. (2018) werden - ausschließlich - in diesem Abschnitt (Kap. 5.6) Eisemissionsindizes als AEI bezeichnet.

² Zum Zeitpunkt dieser Modellstudie lag die ECLIF-Auswertung noch nicht in ihrer finalen Form vor, was Ursache für teilweise leicht abweichende Zahlenwerte ist.

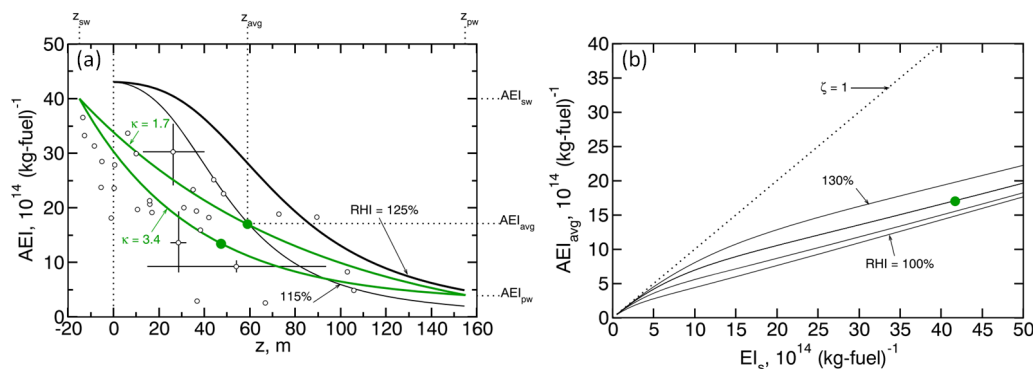


Abbildung 5.28 (a) Abhängigkeit des Eisemissionsindex, AEI , von der Wirbelabsinktiefe, z . Gezeigt sind während F10 gemessene Daten (offene Punkte) und Modellergebnisse (Kurven). Positive (negative) z -Werte reichen im primären (sekundären) Nachlauf bis zu z_{pw} (z_{sw}), wo Grenzwerte AEI_{pw} (AEI_{sw}) vorliegen. Schwarze Kurven zeigen Modellrechnungen für RH_i von 125 % und 115 % und repräsentieren maximale $AEI(z)$. Grüne Kurven stellen exponentielle Fits an die Daten für zwei verschiedene Skalenhöhen (100 bzw. 50 m) dar. Sie tragen der vollen Variabilität der AEI Rechnung und werden herangezogen, um über den Wirbel gemittelte AEI_{avg} zu berechnen (grüne Punkte). (b) Über den Wirbel gemittelte AEI_{avg} in Abhängigkeit der Rußemissionen, EI_s , für verschiedene relative Feuchten (100-130 %) auf Basis der Parametrisierung für eine Skalenhöhe von 100 m und $T_{amb} = T_{SA} - 9.5 \text{ K}$. Die gepunktete Linie ($\zeta = 1$) ergäbe sich, falls die Rußaktivierung zu 100 % effizient wäre und Sublimationsverluste nicht existierten. Der grüne Punkt kennzeichnet den Fit an die Messungen aus (a). Beide Abbildungen wurden aus Kärcher et al. (2018) übernommen. Die Messungen entstammen der vorliegenden Arbeit.

bereits deutlich abgesunkenen Primärwirbels, auf den das Modell auch zugeschnitten ist, das Modell seinen Zweck zu erfüllen scheint, also maximal gemessene AEI repräsentiert. Demgegenüber zeigen sich im Bereich des sekundären Nachlaufs (bei kleinen z) deutliche Abweichungen. In diesem Übergangsbereich kann das Modell die Beobachtungen nicht gut reproduzieren, weshalb zur weiteren Analyse exponentielle Fits an die Daten vorgenommen wurden (grüne Kurven). Diese Fits wurden für zwei Skalenhöhen unter den Randbedingungen $AEI(z_{pw,sw}) = AEI_{pw,sw}$ berechnet.

Zur Initialisierung globaler Modelle werden - neben der räumlichen Ausdehnung - insbesondere mittlere Eispartikelkonzentrationen der Kondensstreifen bzw. AEI_{avg} benötigt. Auf Basis der Fits an die Daten lassen sich letztere durch $AEI_{avg} = (1/H) \int_{z_{sw}}^{z_{pw}} AEI(z) dz$ berechnen, wobei $H = z_{pw} - z_{sw}$ für die geometrische Ausdehnung des Kondensstreifens in der Vertikale steht. Ausgehend von den zu 100 (50) m veranschlagten Skalenhöhen, ergeben sich $AEI_{avg} = 1.7 (1.3) \times 10^{15} \text{ kg}^{-1}$. Im Vergleich zu Eispartikelverlusten von $\approx 85 \%$, die sich bei kompletter Abwärtsprozessierung um mehr als 150 m ergeben, fallen mittlere Verlustraten mit etwa 60 % deutlich geringer aus.

Abb. 5.28b zeigt die vom Modell bestimmte Abhängigkeit der AEI_{avg} von den Rußemissionen (EI_s) für verschiedene Umgebungsfeuchten (RH_i), wobei eine dem Fit an die Daten entsprechende Parametrisierung der $AEI(z)$ verwendet wurde. So zeigt sich für $EI_s > 1.5 \times 10^{15} \text{ kg}^{-1}$ eine näherungsweise lineare Abhängigkeit. Auf

deren Basis ergeben sich für um 50 % reduzierte Rußemissionen um etwa 40 % reduzierte AEI_{avg} . Im Kontext der zu untersuchenden Treibstoffeffekte zeigt dies eindrücklich, dass zu Beginn der Wirbelphase existierende relative Unterschiede der Eisemissionen verschiedener Treibstoffe im Verlauf der Wirbelphase reduziert werden. Für vergleichsweise geringe Rußemissionen von $\leq 5 - 10 \times 10^{14} \text{ kg}^{-1}$ ergibt sich eine stärkere, nicht-lineare Abhängigkeit der AEI_{avg} von den Rußemissionen. Das bedeutet, dass der dämpfende Einfluss der Wirbelphase auf ursprünglich zur Jetphase vorliegende relative Unterschiede der Eisemissionen umso geringer ausfällt, je geringer das Emissionsniveau insgesamt ist. Anschaulich lässt sich dies dadurch erklären, dass Sublimationsverluste für abnehmende EI_s - und damit im Mittel größere Eispartikel - sukzessive geringer ausfallen.

Als Fazit lässt sich festhalten, dass es die Abstimmung des in Kärcher & Voigt (2017) eingeführten Modells mit den bei ECLIF gemessenen Daten erstmals ermöglicht, den während der Wirbelphase beobachteten Sublimationsprozess analytisch zu quantifizieren. Insbesondere konnten die für die globale Modellierung wichtigen AEI_{avg} ermittelt und direkt zu den Rußemissionen in Relation gesetzt werden. Bezüglich der ECLIF-Messungen im Nachlauf des ATRA lassen sich damit die nach der Wirbelphase vorliegenden relativen Reduktionen der mittleren Eisemissionsindizes (AEI_{avg}) gegenüber Ref2 zu 36 (± 5) % (SSJF1) bzw. 13 (± 7) % (Ref1, SSJF3) bestimmen. Diese Zahlen basieren auf einem Verbrauch von 1180 kg h^{-1} und wurden für $RH_i = 120$ % bestimmt, wobei die RH_i -Sensitivität dieser relativen Reduktionen vergleichsweise gering ausfällt.

Es sei erwähnt, dass dieser Modellvergleich noch optimiert werden kann, indem die Untergrenze des CAS-Messbereichs von $D_p = 0.5 \mu\text{m}$ berücksichtigt wird. Da die CAS-Messungen im Mittel nur etwa 90 % der vorhandenen Eispartikel detektieren, werden sich dadurch im Umkehrschluss auch aus dem Fit des Modells an die Daten (grüne Kurven in Abb. 5.28a) berechnete Absolutwerte um etwa 10 % erhöhen. Bestimmte relative Reduktionen der AEI_{avg} werden sich jedoch kaum ändern. Insgesamt liefert dieser detaillierte Vergleich der experimentellen Daten mit dem Modell aus Kärcher & Voigt (2017) damit Ergebnisse, die denen der ersten Abschätzung (s. Kap.5.5) unter Verwendung von LES-Simulationen (Unterstrasser 2016) sehr ähnlich sind. So fallen die Reduktionen der AEI_{avg} gegenüber Ref2 für SSJF1 (36 % vs. 33 %) und für die Mischung aus Ref1 & SSJF3 (13 % vs. 8 %) durchaus vergleichbar aus.

5.7 Einordnung der Messungen und Schlussfolgerungen

Die Relevanz von Flugmessungen zur Bestimmung von Triebwerksemissionen unter realen Bedingungen wurde schon früh erkannt. So untersuchen Anderson et al. (1998) im Rahmen von in-situ Messungen die Rußemissionen einiger ziviler und militärischer Flugzeuge und stellen diese einander gegenüber. Auch die Emissionen einiger Höhenforschungsflugzeuge wurden vermessen und miteinander verglichen (Weigel et al. 2009, Anderson et al. 1999). Insgesamt zeigt sich eine große Abhängigkeit der gemessenen Rußemissionen vom Flugzeug- bzw. Triebwerkstyp und dessen Betriebsbedingungen, während die Sensitivität gegenüber atmosphärischen Parametern vergleichsweise gering ausfällt. Die Rußemissionen spannen dabei einen Bereich von

etwa $5 \times 10^{14} - 4 \times 10^{16} \text{ kg}^{-1}$ auf, wobei spätere Messungen (Anderson et al. 1999) für Rußpartikel mit $D_p \geq 17 \text{ nm}$ mittlere Emissionen von $3 \times 10^{15} \text{ kg}^{-1}$ für zivile Verkehrsflugzeuge abschätzen. Demgegenüber finden Messungen von Petzold et al. (1999) an einem in der zivilen Luftfahrt weit verbreiteten Triebwerk (CFM 56-3B1) mit $\simeq 3 \times 10^{14} \text{ kg}^{-1}$ deutlich geringere Werte und zeigen zudem, dass auch die Größe emittierter Rußpartikel je nach Triebwerk deutlich variieren kann. Für das CFM 56 Triebwerk wurden vergleichsweise kleine Rußpartikel mit einer Primärmode bei $\simeq 25 \text{ nm}$ gefunden. Im Gegensatz zu den flugzeuggetragenen Rußmessungen, die damit schon eine gewisse Tradition haben, finden sich in der Literatur kaum Messungen von Eisemissionsindizes dokumentiert. Schumann et al. (2013) finden im sekundären Nachlauf gemessene AEI_{Eis} erhöht gegenüber den im primären Nachlauf gemessenen. Da die Eisemissionen jedoch insgesamt deutlich höher ausfallen, als dies auf Basis einer bestmöglichen Schätzung aktueller Rußemissionen zu erwarten wäre, betonen Schumann et al. (2013) die Notwendigkeit, zugrunde liegende Eis-Ruß-Wechselwirkungen in künftigen Flugexperimenten eingehender zu untersuchen. In der Tat sind diesbezügliche experimentelle Studien rar gesät. So finden Schröder et al. (1998) anhand gemessener Rußemissionen erste (indirekte) Hinweise darauf, dass im vermessenen kurzlebigen Kondensstreifen mindestens 1/3 der emittierten Rußpartikel bei der Eisbildung beteiligt gewesen sein mussten. Über den Rahmen dieser ersten Einschätzung hinaus, bedarf es zur eingehenderen Analyse des Zusammenhangs zwischen Eis- und Rußemissionen jedoch unabhängiger, komplementärer Messungen entsprechender Konzentrationen in einem persistenten Kondensstreifen. Solche Messungen existierten bislang nicht.

Vor diesem Hintergrund ist es ein Ziel dieser Arbeit, in erster Linie zum Prozessverständnis beizutragen, um zunächst eine Basis für eine anschließende Analyse etwaiger Treibstoffeffekte zu schaffen. Basierend auf den AEI_{tot} wurde eine Methode entwickelt, mit der Stichproben aus verschiedenen Kondensstreifen, die ihrerseits sehr heterogene Gebilde sind, direkt miteinander verglichen werden können. Quantitativ fügen sich die bei ECLIF für die untersuchten Treibstoffe gemessenen Rußemissionen der IAE V2527-A5 Triebwerke von etwa $2\text{-}5 \times 10^{15} \text{ kg}^{-1}$ in den von früheren Arbeiten (Anderson et al. 1998, 1999) beobachteten Bereich ein. Allerdings ergeben sich im Vergleich zu den gut untersuchten (Petzold et al. 1999, Moore et al. 2017) CFM 56 Triebwerken - unabhängig vom gewählten Treibstoff - deutlich höhere Rußemissionen. Dies ist zwar auffällig, wird aber dadurch relativiert, dass einfache Messungen der „Smoke Number“ (ICAO 2018) schon darauf hindeuten, dass die Rußemissionen der IAE V2527-A5 Triebwerke die der betreffenden CFM 56 Triebwerke deutlich übersteigen könnten. Da insbesondere im Referenzflug (F10, Ref2) ein sehr umfangreicher Datensatz der Eis-, Aerosol- und Spurengasinstrumente gewonnen werden konnte, bieten die ECLIF-Messungen die Möglichkeit elementare mikrophysikalische Prozesse in jungen Kondensstreifen systematisch zu untersuchen. Lieferten frühere Messungen (Gayet et al. 2012, Schumann et al. 2013, Jeßberger et al. 2013) Anhaltspunkte auf mögliche Eispartikelverluste während der Wirbelphase, konnte ein direkter Nachweis erst in der vorliegenden Arbeit (F10, F02) erbracht werden. Darüber hinaus gelang es erstmals, beobachtete Eispartikelverluste zu quantifizieren und diese in einem eisübersättigten Umfeld eindeutig auf die adiabatische Erwärmung der absinkenden Wirbel zurückzuführen (F10).

Auch bezüglich der Eispartikelbildung in Kondensstreifen liefert diese Arbeit Beiträge, die die einschlägige Literatur an relevanter Stelle erweitern. So konnte auf Basis sich ergänzender Eis- und nvPM-Messungen die rußkontrollierte Eisbildung im rußreichen Regime ($\geq 10^{15} \text{ kg}^{-1}$) erstmals experimentell nachgewiesen werden (F10, F02). In einer eisübersättigten Umgebung (F10) konnten dabei Aktivierungsraten f_* von mindestens 81 % abgeschätzt werden. Berücksichtigt man weiter, dass die CAS - aufgrund der unteren Abschneidegrenze von $0.5 \mu\text{m}$ - im Mittel nur etwa 90 % der Eispartikel detektiert, lässt dies auf Aktivierungsraten ≥ 90 % schließen, was dem theoretisch berechneten Wert (96 % für F10) nahe kommt.

Während sich bei den Flügen F10 und F02 langlebige Kondensstreifen in einer feuchten Atmosphäre gebildet haben und damit eine Analyse mikrophysikalischer Prozesse erst ermöglichten, wurde bei F11 nur ein kurzlebiger Kondensstreifen in einem trockenerem Umfeld erzeugt. Stellt man die Partikel- und RH_i -Messungen einander gegenüber, scheint es, als würde der CR-2 relative Feuchten tendenziell um etwa 5-8 % überschätzen. So sprechen vor allem die von der CAS während F11 gemessenen Daten dafür, dass auch auf der ATRA-Flughöhe, der der CR-2 eine leichte Eisübersättigung zuschreibt, (noch) vorhandene Eispartikel bereits deutlich von Sublimation beeinflusst wurden. Ursächlich hierfür ist vermutlich die Trägheit des zugrunde liegenden Messprinzips (Ausbildung einer Eisschicht), was in der Kombination mit sich rasch ändernden Temperaturen (vertikale Flugbewegungen) systematische Fehler bestimmter RH_i bedingen kann.

