

Charakterisierung des Eiskeimzählers FINCH

Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaft

vorgelegt im Fachbereich Geowissenschaften
der Johann Wolfgang Goethe-Universität
in Frankfurt am Main

von

Fabian Frank
aus Lauterbach (Hessen)

Frankfurt am Main

2017

(D 30)

vom Fachbereich 11 Geowissenschaften / Geographie der

Johann Wolfgang Goethe-Universität als Dissertation angenommen.

Dekan: Prof. Dr. Peter Lindner

Gutachter: Prof. Dr. Joachim Curtius
PD Dr. Johannes Schneider

Datum der Disputation:

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis.....	1
1 Einleitung.....	3
1.1 Motivation.....	4
1.1.1 Aktivierung von INP.....	6
1.1.2 Vorkommen von INP.....	8
1.1.3 Eigenschaften von INP.....	9
1.1.4 Einfluss und Auswirkungen von INP.....	11
1.2 Eiskeimzähler und -instrumente.....	13
2 Methoden.....	17
2.1 Aufbau FINCH.....	17
2.2 Mischprinzip.....	23
2.2.1 Mischung der Flüsse Q_{AWM} und Q_C	25
2.2.2 Mischung aller vier Flüsse.....	27
2.3 Software FINCH.....	29
2.4 Betriebsablauf FINCH.....	31
2.5 Aufbau Optik.....	33
2.6 Messgrößen.....	36
2.6.1 Partikelanzahl.....	36
2.6.2 Partikelgröße.....	36
2.6.3 Anzahl der fluoreszierenden Partikel.....	37
2.6.4 Form der Partikel.....	38
2.7 Software Optik.....	39
2.8 Elektrische Verarbeitung.....	44
2.8.1 Übertrager.....	46
2.8.2 Frequenzfilter.....	48
2.9 Experimentieraufbauten.....	49
2.9.1 Versuchsaufbau: LED.....	49
2.9.2 Versuchsaufbau: Wärmetauscher.....	50
2.9.3 Versuchsaufbau: Partikelmessungen/Testaerosol.....	50
3 Charakterisierung: Optik.....	55
3.1 Wahl der Verstärkungsspannungen.....	55
3.2 Signalaufnahme und Verarbeitung.....	58
3.3 Messung von Testaerosol.....	62
3.3.1 Erste Streulichtmessung.....	62
3.3.2 Zähleffizienz.....	63
3.3.3 Größenverteilung.....	65

2 - Inhaltsverzeichnis

3.3.4 Depolarisation.....	71
3.3.5 Fluoreszenz.....	73
3.4 Außenluftmessung.....	77
4 Charakterisierung: FINCH.....	82
4.1 Aufenthaltszeit.....	82
4.2 Partikelverluste.....	85
4.3 Kontaminationen.....	86
4.4 Randbedingungen Aktivierungsmessungen.....	88
4.5 Erste Aktivierungsexperimente.....	91
4.6 Überprüfung der Regelung.....	95
4.7 Genauigkeit der Sättigung.....	100
4.8 Weitere Aktivierungsmessungen.....	102
5 Erste Anwendungen von FINCH.....	106
5.1 Snomax [®] -Aktivierung.....	106
5.2 Jungfrauchjoch 2017 Messung.....	108
6 Diskussion und Schlussfolgerungen.....	112
6.1 FINCH-Optik.....	112
6.2 FINCH.....	114
7 Zusammenfassung.....	117
8 Abstract.....	119
Anhang.....	121
Literaturverzeichnis.....	130
Abbildungsverzeichnis.....	137
Tabellenverzeichnis.....	144
Abkürzungen und Symbole.....	145
Erklärung.....	148
Lebenslauf.....	149

1 Einleitung

Die Atmosphäre der Erde mit ihren zahlreichen internen und externen Wechselwirkungen ist ein äußerst komplexes System, was bei weitem noch nicht in voller Gänze verstanden ist. Dabei bestimmen die Phänomene von Wetter und Klima den menschlichen Alltag. Die Bildung von Wolken und Niederschlag und deren Einfluss auf das globale Klima ist derzeit ein stark umforschtes Gebiet und auch die atmosphärische Eisphase und deren Bildungsprozesse sind von zentraler Bedeutung für aktuelle Klima- und Wetterstudien.

Eisbildung in der Atmosphäre kann über verschiedene Prozesse geschehen. Man kann grob in zwei Teilbereiche unterscheiden: die Bildung von Eis an einem Keim aus dem atmosphärischen Aerosol (heterogene Eisnukleation) und die Bildung von Eis direkt aus der Gasphase ohne den Einfluss einer anderen Phase (homogene Eisnukleation). Unter atmosphärischen Bedingungen spielt die eben genannte Form der homogenen Eisnukleation keine Rolle, was die Bedeutung eines Keimes hervorhebt. Erst ab einer Temperatur von ca. -38 °C frieren unterkühlte Flüssigwassertropfchen durch. Die Eisbildung bei wärmeren Temperaturen muss also durch einen sog. Eiskeim (INP von engl. „*ice nucleating particle*“) initiiert werden.

Durch ihren Einfluss auf die Prozesse in Wolken beeinflussen Eiskeime ebenfalls den globalen Strahlungshaushalt und damit das weltweite Klima. Dies machen Eiskeime zu einer relevanten Fraktion des atmosphärischen Aerosols und die Bestimmung ihrer Eigenschaften, atmosphärischer Konzentration und chemischer Zusammensetzung zu einer wichtigen wissenschaftlichen (und technischen) Herausforderung.

Um einen Eiskeim als solchen zu identifizieren muss er in einem Messgerät aktiviert werden. Der entstandene Eiskristall kann so gezählt und ggf. klassiert werden. In der vorliegenden Arbeit wird der Eiskeimzähler FINCH (von engl. „*Fast Ice Nucleus Chamber*“) [Bundke, 2008] genutzt um eine Aussage über Eiskeimeigenschaften zu treffen. Durch Inkonsistenzen in der Datenaufnahme oder -verarbeitung sowie einer Vielzahl technischer Probleme bei der Umsetzung eines solchen Eiskeimzählers, war es notwendig das System vollständig zu hinterfragen. Im Rahmen dieser Arbeit wurden deshalb zentrale Änderungen im Aufbau durchgeführt (bezogen auf das ursprüngliche Design) sowie die elektrische Signalverarbeitung und die Auswertesoftware ersetzt.

Das Ziel dieser Arbeit ist es zu belegen, dass mit FINCH Eiskeime aktiviert und als solche detektiert werden können. Besondere Bedeutung bekommt dabei die FINCH-Optik (F-OPS), dem optischen Messinstrument zur Bestimmung der Aerosoleigenschaften. Es soll gezeigt werden, dass der F-OPS sowohl als alleinstehendes Instrument zur Aerosolmessung benutzt

werden, aber auch in Kombination mit dem restlichen FINCH-System zuverlässig eingesetzt werden kann.

1.1 Motivation

Die Oberfläche unseres Planeten ist permanent zu etwa 2/3 von Wolken bedeckt. Jeder Niederschlag der auf die Erde fällt wird als Teil des globalen Wasserkreislaufes in den Wolken gebildet.

Die Entstehungsprozesse von Wolken und Niederschlag sind aus diesen Gründen von zentralem Interesse der Menschheit. In der modernen Wissenschaft sind viele Fragen gelöst, aber auch noch viele weitere Aspekte ungeklärt und unverstanden. Im Hintergrund des anthropogen beeinflussten Klimawandels wird der Atmosphärenforschung und damit auch dem Themenfeld Wolken und Niederschlag weitere Bedeutung zugeschrieben.

Allgemein anerkannt ist, dass Wolken ein Schlüsselement des globalen Strahlungshaushaltes sind [u. a. Lohmann et al., 2016]. Durch Reflexion kurzwelliger Sonnenstrahlung haben sie einen kühlenden Beitrag zum Strahlungsbudget, gleichzeitig aber auch einen erwärmenden Beitrag, da die von der Erdoberfläche emittierte langwelligere Strahlung an der Ausstrahlung in den Weltraum gehindert wird. Um eine Wolke in der Atmosphäre zu bilden sind Wolkenkondensationskeime (CCN von engl. „*cloud condensation nuclei*“) in ausreichender Anzahl notwendig. Jedes Tröpfchen einer Wolke bildet sich an einem Kondensationskeim. Keime, an welchem das Wachstum von Eis begünstigt wird, werden eisnukleierende Partikel (INP von engl. „*ice nucleating particle*“) oder kurz Eiskeime genannt, welche weiter für den Niederschlag eine wichtige Rolle spielen. Alle Keime entstammen dabei dem atmosphärischen Aerosol, was die Gesamtheit aller Aerosolpartikel in der Atmosphäre bezeichnet. Ein Aerosol ist dabei eine Dispersion aus festen oder flüssigen Schwebstoffen (den Aerosolpartikeln) und der Luft als Trägergas [Seinfeld und Pandis, 2006]. Eine Änderung in der Aerosol-Zusammensetzung (u. a. durch Änderung der Anzahl, Größe oder chemischen Zusammensetzung) könnte also auch eine Änderung der Wolkenbedeckung oder des Niederschlages nach sich ziehen.

Der IPCC („*Intergovernmental Panel on Climate Change*“) weist in seinen regelmäßigen Berichten zur Klimaänderung, auch den Strahlungsantrieb und die Unsicherheiten dessen Anteile auf (Abb. 1.1). Im letzten Bericht von 2013 wird das Vertrauensniveau des Anteils zum globalen Strahlungsantrieb durch „*Wolken-Anpassungen aufgrund von Aerosolen*“ als „gering“ eingestuft. Somit tragen Aerosole „weiterhin die größte Unsicherheit zu Schätzungen des gesamten Strahlungsantriebs“ [IPCC, 2014b]. Durch diese Einstufung werden die Wissenslücken

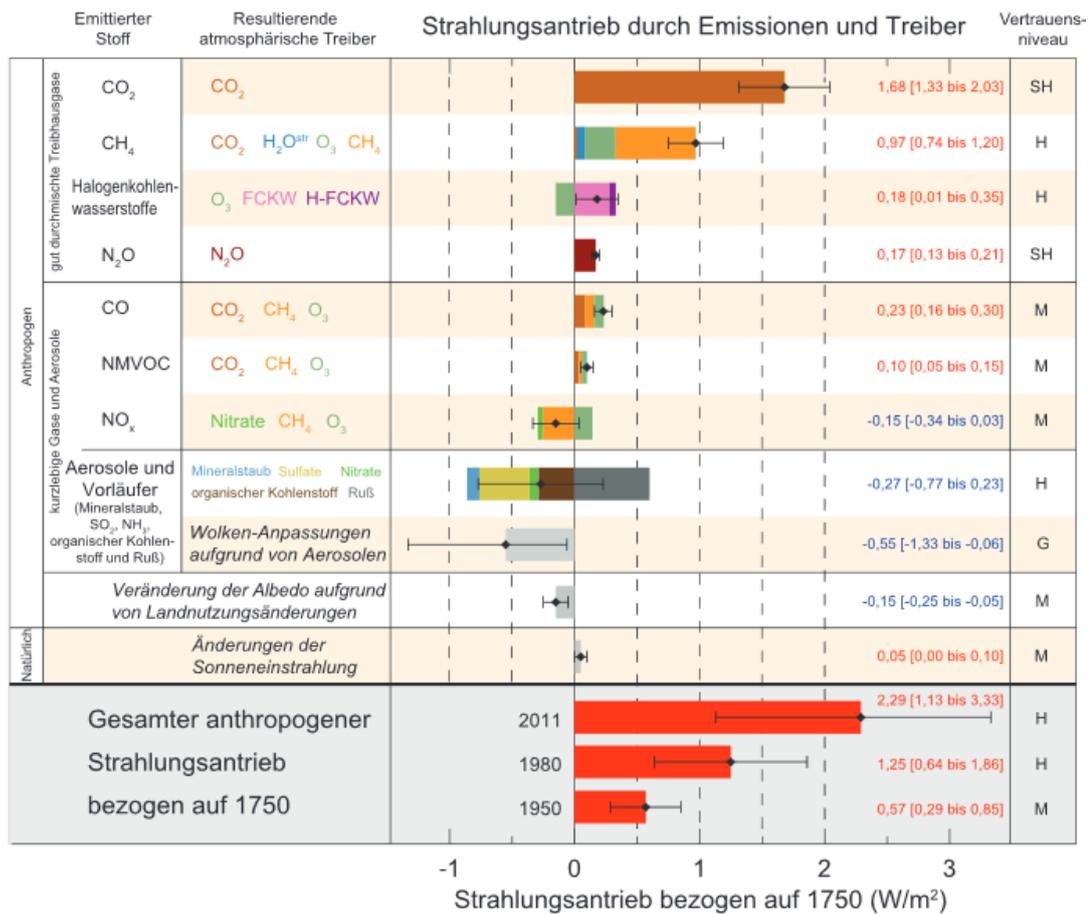


Abbildung 1.1: Schätzwerte des globalen Strahlungsantriebs für verschiedene Antriebsparameter im Jahr 2011 bezogen auf 1750, sowie dem jeweiligen Vertrauensniveau. Diese sind mit „sehr hoch“ (SH) bis „gering“ (G) bezeichnet. [IPCC, 2014a]

cken im Bereich der Aerosole deutlich. Gerade die Population der INP ist dabei eine noch unterrepräsentierte Spezies, welche weiterer Untersuchung benötigt.

Der Anzahl der Messungen von INP, wie auch die weltweite, geografische Verteilung solcher Messungen ist bisher unzureichend und lückenhaft (z. B. [DeMott et al., 2010]). Auch die Eigenschaften, welches ein solches Aerosolpartikel mitbringen muss, um effektiv als Eiskeim wirken zu können, sind noch nicht vollständig verstanden (u. a. [Kanji et al., 2008], [Kamphus et al., 2010] und [Hoose und Möhler, 2012]).

Dabei stellt die geringe Anzahl der INP im Verhältnis zu den restlichen Aerosolpartikeln ein Hindernis in den Messungen dar. INP werden je nach Methode im Bereich von weniger als einem INP pro Liter Probeluft bis hin zu Konzentrationen die 1000 INP pro Liter (in Staubschichten) überschreiten, gemessen [DeMott et al., 2003]. Im Vergleich dazu liegen die Anzahlkonzentrationen der gesamten Aerosolpartikel um mehrere Größenordnungen höher. Nach [Roedel, 2011] liegen die Konzentrationen von bodennahen Aerosolpartikeln in urbanen Ge-

bieten bei etwa $5000 - 50.000 \text{ cm}^{-3}$, in Landluft bei etwa $1000 - 10.000 \text{ cm}^{-3}$ sowie bei weniger als 1000 cm^{-3} in der freien Troposphäre.