Auf dem gewonnenen Prozessverständnis aufbauend, wurde die im Hinblick auf die Klimawirkung von Kondensstreifen-Zirren bedeutende Frage, welchen Einfluss reduzierte Aromatengehalte auf im Kondensstreifen realisierte Eispartikelzahlen haben, erstmals experimentell untersucht. Hängen die Rußemissionen in erster Linie vom Treibstoff, dem Triebwerk, sowie dessen Betriebsbedingungen ab, müssen bei der Beurteilung der Eisemissionen zudem Bildungs- und Sublimationsmechanismen berücksichtigt werden, die ihrerseits sensitiv auf atmosphärische Parameter sind. Damit gestaltet sich die Analyse der Eisemissionen vergleichsweise aufwändig, da zwischen in der Jetphase realisierten AEI_{Eis} , sich in der Wirbelphase ausbildenden AEI_{Eis} -Profilen und daraus - in geeigneter Weise - gemittelten AEI_{avg} unterschieden werden muss.

Insgesamt konnte im Rahmen der ECLIF-Messungen neben einer Reduktion der Rußemissionen erstmals auch eine Reduktion der Eisemissionen für Treibstoffe mit reduzierten Aromatengahlten festgestellt werden. Auf Basis der gemessenen AEI_{tot} ergeben sich für die ATRA-Triebwerke bei einem Treibstoffverbrauch von 1180 kg h^{-1} für SSJF1 (11.1 vol% Aromaten) gegenüber Ref2 (18.4 vol%) um 52 % (± 3 %) reduzierte Rußemissionen. Da für den Flug mit SSJF1 keine kompletten Vertikalprofile bei zum Flug mit Ref2 identischen atmosphärischen Bedingungen vermessen werden konnten, entzieht sich eine entsprechende Beurteilung der Eisemissionen im Rahmen von ECLIF der direkten Beobachtung. Da jedoch die Eisbildung als rußkontrolliert identifiziert wurde und Aktivierungsraten in dem für Kondensstreifen typischen Temperaturbereich von 5-15 K unterhalb T_{SA} (Bier & Burkhardt 2019) nur eine sehr geringe Abhängigkeit von der Temperatur sowie von $EI_{\text{Ruß}}$ aufweisen (Kärcher et al.

2015), kann geschlossen werden, dass sich die Reduktionen der Eisemissionen für SSJF1 gegenüber Ref2 in der Jetphase auf 50 % (± 4 %) belaufen. Dieses Ergebnis entspricht dabei der ausschließlich der Verringerung des Aromatengehalts um etwa 40 % zuzuschreibenden relativen Reduktion von Jetphasen-Eisemission, das sich nicht auf ECLIF beschränkt, sondern darüber hinaus den diesbezüglichen Effekt für eine aktuelle Verkehrsflugzeugflotte im Bereich der nördlichen Extratropen in guter Näherung widerspiegelt. Um zu beurteilen, inwiefern reduzierte Jetphasen-Eisemissionen reduzierte Eisemissionen am Ende der Wirbelphase bedingen, wurden die Messergebnisse mit einem prozessbasierten Modell gekoppelt (s. Kap. 5.6). Für eine zu 120 % angesetzte relative Feuchte ergeben sich damit im Mittel über den Wirbel für SSJF1 gegenüber Ref2 um 36 % (± 5 %) reduzierte Eisemissionen (AEI_{avg}). Die diskutierten Einflüsse von Aromatengehalt und Wirbelphase auf die Eisemissionsindizes der beiden Treibstoffe (Ref2, SSJF1) sind graphisch in Abb. 5.29 zusammengefasst. So sind in Abb. 5.29a die bestimmten absoluten Eisemissionen vor und nach der Wirbelprozessierung dargestellt, während Abb. 5.29b die entsprechenden prozentualen Reduktionen zeigt. Betrachtet man die ersten Minuten der Lebensdauer eines Kondensstreifens chronologisch, zeigt dies, dass initial vorliegende Unterschiede in den (Ruß-) Emissionen durch anschließende (Eis-) Nukleations- und Sublimationsprozesse sukzessive abnehmen. Dies lässt sich auch vergleichsweise anschaulich begründen. So konkurrieren bei reduzierten Rußemissionen auch weniger Partikel um den verfügbaren Wasserdampf. Einerseits führt dies zu höheren Aktivierungsraten f_* . Andererseits bilden sich im Schnitt größere Eispartikel, die damit weniger anfällig für komplette Sublimation während der Abwärtsprozessierung im Wirbelsystem sind. Bezogen auf am Triebwerksausgang realisierte relative Unterschiede von Rußemissionen wirken beide Effekte schwächend, was die Resultate anschaulich erklärt.

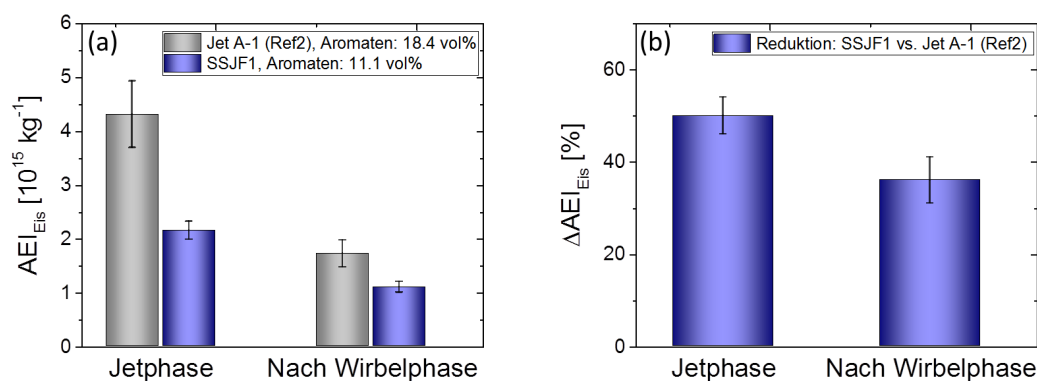


Abbildung 5.29 (a) Absolute Eisemissionen während der Jetphase sowie nach der Wirbelphase für Ref2 und SSJF1. (b) Entsprechende prozentuale Reduktionen der Eisemissionen für SSJF1 gegenüber Ref2. Die Angaben beziehen sich auf den ATRA (Airbus A320, IAE V2527-A5 Triebwerke), einen Treibstofffluss von 1180 kg h^{-1} je Triebwerk, $T_{\text{amb}} = T_{\text{SA}} - 10 \text{ K}$, eine Umgebungsfeuchte von $RH_i = 120\%$ und haben ihren Ursprung in den bei ECLIF gemessenen Vertikalprofilen von $AEI_{\text{Eis}}(z)$, $EI_{\text{Ruß}}(z)$ und $AEI_{\text{tot}}(z)$.

In Bezug auf reduzierte Schwefelgehalte (semi-) synthetischer Treibstoffe ist davon auszugehen, dass diese auch reduzierte Schwefelemissionen bedingen (Petzold et al. 1997, Schröder et al. 1998, Jurkat et al. 2011, Beyersdorf et al. 2014). Die vorliegenden

Messungen liefern jedoch keine Hinweise darauf, dass emittiertem Schwefelaerosol im Umfeld hoher Rußpartikelemissionen ($\geq 10^{15} \text{ kg}^{-1}$) eine von Ruß unabhängige Funktion bei der Tröpfchenaktivierung bzw. Eisbildung zukommt. Vielmehr lassen sich die gewonnenen Daten konsistent interpretieren, sofern die Eisbildung rußkontrolliert erfolgt und Eisanzahlen während der folgenden Wirbelphase durch Sublimationsverluste reduziert werden. So ist eher davon auszugehen, dass die Höhe der Rußemissionen direkten Einfluss auf die weitere Prozessierung emittierter Schwefelaerosole hat. So ist es im Bereich der gemessenen Rußemissionen wahrscheinlich, dass viele der emittierten Rußpartikel mit Schwefelsäure (H_2SO_4) benetzt sind, womit sich auch deren Eignung als Kondensationskern verbessert (Kärcher 1999). Indirekt bestätigen die ECLIF-Resultate damit Ergebnisse von Busen & Schumann (1995), wonach die Eisbildung bei hohen Rußemissionen nicht signifikant vom Schwefelgehalt des Treibstoffs beeinflusst wird. Modellstudien zufolge ist ein direkter Beitrag ultrafeiner, wasserlöslicher Schwefelaerosole zur Eispartikelbildung erst für deutlich geringere Rußemissionen ($\leq 10^{14} \text{ kg}^{-1}$) bei zugleich sehr tiefen Temperaturen ($\leq T_{\text{SA}} - 10 \text{ K}$) zu erwarten (Kärcher & Yu 2009). Während die ECLIF-Messungen also zeigen, dass die Eisbildung für hohe Rußemissionen ($> 10^{15} \text{ kg}^{-1}$) rußkontrolliert erfolgt, könnten wässrige, ultrafeine Aerosolpartikel bei deutlich geringeren Rußemissionen und Temperaturen durchaus als eigenständige Eisnuklei wirken. Eine experimentelle Untersuchung dieser Mechanismen steht bislang jedoch noch aus.

Abb. 5.30 stellt die aus den ECLIF-Daten gewonnenen Ruß- und Jetphasen-Eisemissionsindizes im Kontext der Modellrechnungen von Kärcher & Yu (2009) dar. Letztere finden eine deutliche Abhängigkeit der Anzahl der zu Beginn der Jetphase gebildeten Eispartikel von der Höhe der Rußemissionen, welche jedoch je nach Umgebungstemperatur und dem allgemeinen Emissionsniveau unterschiedlich ausfällt. So berechnet das Modell für Rußemissionen $> 10^{14} \text{ kg}^{-1}$ einen näherungsweise linearen Anstieg der Anzahl nukleierter Eispartikel mit zunehmenden Rußpartikelemissionen, wobei der Anteil der aktivierten Rußpartikel (f_{\star}) wiederum mit sinkenden Umgebungstemperaturen stark zunimmt (blauer Pfeil). Für eingemischtes Umgebungsaerosol und ultrafeine volatile Partikel wird hingegen erst bei Rußemissionen $< 10^{14} \text{ kg}^{-1}$ eine wesentliche Bedeutung bei der Eisbildung postuliert. Dabei hängt es entscheidend von der Umgebungstemperatur ab, welche Kühlraten und Wasserübersättigungen erzielt werden bzw. welche minimalen Partikelgrößen Wassertröpfchen aktivieren können. So wird bei Temperaturen nahe T_{SA} lediglich ein gewisser Teil des in vergleichsweise geringen Konzentrationen vorliegenden Umgebungsaerosols aktiviert (grüner Pfeil). Demgegenüber prognostiziert das Modell einen deutlichen Anstieg nukleierter Eispartikel für tiefere Temperaturen, bei denen vorhandene wässrige, ultrafeine Partikel aktiviert werden können (gelber Pfeil). Die aus den ECLIF-Messungen für Ref2 bzw. SSJF1 und $T_{\text{amb}} = T_{\text{SA}} - 10 \text{ K}$ abgeleiteten Ruß- und Jetphasen-Eisemissionen stimmen dabei gut mit dem vom Modell bestimmten Verhalten bei hohen Rußemissionsniveaus und tiefen Temperaturen überein. Dabei wird deutlich, dass die Emissionen des ATRA insgesamt höher ausfallen als das Emissionsniveau, das Kärcher (2018) als üblich klassifiziert (grauer Bereich). Zudem decken die ECLIF-Messungen mit Emissionen im Bereich von etwa $2 - 5 \times 10^{15} \text{ kg}^{-1}$ nur einen vergleichsweise kleinen Bereich ab. So bedarf es weiterer Messungen bei deutlich geringeren Rußemissionen, um die diesbezüglich vom Modell prognostizierte Bedeutung der ultrafeinen, wässri-

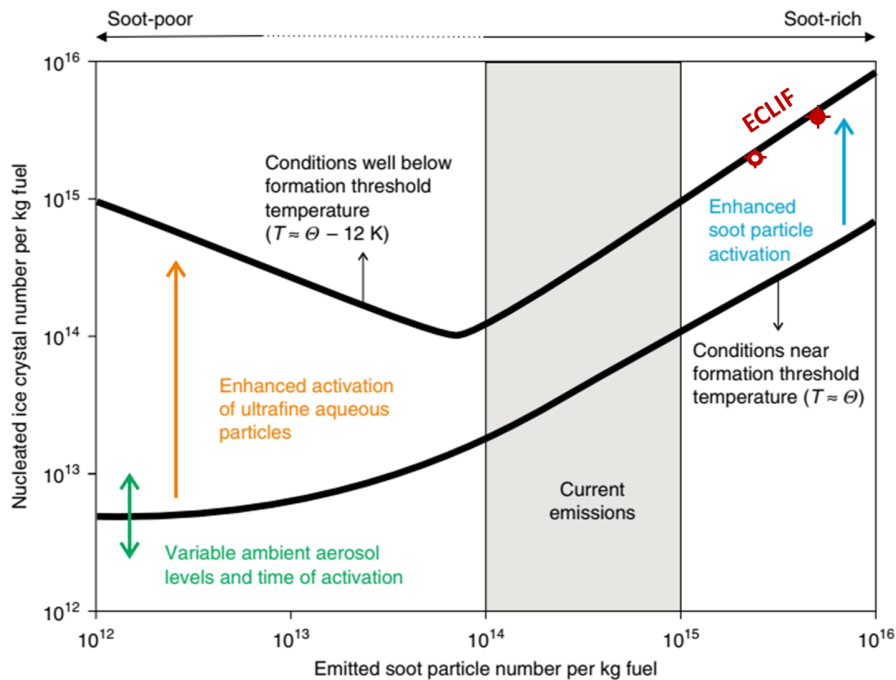


Abbildung 5.30 Abhängigkeit der Jetphasen-Eisemissionsindizes (y-Achse) vom Rußemissionsindex (x-Achse). Die schwarzen Kurven resultieren aus Modellrechnungen (Kärcher & Yu 2009) für Umgebungstemperaturen nur knapp unterhalb T_{SA} (untere Kurve) bzw. 12 K unterhalb T_{SA} (obere Kurve). Zudem sind die bei ECLIF für Ref2 (rot, ausgefüllt) und SSJF1 (rot, offen) bestimmten Ruß- und Jetphasen-Eisemissionsindizes eingezeichnet. Die schematische Darstellung wurde aus Kärcher (2018) übernommen. Für die Rechnungen wurde $\theta \equiv T_{SA} \approx 225$ K angenommen, was typischen Bedingungen in den Extratropen entspricht und insbesondere die Bedingungen bei ECLIF repräsentiert.

gen Partikel als Eisnuklei zu prüfen. Dies ist notwendig, um beurteilen zu können, welche Änderungen der Treibstoffzusammensetzung am effektivsten zu reduzierten Eisemissionen (bzw. Klimawirkungen) führen. Aktuell lassen sich Eisanzahlen effektiv reduzieren, indem durch geeignete Maßnahmen (am Treibstoff oder Triebwerk) die Rußemissionen weiter reduziert werden. Sobald die Rußemissionen allerdings Werte von etwa 10^{14} kg^{-1} unterschreiten, könnte eine Reduktion der Anzahl ultrafeiner, wässriger Partikel notwendig für eine weitere Verringerung der Eisemissionen unter typischen Reiseflugbedingungen (5-15 K unterhalb T_{SA}) werden.

Im Vergleich zu den Messungen im Flug fallen am Boden gemessene Rußemissionen (Schripp et al. 2018) für dieselben Treibstoffe und vergleichbare Treibstoffflüsse systematisch höher aus. Je nach Treibstoff variiert die relative Erhöhung am Boden gegenüber dem Flug in etwa zwischen 20 % und 50 %. Während es durchaus plausibel scheint, dass sich stark unterscheidende Betriebsbedingungen der Triebwerke am Boden und im Flug auch in geänderten absolut gemessenen Emissionen widerspiegeln, sollten die relativen Unterschiede der nvPM-Emissionen der verschiedenen Treibstoffe vergleichbar ausfallen. Interpoliert man die am Boden gemessenen Rußemissionsindizes auf den im Flug als Referenzwert genutzten Treibstoffverbrauch von 1180 kg h^{-1} , ergeben sich gegenüber Ref2 um etwa 40 % (SSJF1) bzw. 10 % (Ref1, SSJF3) reduzierte

Rußemissionen. Damit zeigen sich für die relativen Reduktion am Boden die gleichen Trends wie im Flug, allerdings in etwas schwächerer Ausprägung.

Die vorgestellten Vertikalprofile der Eis-, Ruß- und Spurengasmessungen ergänzen frühere Studien und bestätigen wesentliche Ergebnisse. In Einklang mit Gayet et al. (2012), Schumann et al. (2013) und Jeßberger et al. (2013) zeigt auch diese Arbeit, dass maximale Konzentrationen passiver Tracer während der Wirbelphase im primären Nachlauf vorliegen. Dies ist wiederum starkes Indiz dafür, dass der Großteil der zum Ende der Jetphase vorliegenden Emissionen in die sich ausbildenden Wirbel eingemischt und abwärts prozessiert wird. Ebenso bestätigen die ECLIF-Messungen, dass sich für Eispartikelkonzentration und daraus abgeleitete Parameter (b_{ext} , IWC) in einer hinreichend feuchten Atmosphäre nur schwach ausgeprägte vertikale Abhängigkeiten ergeben. Ein Ergebnis dieser Arbeit ist es, diese Beobachtungen quantitativ auf die Superposition von wirbeldynamischen Mischungsprozessen und der Eispartikelsublimation zurückzuführen.

Da die ECLIF-Flüge unter sich teilweise deutlich unterscheidenden atmosphärischen Bedingungen erfolgten, vermitteln die Messungen einen Eindruck der diesbezüglichen Variabilität der gemessenen Parameter. So werden in einer eisübersättigten (-untersättigten) Umgebung maximale (minimale) N_{CAS} , b_{ext} und IWC gemessen. Bei der Interpretation absolut gemessener Größen, sollte zudem immer bedacht werden, wie gut der Wirbel zum Zeitpunkt der Messung noch ausgebildet war bzw. wie zentral er vermessen wurde. Zur Beurteilung eignet sich ein Blick auf einen passiven Tracer (z.B. CO_2). Unter Berücksichtigung der angesprochenen Variabilität zwischen den ECLIF-Flügen, spannen die Messungen gewissermaßen einen Parameterraum auf, der sich weitestgehend mit den Erfahrungswerten aus früheren Messungen deckt. Beispielsweise messen Gayet et al. (2012) bei leicht eisübersättigten Bedingungen im Nachlauf eines Airbus A380 maximale Werte von etwa 380 cm^{-3} (N_{Eis} , $D_p > 1 \mu\text{m}$), 7 km^{-1} (b_{ext}) und 10 mg m^{-3} (IWC).

Ein ähnlicher Vergleich zu den Arbeiten von Voigt et al. (2011) oder Jeßberger et al. (2013) liefert auch keine grundsätzlichen Widersprüche, sondern verdeutlicht vielmehr die Sensitivität absolut gemessener Größen von atmosphärischen Bedingungen, der Beschaffenheit des Wirbels, sowie dem genauen Ort der Stichprobennahme. Um dennoch einen Bezug zwischen den ECLIF-Messungen und den Resultaten zurückliegender in-situ Experimente herzustellen, werden in Abb. 5.31 die jeweils gemessenen Abhängigkeiten mittlerer Eispartikelkonzentrationen vom Kondensstreifenalter einander gegenübergestellt.

So finden die ECLIF-Messungen mittlere Konzentrationen von Eispartikeln, die im Kontext der Beobachtungen anderer Studien für das vermessene Alter von etwa 40-140s als durchschnittlich hoch beurteilt werden können. Es sei erwähnt, dass es sich hierbei lediglich um eine äußerst grobe Einordnung handeln kann. Einerseits liegt dies daran, dass sich die den jeweiligen Messungen zugrunde liegenden Streulichtspektrometer mitunter in ihren minimal detektierbaren Partikelgrößen unterscheiden (CAS: $0.5 \mu\text{m}$). Andererseits unterscheiden sich die einzelnen Studien vermutlich in

der Wahl des zur Identifikation von Kondensstreifenpassagen notwendigen Filters, was wiederum Auswirkungen auf im zeitlichen Mittel berechnete Konzentrationen hat (ECLIF: $\Delta N_{\text{CAS}} \geq 1 \text{ cm}^{-3} \wedge \Delta \text{CO}_2 \geq 1 \text{ ppmv}$). Während die in Abb. 5.31 verglichenen Arbeiten ein eindrückliches Bild der kontinuierlich zunehmenden Verdünnung initial hoher Eispartikelkonzentrationen vermitteln, bleibt fraglich, inwieweit Konzentrationen für Alter $\leq 10 \text{ s}$ aufgrund instrumenteller Artefakte (Koinzidenz) möglicherweise unterschätzt werden. Betrachtet man weiter die bei ECLIF gemessenen Größenverteilungen der Eispartikel im Kontext früherer Studien, lässt sich

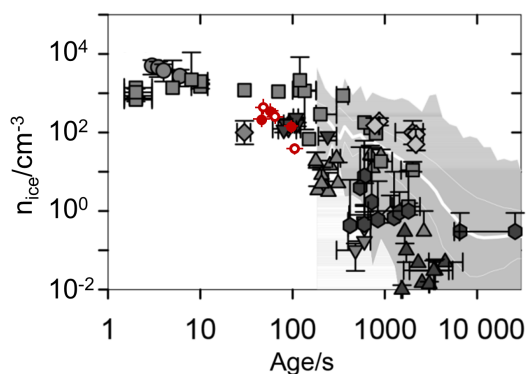


Abbildung 5.31 Bei ECLIF für verschiedene Alter gemessene mittlere Eispartikelkonzentrationen (rot) im Vergleich zu anderen in-situ Messungen in Kondensstreifen (grau), adaptiert von Schumann et al. (2017).

festhalten, dass weitestgehend ähnliche Konzentrations- und Größenbereiche abgedeckt werden. So berichten Baumgardner & Gandrud (1998) und Schröder et al. (1999) von Eispartikelkonzentrationen von einigen hundert pro cm^3 und Größen $\leq 10 \mu\text{m}$ in jungen Kondensstreifen mit Altern von $\simeq 30 \text{ s}$ bzw. $\leq 3 \text{ min}$. Aktuellere Messungen (Voigt et al. 2010, 2011, Jeßberger et al. 2013) bestätigen dabei diese grundsätzliche Beschaffenheit der PSDs junger Kondensstreifen. Ein weiter in die Tiefe gehender Vergleich von PSDs, die bei unterschiedlichen Messkampagnen und -flügen gewonnen wurden, gestaltet sich jedoch aufgrund der kondensstreifeninternen Variabilität (diese Arbeit), sowie Abhängigkeiten von Umgebungsbedingungen und Typ des Quellflugzeugs (Sussmann & Gierens 1999, Jeßberger et al. 2013, Unterstrasser & Görsch 2014) als schwierig. Ein interessanter Aspekt der ECLIF-Messungen ist zudem, dass gegenüber dem aus Ref2 resultierenden Kondensstreifen in dem aus SSJF1 entstandenen systematisch größere Eispartikel vorliegen - und dies trotz einer geringeren relativen Umgebungsfeuchte. Dies könnte ein erster experimenteller Hinweis darauf sein, dass reduzierte Rußemissionen nicht nur Eiszahlen reduzieren, sondern auch systematisch größere Eispartikel bedingen. Inwieweit diese Beobachtung ursächlich auf eine geringere Konkurrenz um verfügbaren Wasserdampf, den erhöhten Wasserstoffgehalt von SSJF1 oder schlicht auf die um etwa 5 K höhere Umgebungstemperatur beim Flug mit SSJF1 zurückzuführen ist, bleibt zu prüfen.

Abschließend sei erwähnt, dass in Anbetracht der lediglich durchschnittlich hohen mittleren Eispartikelkonzentrationen (s. Abb. 5.31) die bei ECLIF gemessenen Emissionsindizes (s. Abb. 5.30) vergleichsweise hoch auszufallen scheinen. Da dies gleichermaßen auf Eis- und Rußemissionsindizes zutrifft, könnte dies auf eine systematische Unterschätzung der vom Picarro während Kondensstreifenpassagen gemessenen ΔCO_2 hinweisen. Zwar ist eine solche Systematik bislang nicht bekannt, da sie aber momentan auch nicht mit absoluter Sicherheit ausgeschlossen werden kann, soll kurz auf mögliche Auswirkungen eingegangen werden. So würden sich zwar die absoluten Werte der Eis- und Rußemissionsindizes durch eine solche Systematik reduzieren, jedoch blieben die auf relativen Betrachtungen basierenden zentralen Aussagen der

vorliegenden Arbeit unangetastet. So ist es für den Nachweis der rußkontrollierten Eisbildung, die Quantifizierung der Eispartikelverluste während der Wirbelphase und auch für den Vergleich der Emissionen von Treibstoffen verschiedener Aromatengehalte unerheblich, ob Eis- und Rußemissionen *gleichermaßen* etwas höher oder niedriger ausfallen.

Als Fazit kann damit festgehalten werden, dass auf Basis einer eingehenden Analyse relevanter mikrophysikalischer und dynamischer Prozesse gezeigt werden konnte, dass aus Treibstoffen mit reduzierten Aromatengehalten Kondensstreifen mit geringeren Eispartikelkonzentrationen hervorgehen.

KAPITEL 6

Zusammenfassung und Ausblick

Die experimentelle Untersuchung der Frage, inwieweit eine Reduktion der Aromatengehalte in Treibstoffen zu systematisch geringeren Eispartikelkonzentrationen in jungen Kondensstreifen führt, stellt das zentrale Thema der vorliegenden Arbeit dar. Diesem muss insofern ein hoher Stellenwert beigemessen werden, als aus aktuellen Studien (Burkhardt et al. 2018, Schumann et al. 2013) hervorgeht, dass der auf das Klima wärmend wirkende Einfluss von Kondensstreifen (-Zirren) stark mit der Anzahl ihrer Eispartikel korreliert. Folglich stellt die systematische Reduktion von Eispartikelzahlen in Kondensstreifen eine vielversprechende Möglichkeit dar, die Klimawirkung des globalen Luftverkehrs - zu einem gewissen Grad - von dessen Wachstum zu entkoppeln. Während kürzlich experimentell gezeigt werden konnte, dass reduzierte Aromatengehalte zu reduzierten Emissionen von Rußpartikeln führen (Moore et al. 2017), ist es ein Ergebnis dieser Arbeit, auf Grundlage des Nachweises der rußkontrollierten Eisbildung und der Analyse von Sublimationsmechanismen im Nachlauf, einen solchen Zusammenhang auch für Eispartikel nachzuweisen.

Im Rahmen der ECLIF-Kampagne wurden hierzu die von einem Airbus A320 (ATRA) erzeugten Kondensstreifen bei einem Alter von 1-2 min von einer umfangreichen in-situ Instrumentierung vermessen. Als Messplattform diente die DLR-Falcon, auf der Instrumente zur Eis-, Ruß- und Spurengasmessung integriert waren. Um den Einfluss variabler Aromatengehalte zu studieren, wurde der ATRA vor jedem Flug mit entsprechenden Treibstoffen betankt. Insgesamt konnte so ein Datensatz gewonnen werden, der lange Zeitreihen (von bis zu 30 min) in Kondensstreifen aus drei Treibstoffen verschiedener Aromatengehalte umfasst. Auf Grundlage des instrumentellen Teils dieser Arbeit, der insbesondere die Charakterisierung der Eisinstrumentierung sowie die Analyse des Einflusses von Eisresiduen auf die Messung interstitieller Rußpartikel abdeckt, wurden ausführliche Studien dynamischer und mikrophysikalischer Prozesse in Kondensstreifen durchgeführt und der Einfluss des Aromatengehalts auf Eispartikelzahlen untersucht.

Teile dieser Arbeit wurden vorab in der Fachzeitschrift *Geophysical Research Letters* veröffentlicht. Die beiden Artikel werden an den entsprechenden Stellen zitiert:

Kleine, J., Voigt, C., Sauer, D., Schlager, H., Scheibe, M., Jurkat-Witschas, T., Kaufmann, S., Kärcher, B. & Anderson, B. E. (2018). In situ observations of ice particle losses in a young persistent contrail. *Geophysical Research Letters* 45(24), 13 553–13 561.

Kärcher, B., Kleine, J., Sauer, D. & Voigt, C. (2018). Contrail formation: Analysis of sublimation mechanisms. *Geophysical Research Letters* 45(24), 13 547–13 552.

Im Folgenden sollen - selektiv nach übergeordneten Themen - die wesentlichen Ergebnisse der vorliegenden Arbeit abschließend zusammengefasst und mögliche Anknüpfungspunkte für künftige Forschungsaktivitäten vorgestellt werden.

6.1 Messtechnische Methoden: Charakterisierung des Streulichtspektrometers CAS und des Einflusses von Eisresiduen auf die Rußpartikelmessung

Die eingehende Charakterisierung der Instrumentierung zur Eispartikelmessung stellt gewissermaßen das Grundgerüst der vorliegenden Arbeit dar. So wurde separat für zwei nahezu baugleiche Streulichtspektrometer (CAS, CAS[†]) die Streuquerschnittsmessung bzw. Größenbestimmung asphärischer Eispartikel kalibriert, sowie die effektive Messfläche definiert und vermessen. Dabei zeigt sich, dass die CAS[†] mit ihrer kleineren Lochblende (500 µm) vor dem größenbestimmenden Detektor eine größere effektive Messfläche besitzt (0.29 vs. 0.21 mm²) als die ansonsten baugleiche CAS (800-µm-Lochblende). Darauf aufbauend konnte im Flugversuch durch einen Instrumentenvergleich bei Kondensstreifenmessungen empirisch eine Funktion zur Korrektur von Koinzidenzartefakten der CAS gewonnen werden, sodass atmosphärische Eispartikelkonzentrationen von bis zu 1230 cm⁻³ aufgelöst werden können. Die präzise Bestimmung der Größenverteilung der Eispartikel ist dabei Voraussetzung für einen komplementären Einbezug der Rußpartikelmessungen. Ausgehend von der bekannten Charakteristik des vorwärts gerichteten Aerosoleinlasses konnte gezeigt werden, dass ein signifikanter Anteil der Eispartikel in Kondensstreifen in das Leitungssystem zur nvPM-Messung gelangt und deren Residuen damit zur Rußmessung beitragen. Nach der expliziten, fallspezifischen Quantifizierung dieses Effekts für die jeweils genommenen Stichproben (Faltung aus Größenverteilung und Transfereffizienz) konnten Eis- und Rußpartikel in einen gemeinsamen Kontext gebracht und als zwei Moden einer Größenverteilung der Emissionsprodukte identifiziert werden. Dies stellt eine neu entwickelte Methode zur konsistenten Interpretation von in Kondensstreifen gemessenen Eis- und Rußpartikelzahlen dar und ist Ausgangspunkt der Berechnung von Ruß- und Eisemissionen aus den Beiträgen disjunkter Größenbereiche ($EI_{\text{Ruß}}$, AEI_{Eis}). Teile dieser instrumentellen Arbeiten wurden bereits in Kleine et al. (2018) veröffentlicht.