1.1.1 Aktivierung von INP

Homogene Eisnukleation setzt in der Atmosphäre erst ab etwa -38°C ein. Ab dieser Temperatur frieren unterkühlte Wassertröpfchen auch ohne einen Gefrierkern durch. Bei wärmeren

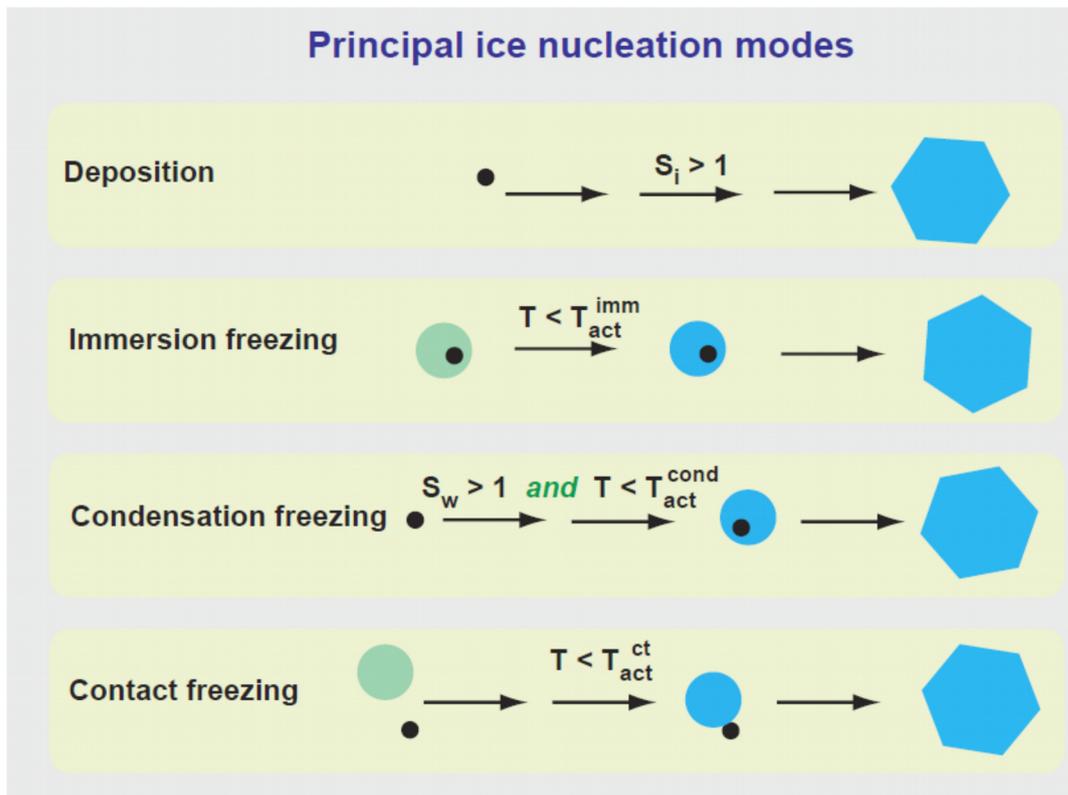


Abbildung 1.2: Die vier heterogenen Gefriermoden nach [Vali 2004].

Temperaturen, wie sie z. B. in Mischphasenwolken herrschen, wird demnach ein Eiskeim benötigt, um die Eisbildung zu initiieren.

In der allgemein anerkannten Terminologie spricht man von einem *eisnukleierenden Partikel*, wenn es sich um „*Material, Substanz, Objekt, [...] oder anderes*“ handelt, „*welches als Erreger für die beobachtete heterogene Eisbildung verantwortlich ist.*“ [Vali et al., 2015]. Damit wird betont, dass es nicht das Aerosolpartikel selber sein muss, dass die Nukleation auslöst. Beispielsweise können auch an Partikel angeheftete Substanzen (z. B. Proteine von Pilzen [O’Sullivan et al., 2016] oder strukturelle Eigenschaften (z. B. bevorzugtes Wachstum an Rissen [Kiselev et al., 2016]) die Eisbildung einleiten. In diesem Zusammenhang spricht man auch von engl. „*(active) site*“ für die bevorzugte Stelle der Eisnukleation [Vali et al., 2015]. Im deutschen Sprachraum ist weiterhin der Begriff Eiskeim für ein eisnukleierendes Partikel etabliert.

Eiskeime können auf unterschiedliche Arten das Gefrieren auslösen. Man unterscheidet hier in vier heterogene Nukleationsmoden (Abbildung 1.2):

Depositionsnukleation: Bei der Depositionsnukleation lagern sich Wassermoleküle aus der Gasphase direkt als Eiskristalle an einem INP an. Voraussetzung ist eine Temperatur unter 0 °C sowie eine Übersättigung des Wasserdampfpartialdruckes in Bezug auf die Eisoberfläche.

Immersionsgefrieren: Voraussetzung für das Immersionsgefrieren ist ein in einem flüssigen Tröpfchen eingeschlossener INP. Sinkt die Temperatur unter den Wert der Immersionsgefrieren auslöst ($T < T_{act}^{Imm}$) gefriert das Tröpfchen.

Kondensationsgefrieren: Beim Kondensationsgefrieren wirkt das INP zunächst als Wolkenkondensationskeim und bildet bei einem Sättigungsverhältnis von $S_w > 1$ ein Wassertröpfchen, welches bei $T < T_{act}^{cond}$ gefriert.

Kontaktgefrieren: Das Kontaktgefrieren stellt sich als spontanes Gefrieren von unterkühlten Wassertröpfchen bei Kontakt mit einem INP dar. Hier ist eine Temperatur von $T < T_{act}^{ct}$ Voraussetzung.

Immersions-, Kondensations- und Kontaktgefrieren werden auch als gefrierende Nukleation (engl. „freezing nucleation“) bezeichnet, da es in allen Fällen zu einer Eisnukleation inner-

halb eines unterkühlten Tröpfchen kommt [Vali et al., 2015].

Auf welche Weise die Eisnukleation eintritt, hängt von unterschiedlichen Faktoren ab. Neben den Eigenschaften des INP sind vor allem Temperatur und Feuchte ausschlaggebend für den Nukleationsprozess, durch welchen die Eisbildung beginnt. Abbildung 1.3 zeigt dazu die Bereiche der Eisnukleation in einem Diagramm von Sättigungsverhältnis und Temperatur. Aufgetragen sind auch die Regime, in welchen homogenen Eisbildung eintritt. Die untere gestrichelte Linie stellt dabei die Eissättigung dar,

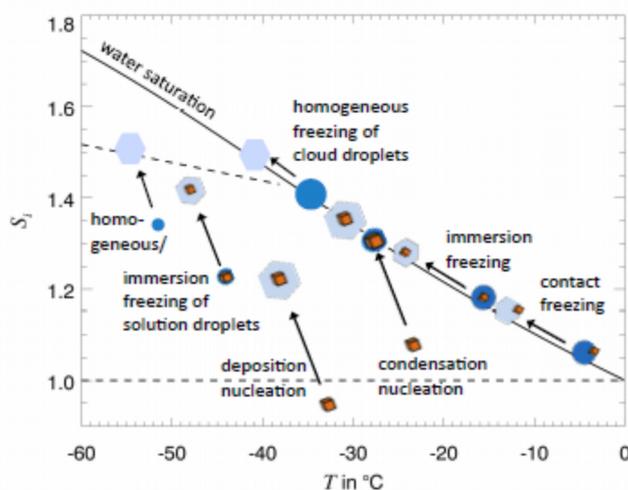


Abbildung 1.3: Die unterschiedlichen Nukleationsmoden in Abhängigkeit von Temperatur und Sättigung [Hoose und Möhler, 2012].

Die untere gestrichelte Linie stellt dabei die Eissättigung dar,

während die durchgezogene Linie die Wassersättigung zeigt. Der Bereich des homogenen Durchfrierens wird durch die obere, gestrichelte Linie dargestellt.

Die Unterscheidung zwischen einzelnen Moden, z. B. ob ein INP im Immersionsgefrieren oder Kontaktgefrieren aktiviert wurde, ist zu weilen sehr schwierig. Zu dem muss ein Eiskeim nicht in allen Moden gleich gut wirksam sein. In einer Veröffentlichung von Murray et al. wird zusammen gefasst, dass in Mischphasenwolken die Depositionsnukleation nur eine sekundäre Rolle spielt, da aus einigen Studien hervorgeht, dass flüssige Tröpfchen eine Voraussetzung für Eisbildung sind [Murray et al., 2012]. Für Lohman und Diehl ist Kontaktgefrieren bei leichter Unterkühlung der effizienteste Prozess, während bei niedrigeren Temperaturen Immersionsgefrieren vorherrschend ist [Lohman und Diehl, 2006].

1.1.2 Vorkommen von INP

Anzahlkonzentrationen von INP werden hauptsächlich durch die Quellregionen der Aerosole

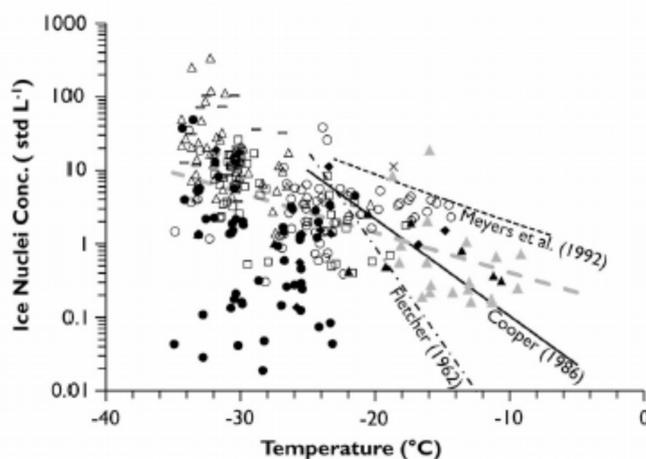


Abbildung 1.4: Variabilität der INP-Anzahlkonzentration abhängig von der Temperatur [DeMott et al., 2010].

und den weiteren atmosphärische Transport bestimmt [Pruppacher und Klett, 2004]. Bekannte Größenordnungen sind z. B. weniger als 10 INP pro Liter [DeMott et al., 2003a]. Dabei gilt dies wiederum für das Mittel der Troposphäre. Für Staubschichten sind auch Konzentration größer 1000 pro Liter zu erwarten [DeMott et al., 2003]. Auch Chou et al. fanden eine 10 bis 20-fach erhöhte Konzentration während die Messstation unter Ein-

fluss von Staubevents stand [Chou et al., 2011]. Dies bestätigt, dass eine kurzfristige, zeitliche Variation um mehrere Größenordnungen erfolgen kann [Cotton und Yutter, 2009].

Abbildung 1.4 zeigt die Anzahlkonzentrationen verschiedener INP-Messungen bei Wassersättigung. Auch hier variieren die Anzahlkonzentrationen über mehrere Größenordnungen.

Danielczok zeigt in Abbildung 1.5 die mittleren Monatskonzentrationen von INP im Depositionsmode in den Jahren 2008 bis 2014 an einer festen Messstation [Danielczok, 2015]. Die mittlere INP-Konzentration beträgt über den gesamten Zeitraum $0,11 \pm 0,31 \text{ L}^{-1}$. Für die Sommermonate ergibt sich allerdings eine etwa vierfach höhere Konzentration als in den Wintermonaten.

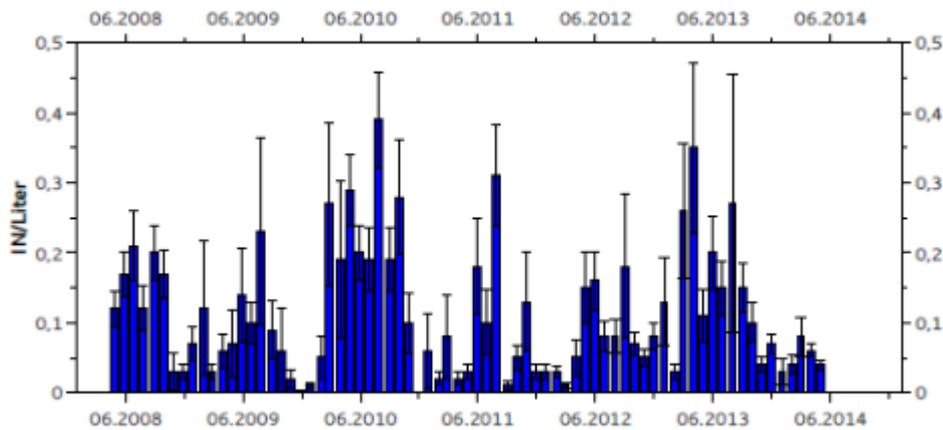


Abbildung 1.5: Monatsmittelwerte der INP-Konzentrationen gemessen am Taunus-Observatorium in den Jahren 2008 – 2014 [Danielczok, 2015].

Bereits seit Jahrzehnten wird versucht die Eiskeimkonzentration zu parametrisieren (z. B. nach [Fletcher et al., 1962] oder [Meyers et al., 1992], auch eingetragen in Abb. 1.4). Moderne Parametrisierung folgen [Tobo et al., 2013] und [DeMott et al., 2015], welche in Gleichung 1.1 wieder gegeben ist:

$$n_{\text{INP}}(T_k) = (cf) (n_{a>0,5\mu\text{m}})^{(\alpha(273,16-T_k)+\beta)} \exp(\gamma(273,16-T_k)+\delta) \quad 1.1$$

Dabei ist $cf = 1$ ein Korrekturfaktor für unterschiedliche Messgeräte. Die von DeMott et al. empirisch gewonnenen Parameter sind $\alpha = 0$, $\beta = 1,25$, $\gamma = 0,46$ und $\delta = -11,6$ [DeMott et al., 2015]. T_k ist die Wolkentemperatur in Kelvin und n_a die Anzahl der Aerosolpartikel mit einem Durchmesser $D_p > 0,5 \mu\text{m}$.

1.1.3 Eigenschaften von INP

Bereits in früheren Auflagen von Pruppacher und Klett werden Eigenschaften die ein INP besitzen muss beschrieben. So ist ein INP meist wasserunlöslich und Wasserdampfmoleküle können mit der Oberfläche des INP chemische Bindungen eingehen [Pruppacher und Klett, 2010]. Auch eine kristallographische Oberfläche ähnlich des Eises ist von Vorteil [Murray et al., 2012]. Auch Levin und Cotton bestätigen eine eisähnliche, meist hexagonale Struktur [Levin und Cotton, 2009].