Über den Rahmen dieser Arbeit hinaus haben sich einige Ansatzpunkte für künftige Forschungsaktivitäten aufgetan. So würde die Kalibrierung der effektiven Messfläche von einer feineren Abtastung der Randbereiche ($\approx 10\ \mu\text{m}$) durch den Tröpfchengenerator profitieren. Auch wären kleinere Durchmesser ($\approx 2\text{-}10\ \mu\text{m}$) sowie höhere

Geschwindigkeiten der zu detektierenden Tropfen vorteilhaft, um den realen Bedingungen in Kondensstreifen näher zu kommen. Hierzu gilt es einen geeigneten Versuchsaufbau zu entwickeln. Darüber hinaus könnten Windtunnelmessungen oder fluiddynamische Rechnungen helfen, die Strömungsmuster im Einlassrohr der CAS genauer zu charakterisieren.

Bezüglich der Fehlerbetrachtung der von der CAS bestimmten Partikelgrößen scheinen Monte-Carlo-Simulationen auf Basis der erläuterten instrumentellen Eigenschaften eine vielversprechende Möglichkeit, um neben dem Maximalfehler auch eine Wahrscheinlichkeitsverteilung der Fehler ableiten zu können. Von einem solchen Verfahren würde insbesondere die Genauigkeit der Berechnung höherer Momente (b_{ext} , IWC) profitieren. Insgesamt würde die Bestimmung der Größenverteilung von Eispartikeln in jungen Kondensstreifen enorm davon profitieren, wenn es gelänge, den störenden Einfluss der Mie-Resonanzen zu beschränken und gleichzeitig auch Eispartikel mit $D_p < 0.5 \mu\text{m}$ zu detektieren. Hierzu könnte eine instrumentelle Weiter- bzw. Neuentwicklung in Erwägung gezogen werden. Denkbar ist die synchrone Nutzung zweier Laser mit sich unterscheidenden Wellenlängen, was aufgrund von gegeneinander verschobenen Mie-Strukturen die Einführung überlappender, aber eindeutig definierter Größenbins ermöglichen würde. Letztendlich könnte damit der limitierende Einfluss der Mie-Resonanzen auf die maximal erzielbare Auflösung der Größenbestimmung reduziert werden. Durch den Einsatz empfindlicherer Fotodioden, rauschärmerer elektronischer Bauteile und stärkerer Laser könnte zudem der D_p -Messbereich nach unten hin erweitert werden.

Es bestehen einige Möglichkeiten die Koinzidenz-Problematik im Hinblick auf ausstehende Nahfeldmessungen bei zu erwartenden Eispartikelkonzentrationen von $\approx 10^4 \text{ cm}^{-3}$ anzugehen. Einerseits kann eine Aufzeichnung und Analyse der Transitzeiten detektierter Partikel durch das Messvolumen des Streulichtspektrometers Aufschluss über die Ausprägung von Koinzidenzartefakten geben. Letztere könnten durch die Anwendung eines geeigneten Algorithmus - zu einem gewissen Grad - korrigiert werden. Andererseits stellt die Kombination aus Einzelpartikelmessungen und Messungen der optischen Eigenschaften des Teilchenensembles in der Stichprobe (z.B. über Nephelometer, Absorptionsphotometer) einen alternativen Ansatz dar, der über die reine Korrektur von Koinzidenzartefakten hinaus Vorteile bietet. Durch die gemeinsame Analyse der Informationen über einzelne Partikel und des gesamten Ensembles sollte indirekt auf Partikelkonzentrationen oder auch -formen geschlossen werden können. Zudem könnte genauer untersucht werden, inwieweit sich der Brechungsindex realer, μm -großer, asphärischer Eispartikel mit Rußkernen variabler Größe ($\approx 20\text{-}150 \text{ nm}$) von dem größerer Eiskristalle anderer Formen unterscheidet.

In Bezug auf die nvPM-Messung wäre zu prüfen, inwieweit die Nutzung einer anderen Einlassgeometrie Vorteile bieten kann. So könnte z.B. durch den Betrieb eines rückwärtsgewandten Aerosoleinlasses ein nachträglich umständlich zu berechnender Beitrag der Rußresiduen von Eispartikeln zur nvPM-Messung größtenteils von vorneherein vermieden werden. Im Hinblick auf die Bestimmung von Emissionsindizes in älteren Kondensstreifen (Alter $> 2\text{-}3 \text{ min}$) scheint die Verwendung eines von CO_2 verschiedenen - möglichst passiven - Tracers notwendig. Ursächlich hierfür

ist die Schwierigkeit die kontinuierlich schwächer werdenden CO₂-Signaturen des Kondensstreifens über einer vergleichsweise hohen Hintergrundkonzentration präzise bestimmen zu können. Eventuell können hier ergänzende Messungen von NO_x oder NO_y Abhilfe schaffen.

6.2 Mikrophysik von Kondensstreifen: Nachweis der von Ruß kontrollierten Eisbildung und Quantifizierung von Sublimationsverlusten

Auf Basis der gut charakterisierten Instrumentierung und des umfangreichen in-situ Datensatzes, der bei ECLIF gewonnen werden konnte, liefert diese Arbeit Beiträge, die das Verständnis der in Kondensstreifen relevanten mikrophysikalischen und dynamischen Prozesse weiter verbessern. Hierzu wurden aus den instrumentellen Zeitreihen Vertikalprofile der Eis- und Rußemissionsindizes berechnet. Per Konstruktion sind Emissionsindizes unabhängig von den komplexen Mischungs- bzw. Verdünnungsprozessen im Nachlauf und bieten damit einen direkten Zugang zur Analyse mikrophysikalischer Prozesse. Durch eine Gegenüberstellung der für Eis- und Rußemissionsindizes bestimmten Vertikalprofile gelang es erstmals die rußkontrollierte Eisbildung im rußreichen Regime ($\geq 10^{15} \text{ kg}^{-1}$) experimentell nachzuweisen. Dabei konnte bei hinreichend kalten Temperaturen (5-10 K unterhalb T_{SA}) auf Aktivierungsraten $\geq 90\%$ geschlossen werden. Im Umfeld hoher Rußemissionen ist damit insbesondere auszuschließen, dass wässrigen, ultrafeinen Partikeln (bspw. Sulfataerosol) eine signifikante Bedeutung als eigenständige Eiskern zukommt.

Weiter wurden Sublimationsverluste von Eispartikeln im absinkenden Wirbelsystem untersucht. Während frühere Arbeiten erste experimentelle Hinweise auf Sublimationsverluste lieferten (Schumann et al. 2013, Jeßberger et al. 2013), konnte ein direkter Nachweis erst in der vorliegenden Arbeit - auf Basis der Untersuchung von Eisemissionsindizes - erbracht werden. Darüber hinaus wurden die Sublimationsverluste quantifiziert und konnten in einer eisübersättigten Umgebung eindeutig auf die adiabatische Erwärmung der absinkenden Wirbel zurückgeführt werden. In Bezug auf im Nachlauf gemessene Größenverteilungen der Eispartikel spiegelt sich deren (teilweise) Sublimation in systematisch geringeren Partikelgrößen im primären gegenüber dem sekundären Nachlauf wider. Durch die Validierung der von einem prozessbasierten Modell (Kärcher & Voigt 2017) prognostizierten Sublimationsverluste anhand der Beobachtungen konnte auf über den Wirbelquerschnitt gemittelte Eisemissionen zum Ende der Wirbelphase (AEI_{avg}) geschlossen werden. Für einen langlebigen Kondensstreifen mit potentiell hohem Strahlungsantrieb (Flug F10) ergeben sich damit mittlere Sublimationsverluste von etwa 60%, die deutlich geringer ausfallen, als dies bei einer kompletten Abwärtsprozessierung im Wirbel der Fall ist ($\approx 85\%$).

Insgesamt zeigen die beobachteten Vertikalprofile mit maximalen CO₂- und nvPM-Konzentrationen im primären Nachlauf (bei Absinktiefen von 70-120 m) deutlich, dass der Großteil der Triebwerksemissionen in das sich ausbildende Wirbelpaar eingemischt und in diesem abwärts transportiert wird. Dies trifft zwar auch auf kurz nach dem Triebwerksausgang gebildete Eispartikel zu, jedoch reduzieren sich deren

Konzentrationen durch Sublimation während des Absinkvorgangs kontinuierlich, was erklärt, wieso für Eispartikel Konzentrationsunterschiede zwischen primärem und sekundärem Nachlauf geringer ausfallen.

Die experimentellen Arbeiten zum Nachweis der rußkontrollierten Eisbildung sowie der Quantifizierung von Sublimationsverlusten von Eispartikeln während der Wirbelphase wurden teilweise bereits in Kleine et al. (2018) veröffentlicht. Die Validierung der Sublimationsverluste des in Kärcher & Voigt (2017) vorgestellten prozessbasierten Modells anhand der experimentellen Ergebnisse dieser Arbeit wurde vorab in Kärcher et al. (2018) publiziert.

Während sich die Beobachtungen im Rahmen von ECLIF auf Basis der erläuterten dynamischen und mikrophysikalischen Prozesse konsistent interpretieren lassen, sind weitere Arbeiten notwendig, um die Ausprägung bzw. Sensitivität dieser Prozesse auf variierende Rahmenbedingungen zu studieren. So sollte in künftigen Experimenten geklärt werden, ob bei hinreichend geringen Rußemissionen und Temperaturen der von Modellen prognostizierte (Kärcher & Yu 2009) signifikante Beitrag wässriger, ultrafeiner Partikel zur Eispartikelbildung tatsächlich beobachtet werden kann. Dabei sollten Messungen bei verschiedenen Rußemissionsniveaus und Temperaturen erfolgen, um zu prüfen, bei welchen kritischen Werten mit einem potentiellen Regimewechsel des dominierenden Eisbildungsprozesses zu rechnen ist. Außerdem bedarf es weiterer Experimente, die die Stärke der Sublimationsverluste für unterschiedliche Flugzeugtypen, Triebwerke, Treibstoffe und atmosphärische Bedingungen untersuchen, um entsprechende Abhängigkeiten von der Höhe der Jetphasen-Eisemissionen, der maximalen Wirbelabsinktiefe und RH_i zu quantifizieren. In dieser Hinsicht wäre auch ein detaillierter Vergleich mit LES-Studien interessant, um deren Implementierung der relevanten Prozesse bewerten bzw. validieren zu können. In der Idealvorstellung könnte aus der komplementären Nutzung von Mess- und Simulationsergebnissen ein Kataster entwickelt werden, das die geometrische Ausdehnung des Kondensstreifens nach der Wirbelphase und darüber gemittelte Eisemissionen in Abhängigkeit der Parameter dominierenden Einflusses aufführt. Ein solches Kataster könnte dazu beitragen, die Unsicherheiten der Simulationen globaler Klimamodelle weiter zu reduzieren.

6.3 Potential synthetischer Treibstoffe zur Mitigation der Klimawirkung von Kondensstreifen

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit konnte erstmals experimentell gezeigt werden, dass eine Reduktion der Aromatengehalte in Treibstoffen zu systematisch reduzierten Eispartikelzahlen in resultierenden Kondensstreifen führt. Um diesen Nachweis zu führen, waren neben der eingehenden Charakterisierung der in-situ Instrumentierung insbesondere die Analyse der Nukleations- und Sublimationsmechanismen von Eispartikeln notwendige Voraussetzungen. So wurde für eine etwa 40%-ige Reduktion des Aromatengehalts von 18.4 vol% (Ref2) auf 11.1 vol% (SSJF1) eine Reduktion der Rußemissionen um 52 %, der Jetphasen-Eisemissionen um 50 %, sowie der gegen Ende der Wirbelphase im Wirbelmittel vorliegenden Eisemissionen um 36 % bestimmt. Diese Ergebnisse spiegeln dabei die Situation für Kurz- und Mittelstreckenflugzeuge in den nördlichen Extratropen - und damit eines Großteils des globalen

Luftverkehrs - in guter Näherung wider. Demgegenüber ergeben sich vermutlich für Flüge in tropischen Breiten oder auch schwerere Flugzeuge etwas abweichende Zahlenwerte, da in diesen Fällen mit geänderten Rußaktivierungsraten und/oder Sublimationsverlusten zu rechnen ist. Insgesamt kann jedoch - unter Berücksichtigung der Ergebnisse der vorliegenden Arbeit - geschlossen werden, dass sich der Strahlungsantrieb von Kondensstreifen-Zirren durch den Einsatz von Treibstoffen mit geringeren Aromatengehalten systematisch reduzieren lässt.

Allerdings implizieren die Ergebnisse dieser Arbeit auch, dass sich durch die Nutzung semisynthetischer Treibstoffe (etwa 50/50-Mischung aus konventionellem Jet A-1 und vollsynthetischen SPKs) keine Reduktionen der Eisemissionen im Bereich einer Größenordnung oder mehr erzielen lassen. Da nach den derzeit gültigen Zulassungskriterien (ASTM D7566) für Kerosin auf (teilweise) synthetischer Basis jedoch ein Aromatengehalt von mindestens 8 vol% vorgeschrieben ist, können rein synthetische Kraftstoffe mit verschwindend geringen Aromatengehalten aktuell nicht im Flug verwendet bzw. deren Emissionen vermessen werden. Bei Nutzung der derzeit eingesetzten Triebwerkstypen scheint jedoch eine Reduktion der Ruß- bzw. Eisemissionen um etwa eine Größenordnung nur erzielbar, falls rein synthetische, paraffinbasierte Treibstoffe (hergestellt im Fischer-Tropsch-Prozess oder HEFA-Verfahren) eingesetzt würden. Während globale Klimamodelle für dieses Szenario reduzierte Strahlungsantriebe von Kondensstreifen-Zirren von über 70 % berechnen, lässt sich die Reduktion für die bei ECLIF verwendete Mischung (SSJF1= 59 % Jet A-1 + 41 % SPK) auf etwa 20 % beziffern (Burkhardt et al. 2018).