Eine Untersuchung von Eisresiduen durch Kamphus et al. zeigt, dass es sich bei den Eisresiduen vor allem um Minerale handelt. So ergeben sich 57% der Eisresiduen aus den Klassen 1

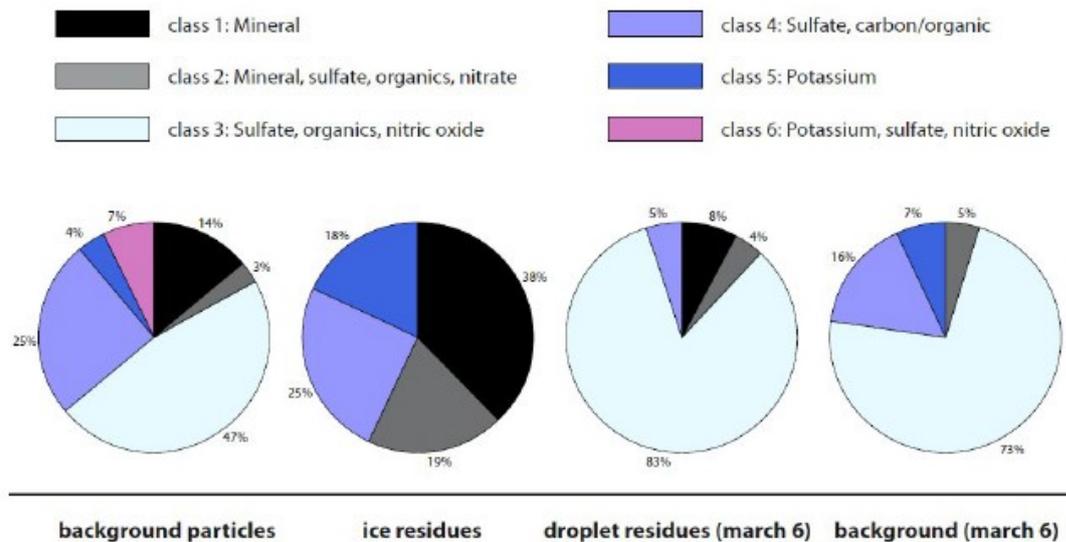


Abbildung 1.6: chemische Zusammensetzung verschiedener Aerosolklassen (u. a. Eisresiduen) [Kamphus et al., 2010]

und 2 (Abb. 1.6), was auch einen deutlichen Unterschied zum Hintergrundaerosol und den Residuen der Tropfen darstellt, bei welchen Klasse 3 (Sulfate, organische Stoffe, Stickoxide) den größten Anteil darstellt [Kamphus et al., 2010]. Bei Eisresiduen handelt es sich aber grundsätzlich um die Residuen von Eiskristallen aus einer Wolke, was nicht zwingend mit INP gleichzusetzen ist.

Mineralstaub wurde allerdings in zahlreichen weiteren Studien als guter Eiskeim identifiziert. Gerade aus den ariden Gebieten Afrikas und Asien gelangen viele Staubpartikel in die Atmosphäre, welche einen Großteil der INP ausmachen (z. B. [DeMott et al., 2003], [Pratt et al., 2009] und [Atkinson et al., 2013]). Mit Illit NX als Referenz für natürliche Wüstenstäube zeigen Hiranuma et al. allerdings, dass selbst Labormessungen mit einem Referenzstoff Abweichungen um mehrere Größenordnungen haben kann [Hiranuma et al., 2015].

Atkinson et al. fanden weiter, dass Feldspat einer der wichtigsten INP in der Atmosphäre ist [Atkinson et al., 2013]. Auch Yakobi-Hancock et al. kommen zu dem Schluss, dass Feldspat das am meisten eisaktive Mineral in der Studie ist [Yakobi-Hancock et al., 2013].

Neben den stofflichen Eigenschaften spielt auch die Größe der INP eine Rolle für die Fähigkeit Eisnukleation auszulösen. Je nach Quelle werden Größen von $D_p > 0,1 \mu\text{m}$ [Pruppacher und Klett, 2010] und $D_p > 0,5 \mu\text{m}$ [DeMott et al., 2010] angegeben. Weiter spielt die Oberflächenstruktur eine Rolle [Kiselev et al., 2016]. Risse, Stufen und andere lokale Phänomene können ebenfalls einen Einfluss haben (u. a. [Pruppacher und Klett, 2010], [Vali et al., 2015]).

Aufgrund eines inversen Kelvineffektes¹ ist es auch möglich, dass Wasser in Hohlräumen

¹ benannt nach William Thomson, 1. Baron Kelvin (1824 – 1907), britischer Physiker

oder Poren eines Partikels am Verdunsten gehindert wird, welches dann die Nukleation initiiert [Marcolli et al., 2014].

Durch Prozessierung in der Atmosphäre kann zudem die Eisaktivität von Staubpartikeln verändert werden [Niedermeier et al., 2010]. Auch bei Sullivan et al. kommt es zu einer Reduzierung der Eisaktivität durch eine Beschichtung mit Schwefelsäure [Sullivan et al., 2010].

Neben Mineralstaub können auch Partikel biogenen Ursprungs als Eiskeime aktiviert werden (u. a. [Möhler et al., 2007], [Pratt et al., 2009] und [Prenni et al., 2009]). Nach Henderson-Begg et al. können dies Pilzsporen, Bakterien oder Pflanzenmaterial sein [Henderson-Begg et al., 2009]. Messungen und Modellrechnungen zeigen, dass bei Temperaturen wärmer als -25°C in Wolken über dem Amazonas, die erste Eisbildung durch primäre biologische Partikel ausgelöst wird [Pöschl et al., 2010]. Auch Wasser welches mit Pollen in Berührung gekommen ist, zeigt die gleiche Eisaktivität wie die Pollen selber [Pummer et al., 2012]. Das INP muss nach dieser Studie ein einfach in Wasser zu lösendes Makromolekül (INM, engl. „ice nucleation active macromolecules“) sein, welches vorher auf den Pollen zu finden war. Nach Studien mit Birkenpollen-Waschwasser kann auch hier ein INM als effektiv eisaktiv identifiziert werden [Augustin et al., 2013].

1.1.4 Einfluss und Auswirkungen von INP

Eispartikel und damit auch INP sind vor allem in Mischphasenwolken für die Niederschlagsbildung relevant. Koaleszenz alleine braucht hohe Wasserdampfmenngen, um Regentropfen wachsen zu lassen. In den Wolken der mittleren Breiten ist dies nicht der Fall, so dass lediglich Nieselregen entstehen würde [Häckel, 2008]. Über den Wegener-Bergeron-Findeisen-Prozess² verdunsten flüssige Tröpfchen zugunsten der Eispartikel. Durch weitere Bereifung können diese eine Größe erreichen, um als Niederschlag auszufallen. Die Prozesse in einer Wolke werden in Abbildung 1.7 zusammengefasst. In der Abbildung ist eine konvektive Wolke mit unterschiedlichen Temperaturbereichen dargestellt, so dass die Prozesse für Warme-, Mischphasen- und Eiswolken gezeigt werden können.

Die Niederschlagsbildung durch die Eisphase ist dabei effektiver als die nur auf der flüssigen Phase basierenden Prozesse. In Wolken deren Oberseite aus Mischphase oder Eisphase bestehen entsteht der Niederschlag über die Eisphase (sog. kalter Regen). Warmer Regen entsteht demnach nur aus der flüssigen Phase.

Über den tropischen Ozeanen (außerhalb der ITCZ) ist warmer Regen die dominante Niederschlagsform. Hier finden sich auch die geringsten Anteile an Wolken mit Eisoberflächen

2 benannt n. Alfred Wegener (1880 - 1930), Tor Bergeron (1891 - 1977) und Walter Findeisen (1909 - 1945)

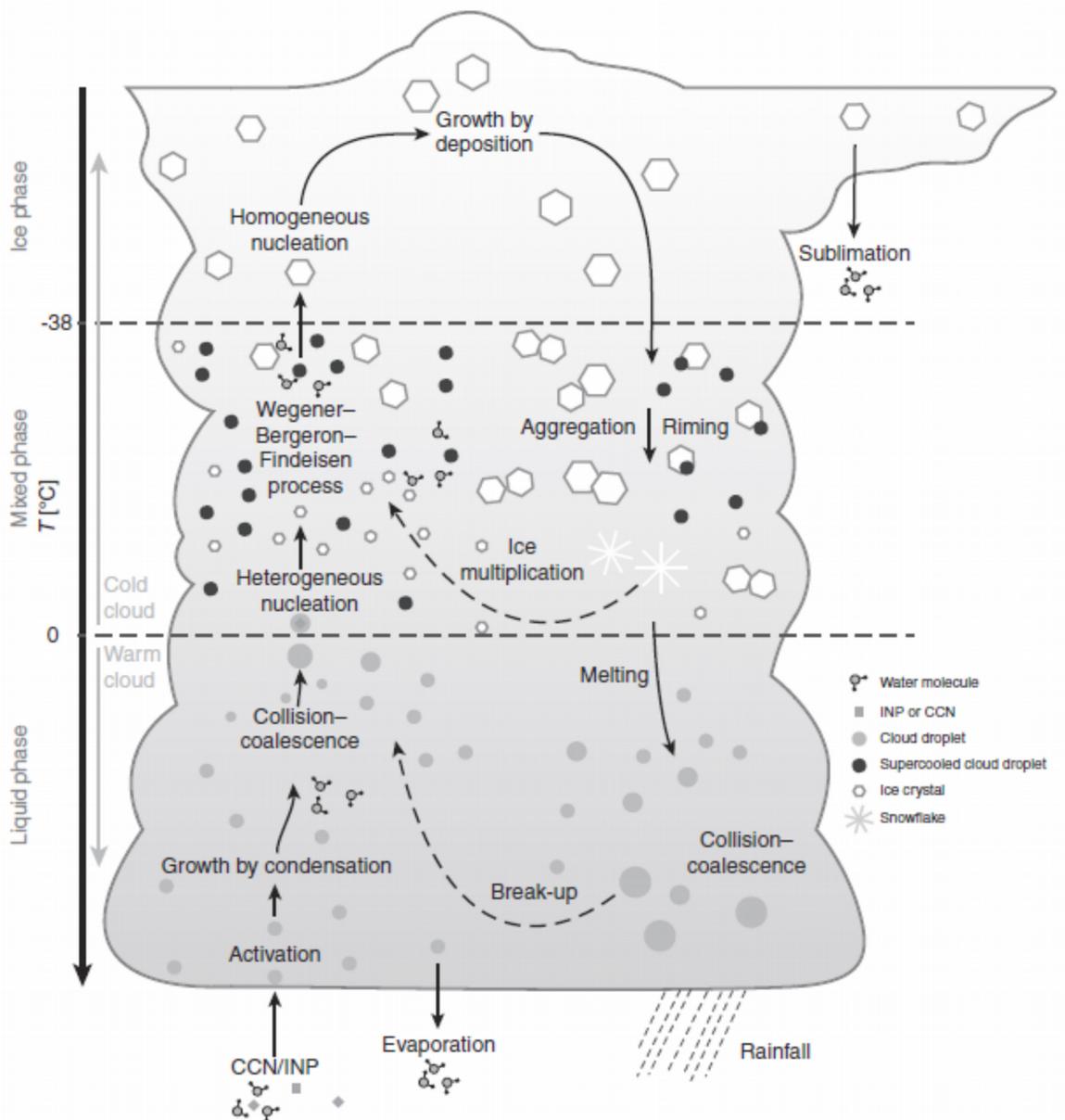


Abbildung 1.7: Zusammenfassung mikrophysikalischer Prozesse in einer konvektiven Wolke mit einer Wolkenbasistemperatur wärmer als 0 °C und einer Temperatur in der Wolken Spitze von kälter als -38 °C. [Lohmann et al., 2016]

(Abb. 1.8). Innerhalb der ITCZ und über den Kontinenten ist Regen über die Eisphase vorherrschend.

Warmer Regen spielt über den Kontinenten keine Rolle, so dass der Regen hier nur aus Eisphasen und Mischphasenwolken fällt. Der Anteil des Regens aus Mischphasenwolken nimmt dabei mit der geographischen Breite zu [Mülmenstädt et al., 2015].

Eine Veränderung z. B. in der INP-Anzahl kann also auch eine Änderung in den Wolken- und Niederschlagsverhältnissen mit sich bringen. Abbildung 1.9 zeigt dazu zwei Wolkengattungen: hohe Cirrus-Wolken und mittelhohe Regenwolken. Nach [DeMott et al., 2010] führen

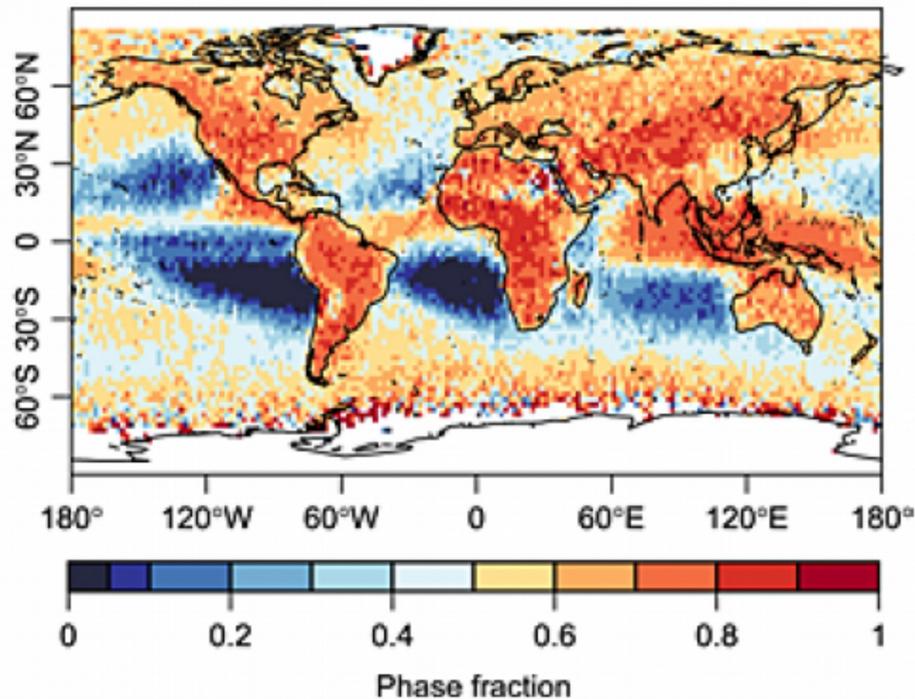


Abbildung 1.8: Anteil regnender Wolken mit Eisphase an der Wolkenoberseite in einem Mittel über die Jahre 2006-2011. [Mülmenstädt et al., 2015]

mehr INP zu mehr Eis und Niederschlag in einer Regenwolke aber gleichzeitig auch zu einer kürzer Lebenszeit dieser. Ein erhöhte Anzahl an INP im Cirrus-Regime führt zu weniger und

dafür größeren Eispartikeln in den Wolken. Nach Prenni et al. führt eine höhere Konzentration an INP zu optisch dünneren Wolken, was wiederum einen Einfluss auf den globalen Strahlungshaushalt hat [Prenni et al., 2007].

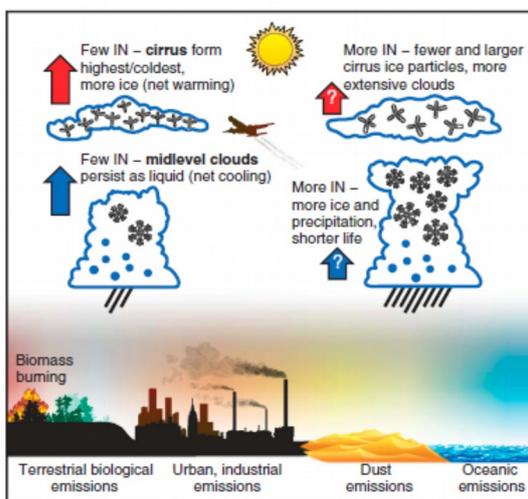


Abbildung 1.9: Schematisches Darstellung der Wirkung von INP verschiedener Quellen auf mittelhohe Regenwolken und Cirruswolken [DeMott et al., 2010].

1.2 Eiskeimzähler und -instrumente

Wie Eingangs kurz erläutert, ist die einzige, derzeit bekannte Möglichkeit ein Aerosolpartikel als Eiskeim zu klassifizieren diesen zu aktivieren. Der entstandene Eiskristall kann detektiert werden und aufgrund seiner Größe oder Polarisatoneigenschaft vom Hintergrundaerosol unterschieden werden. Dabei wird impliziert, dass jedem Eiskristall auch ein Eiskeim zugeordnet werden kann. Für Methoden, welche auf Immer-

...

sionsgefrieren basieren, werden gefrorene Tröpfchen ebenfalls durch optische Eigenschaften von flüssigen Tröpfchen unterschieden. Auch hier gilt, dass mind. ein Eiskeim in einem Tröpfchen vorhanden sein muss.

Messgeräte, mit denen die Anzahlkonzentrationen von Eiskeimen ermittelt werden können,

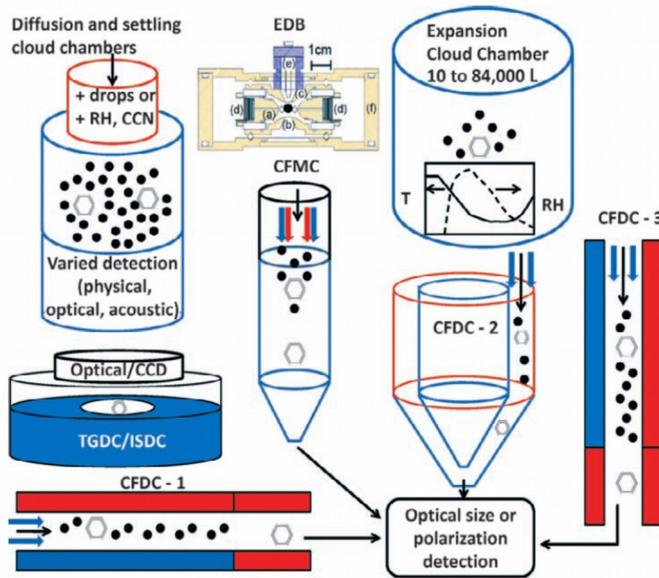


Abbildung 1.10: Verschiedene Typen von Eiskeimzählern und -instrumenten. Flüssigwassertröpfchen sind als schwarze Punkte und Eiskristalle als hexagonale Plättchen dargestellt. Luftströme sind als Pfeile gekennzeichnet, wobei rot wärmere und blaue kältere Bereiche abbildet. [DeMott et al., 2011]

werden Eiskeimzähler genannt, wobei auch hier essentielle Unterschiede in Geräteaufbau und Funktionsweisen bestehen. Grundsätzlich können in-situ-Messgeräte von Probenahmen unterschieden werden. Bei in-situ-Messgeräten kann Aktivierung und Auswertung bereits an Ort und Stelle durchgeführt werden. Probenahmen von Aerosolproben auf Filtern oder anderen Oberflächen werden i. d. R. in einem Laborexperiment aktiviert und ausgewertet. Mit allen Gerätetypen wird dabei versucht die Aktivierung der INP unter möglichst genau spezifi-

zierten Verhältnissen zu erreichen.

Der weit verbreitetste und bestverstandene Typ von in-situ-Eiskeiminstrumenten ist die „Continuous Flow Diffusion Chamber (CFDC)“ (in Abbildung 1.10 in unterschiedlichen Bauformen zu sehen). Diese Art der Diffusionskammern ist seit Jahrzehnten im Einsatz und aus diesem Grund gut verstanden. Die CFDC nach Rogers et al. besteht beispielsweise aus zwei unterschiedlich gekühlten, konzentrischen Zylindern (Bauart CFDC-2 Abb. 1.10), welche durch Flutung mit Wasser mit einer dünnen Eisschicht bedeckt werden [Rogers et al., 1988]. Durch die unterschiedliche Kühlung der Zylinder bildet sich im Inneren der Kammer ein Temperaturgradient aus. Wasserdampf diffundiert vom wärmeren zum kälteren Zylinder, so dass sich ein übersättigter Bereich im Zwischenraum bildet, in welchem Aerosolpartikel aktiviert werden können. Die Bauformen von CFDC-1 und CFDC-3 folgen diesem Prinzip der Aktivierung. Es werden lediglich plan-parallele Platten anstelle der konzentrischen Zylinder genutzt. Des Weiteren variiert die Orientierung der Platten. Horizontal orientierte Platten werden z. B.

von Kanji und Abbatt benutzt, während vertikal orientierte Platten z. B. bei Stetzer et al. benutzt werden ([Kanji und Abbatt, 2009] und [Stetzer et al., 2008]).

Der derzeit einzige, kommerzielle Eiskeimzähler SPIN (engl. „*spectrometer for ice nuclei*“) von Droplet Measurement Technologies Inc. ist ebenfalls eine CFDC(-3) mit plan-parallelen Platten in vertikaler Anordnung [Garimella et al., 2016]. Die Grundlagen dieses Gerätes beruhen auf ZINC (engl. „*Zurich ice nucleation chamber*“) [Stetzer et al., 2008] und der portablen Version PINC (engl. „*portable ice nucleation chamber*“) [Chou et al., 2011], welche an der Eidgenössische Technische Hochschule in Zürich entwickelt wurde.

Neben den Methoden mit einer Wachstumskammer können INP auch mit Kamera- und Mikroskopmethoden untersucht werden. Beispielsweise können in Wasser gelöste INP tröpfchenweise auf Oberflächen aufgebracht werden, welche gekühlt werden können und die INP so im Immersionsmode aktivieren. Die Änderung der Reflektivität oder der Lichtdurchlässigkeit weisen auf durchfrierende Tröpfchen hin (z. B. nach [Murray et al., 2010]).

Im Depositionsmode können INP auf einem Probenträger in Diffusionskammern aktiviert werden, wie es u. a. bei FRIDGE (engl. „*Frankfurt Ice nuclei Deposition Freezing Experiment*“) der Fall ist [Schrod et al., 2016]. Die Aerosolproben werden dabei auf Siliziumwafer gesammelt und in einer Vakuumdiffusionskammer aktiviert. Eine Detektierung erfolgt hierbei durch eine CCD-Kamera sowie einer automatisierte Software zum Zählen der Resultate. Im weiteren ist es möglich die Probenträger zusätzlich im Elektronenmikroskop zu untersuchen.

Eine weitere Methode um Eiskeimstudien zu betreiben sind klassische Wolken-Expansionskammern, welche erste Experimente schon in den 1940er Jahren zuließen [DeMott et al., 2011]. Auch können mit Windtunnel [Diehl et al., 2014] oder EDB (engl. „*electrodynamic balance*“) [Hoffmann et al., 2013] für geladene Tropfen Studien über Eisnukleation durchgeführt werden. In diesen Fällen wird das Frieren ebenfalls durch eine CCD-Kamera detektiert.

Viele der eingesetzten Techniken zeigen selbst bei Parallelmessungen eines Referenzstoffes deutliche Unterschiede in Anzahlkonzentration der aktivierten INP (u. a. [Hiranuma et al., 2015]). Da derzeit lediglich ein Gerät kommerziell erhältlich ist, welches Anzahlkonzentrationen von INP ermitteln kann und die Anschaffung des Gerätes mit erheblichen Kosten verbunden ist, ist die Anschaffung eines solchen Gerätes nicht immer möglich. Zudem bringt Spin ebenfalls einige Messunsicherheiten mit [Garimella et al., 2016]. Einige Universitäten und Forschungseinrichtungen entwickelten deshalb eigene Messinstrumente und Methoden, um ihren Beitrag zum besseren Verständnis über INP zu leisten.

So auch die Johann Wolfgang Goethe-Universität in Frankfurt am Main, an welcher u. a. der Eiskeimzähler FINCH entwickelt wurde. Mit FINCH soll es möglich sein, Anzahlkonzentrationen von Eiskeimen in-situ zu messen. Allerdings zeigte sich, dass reproduzierbare Messungen schwer oder gar nicht möglich waren. Durch Fehlzählungen, Probleme in der Datenaufnahme und Verarbeitung war es nicht möglich gezielte Messphasen nachzuvollziehen. Weiter waren eine Vielzahl von technischer Hürden die Ursache dafür, dass das komplette System in Frage gestellt wurde. Um diese Problemen zu beheben wurde im Rahmen dieser Arbeit grundlegende Änderungen im Aufbau von FINCH und der Optik durchgeführt sowie die elektrische Signalverarbeitung und die Auswertesoftware ersetzt.

In dieser Arbeit wird anschließend an diese Einführung in einer detaillierten Methodenbeschreibung das Messgerät und die gemachten Änderungen erläutert. Kapitel 3 und 4 befassen sich mit den Ergebnissen der ersten Messungen und Charakterisierungen des neuen Systems, während in Kapitel 5 erste Anwendungen von FINCH und F-OPS in Labor und Feldexperiment präsentiert werden.

2 Methoden

Die beiden zentralen Geräteteile des Eiskeimzählers FINCH sind die Wachstumskammer und die FINCH-Optik als optisches Messgerät. In diesem Kapitel wird im Rahmen einer ausführlichen Methodenbeschreibung auf den Aufbau, die Funktionsweise und die im Zuge dieser Arbeit vorgenommenen Änderungen an der Wachstumskammer und an Optik eingegangen. Weiter folgt am Ende des Kapitels eine Beschreibung der genutzten Versuchsaufbauten.

Grundlage für eine Aktivierung der Aerosolpartikel in der Wachstumskammer ist die Mischung von Luftflüssen unterschiedlicher Sättigung und Temperatur. Auch dieses soll im weiteren näher behandelt werden.

Die bisherige Beschreibung von FINCH ist in [Bundke, 2008] nachzulesen.

2.1 Aufbau FINCH

FINCH ist in einem HALO-Rack für Flugzeugmessungen aufgebaut (Abb. 2.1). Die zentrale Wachstumskammer besteht aus einem konisch zulaufendem Edelstahlrohr mit einer Länge

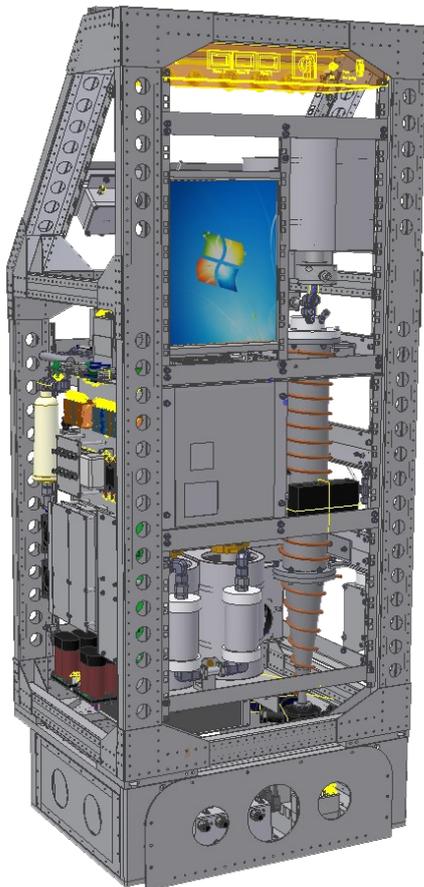


Abbildung 2.1: Konstruktionszeichnung des Eiskeimzählers FINCH im HALO-Rack.

von 80 cm und einem Innendurchmesser von 8,5 cm. Zur Kühlung der Kammer wurde Kupferrohr spiralförmig an die Außenwand der Kammer gelötet, durch welches Ethanol (oder Siliconöl für den Betrieb im Flugzeug) als Kühlmittel fließt. Als Kühler kommt eine in Reihe geschaltete Batterie aus sechs Stirlingkühlern (SC-TD08 80W Stirling Cooler der Firma Twinbird) zum Einsatz, welche über Aluminium-Wärmetauscher das Kühlmittel und somit die Kammer abkühlen.

Ebenfalls im Rack verbaut sind zwei weitere, identische Stirlingkühler, welche für die Kühlung der Luftströme benutzt werden. Kammer und Wärmetauscher sowie Zu- und Ableitungen sind mit AEROFLEX-Dämmmaterial gedämmt.

Die Datenerfassung und Steuerung des Gerätes erfolgt über ein NI cRIO 9014 der Firma National Instruments, welcher über Ethernet mit einem ebenfalls im Rack verbauten PC verbunden ist.

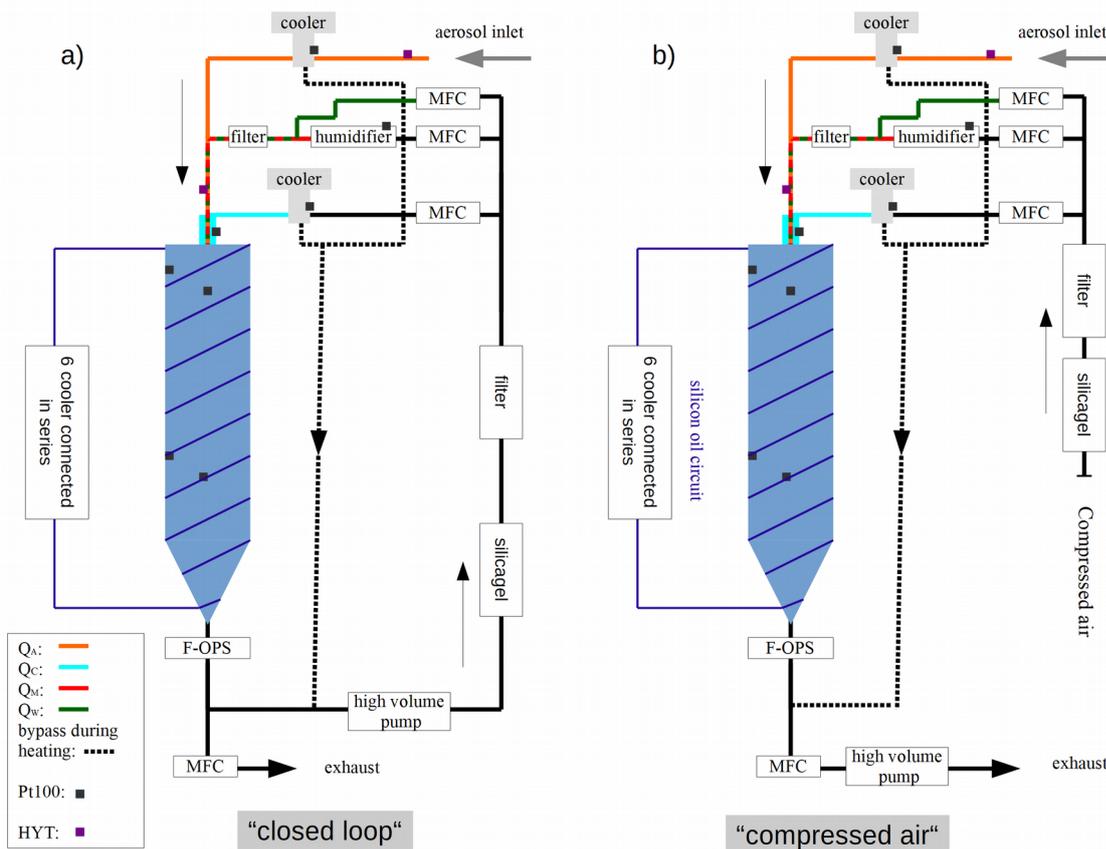


Abbildung 2.2: Schematischer Aufbau von FINCH mit Anordnung der Sensorik und Flussläufen im "closed loop"- (a) und Druckluftbetrieb (b).