Um die Grundlage zur Bewertung des Mitigationspotentials synthetischer Treibstoffe weiter auszubauen, sollten weitere Forschungsaktivitäten initiiert werden. In Anbetracht der Zulassungskriterien (>8 vol% Aromaten) könnte gezielt untersucht werden, welche der aromatischen Verbindungen eine besonders starke (schwache) Tendenz zur Rußbildung aufweisen. Durch eine Verringerung (Erhöhung) der entsprechenden relativen Anteile an der Treibstoffzusammensetzung könnte ein SPK produziert werden, dessen Gesamtaromatengehalt bei ≥ 8 vol% liegt, der aber vermutlich zur Bildung von deutlich weniger Ruß führt. Vor diesem Hintergrund scheint insbesondere die Sensitivität der Rußemissionen auf eine Reduktion des Anteils bi- oder tricyclischer Aromaten im Treibstoff untersuchenswert. Weiterhin hohe Priorität ist der Vermessung der Emissionen von Treibstoffen mit verschwindend geringen Aromatengehalten im Flugexperiment beizumessen, unabhängig davon, ob ein solcher Treibstoff synthetisch oder konventionell gewonnen wird. Hier gilt es eine Möglichkeit zu finden, entsprechende Messungen - unter Berücksichtigung der gültigen Zulassungskriterien - durchführen zu können. Nur anhand solcher Experimente unter realen Flugbedingungen lässt sich prüfen, welche Partikelemissionen wesentlich zur Eisbildung beitragen. Während derzeit die Reduktion von Rußemissionen (bzw. Aromatengehalten) eine effektive Methode darstellt, Eispartikelkonzentrationen in Kondensstreifen zu reduzieren (s. Abb. 5.29, 5.30), bleibt zu prüfen, ob dies auch für um 1-2 Größenordnungen geringere Rußemissionsniveaus zutreffend ist. So bleibt zu klären, inwieweit wässrige ultrafeine Partikel (Sulfataerosol, Chemi-Ionen) im Umfeld sehr geringer Rußemissionen ($< 10^{14} \text{ kg}^{-1}$) und insbesondere bei tiefen Temperaturen ($\approx T_{\text{SA}} - 10 \text{ K}$) als Eisnuklei wirken. Während sich die Höhe der Emissionen von Sulfataerosol über den

Schwefelgehalt des Treibstoffs kontrollieren lassen, bleibt zu prüfen, mit welchen Methoden Einfluss auf die Anzahl von Chemi-Ionen in der Abgasfahne genommen werden kann.

Um zu einer abschließenden Bewertung zu gelangen, inwieweit sich durch den Einsatz (semi-) synthetischer Treibstoffe im großen Maßstab die Klimawirkung des Luftverkehrs reduzieren lässt, bedarf es zusätzlicher Analysen. So müssen neben den Flugverkehrsemissionen auch die mit der Treibstoffproduktion, der Rohstoffförderung und mit dem verwendeten Rohstoff verknüpften (netto) CO₂-Emissionen berücksichtigt werden. Da aktuell die Produktionsraten synthetischer Treibstoffe den Bedarf der globalen Flugzeugflotte bei weitem nicht decken, scheint deren gezielter Einsatz in Gebieten mit hoher Wahrscheinlichkeit zur Bildung persistenter Kondensstreifen ein pragmatischer erster Schritt, die Klimawirkung des Luftverkehrs zu beschränken.

Abkürzungen und Symbole

Abkürzung	Bedeutung
2D-S	Two Dimensional-Stereo Probe
ADC	A/D-Wert (Natürliche Zahl $\in \{1, 2, \dots, 9216\}$)
AIC	Aircraft-induced clouds
AR	Aspect Ratio
ASTM	American Society for Testing and Materials
ATRA	Advanced Technology Research Aircraft
BAS	British Antarctic Survey
CAS-DPOL	Cloud and Aerosol Spectrometer with Depolarization Unit
CDP	Cloud Droplet Probe
CFM	CFM International (Triebwerkshersteller)
CIP	Cloud Imaging Probe
CPC	Condensation Particle Counter
CR-2	Taupunktspiegel von Buck Research Instruments, LLC
DLR	Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt
DMT	Droplet Measurement Technologies
DoF	Depth of Field
ECLIF	Emissions and Climate Impact of Alternative Fuels
FCDP	Fast Cloud Droplet Probe
FFSSP	Fast Forward Scattering Spectrometer Probe
FSSP	Forward Scattering Spectrometer Probe
FTP	Fischer-Tropsch Prozess
GPS	Global Positioning System
HEFA	Hydroprocessed Esters and Fatty Acids
HGS	High Gain Stage
IAE	International Aero Engines
IAT	Inter Arrival Time (Synonym zu IPT)
ICAO	International Civil Aviation Organization
INS	Inertial Navigation System (Trägheitsnavigationssystem)
IPA	Institut für Physik der Atmosphäre
IPT	Inter Particle Time (Synonym zu IAT)
LES	Large-eddy Simulation
LGS	Low Gain Stage

LIDAR	Light Detection and Ranging
MGS	Mid Gain Stage
ML-CIRRUS	Formation, Lifetime, Properties and Radiative Impact of Mid-Latitude Cirrus Clouds
μm	Mikrometer
nm	Nanometer ($1\text{ nm} = 10^{-9}\text{ m}$) oder Seemeile ($1\text{ nm} = 1852\text{ m}$)
NO_x	$=\text{NO}+\text{NO}_2$
NO_y	$=\text{NO}+\text{NO}_2+\text{HNO}_3+\text{PAN}+\text{HONO}+\dots$
nvPM	Non-volatile Particulate Matter
OPC	Optical Particle Counter
PADS	Particle Analysis and Display System (Software by DMT)
PAS	Probe Air Speed
PBL	Planetare Grenzschicht (Planetary Boundary Layer)
PBP	Particle by Particle
PCASP	Passive Cavity Aerosol Spectrometer Probe
PMS	Particle Measuring Systems
ppmv	Parts per million by volume
PSD	Partikelgrößenverteilung (Particle Size Distribution)
PSL	Polystyrene Latex
PW	Pratt & Whitney (Triebwerkshersteller)
Ref1	Konventioneller Jet A-1 Treibstoff (Eigenschaften s. Tab. 5.1)
Ref2	Konventioneller Jet A-1 Treibstoff (Eigenschaften s. Tab. 5.1)
SPK	Synthetisches paraffinbasiertes Kerosin
SSJF1	Semisynthetischer Treibstoff (Eigenschaften s. Tab. 5.1)
SSJF3	Semisynthetischer Treibstoff (Eigenschaften s. Tab. 5.1)
SV	Sampling Volume
TAS	True Airspeed
TD	Thermodenuder
TRA	Temporary Reserved Airspace
TSI	TSI Inc., 500 Cardigan Road, Shoreview, Minnesota 55126 USA
UHSAS	Ultra-High Sensitivity Aerosol Spectrometer
UTC	Coordinated Universal Time
UTLS	Upper Troposphere Lower Stratosphere

Symbol**Bedeutung**

α	Größenparameter bei Streuproblemen
A_{proj}	Projizierte Fläche (senkrecht zum Strahlengang)
AEI	Scheinbarer Emissionsindex (Apparent Emission Index)
AEI_{avg}	Über die Wirbelausdehnung gemittelte AEI_{Eis}

AEI_{Eis}	Scheinbarer Eisemissionsindex, $D_p \in [0.5, 50] \mu\text{m}$
AEI_{tot}	Totaler Eisemissionsindex von Ruß- und Eispartikeln, $AEI_{\text{tot}} = AEI_{\text{Eis}} + EI_{\text{Ruß}}$, $D_p \in [0.01, 0.5] \mu\text{m}$
Alt_{GPS}	Flughöhe anhand der GPS-Koordinaten (WGS84 Referenzellipsoid)
\vec{B}	Magnetische Flussdichte
b_{ext}	Extinktion
C_c	Cunningham-Faktor zur Slipkorrektur
$D_{\text{cutoff},l,u}$	Unterer (l) oder oberer (u) Grenzdurchmesser, bei dem die Nachweis- bzw. Transfereffizienz 50 % beträgt
D_{eff}	Effektivdurchmesser eines Ensembles von Eispartikeln
D_p	Partikeldurchmesser (sphärisch) bzw. volumen-äquivalenter Durchmesser (asphärisch)
$\mathcal{D}(SA_q)$	Über SA_q räumlich variierende Detektionseffizienz
$\Delta\Omega$	Raumwinkelement
$\hat{e}_{r,\theta,\phi}$	Einheitsvektoren in Kugelkoordinaten
\vec{E}	Elektrisches Feld
EI	Emissionsindex
EI_{CO_2}	Emissionsindex von CO_2
EI_{nvPM}	Emissionsindex nicht-volatiler Partikel, $D_p \in [0.01, 1.9] \mu\text{m}$
$EI_{\text{Ruß}}$	Emissionsindex von Rußpartikeln, $D_p \in [0.01, 0.5] \mu\text{m}$
$\mathcal{E}(D_p)$	Größenabhängige Nachweiseffizienz des CPC
f	Frequenz
f_{05}	Anteil der Eispartikel mit $D_p > 0.5 \mu\text{m}$, die den Aerosoleinlass passieren
ϕ	Azimutwinkel
h	Plancksches Wirkungsquantum
I_i	Energiestromdichte der Primärstrahlung (Irradiance)
I_L	Strom durch die Laserdiode
IWC	Eiswassergehalt
k	Wellenzahl des Lichts
λ	Wellenlänge des Lichts
M_{air}	Molare Masse von Luft
M_{CO_2}	Molare Masse von CO_2
MVD	Mittlerer Volumendurchmesser
μ	Luftviskosität
$\mu_{\text{H}_2\text{O},\text{CO}_2}$	Mischungsverhältnis von H_2O bzw. CO_2
n	Brechungsindex (komplex)
N_x	Konzentration (von x) bzgl. Umgebungsbedingungen ($p_{\text{amb}}, T_{\text{amb}}$)
N_{St}	Stokeszahl
η_x	Stoffmenge von x
Ω	Raumwinkel
ω	Kreisfrequenz

$p(\theta, \phi)$	Phasenfunktion (normiert auf 4π)
p_{amb}	Umgebungsdruck
$p_{\text{H}_2\text{O}}$	Wasserdampfpartialdruck
p_i	Sättigungsdampfdruck über Eis
P_i	Wahrscheinlichkeit für den Eintritt des Ereignisses i
$P_{s, \Delta\Omega}$	Leistung des Streulichts pro Raumwinkelelement
P_{Detektor}	Leistung des Streulichts, das auf den Detektor trifft
$Q_{\text{ext, streu, abs}}$	Extinktions-, Streu- bzw. Absorptionseffizienz
q_{CPC}	Probenfluss durch den CPC
RH_i	Relative Feuchte über Eis
RH_{liq}	Relative Feuchte über Flüssigwasser
RF	Strahlungsantrieb (Radiative Forcing)
ρ_x	Dichte von x
σ_{abs}	Absorptionsquerschnitt
σ_{ext}	Extinktionsquerschnitt
σ_{Probe}	Proben- bzw. sondenspezifischer Streuquerschnitt
σ_{4-12°	Streuquerschnitt bezogen auf den Streuwinkelbereich $4 - 12^\circ$
$\sigma_{\text{tot}}, \sigma_{4\pi}$	Totaler Streuquerschnitt
$(d\sigma/d\Omega)$	Differentieller Streuquerschnitt
\mathbb{S}_A	Amplitudenstrematrix
SA_{eff}	Effektiv wirksame Messfläche
SA_{ext}	Detektorsensitive Messfläche
SA_q	Qualifizierte Messfläche
\vec{S}_P	Poynting-Vektor
SV	Vermessenes Volumen (Sampling Volume)
θ	Streuwinkel
$\mathcal{T}(D_p)$	Größenabhängige Transfereffizienz des Aerosoleinlasses
T_{amb}	Umgebungstemperatur
T_f	Frostpunkttemperatur
T_{SA}	Schmidt-Appleman-Temperatur
t	Zeit
U_{Ph}	Ausgangsspannung an der Photodiode (Detektor)
$U_{H,M,L}$	Ausgangsspannung an der HGS, MGS, LGS
$U_{Q,S}$	Ausgangsspannung U_{Ph} am qualifizierenden bzw. größenbestimmenden Detektor
μ_0	Magnetische Permeabilität des Vakuums
\vec{X}	Vektorielle Streuamplitude
ξ	Kompressionskorrekturfaktor zur Berechnung des SV
ζ	Eiskonversionseffizienz. $\zeta = AEI_{\text{avg}}/EI_{\text{RuB}}$.

Abbildungsverzeichnis

2.1	Kondensstreifen: Bildungskriterium und Eisknukleation	8
2.2	Darstellung der Kondensstreifenentwicklung	11
2.3	LES-Simulationen der Eispartikelzahlen während der Wirbelphase	13
2.4	Zeitliche Entwicklung von Eispartikelkonzentrationen	14
2.5	Strahlungsantrieb von Kondensstreifen	16
2.6	Gegenüberstellung verschiedener Studienergebnisse	17
2.7	Sensitivität des Strahlungsantriebs auf Eispartikelzahlen	18
3.1	Größenabhängigkeit des Streuquerschnitts sphärischer Partikel	31
3.2	Polardiagramme von $(d\sigma/d\Omega)$ für sphärische Eispartikel	33
3.3	Größenabhängigkeit des Streuquerschnitts asphärischer Eispartikel	34
3.4	Schematischer Aufbau der CAS-DPOL	36
3.5	Tiefenschärfekriterium: Effekt der Blenden	40
3.6	Tiefenschärfekriterium: Photodiodenspannungen	40
3.7	Räumlicher Verlauf von U_Q/U_S	41
3.8	Koinzidenzeffekte einer CDP (Lance 2012)	50
3.9	Koinzidenzeffekte auf mittlere IPTs (Lance 2012)	51
3.10	Shattering-Analyse: IPT-Histogramme	52
3.11	2D-S: Funktionsprinzip	54
3.12	Aufbau des Aerosoleinlasses	57
3.13	Transfereffizienz $\mathcal{T}(D_p)$ des Aerosoleinlasses	59
3.14	Funktionsprinzip des CPCs	60
3.15	Falcon 20-E5 bei ECLIF	64
4.1	Gegenüberstellung der beiden charakterisierten CAS	65
4.2	$\sigma_{4-12^\circ}(D_p)$ der verwendeten Kalibrierkugeln	66
4.3	CAS-Größenkalibrierung: ADC-Verteilungen	68
4.4	CAS-Größenkalibrierung: $\sigma_{4-12^\circ}(\text{ADC})$	69
4.5	Abhängigkeit der Streuquerschnittsmessung vom Laserstrom bei der CAS	71
4.6	CAS [†] -Größenkalibrierung: ADC-Verteilungen	74
4.7	CAS [†] -Größenkalibrierung: $\sigma_{4-12^\circ}(\text{ADC})$	75
4.8	SA_q der CAS	78
4.9	Varianz von σ_{CAS} über SA_q	79
4.10	SA_q der CAS [†]	81
4.11	Varianz von $\sigma_{\text{CAS}^\dagger}$ über SA_q	82