Die Steuerung der Luftströme wird über eine Pumpe der Firma Vaccubrand und Massendurchflussregler (engl.: „Mass-Flow-Controller“ (MFC)) der Firma Bronkhorst gewährleistet.

Abbildung 2.2 zeigt den schematischen Aufbau von FINCH. Die Luftströme können mit zwei Varianten betrieben werden: Die vier für die Mischung notwendigen Luftströme, Aerosolprobenfluss (Q_A), kalter Fluss (Q_C), feuchter Fluss (Q_M) und warmer Fluss (Q_W) können entweder über ein „closed loop“-System (Abb. 2.2a) oder mittels einer externen Druckluftleitung (Abb. 2.2b) erzeugt werden.

Im „closed loop“-System wird durch die Pumpe ein Kreislauf aufrecht erhalten, in welchem die Flüsse Q_C , Q_M und Q_W geregelt durch die MFC nach einem Kammerdurchgang getrocknet und gefiltert werden und dann wieder dem System zu Verfügung stehen. Ein weiterer MFC wird dazu benutzt, einen gewählten Fluss aus dem System heraus zu lassen. Durch das Prinzip der Massenerhaltung lässt sich somit ein Aerosolprobenfluss am Einlass erzeugen.

Im Druckluftbetrieb werden die MFCs von Q_C , Q_M und Q_W mit einer externen Druckluftquelle betrieben. In Flussrichtung hinter Kammer und FINCH-Optik wird ein weiterer MFC einge-

setzt, welcher mit der Summe aus den Flüssen Q_C , Q_M und Q_W und dem gewünschten Aerosolprobenfluss angesteuert wird. Auf diese Weise wird der gesamten Fluss über die Pumpe abgesaugt.

Im Betrieb bieten beide Varianten Vor- und Nachteile. Es hat sich gezeigt, dass gerade für längere Regelphasen oder bei einer Kopplung mit nachgeschalteten Geräten (z. B. einem Impaktor genauer einem CVI (engl.: „*counterflow virtual impactor*“)), die Versorgung mit externer Druckluft stabiler läuft. Weiter lässt sich die Druckluft z. B. in einem Laborexperiment effektiver trocknen, da ein zusätzlicher Trockner vor das Gerät gebaut werden kann. Der Betrieb in einem „closed loop“ bietet sich vor allem aus Gründen des Platzmangels an oder bei Feldmessungen bei denen keine Druckluftversorgung zur Verfügung steht. Im Rahmen dieser Arbeit wurde FINCH ausschließlich mit Druckluft betrieben.

Der Strömungsverlauf aller Flüsse vor dem Einlass der Wachstumskammer ist bei beiden Varianten gleich.

Der Aerosolprobenfluss (in der Abbildung 2.2 orange dargestellt) ist über einen Aluminium-Wärmetauscher mit einem Kühler verbunden, wodurch dieser bereits vorgekühlt werden kann. Dieser Wärmetauscher ist direkt über ein T-Stück mit der Kammer verbunden, womit von Einlass-Wärmetauscher bis zur Kammer nur ca. 10 cm Abstand sind. Der Wärmetauscher (sog. Kühlkopf) für den Aerosolprobenfluss ist mit in Flussrichtung gefrästen Kühlrippen versehen (Abbildung 2.3a), um Partikelverluste beim Durchgang durch den Wärmetauscher zu verringern.

Der partikelfreie kalte Fluss Q_C wird wie Q_A durch eine Kombination aus Wärmetauscher und Kühler gekühlt. Hierbei wird jedoch eine Anordnung aus rechteckigen Kühlelementen genutzt, um die Oberfläche und dadurch die Kühlleistung zu maximieren (Abb. 2.3b).

Der Vollständigkeit halber ist auf Abbildung 2.3 auch die Bauform der Wärmetauscher für die Kammerkühlung gezeigt (c). Hier wird die Kühlflüssigkeit in einer gewundenen Kammer durch den Wärmetauscher geleitet, wobei alle Kühler bzw. Wärmetauscher hintereinander in Reihe geschaltet sind.

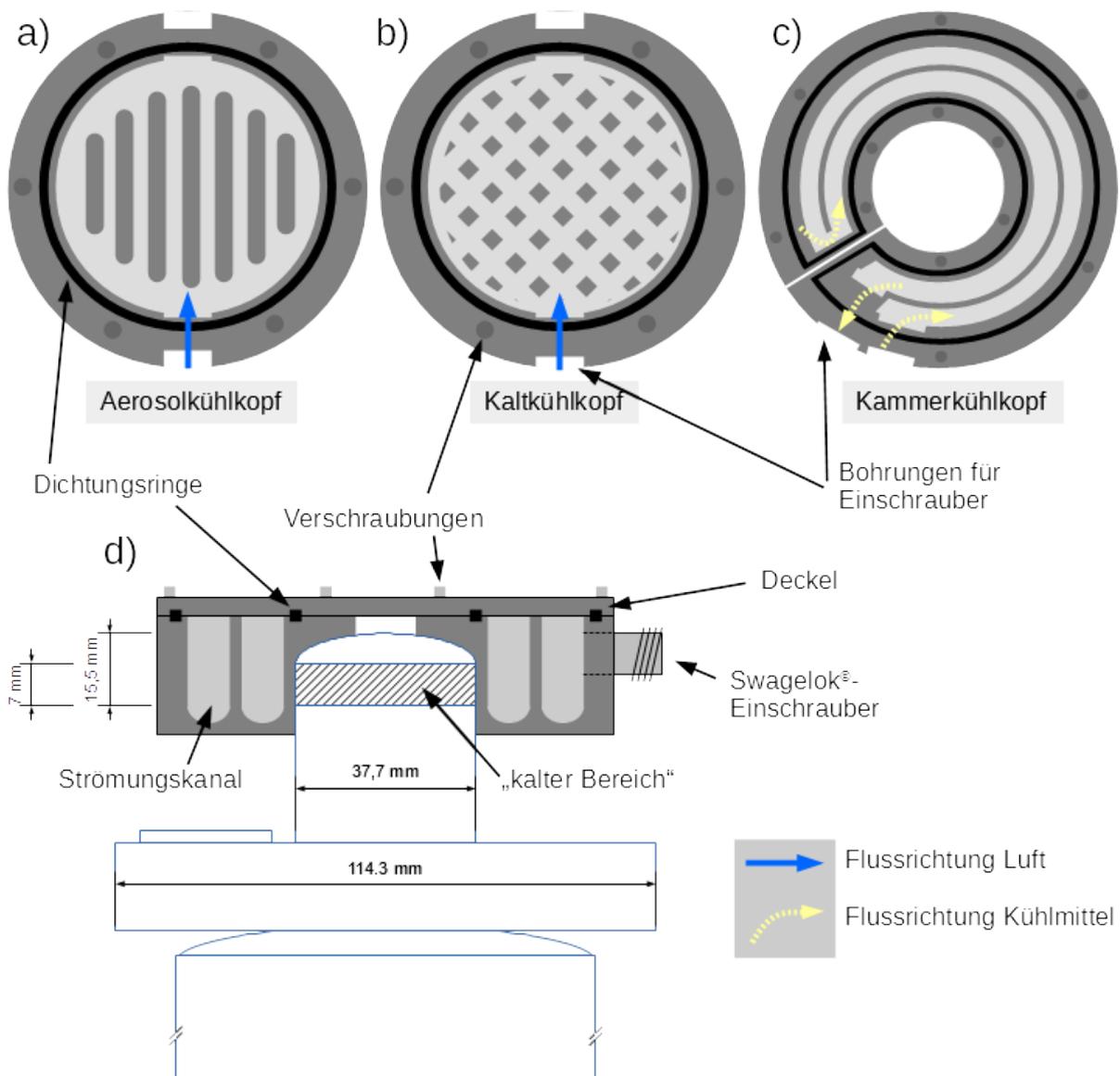


Abbildung 2.3: Bauformen der Wärmetauscher für den Aerosolfluss (a), kalten Fluss (b) und für das Kühlmittel zur Kammerkühlung (c). Die gelben Pfeile deuten die Flussrichtung des Kühlmittels an, blaue Pfeile den Luftstrom. Bild (d) zeigt beispielhaft die Verbindung zwischen Kühlkopf und Stirling-Kühler. Teilweise nach [Twinbird, 2012].

Alle Wärmetauscher wurden so gefertigt, dass sie über den etwa 7 mm breiten „kalten Bereich“ der Stirling-Kühler geschoben werden können (Abb. 2.3d). Die Kühler für Q_A und Q_C wurden mit dem Wärmetauscher nach unten in das Rack verbaut.

Die Verrohrung bis zum Einlass des Aerosol-Wärmetauschers, sowie die Zuleitungen von Q_A und Q_C bestehen aus 6mm-Edelstahlrohr und Swagelok-Verschraubungen.

Q_M und Q_W werden durch eine gemeinsame Zuleitung zum Aerosolfluss geleitet, wobei beide antiproportional zueinander angesteuert werden. So ist beispielsweise der feuchte Fluss maximal, wenn der warme Fluss aus ist. Die Summe beider Flüsse wird stets auf einem konstanten Wert geregelt.

Baulicher Unterschied zwischen dem warmen und dem feuchten Fluss ist ein Wasserbad, gefüllt mit destilliertem Wasser (im Schaubild 2.2 engl. „*humidifier*“ genannt), durch welchen Q_M geführt und befeuchtet wird. In der Abbildung 2.2 kann man diesen Strömungsverlauf des gemeinsamen Flusses in grün-roter Markierung sehen. Es folgt noch ein Partikelfilter um Verunreinigungen aus dem Wasserbad oder der Verrohrung auszuschließen. Zusätzlich wurden zudem Rückschlagventile vor den MFCs eingebaut.

Vor dem Einlass in die Wachstumskammer, der ebenfalls über ein T-Stück erfolgt, wird der Fluss aus Q_M und Q_W mit dem Aerosolprobenfluss zusammen gebracht. Im Folgenden bekommt dieser nun aus drei Komponenten bestehende Fluss die Bezeichnung Q_{AWM} .

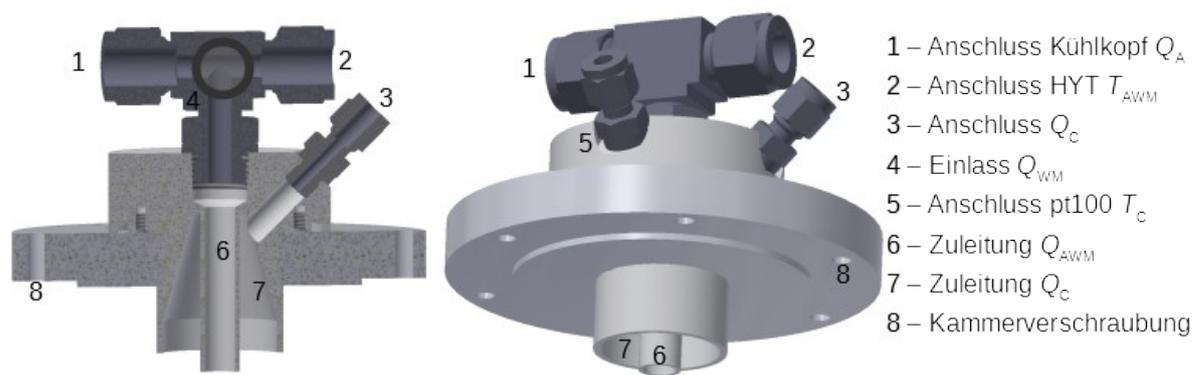


Abbildung 2.4: Technische Zeichnung des Kammerdeckels mit Einlässen für Q_{AWM} und Q_C . Gezeigt ist ein Querschnitt sowie eine Seitenansicht mit Beschriftungen der wichtigsten Elemente. Der Anschluss für Q_{WM} würde an der markierten Stelle aus der Bildebene herausragen.

Der Deckel zur Kammer und auch die Einlassöffnungen für Q_{AWM} und Q_C sind aus Polyoxymethylen (POM) gefertigt, wodurch u. a. die Flüsse voneinander thermisch getrennt werden sollen. In der Mitte des runden Deckels wird Q_{AWM} eingeleitet (Abb. 2.4). Hinzu kommt der etwas seitlich versetzte Anschluss für den kalten Fluss, welcher durch eine weitere POM-Röhre zunächst vom Q_{AWM} getrennt ist. Die Mischung beider Flüsse beginnt 5 cm unter dem Deckelrand, wo die mechanische Trennung der Flüsse endet.

In Abbildung 2.5 ist die Lage der Sensorik im System skizziert. Zur Temperaturbestimmung sind jeweils zwei Pt100-Sensoren an der Kammer-Außenwand ($T_{upper\ wall}$ und $T_{lower\ wall}$) und zentral im Luftstrom in der Kammer ($T_{upper\ chamber}$ und $T_{lower\ chamber}$) angebracht. Weitere Pt100-Sensoren befinden sich an den Wärmetauschern der oberen Kühler ($T_{CD\ cold}$ und $T_{CD\ aerosol}$) sowie im Fluss der „kalten“ Luft ($T_{cold\ flow}$). Zwei digitale HYGROCHIP® HYT-Sensoren, verbaut in der Einlassleitung (T_A und rH_A) sowie direkt vor der Kammer (T_{AWM} und rH_{AWM}), geben Temperatur und relative Luftfeuchtigkeit an.

Über einen piezoresistiven Drucktransmitter der Serie 21 MC von Keller (Abb 2.5x) wird der Kammerdruck und der in Flussrichtung vor den MFCs herrschende Druck (Abb 2.5y) ermittelt. Ein in der Einlassleitung verbauter Honeywell Differenzdrucksensor liefert einen Wert

proportional zur Flussgeschwindigkeit im Rohr (Abb 2.5z).

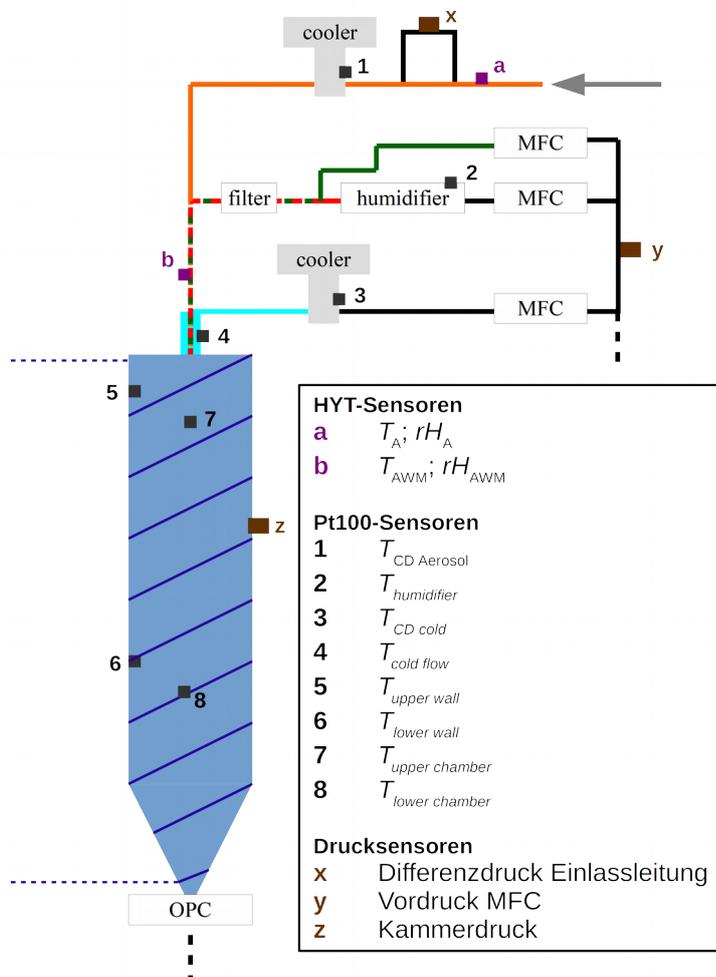


Abbildung 2.5: Aufbau von FINCH nach Abb. 2.2 mit besonderer Erläuterung der verbauten Sensorik.