4.12	Instrumentenvergleich: N_{CAS} vs. N_{CAS^\dagger}	84
4.13	Instrumentenvergleich: MVD_{CAS} vs. MVD_{CAS^\dagger}	86
5.1	ECLIF: ATRA und Falcon in Manching	93
5.2	Flugrouten bei ECLIF	93
5.3	Zeitreihen des Referenzflugs mit konventionellem Jet A-1 (F10, Ref2)	95
5.4	F10, Ref2: Vertikalprofile von N_{CAS} , D_{eff} , b_{ext} , IWC	96
5.5	F10, Ref2: RH_i -Vertikalprofil des atmosphärischen Hintergrunds	97
5.6	F10, Ref2: Vertikalprofile von N_{nvPM} und CO_2	98
5.7	F10, Ref2: $AEI_{\text{Eis}}(\Delta z)$, $EI_{\text{nvPM}}(\Delta z)$	100
5.8	F10, Ref2: $AEI_{\text{Eis}}(\Delta z)$, $EI_{\text{Ruß}}(\Delta z)$, $AEI_{\text{tot}}(\Delta z)$	101
5.9	F10, Ref2: PSDs bei Altern von $\approx 40 - 80$ s	103
5.10	F10, Ref2: PSDs bei einem Alter von ≈ 110 s	104
5.11	Zeitreihen des Flugs mit semisynthetischem Treibstoff (F02, SSJF1)	106
5.12	F02, SSJF1: Vertikalprofile von N_{CAS} , D_{eff} , b_{ext} , IWC	107
5.13	F02, SSJF1: RH_i -Vertikalprofil des atmosphärischen Hintergrunds	108
5.14	F02, SSJF1: Vertikalprofile von N_{nvPM} und CO_2	109
5.15	F02, SSJF1: $AEI_{\text{Eis}}(\Delta z)$, $EI_{\text{Ruß}}(\Delta z)$, $AEI_{\text{tot}}(\Delta z)$	110
5.16	F02, SSJF1: PSDs bei Altern von $\approx 50 - 80$ s	112
5.17	F02, SSJF1: PSDs bei einem Alter von $\approx 110 - 130$ s	112
5.18	Zeitreihen des Flugs mit zwei Treibstoffen (F11, Ref1 & SSJF3)	113
5.19	F11, Ref1 & SSJF3: Vertikalprofile von N_{CAS} , D_{eff} , b_{ext} , IWC	115
5.20	F11, Ref1 & SSJF3: RH_i -Vertikalprofil des atm. Hintergrunds	115
5.21	F11, Ref1 & SSJF3: Vertikalprofile von N_{nvPM} und CO_2	116
5.22	F11, Ref1 & SSJF3: $AEI_{\text{Eis}}(\Delta z)$, $EI_{\text{Ruß}}(\Delta z)$, $AEI_{\text{tot}}(\Delta z)$	118
5.23	F11, Ref1 & SSJF3: PSDs bei Altern von $85 - 90$ s	119
5.24	F11, Ref1 & SSJF3: PSDs bei einem Alter von $119 - 121$ s	119
5.25	Vergleich der Emissionen aus verschiedenen Treibstoffen	120
5.26	Abhängigkeit der Emissionen vom H/C-Verhältnis	121
5.27	Prozessbasiertes Modell aus Kärcher & Voigt (2017): Übersicht	124
5.28	Validierung der Sublimationsverluste	125
5.29	Reduktion der AEI_{Eis} für SSJF1 vs. Jet A-1 (Ref2)	129
5.30	Einordnung der bei ECLIF gemessenen Emissionsindizes	131
5.31	Einordnung der bei ECLIF gemessenen N_{Eis}	133

Tabellenverzeichnis

3.1	Intervalle möglicher A/D-Werte der drei CAS-Verstärkungsstufen . . .	38
4.1	Verstärkungsfaktoren der HGS, MGS, LGS der CAS	70
4.2	Analyse des sensitiven Streuwinkelbereichs der CAS	70
4.3	CAS-Bingrenzen für asphärische Eispartikel	72
4.4	Verstärkungsfaktoren der HGS, MGS, LGS der CAS [†]	74
4.5	Analyse des sensitiven Streuwinkelbereichs der CAS [†]	75
4.6	CAS [†] -Bingrenzen für asphärische Eispartikel	76
4.7	Koinzidenz: Unterschätzung von Konzentrationen bei CAS-Messungen	85
5.1	Bei ECLIF verwendete Treibstoffe und deren Eigenschaften	92

Literaturverzeichnis

- Anderson, B. E., Cofer, W. R., Bagwell, D. R., Barrick, J. W., Hudgins, C. H., & Brunke, K. E.: Airborne observations of aircraft aerosol emissions I: Total nonvolatile particle emission indices, *Geophysical Research Letters*, 25, 1689–1692, doi:10.1029/98GL00063, 1998.
- Anderson, B. E., Cofer, W. R., Crawford, J., Gregory, G. L., Vay, S. A., Brunke, K. E., Kondo, Y., Koike, M., Schlager, H., Baughcum, S. L., Jensen, E., Zhao, Y., & Kita, K.: An assessment of aircraft as a source of particles to the upper troposphere, *Geophysical Research Letters*, 26, 3069–3072, doi:10.1029/1999GL900276, 1999.
- Appleman, H.: The formation of exhaust condensation trails by jet aircraft, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 34, 14–20, doi:10.1175/1520-0477-34.1.14, 1953.
- Banse, D., Esfeld, K., Hermann, M., Sierau, B., & Wiedensohler, A.: Particle counting efficiency of the TSI CPC 3762 for different operating parameters, *Journal of Aerosol Science*, 32, 157–161, doi:10.1016/S0021-8502(00)00060-4, 2001.
- Bauer, S. & Jeffers, P.: Mechanistic investigation of soot precursors, *Energy & Fuels*, 2, 446–453, 1988.
- Baumgardner, D.: Corrections for the response times of particle measuring probes, paper presented at the Sixth Symposium on Meteorological Observations and Instrumentation, *Am. Meteorol. Soc., New Orleans, La*, 1987.
- Baumgardner, D. & Gandrud, B. E.: A comparison of the microphysical and optical properties of particles in an aircraft contrail and mountain wave cloud, *Geophysical Research Letters*, 25, 1129–1132, doi:10.1029/98GL00035, 1998.
- Baumgardner, D. & Korolev, A.: Airspeed corrections for optical array probe sample volumes, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 14, 1224–1229, doi:10.1175/1520-0426(1997)014<1224:ACFOAP>2.0.CO;2, 1997.
- Baumgardner, D., Strapp, W., & Dye, J. E.: Evaluation of the Forward Scattering Spectrometer Probe. Part II: Corrections for coincidence and dead-time losses, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 2, 626–632, doi:10.1175/1520-0426(1985)002<0626:EOTFSS>2.0.CO;2, 1985.
- Baumgardner, D., Dye, J. E., Gandrud, B. W., & Knollenberg, R. G.: Interpretation of measurements made by the Forward Scattering Spectrometer Probe (FSSP-300)

- during the Airborne Arctic Stratospheric Expedition, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 97, 8035–8046, doi:10.1029/91JD02728, 1992.
- Baumgardner, D., Jonsson, H., Dawson, W., O'Connor, D., & Newton, R.: The cloud, aerosol and precipitation spectrometer: A new instrument for cloud investigations, *Atmospheric Research*, 59, 251–264, doi:10.1016/S0169-8095(01)00119-3, 2001.
- Baumgardner, D., Chepfer, H., Raga, G., & Kok, G.: The shapes of very small cirrus particles derived from in situ measurements, *Geophysical Research Letters*, 32, doi:10.1029/2004GL021300, 2005.
- Beyersdorf, A., Timko, M., Ziemba, L., Bulzan, D., Corporan, E., Herndon, S., Howard, R., Miake-Lye, R., Thornhill, K., Winstead, E., et al.: Reductions in aircraft particulate emissions due to the use of Fischer–Tropsch fuels, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14, 11–23, doi:10.5194/acp-14-11-2014, 2014.
- Bier, A. & Burkhardt, U.: Variability in contrail ice nucleation and its dependence on soot number emissions, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 124, doi:10.1029/2018JD029155, 2019.
- Bier, A., Burkhardt, U., & Bock, L.: Synoptic control of contrail cirrus life cycles and their modification due to reduced soot number emissions, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 122, doi:10.1002/2017JD027011, 2017.
- Bock, L. & Burkhardt, U.: Reassessing properties and radiative forcing of contrail cirrus using a climate model, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 121, 9717–9736, doi:10.1002/2016JD025112, 2016a.
- Bock, L. & Burkhardt, U.: The temporal evolution of a long-lived contrail cirrus cluster: Simulations with a global climate model, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 121, 3548–3565, doi:10.1002/2015JD024475, 2016b.
- Bockhorn, H.: Soot formation in combustion - mechanisms and models, Springer Verlag, ISBN 3-540-58398-X, 1994.
- Bohren, C. F. & Huffman, D. R.: Absorption and scattering of light by small particles, John Wiley & Sons, doi:10.1002/9783527618156, 1983.
- Boies, A. M., Stettler, M. E. J., Swanson, J. J., Johnson, T. J., Olfert, J. S., Johnson, M., Eggersdorfer, M. L., Rindlisbacher, T., Wang, J., Thomson, K., Smallwood, G., Sevcenco, Y., Walters, D., Williams, P. I., Corbin, J., Mensah, A. A., Symonds, J., Dastanpour, R., & Rogak, S. N.: Particle emission characteristics of a gas turbine with a double annular combustor, *Aerosol Science and Technology*, 49, 842–855, doi:10.1080/02786826.2015.1078452, 2015.
- Bond, T. C., Doherty, S. J., Fahey, D., Forster, P., Berntsen, T., DeAngelo, B., Flanner, M., Ghan, S., Kärcher, B., Koch, D., et al.: Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 118, 5380–5552, doi:10.1002/jgrd.50171, 2013.

- Borrmann, S., Luo, B., & Mishchenko, M.: Application of the T-matrix method to the measurement of aspherical (ellipsoidal) particles with forward scattering optical particle counters, *Journal of Aerosol Science*, 31, 789–799, doi:10.1016/S0021-8502(99)00563-7, 2000.
- Braga, R. C., Rosenfeld, D., Weigel, R., Jurkat, T., Andreae, M. O., Wendisch, M., Pöhlker, M. L., Klimach, T., Pöschl, U., Pöhlker, C., et al.: Comparing parameterized versus measured microphysical properties of tropical convective cloud bases during the ACRIDICON–CHUVA campaign, *Atmospheric Chemistry & Physics*, 17, 7365–7386, doi:10.5194/acp-17-7365-2017, 2017.
- Braun-Unkloff, M. & Riedel, U.: Alternative fuels in aviation, *CEAS Aeronautical Journal*, 6, 83–93, doi:10.1007/s13272-014-0131-2, 2015.
- Brem, B. T., Durdina, L., Siegerist, F., Beyerle, P., Bruderer, K., Rindlisbacher, T., Rocci-Denis, S., Andac, M. G., Zelina, J., Penanhoat, O., & Wang, J.: Effects of fuel aromatic content on nonvolatile particulate emissions of an in-production aircraft gas turbine, *Environmental Science & Technology*, 49, 13 149–13 157, doi:10.1021/acs.est.5b04167, 2015.
- Brenguier, J.: Coincidence and dead-time corrections for particles counters. Part II: High concentration measurements with an FSSP, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 6, 585–598, doi:10.1175/1520-0426(1989)006<0585:CADTCF>2.0.CO;2, 1989.
- Brock, C. A., Schröder, F., Kärcher, B., Petzold, A., Busen, R., & Fiebig, M.: Ultrafine particle size distributions measured in aircraft exhaust plumes, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 105, 26 555–26 567, doi:10.1029/2000JD900360, 2000.
- Burkhardt, U. & Kärcher, B.: Process-based simulation of contrail cirrus in a global climate model, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 114, doi:10.1029/2008JD011491, 2009.
- Burkhardt, U. & Kärcher, B.: Global radiative forcing from contrail cirrus, *Nature Climate Change*, 1, 54–58, doi:10.1038/nclimate1068, 2011.
- Burkhardt, U., Bock, L., & Bier, A.: Mitigating the contrail cirrus climate impact by reducing aircraft soot number emissions, *npj Climate and Atmospheric Science*, 1, doi:10.1038/s41612-018-0046-4, 2018.
- Busen, R. & Buck, A. L.: A high-performance hygrometer for aircraft use: Description, installation, and flight data, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 12, 73–84, doi:10.1175/1520-0426(1995)012<0073:AHPHFA>2.0.CO;2, 1995.
- Busen, R. & Schumann, U.: Visible contrail formation from fuels with different sulfur contents, *Geophysical Research Letters*, 22, 1357–1360, doi:10.1029/95GL01312, 1995.
- Chauvigné, A., Jourdan, O., Schwarzenboeck, A., Gourbeyre, C., Gayet, J. F., Voigt, C., Schlager, H., Kaufmann, S., Borrmann, S., Molleker, S., Minikin, A., Jurkat,

- T., & Schumann, U.: Statistical analysis of contrail to cirrus evolution during the Contrail and Cirrus Experiment CONCERT, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18, 9803–9822, doi:10.5194/acp-18-9803-2018, 2018.
- Chen, C. C. & Gettelman, A.: Simulated radiative forcing from contrails and contrail cirrus, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 12 525–12 536, doi:10.5194/acp-13-12525-2013, 2013.
- Crosson, E.: A cavity ring-down analyzer for measuring atmospheric levels of methane, carbon dioxide, and water vapor, *Applied Physics B*, 92, 403–408, doi:10.1007/s00340-008-3135-y, 2008.
- Crow, S. C.: Stability theory for a pair of trailing vortices, *AIAA Journal*, 8, 2172–2179, doi:10.2514/3.6083, 1970.
- Dye, J. E. & Baumgardner, D.: Evaluation of the Forward Scattering Spectrometer Probe. Part I: Electronic and optical studies, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 1, 329–344, doi:10.1175/1520-0426(1984)001<0329:EOTFSS>2.0.CO;2, 1984.
- Eyers, C., Norman, P., Middel, J., Plohr, M., Michot, S., Atkinson, K., & Christou, R.: AERO2k global aviation emissions inventories for 2002 and 2025, Tech. rep., QINETIC/04/01113 (QinetiQ, Farnborough, U. K), 2004.
- Fiebig, M.: Das troposphärische Aerosol in mittleren Breiten – Mikrophysik, Optik und Klimaantrieb am Beispiel der Feldstudie LACE 98, Doktorarbeit, Physik, Ludwig-Maximilians-Universität München (LMU), 2001.
- Field, P. R., Wood, R., Brown, P. R. A., Kaye, P. H., Hirst, E., Greenaway, R., & Smith, J. A.: Ice particle interarrival times measured with a Fast FSSP, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 20, 249–261, doi:10.1175/1520-0426(2003)020<0249:IPITMW>2.0.CO;2, 2003.
- Field, P. R., Heymsfield, A. J., & Bansemmer, A.: Shattering and particle interarrival times measured by optical array probes in ice clouds, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 23, 1357–1371, doi:10.1175/JTECH1922.1, 2006.
- Foot, J.: Some observations of the optical properties of clouds.II: Cirrus, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 114, 145–164, doi:10.1002/qj.49711447908, 1988.
- Francis, P., Jones, A., Saunders, R., Shine, K., Slingo, A., & Sun, Z.: An observational and theoretical study of the radiative properties of cirrus: Some results from ICE’89, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 120, 809–848, doi:10.1002/qj.49712051804, 1994.
- Freudenthaler, V., Homburg, F., & Jäger, H.: Optical parameters of contrails from lidar measurements: Linear depolarization, *Geophysical Research Letters*, 23, 3715–3718, doi:10.1029/96GL03646, 1996.