Der aktuelle Aufbau von FINCH enthält u. a. folgende Abweichungen zum Aufbau beschrieben in [Bunde et al., 2008]:

Im Zuge des Umbaues für Flugzeugmessungen wurde die Kammer von ehemals 115 cm auf 80 cm verkürzt, die Flüsse verringert sowie die Kühlung mit einem Kompressor durch die Stirling-Kühler ersetzt. Im ursprünglichen Design wurde weiter ein Fluss weniger (es fehlte der Q_w) eingesetzt, welcher aber zur Aufrechterhaltung der Temperatur notwendig ist. Außerdem wurde noch ein Sheath-flow in der Kammer benutzt, auf welchen aktuell verzichtet wird.

Auch der festintegrierte „Virtual

Impactor“, um große Partikel zu separieren, ist nicht mehr im aktuellen Design vorgesehen. Die Sensorik wurde komplett überarbeitet und anstelle der benutzten Taupunktspiegel werden nun digitale Feuchtesensoren benutzt.

Um die Kühlung der Kammerwand im oberen und unteren Bereich einheitlich zu halten, kann die Durchflussmenge des Kühlmittels über Ventile verändert werden. Auch dieses war im ursprünglichen FINCH-Aufbau noch nicht vorgesehen.

2.2 Mischprinzip

In der FINCH-Kammer werden Luftströme definiert miteinander gemischt, um so eine gewünschte Zieltemperatur und eine Zielsättigung in der Kammer zu erhalten. Auf diese Weise können zwei (oder mehrere) vorher ungesättigte Luftströme bei Mischung eine (Über-)Sättigung erreichen. Die benötigten Temperaturen sowie die Feuchte werden in FINCH dabei gezielt über PID-Regler (von engl. „*proportional–integral–derivative controller*“) angesteuert. Die Abbildung 2.6 zeigt die Kurven des Sättigungsdampfdrucks über einer Eis- und Wasseroberfläche und zwei exemplarische Mischungsbeispiele, wobei die blaue Linie die Mischung von zwei (eis-)gesättigten Luftpaketen und die grüne Linie die Mischung eines gesättigten und eines ungesättigten Luftpaketes widerspiegelt.

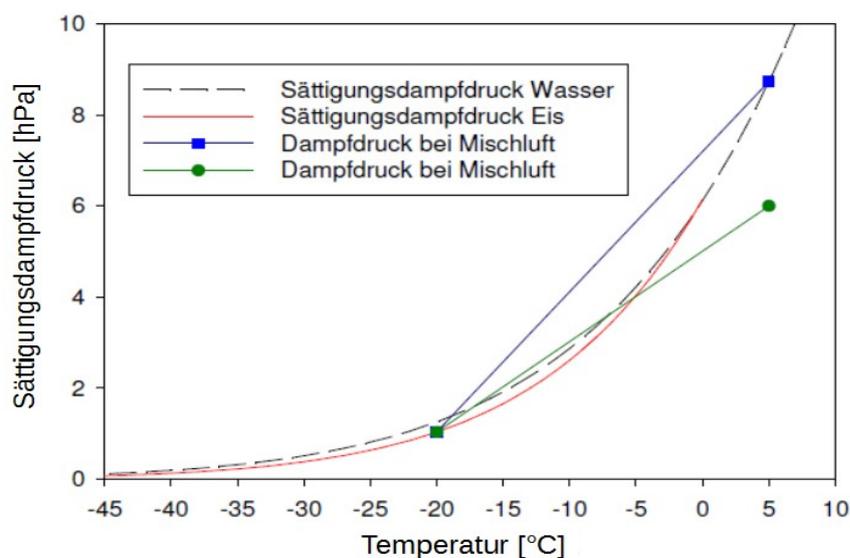


Abbildung 2.6: Kurven des Sättigungsdampfdruckes über der Eis- und Wasseroberfläche. Dargestellt ist weiter der Mischungsdampfdruck für zwei Beispiele. Mit leichten Änderungen nach [Nillius, 2008].

In diesem Beispiel ist es so möglich durch die Mischung einer ungesättigten Luftmasse bei 5 °C und einer eisgesättigten Luftmasse von -20 °C (grüne Endpunkte) entlang der grünen Linie Bereiche der Eis- aber auch Wasserübersättigung zu erreichen. Allgemein gesagt, lässt sich entlang dieser Mischungslinien der aktuelle Dampfdruck entnehmen, welcher lediglich vom Mischungsverhältnis der beiden ursprünglichen Luftströme abhängig ist.

Genauso wie für die Mischung von zwei Luftmassen, lässt sich auch die Mischung von mehreren Luftströmen bestimmen. Die Mischungstemperatur (T_{Mix}) und der Dampfdruck (p_{Mix}) einer Mischung von unterschiedlichen Flussraten Q_i sind durch folgende Gleichungen beschrieben [Stöcker, 2010]:

$$T_{\text{Mix}} = \frac{\sum_{i=1}^n Q_i \cdot T_i}{\sum_{i=1}^n Q_i} \quad \text{und} \quad p_{\text{Mix}} = \frac{\sum_{i=1}^n Q_i \cdot p_i}{\sum_{i=1}^n Q_i} \quad 2.1$$

wobei:

Q_i	Flussrate [L min^{-1}],
T_i	Temperatur [K] und
p_i	Dampfdruck [hPa] der jeweiligen Flüsse sind.

Durch gezielte Wahl der Flussraten, Temperaturen und Dampfdrücke ist es demnach möglich in FINCH unterschiedliche Übersättigungsbereiche und Temperaturen anzusteuern.

Aus den Werten des Wasserdampfdruckes p_{Mix} und dem Sättigungsdampfdruck p_s bei der zugehörigen Temperatur T_{Mix} lässt sich das Sättigungsverhältnis der Mischung ermitteln:

$$S_{\text{Mix}} = \frac{p_{\text{Mix}}}{p_s(T_{\text{Mix}})} \quad 2.2$$

Um den Sättigungsdampfdruck p_s zu berechnen wird die Goff-Gratch-Gleichung³ in ihren Formen für die Sättigung über der Wasser (p_{s_w})- und Eisoberfläche (p_{s_eis}) benutzt (siehe Gleichung II.4 und II.5 im Anhang II). Alle in dieser Arbeit benutzten Sättigungsverhältnisse beziehen sich immer auf die Eisoberfläche.

Der Flussverlauf in FINCH setzt sich aus vier Komponenten zusammen (vgl. Kapitel 2.1). Diese sind:

Q_A	Aerosolprobenfluss [L min^{-1}],
Q_C	kalter Fluss [L min^{-1}],
Q_M	feuchter Fluss [L min^{-1}] und
Q_W	warmer Fluss [L min^{-1}].

³ benannt nach J. A. Goff und S. Gratch, welche eine erste Variante der Gleichung 1942 auf dem „52nd annual meeting of the American Society of Heating and Ventilating Engineers“ in New York präsentierten.

Da Q_A , Q_W und Q_M bereits gemischt über eine gemeinsame Leitung in die Kammer geleitet werden, wird im Regelfall die Mischung in der Kammer über Q_{AWM} und Q_C herbeigeführt. Es ist allerdings möglich über einen rechnerischen, weiteren Ansatz auch eine Mischung aller vier Komponenten durchzuführen. Im folgenden sind beide Fälle besprochen.

2.2.1 Mischung der Flüsse Q_{AWM} und Q_C

Im Falle der Mischung der Flüsse Q_{AWM} und Q_C reduzieren sich die Gleichungen 2.1 auf folgende Form:

$$T_{\text{Mix}} = \frac{Q_{AWM} \cdot T_{AWM} + Q_C \cdot T_C}{Q_{AWM} + Q_C} \quad \text{und} \quad p_{\text{Mix}} = \frac{Q_{AWM} \cdot p_{AWM} + Q_C \cdot p_C}{Q_{AWM} + Q_C} \quad 2.3$$

Im Messablauf werden die Flüsse Q_i , die Zieltemperatur T_{Mix} , die Zielsättigung S_{Mix} , und die Temperatur des Q_{AWM} (T_{AWM}) vorgegeben. Das heißt, dass der Kühler für Q_A so lange kühlt, bis die Zieltemperatur T_{AWM} erreicht ist, was über den HYT-Sensor überprüft wird. Im Regelprozess wird diese Temperatur gehalten.

Durch Umstellen der Gleichung 2.3 für T_{Mix} lässt sich weiter ein Wert für $T_{\text{cold flow}}$ ermitteln:

$$T_{\text{cold flow}} = \frac{(Q_{AWM} + Q_C) \cdot T_{\text{Mix}} - Q_A \cdot T_A}{Q_C} \quad . \quad 2.4$$

Die Kühlung des kalten Flusses wird so geregelt, dass $T_{\text{cold flow}}$ (gemessen durch einen Pt100-Sensor) erreicht und gehalten wird. Wenn beide Flüsse (Q_{AWM} und Q_C) die Zieltemperaturen erreicht haben, kann auch die Zieltemperatur T_{Mix} in der Kammer oben erreicht werden.

Die Zielfeuchtigkeit S_{Mix} wird nun über Gleichung 2.2 berechnet, wobei eine vorherige Umrechnung in den Wasserdampfpartialdruck erfolgt (siehe Anhang II). Der Wert für p_{AWM} wird ebenfalls aus dem HYT-Sensor (über rH_{AWM}) geliefert. Im Gegensatz dazu wird p_C über eine Annahme bestimmt, wozu die Feuchtigkeit des kalten Flusses regelmäßig mit einem Taupunktspiegel (MBW dewpoint mirror 373) überprüft wird. Die Variation der Sättigung erfolgt (bei konstanter Temperatur) durch Ändern des feuchten Flusses (Q_M), welcher direkten Einfluss auf den HYT-Sensor des AWM-Flusses hat.

Zusammengefasst ergeben sich die Anfangsbedingungen, Annahmen und Rechnungen für die Mischung der beiden Flüsse wie in Tabelle 2.1 gezeigt.

Tabelle 2.1: Überblick über die Soll- und Ist-Werte einer Mischung aus dem Q_{AWM} und Q_C zum Erreichen der Zieltemperatur und Zielfeuchte.

Variable	Q_{AWM}	Q_C	$Q_{AWM} + Q_C$
T_i	Soll: Anfangsbedingung Ist: HYT-Sensor (b) wird über T_{AWM} geregelt	Soll: Gleichung 2.4 Ist: pt100-Sensor (4) wird geregelt	
p_i	Soll: - Ist: HYT-Sensor (b) wird über Q_M geregelt	Soll: - Ist: Annahme*	
Q_i	Soll: Anfangsbedingung Ist: MFC	Soll: Anfangsbedingung Ist: MFC	
T_{Mix}			Soll: Anfangsbedingung Ist: pt100-Sensor Regelung über Kombination der Variablen
S_{Mix}			Soll: Anfangsbedingung Ist: Gleichung 2.2 Regelung über Kombination der Variablen

* Überprüfung durch externen Taupunktspiegel.
Die Nummerierung der Sensoren folgt Abb. 2.5.

Zum besseren Verständnis soll an dieser Stelle eine Beispielrechnung die Mischungsrechnung in der Kammer erläutern. Die Zieltemperatur soll $T_{Mix} = -15 \text{ °C}$ betragen und das gewünschte Sättigungsverhältnis $S_{Mix} = 1,1$ über der Eisoberfläche. Als Anfangsbedingungen werden $T_{AWM} = 0 \text{ °C}$ und die Flüsse $Q_{AWM} = 3 \text{ L min}^{-1}$ (Q_{AWM} setzt sich wie bereits erwähnt aus $Q_A = 2 \text{ L min}^{-1}$ und $Q_W + Q_M = 1 \text{ L min}^{-1}$ zusammen) und $Q_C = 4 \text{ L min}^{-1}$ festgelegt. Durch Gleichung 2.3 ergibt sich für $T_{cold flow}$ ein Wert von $-26,25 \text{ °C}$, welcher nun vom System angesteuert wird. Um das Sättigungsverhältnis anzusteuern fehlt noch die Restfeuchte des Q_C , welche mit dem Taupunktspiegel bestimmt werden kann (vgl. dazu Kapitel 4.4). Die AWM-Feuchte wird im System gemessen und dient als Prozessvariable für die Regelung des feuchten Flusses. Das Sättigungsverhältnis S_{Mix} bezieht sich auf die errechnete Ist-Mischtemperatur T_{Mix} . Es gilt demnach:

$$S_{Mix} = S_{Mix}(T_{Mix}) \quad . \quad 2.5$$

Allerdings können Unsicherheiten in der Temperaturmessung der Flüsse den Wert von T_{Mix} beeinflussen. Aus diesem Grund kann wahlweise auch die gemessene Temperatur in der Kam-

mer als Referenz für den Sättigungsdampfdruck gewählt werden. Dabei werden folgende Variablen für das Sättigungsverhältnis definiert:

$$S_{\text{upper}} = S_{\text{upper}}(T_{\text{upper chamber}}) = \frac{P_{\text{Mix}}}{p_s(T_{\text{upper chamber}})} \quad 2.6$$

und

$$S_{\text{lower}} = S_{\text{lower}}(T_{\text{lower chamber}}) = \frac{P_{\text{Mix}}}{p_s(T_{\text{lower chamber}})} \quad 2.7$$

Die engl. Begriffe folgen dabei der Position des jeweiligen Pt100-Sensors in der Kammer, nämlich im oberen („upper chamber“) bzw. unteren („lower chamber“) Bereich der Kammer (vgl. Abb.2.5).

2.2.2 Mischung aller vier Flüsse

Ein weiterer Betriebsmodus von FINCH lässt eine Berechnung der Zielsättigung und Zieltemperatur über alle vier Flüsse zu. Da Temperatur und Feuchte nicht von allen Flüssen gemessen werden können, müssen in diesem Fall weitere Annahmen getroffen werden, um das Mi-

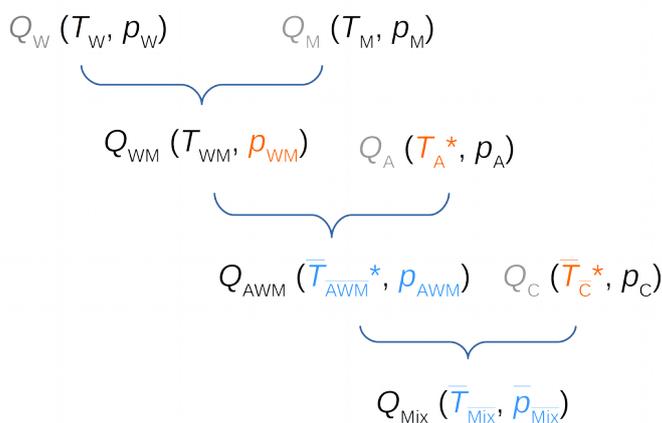


Abbildung 2.7: Schematische Mischung aller vier Flüsse. Die grau markierten Flüsse lassen sich einstellen, während schwarz dargestellte Flüsse bereits aufsummiert sind. orangefarbene Variablen können im System geregelt werden, hellblaue basieren hingegen auf dem vorherigen Mischungsschritt. Die überstrichenen Variablen stellen die Zielwerte dar. Für Variablen, die mit Stern gekennzeichnet sind, können Korrekturen angegeben werden.

schungsverhalten in der Kammer zu simulieren.

Rechnerisch verändert sich der Ablauf nur minimal. Grundlage hierfür ist auch die Mischgleichung nach 2.1, wobei diese in drei Schritten zum Einsatz kommt. Die Aufteilung in drei Schritte ermöglicht das Einbringen von Temperaturkorrekturen um ggf. den Einfluss der Kammerwand auf die Flusstemperatur zu berücksichtigen. Abbildung 2.7 vereinfacht die drei Mischvorgänge und die resultierenden Flüsse. Auch hierbei werden zunächst die Zielwerte festgelegt

(T_{AWM} , S_{Mix} über p_{Mix} und $T_{cold\ flow}$ (dieser wird auf der Abbildung der mit T_C bezeichnet)) und die Flüsse gewählt (Abb. 2.7 grau markiert).

Die Mischung wird in drei Stufen durchgeführt:

1. Aus Q_W und Q_M wird ein Mischfluss mit zugehöriger Feuchte und Temperatur über Gleichung 2.1 errechnet.
2. Der Q_{WM} wird im nächsten Schritt mit dem Aerosolprobenfluss zum Q_{AWM} gemischt. Auch diese Rechnung lässt sich über Gleichung 2.1 für Temperatur und Feuchte nachvollziehen. Der Dampfdruck p_{WM} lässt sich durch Ändern des Mengenverhältnisses zwischen Q_M und Q_W und die Temperatur T_A durch einen Kühler regeln.
3. Q_{AWM} und Q_C (vgl. Kapitel 2.2.1) werden gemischt. Die Variablen T_{AWM} und p_{MIX} werden indirekt durch den vorherigen Schritt beeinflusst, während $T_{cold\ flow}$ auch direkt durch einen Kühler geregelt werden kann. Für die Variablen T_A , $T_{cold\ flow}$ und T_{AWM} sind zudem Temperaturkorrekturen möglich.

Tabelle 2.2 gibt einen Überblick über die Anfangsbedingungen bei einer Mischungsrechnung mit allen vier Flüssen im System.

Tabelle 2.2: Überblick über die Soll- und Ist-Werte einer Mischung aus den vier einzelnen Flüssen zum Erreichen der Zieltemperatur und Zielfeuchte.

Variable	Q_A	Q_C	Q_M	Q_W
T_i	Soll: - Ist: Annahme oder HYT-Sensor (a) mit Korrektur*	Soll: Gleichung 2.3 Ist: Annahme oder Pt100-Sensor (4)	Soll: - Ist: Annahme oder Pt100-Sensor (2)	Soll: - Ist: Annahme oder Pt100-Sensor (2)
p_i	Soll: - Ist: Annahme	Soll: - Ist: Annahme	Soll: - Ist: Annahme	Soll: - Ist: Annahme
Q_i	Soll: Anfangsbedingung Ist: MFC	Soll: Anfangsbedingung Ist: MFC	Soll: Anfangsbedingung Ist: MFC	Soll: Anfangsbedingung Ist: MFC

* Der HYT-Sensor ist vor dem Kühler verbaut, so dass die Abkühlung und evtl. Änderung der Feuchte berücksichtigt werden muss.
Die Nummerierung der Sensoren folgt Abb. 2.5.

Für die Mischung aus vier Flüssen ist es einerseits möglich eine Berechnung aufgrund von Messwerten zu machen. Andererseits kann die Berechnung der Mischung auch rein auf Annahmen basieren, um evtl. Abweichungen der Sensorik vom realen Wert auszugleichen. Dies wird nötig, da aus Platzgründen nicht überall Sensoren verbaut werden konnten, wo sie ge-

braucht werden. Außerdem kann es zu Fehleinschätzungen (z. B. durch ungenügende Lage im Fluss) der Sensoren kommen, welche so korrigiert werden können.

Für das Sättigungsverhältnis lassen sich durch die oben getroffenen Aussagen einer rein auf Annahmen basierenden Messung folgende Variablen definieren:

$$S_{u\text{theo}} = S_{u\text{theo}}(T_{\text{upper}}) = \frac{P_{\text{Mixtheo}}}{p_s(T_{\text{upper}})} \quad 2.8$$

und

$$S_{l\text{theo}} = S_{l\text{theo}}(T_{\text{lower}}) = \frac{P_{\text{Mixtheo}}}{p_s(T_{\text{lower}})} \quad , \quad 2.9$$

wobei diese sich wieder auf die Kammertemperaturen für den Sättigungsdampfdruck beziehen.

Eine Kombination der Methoden ist auch möglich. So ist möglich anstelle der Annahmen auch die Sensoren teils oder komplett eingehen zu lassen. Ein Beispiel wäre dabei der Betrieb mit zwei Flüssen aber einer festen Annahme des Wasserdampfpartialdruckes von Q_M .

Für beide Mischvarianten gilt außerdem, dass die Wandtemperatur der Kammer gleich der Zieltemperatur gesetzt wird. Dies soll ermöglichen, dass die Flüsse im Mischbereich mit der Kammer im thermodynamischen Gleichgewicht sind und es nicht zu (signifikantem) Einfluss der Wand auf die Luftströme kommt.

2.3 Software FINCH

Die Steuerungssoftware für FINCH wurde im Rahmen dieser Arbeit neu geschrieben. Dazu kam das grafische Programmiersystem LabVIEW der Firma „National Instruments“ zum Einsatz, welches eine schnelle und einfache Integration der Hardware zulässt. Eine grundlegende Änderung der vorherigen Software wurde nötig, da u. a. eine Wechselwirkung zwischen der Regelung der FINCH-Kammer und dem Auslesen der FINCH-Optik nicht auszuschließen war. Die Aerosolpartikelkonzentration beeinflusste beispielsweise die Reaktionszeit der Regelsoftware von FINCH und die Verarbeitungszeit der Partikelsignale, wodurch es u. a. zu Inkonsistenzen im Zählvorgang kam.

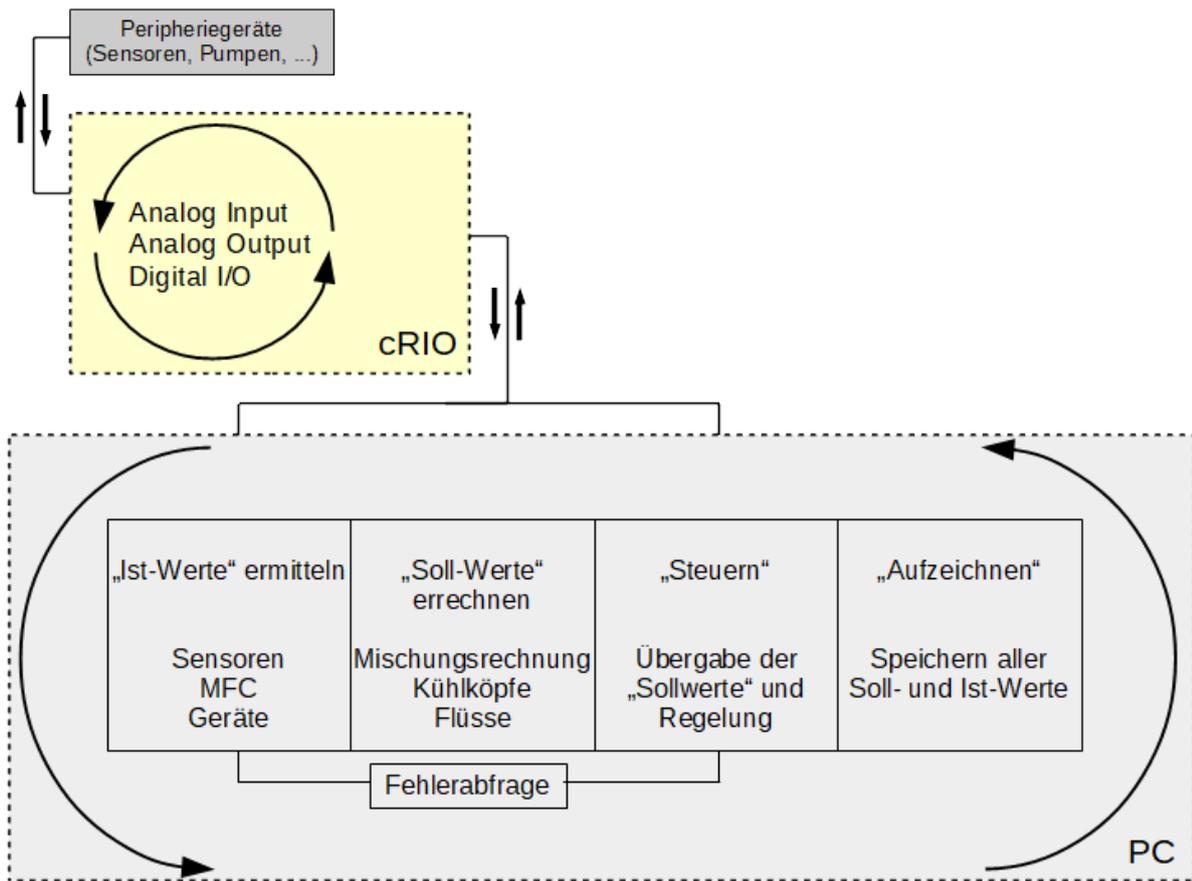


Abbildung 2.8: Schematischer Ablauf der Softwaresteuerung von FINCH.

Aus diesem Grund wurde die gesamte Optik logisch und technisch ausgelagert (s. Kap. 2.7) und wird nun auf einer separaten Hardware betrieben. Die bereits zuvor genutzte Hardware aus cRIO 9014 und PC (s. Kap. 2.1) wird nun mit einer neuen Software ausschließlich zur Steuerung der FINCH-Kammer betrieben.

Das Ansteuern und Auslesen der Peripheriegeräte und Sensoren erfolgt (teilweise über Relais) über mehrere Analog-Input und -Output Steckmodule im cRIO. Für das Auslesen der digitalen Sensoren ist weiter ein digitales Input/Output-Modul verbaut. Die Kommunikation zwischen PC (mit dem Hauptprogramm) und dem cRIO erfolgt via Ethernet.

Das Hauptprogramm lässt sich wie in Abbildung 2.8 zu sehen, in vier nacheinander ablaufende Prozesse aufteilen. Am Anfang steht das Auslesen der aktuellen Sensorwerte (und ein Umrechnen in gängige Einheiten). Außerdem werden die aktuellen Zustände von Mass-Flow-Controllern, Pumpen und Ventilen ermittelt.

Aus diesen „Ist-Zuständen“ lassen sich im folgenden Schritt mittels der vorgegebenen Zielwerte die „Soll-Werte“ errechnen. Festgelegte und vordefinierte Werte sind die Flüsse (Q_A , Q_C , sowie die Summe aus Q_M und Q_W), der Wert der Mischtemperatur T_{AWM} aus den Flüssen

Q_A , Q_M und Q_W , die Zielsättigung (S_{Mix}) und die Zieltemperatur (T_{Mix}). Zielsättigung und Zieltemperatur sind dabei festgelegte Größen der Mischungsrechnung, welcher an dieser Stelle durchgeführt wird. Aus selbiger Rechnung wird auch ein Wert für die Temperatur des kalten Flusses ($T_{\text{cold flow}}$) ermittelt (vgl. Kap. 2.2).

Die Sollwerte von T_{AWM} und $T_{\text{cold flow}}$ werden in LabVIEW-eigenen Regler-Bausteinen (PID-Regler) angesteuert, wobei als Prozessvariablen die „Ist-Werte“ von T_{AWM} und $T_{\text{cold flow}}$ benutzt werden. Die Regelgrößen werden direkt an ein Analog-Output-Modul im cRIO gesendet, welche so die Kühler mehr oder weniger stark kühlen, bis die Sollwerte erreicht sind. Selbiges wird für den Sollwert der Kammerwand ($T_{\text{upper wall}}$ bzw. $T_{\text{lower wall}}$) gemacht, wobei die Zieltemperatur T_{Mix} auch für die Wand übernommen wird und die Kühler für die Kühlflüssigkeit damit angesteuert werden.

Ein viertes Regelmodul wird für die Zielsättigung benötigt. Die Prozessvariable berechnet sich hier direkt aus einer Ist-Mischungsrechnung zum aktuellen Zeitpunkt der gewünschten Zielsättigung (S_{Mix} oder eine der auf die Kammertemperatur bezogene Größe (z. B. S_{upper}). Als Regelgröße bleibt der feuchte Fluss Q_M , welcher so direkt angesteuert wird.

Im Ablaufschema der Software werden nach den Mischungsrechnungen die aktuellen Steuerwerte (auch aus den Regelprozessen) an den cRIO übertragen. Ein Vergleich der Soll- und Istwerte u. a. von Drucksensoren und Mass-Flow-Controllern liefert eine einfache Fehleranalyse und Informationen über den Vereisungszustand von Einlass und Kammer.

Abschließend werden alle relevanten Daten in wiederkehrender Abfolge von 5 Sekunden in einer ASCII-Datei abgespeichert. Eine genaue Übersicht über alle gespeicherten Werte lässt sich im Anhang I einsehen.

2.4 Betriebsablauf FINCH

Zum besseren Verständnis der Abläufe in FINCH sowie der Vor- und Nachbereitungen eines Experimentes soll in diesem Kapitel der reguläre Betriebsablauf einer Messung mit FINCH erläutert werden.

Zu Beginn einer Messung mit FINCH muss festgestellt werden, dass es nicht zu Leckagen oder Verunreinigungen (durch Ablagerungen o. ä.) der Probeluft gekommen ist. Dies geschieht auf zwei Arten: zum einen durch eine Nullfiltermessung im Messbetrieb und zum anderen durch einen Drucktest. Der Drucktest ist insbesondere bei Änderungen im System durchzuführen. Dies wäre u. a. nach Austausch eines Sensors, Nachfüllen des Befeuchters oder Anbringen der Optik.