- Fritzsche, L.: Untersuchung der thermischen Stabilität von künstlich generierten Aerosolen mit einer Kombination aus einem Differential Mobility Analyser und einem thermischen Partikeldiskriminator, Diplomarbeit, Fachhochschule Mittweida, 2002.
- Gayet, J.-F., Shcherbakov, V., Voigt, C., Schumann, U., Schäuble, D., Jessberger, P., Petzold, A., Minikin, A., Schlager, H., Dubovik, O., et al.: The evolution of microphysical and optical properties of an A380 contrail in the vortex phase, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12, 6629–6643, doi:10.5194/acp-12-6629-2012, 2012.
- Gerz, T. & Ehret, T.: Wingtip vortices and exhaust jets during the jet regime of aircraft wakes, *Aerospace Science and Technology*, 1, 463 – 474, doi:10.1016/S1270-9638(97)90008-0, 1997.
- Gerz, T., Dürbeck, T., & Konopka, P.: Transport and effective diffusion of aircraft emissions, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 103, 25 905–25 913, doi:10.1029/98JD02282, 1998.
- Grewe, V., Dahlmann, K., Flink, J., Frömming, C., Ghosh, R., Gierens, K., Heller, R., Hendricks, J., Jöckel, P., Kaufmann, S., et al.: Mitigating the climate impact from aviation: Achievements and results of the DLR WeCare project, *Aerospace*, 4, doi:10.3390/aerospace4030034, 2017.
- Gurganus, C. & Lawson, P.: Laboratory and flight tests of 2d imaging probes: Toward a better understanding of instrument performance and the impact on archived data, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 35, 1533–1553, doi:10.1175/JTECH-D-17-0202.1, 2018.
- Hahn, V.: Investigation of aerosol-cloud-effects from low level cloud measurements with the CAS-DPOL in West Africa during the DACCIWA campaign and setup of a sampling area calibration stand for cloud droplet spectrometers, Masterarbeit, Ludwig-Maximilians-Universität München (LMU), 2019.
- Haywood, J. M., Allan, R. P., Bornemann, J., Forster, P. M., Francis, P. N., Milton, S., Rädcl, G., Rap, A., Shine, K. P., & Thorpe, R.: A case study of the radiative forcing of persistent contrails evolving into contrail-induced cirrus, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 114, doi:10.1029/2009JD012650, 2009.
- Heymsfield, A., Baumgardner, D., DeMott, P., Forster, P., Gierens, K., & Kärcher, B.: Contrail microphysics, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 91, 465–472, doi:10.1175/2009BAMS2839.1, 2010.
- Heymsfield, A. J., Lawson, R. P., & Sachse, G. W.: Growth of ice crystals in a precipitating contrail, *Geophysical Research Letters*, 25, 1335–1338, doi:10.1029/98GL00189, 1998.
- Hinds, W.: *Aerosol technology*, John Wiley & Sons, New York, 1999.
- Holzäpfel, F.: Effects of environmental and aircraft parameters on wake vortex behavior, *Journal of Aircraft*, 51, 1490–1500, doi:10.2514/1.C032366, 2014.

- Holzäpfel, F., Gerz, T., & Baumann, R.: The turbulent decay of trailing vortex pairs in stably stratified environments, *Aerospace Science and Technology*, 5, 95–108, doi:10.1016/S1270-9638(00)01090-7, 2001.
- ICAO: International Civil Aviation Organization, environmental report 2013, chapter 1: Aviation and environment, 2013.
- ICAO: International Civil Aviation Organization (ICAO): Aircraft engine emission databank, <https://www.easa.europa.eu/easa-and-you/environment/icao-aircraft-engine-emissions-databank>. Accessed: 28. May 2019, 2018.
- Jackson, J. D.: Classical electrodynamics, John Wiley & Sons, 1975.
- Jacobson, M., Wilkerson, J., Naiman, A., & Lele, S.: The effects of aircraft on climate and pollution. Part I: Numerical methods for treating the subgrid evolution of discrete size- and composition-resolved contrails from all commercial flights worldwide, *Journal of Computational Physics*, 230, 5115 – 5132, doi:10.1016/j.jcp.2011.03.031, 2011.
- Jensen, E. J., Ackerman, A. S., Stevens, D. E., Toon, O., Minnis, P., et al.: Spreading and growth of contrails in a sheared environment, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 103, 31 557–31 567, doi:10.1029/98JD02594, 1998.
- Jeßberger, P., Voigt, C., Schumann, U., Sölch, I., Schlager, H., Kaufmann, S., Petzold, A., Schäuble, D., & Gayet, J.-F.: Aircraft type influence on contrail properties, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 11 965–11 984, doi:10.5194/acp-13-11965-2013, 2013.
- Jurkat, T., Voigt, C., Arnold, F., Schlager, H., Kleffmann, J., Aufmhoff, H., Schäuble, D., Schaefer, M., & Schumann, U.: Measurements of HONO, NO, NO_y and SO₂ in aircraft exhaust plumes at cruise, *Geophysical Research Letters*, 38, doi:10.1029/2011GL046884, 2011.
- Jurkat-Witschas, T., Voigt, C., Braga, R., Rosenfeld, D., & Mahnke, C.: The impact of aerosol concentration and droplet number at cloud base on the region of ice initiation in convective clouds (in preparation), *SAE Technical Paper*, 2019.
- Kärcher, B.: Transport of exhaust products in the near trail of a jet engine under atmospheric conditions, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 99, 14 509–14 517, doi:10.1029/94JD00940, 1994.
- Kärcher, B.: Aviation-produced aerosols and contrails, *Surveys in Geophysics*, 20, 113–167, doi:10.1023/A:1006600107117, 1999.
- Kärcher, B.: Formation and radiative forcing of contrail cirrus, *Nature Communications*, 9, 1824, doi:10.1038/s41467-018-04068-0, 2018.
- Kärcher, B. & Voigt, C.: Susceptibility of contrail ice crystal numbers to aircraft soot particle emissions, *Geophysical Research Letters*, 44, 8037–8046, doi:10.1002/2017GL074949, 2017.

- Kärcher, B. & Yu, F.: Role of aircraft soot emissions in contrail formation, *Geophysical Research Letters*, 36, doi:10.1029/2008GL036649, 2009.
- Kärcher, B., Peter, T., & Ottmann, R.: Contrail formation: Homogeneous nucleation of H₂SO₄/H₂O droplets, *Geophysical Research Letters*, 22, 1501–1504, doi:10.1029/95GL01337, 1995.
- Kärcher, B., Peter, T., Biermann, U. M., & Schumann, U.: The initial composition of jet condensation trails, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 53, 3066–3083, doi:10.1175/1520-0469(1996)053<3066:TICOJC>2.0.CO;2, 1996.
- Kärcher, B., Möhler, O., DeMott, P. J., Pechtl, S., & Yu, F.: Insights into the role of soot aerosols in cirrus cloud formation, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7, 4203–4227, doi:10.5194/acp-7-4203-2007, 2007.
- Kärcher, B., Burkhardt, U., Bier, A., Bock, L., & Ford, I.: The microphysical pathway to contrail formation, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 120, 7893–7927, doi:10.1002/2015JD023491, 2015.
- Kärcher, B., Kleine, J., Sauer, D., & Voigt, C.: Contrail formation: Analysis of sublimation mechanisms, *Geophysical Research Letters*, 45, 13,547–13,552, doi:10.1029/2018GL079391, 2018.
- Kaufmann, S., Voigt, C., Jeßberger, P., Jurkat, T., Schlager, H., Schwarzenboeck, A., Klingebiel, M., & Thornberry, T.: In situ measurements of ice saturation in young contrails, *Geophysical Research Letters*, 41, 702–709, doi:10.1002/2013GL058276, 2014.
- Kleine, J., Voigt, C., Sauer, D., Schlager, H., Scheibe, M., Jurkat-Witschas, T., Kaufmann, S., Kärcher, B., & Anderson, B. E.: In situ observations of ice particle losses in a young persistent contrail, *Geophysical Research Letters*, 45, 13,553–13,561, doi:10.1029/2018GL079390, 2018.
- Knollenberg, R.: Clouds - Their formation, optical properties, and effects; Proceedings of the Symposium, Williamsburg, VA, May 13, 14, 1980. (A82-12426 02-47) 1981, p. 15-89; Discussion, p. 90, 91., New York, Academic Press, 1981.
- Knollenberg, R. G.: The optical array: An alternative to scattering or extinction for airborne particle size determination, *Journal of Applied Meteorology*, 9, 86–103, doi:10.1175/1520-0450(1970)009<0086:TOAAAT>2.0.CO;2, 1970.
- Korolev, A.: Reconstruction of the sizes of spherical particles from their shadow images. Part I: Theoretical considerations, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 24, 376–389, doi:10.1175/JTECH1980.1, 2007.
- Korolev, A., Strapp, J., & Isaac, G.: Evaluation of the accuracy of PMS optical array probes, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 15, 708–720, doi:10.1175/1520-0426(1998)015<0708:EOTAOP>2.0.CO;2, 1998.
- Lance, S.: Coincidence errors in a Cloud Droplet Probe (CDP) and a Cloud and Aerosol Spectrometer (CAS), and the improved performance of a modified CDP, *Journal*

- of Atmospheric and Oceanic Technology*, 29, 1532–1541, doi:10.1175/JTECH-D-11-00208.1, 2012.
- Lance, S., Brock, C., Rogers, D., & Gordon, J. A.: Water droplet calibration of the Cloud Droplet Probe (CDP) and in-flight performance in liquid, ice and mixed-phase clouds during ARCPAC, *Atmospheric Measurement Techniques*, 3, 1683–1706, doi:10.5194/amt-3-1683-2010, 2010.
- Lawson, R. P., O'Connor, D., Zmarzly, P., Weaver, K., Baker, B., Mo, Q., & Jonsson, H.: The 2D-S (Stereo) Probe: Design and preliminary tests of a new airborne, high-speed, high-resolution particle imaging probe, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 23, 1462–1477, doi:10.1175/JTECH1927.1, 2006.
- Lee, D., Pitari, G., Grewe, V., Gierens, K., Penner, J., Petzold, A., Prather, M., Schumann, U., Bais, A., Berntsen, T., et al.: Transport impacts on atmosphere and climate: Aviation, *Atmospheric Environment*, 44, 4678–4734, doi:10.1016/j.atmosenv.2009.06.005, 2010.
- Lee, D. S., Fahey, D. W., Forster, P. M., Newton, P. J., Wit, R. C., Lim, L. L., Owen, B., & Sausen, R.: Aviation and global climate change in the 21st century, *Atmospheric Environment*, 43, 3520–3537, doi:10.1016/j.atmosenv.2009.04.024, 2009.
- Lewellen, D. C. & Lewellen, W. S.: The effects of aircraft wake dynamics on contrail development, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 58, 390–406, doi:10.1175/1520-0469(2001)058<0390:TEOAWD>2.0.CO;2, 2001.
- Lobo, P., Hagen, D. E., & Whitefield, P. D.: Comparison of PM Emissions from a commercial jet engine burning conventional, biomass, and Fischer–Tropsch fuels, *Environmental Science & Technology*, 45, 10 744–10 749, doi:10.1021/es201902e, 2011.
- Maxwell, J. C.: A dynamical theory of the electromagnetic field, *Philosophical transactions of the Royal Society of London*, 155, 459–512, doi:10.1098/rstl.1865.0008, 1865.
- McFarquhar, G. M. & Heymsfield, A. J.: The definition and significance of an effective radius for ice clouds, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 55, 2039–2052, doi:10.1175/1520-0469(1998)055<2039:TDASOA>2.0.CO;2, 1998.
- Meerkötter, R., Schumann, U., Doelling, D., Minnis, P., Nakajima, T., & Tsushima, Y.: Radiative forcing by contrails, *Annales Geophysicae*, 17, 1080–1094, doi:10.1007/s00585-999-1080-7, 1999.
- Meyer, J.: Ice crystal measurements with the new particle spectrometer NIXE-CAPS, Ph.D. thesis, Forschungszentrum Jülich, 2013.
- Mie, G.: Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen, *Annalen der Physik*, 330, 377–445, doi:10.1002/andp.19083300302, 1908.

- Minnis, P., Bedka, S. T., Duda, D. P., Bedka, K. M., Chee, T., Ayers, J. K., Palikonda, R., Spangenberg, D. A., Khlopenkov, K. V., & Boeke, R.: Linear contrail and contrail cirrus properties determined from satellite data, *Geophysical Research Letters*, 40, 3220–3226, doi:10.1002/grl.50569, 2013.
- Misaka, T., Holzäpfel, F., Hennemann, I., Gerz, T., Manhart, M., & Schwertfirm, F.: Vortex bursting and tracer transport of a counter-rotating vortex pair, *Physics of Fluids*, 24, 025 104, doi:10.1063/1.3684990, 2012.
- Mishchenko, M. I. & Sassen, K.: Depolarization of lidar returns by small ice crystals: An application to contrails, *Geophysical research letters*, 25, 309–312, doi:10.1029/97GL03764, 1998.
- Mishchenko, M. I., Travis, L. D., & Mackowski, D. W.: T-matrix computations of light scattering by nonspherical particles: A review, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 55, 535–575, doi:10.1016/0022-4073(96)00002-7, 1996.
- Molleker, S.: Charakterisierung von optischen Partikelspektrometern und in-situ Messungen zur Mikrophysik der polaren Stratosphärenwolken, Doktorarbeit, Johannes Gutenberg - Universität, Mainz, 2013.
- Moore, R. H., Thornhill, K. L., Weinzierl, B., Sauer, D., D’Ascoli, E., Kim, J., Lichtenstern, M., Scheibe, M., Beaton, B., Beyersdorf, A. J., et al.: Biofuel blending reduces particle emissions from aircraft engines at cruise conditions, *Nature*, 543, 411–415, doi:10.1038/nature21420, 2017.
- Murphy, D., Thomson, D., & Mahoney, M.: In situ measurements of organics, meteoritic material, mercury, and other elements in aerosols at 5 to 19 kilometers, *Science*, 282, 1664–1669, doi:10.1126/science.282.5394.1664, 1998.
- Murphy, D. M. & Koop, T.: Review of the vapour pressures of ice and supercooled water for atmospheric applications, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 131, 1539–1565, doi:10.1256/qj.04.94, 2005.
- Myhre, G., Kvalevag, M., Rädcl, G., Cook, J., Shine, K. P., Clark, H., Karcher, F., Markowicz, K., Kardas, A., Wolkenberg, P., et al.: Intercomparison of radiative forcing calculations of stratospheric water vapour and contrails, *Meteorologische Zeitschrift*, 18, 585–596, doi:10.1127/0941-2948/2009/0411, 2009.
- Naiman, A. D., Lele, S. K., & Jacobson, M. Z.: Large-eddy simulations of contrail development: Sensitivity to initial and ambient conditions over first twenty minutes, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 116, doi:10.1029/2011JD015806, 2011.
- Noone, K. J. & Hansson, H.-C.: Calibration of the TSI 3760 condensation nucleus counter for nonstandard operating conditions, *Aerosol Science and Technology*, 13, 478–485, doi:10.1080/02786829008959462, 1990.
- Paoli, R. & Shariff, K.: Contrail modeling and simulation, *Annual Review of Fluid Mechanics*, 48, 393–427, doi:10.1146/annurev-fluid-010814-013619, 2016.

- Penner, J., Lister, D., Griggs, D., Dokken, D., & McFarland, M.: Aviation and the global atmosphere: A special report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, Cambridge University Press, New York, 1999.
- Peskin, M. E. & Schroeder, D. V.: An introduction to quantum field theory, Westview Press, 1995.
- Petzold, A., Busen, R., Schröder, F. P., Baumann, R., Kuhn, M., Ström, J., Hagen, D. E., Whitefield, P. D., Baumgardner, D., Arnold, F., Borrmann, S., & Schumann, U.: Near-field measurements on contrail properties from fuels with different sulfur content, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 102, 29 867–29 880, doi:10.1029/97JD02209, 1997.
- Petzold, A., Döpelheuer, A., Brock, C., & Schröder, F.: In situ observations and model calculations of black carbon emission by aircraft at cruise altitude, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 104, 22 171–22 181, doi:10.1029/1999JD900460, 1999.
- Petzold, A., Stein, C., Nyeki, S., Gysel, M., Weingartner, E., Baltensperger, U., Giebl, H., Hittenberger, R., Döpelheuer, A., Vrchotický, S., Puxbaum, H., Johnson, M., Hurley, C. D., Marsh, R., & Wilson, C. W.: Properties of jet engine combustion particles during the PartEmis experiment: Microphysics and Chemistry, *Geophysical Research Letters*, 30, doi:10.1029/2003GL017283, 2003.
- Picot, J., Paoli, R., Thouron, O., & Cariolle, D.: Large-eddy simulation of contrail evolution in the vortex phase and its interaction with atmospheric turbulence, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 7369–7389, doi:10.5194/acp-15-7369-2015, 2015.
- Richter, H. & Howard, J.: Formation of polycyclic aromatic hydrocarbons and their growth to soot—a review of chemical reaction pathways, *Progress in Energy and Combustion Science*, 26, 565 – 608, doi:10.1016/S0360-1285(00)00009-5, 2000.
- Righi, M., Hendricks, J., & Sausen, R.: The global impact of the transport sectors on atmospheric aerosol: simulations for year 2000 emissions, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 9939–9970, doi:10.5194/acp-13-9939-2013, 2013.
- Rojo, C., Vancassel, X., Mirabel, P., Ponche, J.-L., & Garnier, F.: Impact of alternative jet fuels on aircraft-induced aerosols, *Fuel*, 144, 335 – 341, doi:10.1016/j.fuel.2014.12.021, 2015.
- Rosenberg, P., Dean, A., Williams, P., Dorsey, J., Minikin, A., Pickering, M., & Petzold, A.: Particle sizing calibration with refractive index correction for light scattering optical particle counters and impacts upon PCASP and CDP data collected during the Fenec campaign, *Atmospheric Measurement Techniques*, 5, 1147–1163, doi:10.5194/amt-5-1147-2012, 2012.
- Sassen, K. & Hsueh, C.-y.: Contrail properties derived from high-resolution polarization lidar studies during SUCCESS, *Geophysical Research Letters*, 25, 1165–1168, doi:10.1029/97GL03503, 1998.

- Sausen, R., Gierens, K., Eyring, V., Hendricks, J., & Righi, M.: Climate impact of transport, *Atmospheric Physics. Research Topics in Aerospace. Editor: U. Schumann*, pp. 711–725, doi:10.1007/978-3-642-30183-4, 2012.
- Schmidt, E.: Die Entstehung von Eisnebel aus den Auspuffgasen von Flugmotoren, *Schriften der Deutschen Akademie der Luftfahrtforschung*, 44, 1–15, 1941.
- Schripp, T., Anderson, B., Crosbie, E. C., Moore, R. H., Herrmann, F., Oßwald, P., Wahl, C., Kapernaum, M., Köhler, M., Le Clercq, P., Rauch, B., Eichler, P., Mikoviny, T., & Wisthaler, A.: Impact of Alternative Jet Fuels on Engine Exhaust Composition During the 2015 ECLIF Ground-Based Measurements Campaign, *Environmental Science & Technology*, 52, 4969–4978, doi:10.1021/acs.est.7b06244, 2018.
- Schröder, F., Kärcher, B., Duroure, C., Ström, J., Petzold, A., Gayet, J.-F., Strauss, B., Wendling, P., & Borrmann, S.: On the transition of contrails into cirrus clouds, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 57, 464–480, doi:10.1175/1520-0469(2000)057<0464:OTTOCI>2.0.CO;2, 1999.
- Schröder, F. P., Kärcher, B., Petzold, A., Baumann, R., Busen, R., Hoell, C., & Schumann, U.: Ultrafine aerosol particles in aircraft plumes: In situ observations, *Geophysical Research Letters*, 25, 2789–2792, doi:10.1029/98GL02078, 1998.
- Schulte, P. & Schlager, H.: In-flight measurements of cruise altitude nitric oxide emission indices of commercial jet aircraft, *Geophysical Research Letters*, 23, 165–168, doi:10.1029/95GL03691, 1996.
- Schumann, U.: On conditions for contrail formation from aircraft exhausts, *Meteorologische Zeitschrift*, 5, 4–23, doi:10.1127/metz/5/1996/4, 1996.
- Schumann, U. & Graf, K.: Aviation-induced cirrus and radiation changes at diurnal timescales, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 118, 2404–2421, doi:10.1002/jgrd.50184, 2013.
- Schumann, U. & Heymsfield, A. J.: On the life cycle of individual contrails and contrail cirrus, *Meteorological Monographs*, 58, 3.1–3.24, doi:10.1175/AMSMONOGRAPHS-D-16-0005.1, 2017.
- Schumann, U., Schlager, H., Arnold, F., Baumann, R., Haschberger, P., & Klemm, O.: Dilution of aircraft exhaust plumes at cruise altitudes, *Atmospheric Environment*, 32, 3097 – 3103, doi:10.1016/S1352-2310(97)00455-X, 1998.
- Schumann, U., Jeßberger, P., & Voigt, C.: Contrail ice particles in aircraft wakes and their climatic importance, *Geophysical Research Letters*, 40, 2867–2872, doi:10.1002/grl.50539, 2013.
- Schumann, U., Baumann, R., Baumgardner, D., Bedka, S. T., Duda, D. P., Freudenthaler, V., et al.: Properties of individual contrails: A compilation of observations and some comparisons, *Atmospheric Chemistry and Physics: From air pollution to climate change*, 17, 403–438, doi:10.5194/acp-17-403-2017, 2017.

- Seinfeld, J. H. & Pandis, S. N.: Atmospheric Chemistry and Physics: From air pollution to climate change, John Wiley & Sons, 2016.
- Sussmann, R. & Gierens, K. M.: Lidar and numerical studies on the different evolution of vortex pair and secondary wake in young contrails, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 104, 2131–2142, doi:10.1029/1998JD200034, 1999.
- Timko, M. T., Yu, Z., Onasch, T. B., Wong, H.-W., Miake-Lye, R. C., Beyersdorf, A. J., Anderson, B. E., Thornhill, K. L., Winstead, E. L., Corporan, E., DeWitt, M. J., Klingshirm, C. D., Wey, C., Tacina, K., Liscinsky, D. S., Howard, R., & Bhargava, A.: Particulate emissions of gas turbine engine combustion of a Fischer–Tropsch synthetic fuel, *Energy & Fuels*, 24, 5883–5896, doi:10.1021/ef100727t, 2010.
- Unterstrasser, S.: Large-eddy simulation study of contrail microphysics and geometry during the vortex phase and consequences on contrail-to-cirrus transition, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 119, 7537–7555, doi:10.1002/2013JD021418, 2014.
- Unterstrasser, S.: Properties of young contrails - a parametrisation based on large-eddy simulations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16, 2059–2082, doi:10.5194/acp-16-2059-2016, 2016.
- Unterstrasser, S. & Gierens, K.: Numerical simulations of contrail-to-cirrus transition – Part 2: Impact of initial ice crystal number, radiation, stratification, secondary nucleation and layer depth, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 2037–2051, doi:10.5194/acp-10-2037-2010, 2010.
- Unterstrasser, S. & Görsch, N.: Aircraft-type dependency of contrail evolution, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 119, 14,015–14,027, doi:10.1002/2014JD022642, 2014.
- Unterstrasser, S. & Sölch, I.: Study of contrail microphysics in the vortex phase with a Lagrangian particle tracking model, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 10 003–10 015, doi:10.5194/acp-10-10003-2010, 2010.
- Van de Hulst, H. C.: Light scattering by small particles, *Physics Today*, 10, 28, doi:10.1063/1.3060205, 1957.
- Vázquez-Navarro, M., Mannstein, H., & Mayer, B.: An automatic contrail tracking algorithm, *Atmospheric Measurement Techniques*, 3, 1089–1101, doi:10.5194/amt-3-1089-2010, 2010.
- Vázquez-Navarro, M., Mannstein, H., & Kox, S.: Contrail life cycle and properties from 1 year of MSG/SEVIRI rapid-scan images, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 8739–8749, doi:10.5194/acp-15-8739-2015, 2015.
- Voigt, C., Schumann, U., Jurkat, T., Schäuble, D., Schlager, H., Petzold, A., Gayet, J.-F., Krämer, M., Schneider, J., Borrmann, S., Schmale, J., Jessberger, P., Hamburger, T., Lichtenstern, M., Scheibe, M., Gourbeyre, C., Meyer, J., Kübbeler, M., Frey, W., Kalesse, H., Butler, T., Lawrence, M. G., Holzäpfel, F., Arnold, F.,

- Wendisch, M., Döpelheuer, A., Gottschaldt, K., Baumann, R., Zöger, M., Sölch, I., Rautenhaus, M., & Dörnbrack, A.: In-situ observations of young contrails – overview and selected results from the CONCERT campaign, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 9039–9056, doi:10.5194/acp-10-9039-2010, 2010.
- Voigt, C., Schumann, U., Jessberger, P., Jurkat, T., Petzold, A., Gayet, J.-F., Krämer, M., Thornberry, T., & Fahey, D.: Extinction and optical depth of contrails, *Geophysical Research Letters*, 38, doi:10.1029/2011GL047189, 2011.
- Voigt, C., Schumann, U., Minikin, A., Abdelmonem, A., Afchine, A., Borrmann, S., et al.: ML-CIRRUS: The airborne experiment on natural cirrus and contrail cirrus with the high-altitude long-range research aircraft HALO, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 98, 271–288, doi:10.1175/BAMS-D-15-00213.1, 2017.
- Von der Weiden, S., Drewnick, F., & Borrmann, S.: Particle loss calculator - a new software tool for the assessment of the performance of aerosol inlet systems, *Atmospheric Measurement Techniques*, 2, 479–494, doi:10.5194/amt-2-479-2009, 2009.
- Walser, A.: On the Saharan air layer aerosol and its role as a reservoir of cloud condensation nuclei, Ph.D. thesis, Ludwig-Maximilians-Universität München (LMU), 2017.
- Waterman, P.: Matrix formulation of electromagnetic scattering, *Proceedings of the IEEE*, 53, 805–812, doi:10.1109/PROC.1965.4058, 1965.
- Weigel, R., Hermann, M., Curtius, J., Voigt, C., Walter, S., Böttger, T., Lepukhov, B., Belyaev, G., & Borrmann, S.: Experimental characterization of the CONDensation PArticle counting System for high altitude aircraft-borne application, *Atmospheric Measurement Techniques*, 2, 243–258, doi:10.5194/amt-2-243-2009, 2009.
- Weigel, R., Spichtinger, P., Mahnke, C., Klingebiel, M., Afchine, A., Petzold, A., Krämer, M., Costa, A., Molleker, S., Reutter, P., et al.: Thermodynamic correction of particle concentrations measured by underwing probes on fast-flying aircraft, *Atmospheric Measurement Techniques*, 9, 5135, doi:10.5194/amt-9-5135-2016, 2016.
- Weinzierl, B. B.: Radiatively-driven processes in forest fire and desert dust plumes, Ph.D. thesis, Ludwig-Maximilians-Universität München (LMU), 2008.
- Wendisch, M. & Yang, P.: *Theory of Atmospheric Radiative Transfer*, John Wiley & Sons, 2012.
- Wilkerson, J., Jacobson, M. Z., Malwitz, A., Balasubramanian, S., Wayson, R., Fleming, G., Naiman, A., & Lele, S.: Analysis of emission data from global commercial aviation: 2004 and 2006, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 6391–6408, doi:10.5194/acp-10-6391-2010, 2010.

- Wiscombe, W. J.: Improved Mie scattering algorithms, *Applied optics*, 19, 1505–1509, doi:10.1364/AO.19.001505, 1980.
- Wong, H.-W., Beyersdorf, A., Heath, C., Ziemba, L., Winstead, E., Thornhill, K., Tacina, K., Ross, R., Albo, S., Bulzan, D., et al.: Laboratory and modeling studies on the effects of water and soot emissions and ambient conditions on the properties of contrail ice particles in the jet regime, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 10 049–10 060, doi:10.5194/acp-13-10049-2013, 2013.
- Yang, P., Bi, L., Baum, B. A., Liou, K.-N., Kattawar, G. W., Mishchenko, M. I., & Cole, B.: Spectrally consistent scattering, absorption, and polarization properties of atmospheric ice crystals at wavelengths from 0.2 to 100 μm , *Journal of the Atmospheric Sciences*, 70, 330–347, doi:10.1175/JAS-D-12-039.1, 2013.
- Yu, F. & Turco, R. P.: The role of ions in the formation and evolution of particles in aircraft plumes, *Geophysical Research Letters*, 24, 1927–1930, doi:10.1029/97GL01822, 1997.

Einzelbeiträge zur Thematik

Im Folgenden werden die Beiträge einzelner Personen zu dieser Dissertation sowie den beiden Publikationen Kleine et al. (2018) und Kärcher et al. (2018) aufgeschlüsselt. Diese Aufschlüsselung ist als Ergänzung zu betrachten, da sämtliche nicht direkt von JK stammenden Beiträge zu dieser Arbeit auch an den jeweiligen Stellen dieser Arbeit mit Verweis auf die jeweils beitragenden Personen explizit kenntlich gemacht sind.

Jonas Kleine:

Charakterisierung der Eisinstrumentierung (CAS, CAS[†]), Durchführen der Eispartikelmessungen mit CAS, CAS[†] und 2D-S bei ECLIF und WeCare, empirische Herleitung einer Funktion zur Koinzidenzkorrektur der CAS im Rahmen von WeCare, Entwicklung der Methodik zur kombinierten Auswertung der Eis- und Rußpartikelmessungen über Vertikalprofile entsprechender Emissionsindizes, Analyse der mikrophysikalischen und dynamischen Eigenschaften der vermessenen Kondensstreifen, Nachweis und Quantifizierung der Sublimationsverluste von Eispartikeln während der Wirbelphase, Nachweis der rußkontrollierten Eisbildung im rußreichen Regime ($EI_{\text{Ruß}} \geq 10^{15} \text{ kg}^{-1}$), Analyse des Einflusses synthetischer Treibstoffe auf Kondensstreifeneigenschaften (Eis- und Rußpartikelzahlen) auf Basis der 1Hz-Zeitreihen von Eis-, Ruß-, CO₂- und H₂O-Messungen, Aufbereiten der Beobachtungsdaten aus ECLIF zur Fixierung der freien Modellparameter aus Kärcher et al. (2018), Schreiben der vorliegenden Arbeit sowie der Publikation Kleine et al. (2018)

Daniel Sauer:

Charakterisierung des Aerosolmesssystems, Durchführung der nvPM-Messungen bei ECLIF, Bereitstellen von 1Hz-Zeitreihen (N_{nvPM})

Monika Scheibe:

Charakterisierung des Picarro-CO₂, Durchführung der CO₂-Messungen bei ECLIF, Bereitstellen von 1Hz-Zeitreihen (CO₂)

Stefan Kaufmann:

Durchführen der H₂O-Messungen bei ECLIF, Bereitstellen von 1Hz-Zeitreihen (RH_i)

Christiane Voigt:

Planung und Koordination des Flugexperiments ECLIF

Hans Schlager:

Planung und Koordination des Flugexperiments ECLIF, Spurengasmessungen bei ECLIF

Tina Jurkat:

Durchführen von Messungen mit dem Massenspektrometer AIMS bei ECLIF

Bernd Kärcher:

Fixieren der freien Parameter des Modells aus Kärcher & Voigt (2017) auf Basis der von JK analysierten und bereitgestellten Beobachtungsdaten, Durchführen der Modellsimulationen aus Kärcher et al. (2018) und Schreiben jener Publikation

Bruce Anderson, Tobias Schripp:

Rußpartikelmessungen am Boden in Manching

Valerian Hahn:

Durchführen von Messungen am Tröpfchengenerator des IPA (DLR) mit der CAS[†]

Beiping Luo:

Bereitstellen von T-Matrix-Rechnungen zur Größenbestimmung asphärischer Eispartikel