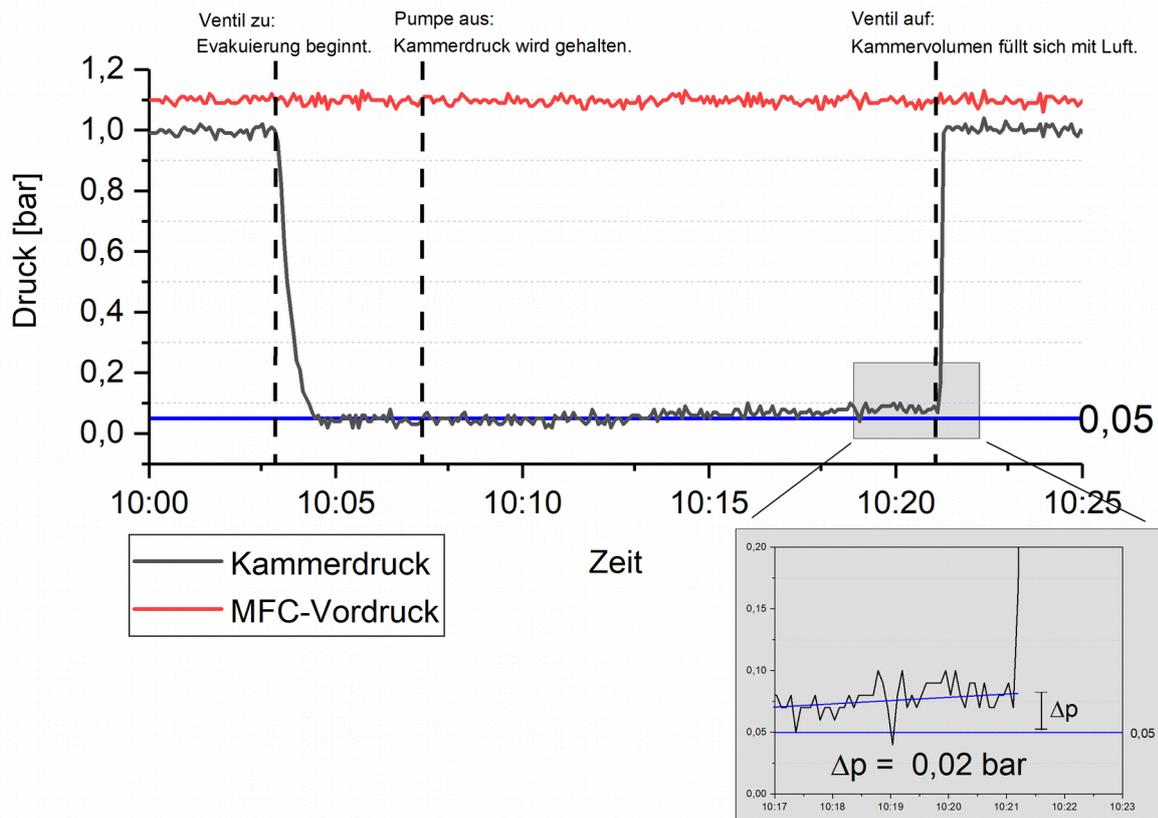


Abbildung 2.9: Evakuieren der Wachstumskammer zur Überprüfung der Dichtigkeit. Dargestellt ist der Kammerdruck (schwarze Linie) sowie als Referenz der MFC-Vordruck in rot. Wichtige Zeitpunkte sind gestrichelt markiert.

Um den Drucktest durchzuführen, wird der Einlass zur Kammer verschlossen sowie die Druckluftzufuhr (im Druckluftbetrieb) abgedreht. Weiter wird die Durchflussmenge des Q_A -MFC maximiert und die Pumpe angestellt.

Abbildung 2.9 zeigt diesen Vorgang als Zeitreihe. Die Kammer evakuiert bis auf einen Wert von etwa 0,05 bar, welcher zugleich die Nachweisgrenze des benutzten Sensors darstellt. Erste, größere Leckagen zeigen sich bereits in diesem Arbeitsschritt, da ansonsten dieser Wert nicht erreicht wird. Nach dem die Kammer evakuiert wurde, wird die Pumpe ausgeschaltet und mindestens 10 Minuten gewartet. Der Druck in der Kammer sollte in dieser Zeit um weniger als 0,05 bar angestiegen sein, wie in Abbildung 2.9 gezeigt. Die Druckänderung in der Kammer beträgt nach 15 Minuten lediglich $\Delta p = 0,02 \text{ bar}$.

Durch den bereits erwähnten Nullfiltertest können Leckage und Verunreinigungen ebenfalls ausgeschlossen werden. Es ist erforderlich dies auch im weiteren Messbetrieb regelmäßig zu überprüfen, da es im Laufe der Messung zu Ablagerungen oder temperaturbedingten Undichtigkeiten kommen kann (vgl. Kap. 4.3).

Können mit Drucktest und Nullfiltertest die Dichtheit der Kammer bestätigt werden, kann der Kühlvorgang gestartet werden. Dazu werden die Zielwerte eingestellt und die Kammer sowie Q_A und Q_C auf die gewünschte Temperatur gekühlt.

Nach Erreichen der Zieltemperatur (je nach Regelfall T_{mix} oder T_{upper}) wird der feuchte Fluss und damit die Sättigungsregelung gestartet. Dadurch wird verhindert, dass bereits im Kühlvorgang zusätzliche Feuchtigkeit in das System geleitet wird, da die Messdauer im wesentlichen durch ein „Einfrieren“ der Wärmetauscher begrenzt wird. Des Weiteren wird kein explizites Fluten der Kammer durchgeführt, wie es bei CFDCs der Fall ist.

Während der Messung ist es möglich längere Zeiten bei konstanter Sättigung und Temperatur zu messen oder diese zu variieren.

Eine Messung ist zeitlich beschränkt, da sich Wasserdampf in den Wärmetauschern niederschlägt, festfriert und diese langsam verschließt. Durch die Fehlerabfrage in der Software werden Änderungen in Fluss, Kammerdruck oder Differenzdruck in der Einlassleitung detektiert, so dass auf ein Einfrieren schnell reagiert werden kann. Mit den in den Wärmetauschern angebrachten Heizpatronen werden in diesem Fall die Wärmetauscher auf 45 °C geheizt und zusätzlich mit trockener, gefilterter Luft durchgespült, um die Feuchtigkeit aus dem System zu entfernen. Sind die Sensoren wieder auf die Normalwerte zurück gefallen, wird mindestens eine weitere halbe Stunde die Temperatur gehalten und weiter mit partikelfreier, trockener Luft gespült, um auch andere Ablagerungen zu entfernen. Gleichzeitig wird die Kammerkühlung ausgestellt und diese somit auf Raumtemperatur gebracht.

Mit dem Aufheizvorgang wird weiter verhindert, dass Schmelzwasser aus dem Kammerinneren in die Optik gelangt.

Nach dem Auftauen und dem Aufheizprozess kann erneut mit der Kühlung begonnen werden.

2.5 Aufbau Optik

Die FINCH-Optik nach [Bundke et al., 2010], ist in der Regel direkt unter der Aktivierungskammer an FINCH angeschlossen, kann aber auch separat betrieben werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Optik für die Messung weiter optimiert. Dazu wurden grundlegende mechanische und elektrische Änderungen, vorgenommen, welche im Folgenden explizit erläutert werden.

Das optische Messgerät, welches im folgenden mit FINCH-Optik oder kurz „F-OPS“ (von engl. „*FINCH optical particle sizer*“) bezeichnet wird, ist mechanisch so aufgebaut, dass es direkt über eine Kleinflansch-Schnellverbindung (KF25) an die Unterseite der Wachstums-

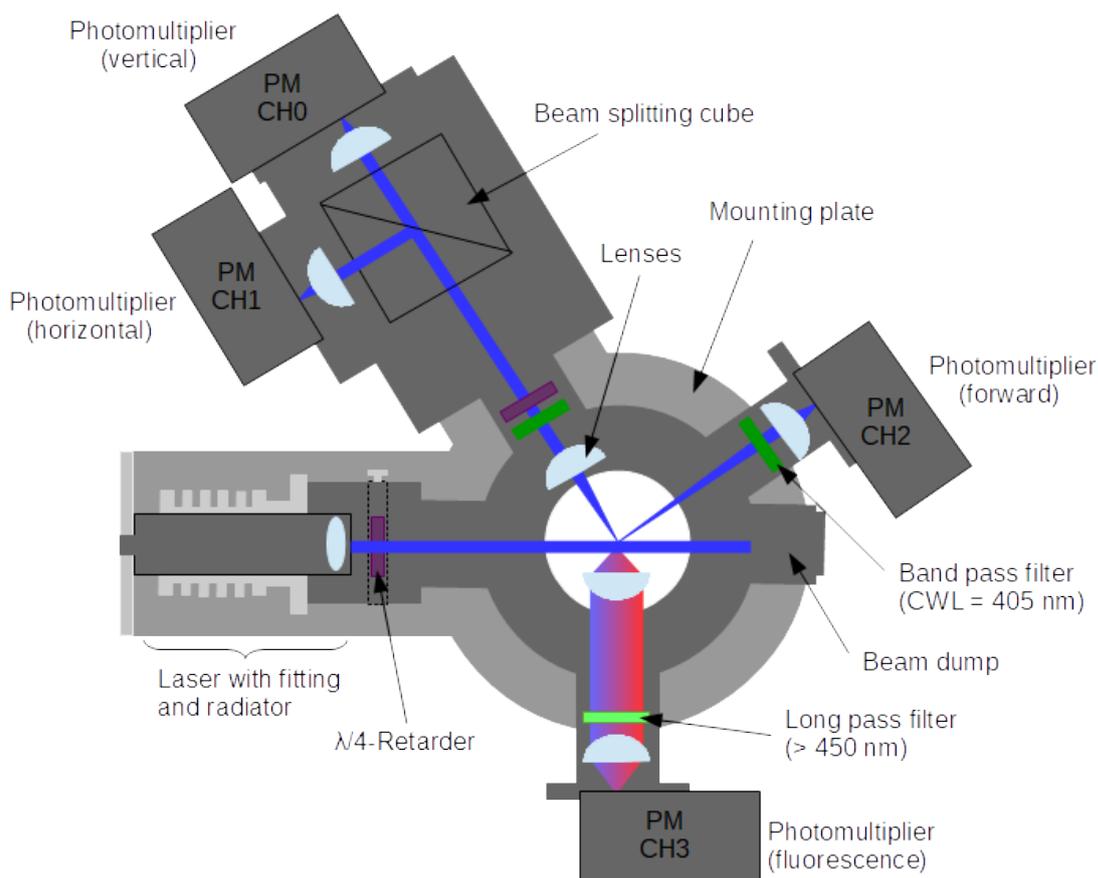


Abbildung 2.10: Prinzipskizze des optischen Partikelzählers mit optischen, mechanischen und elektrischen Bauelementen.

kammer von FINCH angeflanscht werden kann. Dadurch wird die Flugstrecke der aktivierten und/oder nicht aktivierten Aerosolpartikel zwischen Kammeraustritt und Detektion minimiert. Abbildung 2.10 zeigt den Aufbau der Optik. Hauptkomponenten des Gerätes sind ein Diodenlaser (Eigenbau mit PHR-805T-Dioden und Treiber eines STAR405F100 von Roithner Lasertechnik) mit einer Wellenlänge von 405 nm bei einer Leistung von 100 mW sowie vier Photomultiplier. Diese werden zur Unterscheidung für die elektrische Weiterverarbeitung von 0 bis 3 (typische LabView-Nummerierung) durchnummeriert. Tabelle 2.3 zeigt alle verbauten Photomultiplier mit Einsatzart, Typ und Bezeichnung.

Tabelle 2.3: Bezeichnungen der Photomultiplier sowie Einsatzart und Typ.

Kanal	Photomultiplier	Typ
CH0	Polarisationsverhältnis	Hamamatsu H10723-110
CH1	Polarisationsverhältnis	Hamamatsu H10723-110
CH2	Vorwärtsstreuung	Hamamatsu H10723-110
CH3	Fluoreszenz-Signal	Hamamatsu H10723-20

Die Photomultiplier CH0 und CH1 sind über einen Strahlteiwürfel in einem Winkel von 115° zum Laserstrahl angebracht. CH2, der Photomultiplier für die Vorwärtsstreuung, ist direkt neben der Strahlfalle in Vorwärtsrichtung unter einem Winkel von etwa 35° angebracht. Um 90° von der Strahlrichtung versetzt befindet sich CH3, wobei zusätzlich eine Sammellinse für eine größere Signalausbeute sorgt.

Die Photomultiplier sind licht- und druckdicht in die Fassung eingeschraubt und je nach Funktion mit vorgeschalteten Filtern versehen. Bei den Photomultipliern CH0 – CH2 wird ein optischer Bandpassfilter mit einer Zentralwellenlänge von 405 nm benutzt. CH3, ausgelegt für Fluoreszenzmessungen, ist hingegen mit einem Langpassfilter versehen, welcher nur für Licht mit einer Wellenlänge größer als 450 nm durchlässig ist.

Dem Laser ist ein Verzögerungsplättchen (auch $\lambda/4$ -Plättchen oder engl. $\lambda/4$ -Retarder genannt) nachgeschaltet, um zirkular polarisiertes Licht zu erzeugen. Ein weiteres $\lambda/4$ -Plättchen befindet sich vor dem Strahlteilungswürfel von CH0 und CH1.

Elektrisch sind die Kabel zur Signalübertragung, Ansteuerung und Spannungsversorgung der einzelnen Photomultiplier mit einer „Elektronikbox“ verbunden, in welcher durch Drehpotentiometer die Sensitivität der Photomultiplier geändert werden kann (über die Verstärkungsspannung (U_c), was der Beschleunigungsspannung in den Photomultipliern entspricht). Des Weiteren werden über die Elektronikbox die Signale der vier Photomultiplier zusammen geführt und über ein acht-poliges, geschirmtes Kabel zur Ausleseinheit geleitet. Auch die Spannungsversorgung der Photomultiplier erfolgt über diese Box. Der Laser wird derzeit über ein separates Netzteil betrieben.

Zu Beachten ist, dass die Detektionseffizienz und somit gerade die untere Detektionsgrenze der Partikel von den Verstärkungsspannungen abhängig ist. Diese müssen in regelmäßigen Abständen kontrolliert und protokolliert werden (vgl. Kap. 3.1).

Im Vergleich mit [Bundke et al., 2010] wurden grundlegende Änderungen im Aufbau der Optik durchgeführt. Im dort beschriebenen Aufbau wurde ursprünglich ein 635 nm Laser und zusätzlich eine UV-LED mit einer Wellenlänge von 365 nm zur Fluoreszenz-Anregung benutzt. Anstelle der jetzigen Photomultiplier befanden sich in der ursprünglichen Optik Photodioden zur Detektion der Streulichtsignale, die weniger sensitiv sind. Der Laser war außerdem über eine Glasfaserkopplung in das Gehäuse der Optik integriert. Auch im Bereich der optischen Bauelemente finden sich Unterschiede wieder. So wird auf einen zentral im Gehäuse verbauten sphärischen Spiegel als Reflektor für Fluoreszenzlichtimpulse verzichtet.

Die Entwicklung des optischen Partikelzählers wurde immer wieder durch technische und vor allem elektrische (vgl. Kap. 2.8) Einschränkungen und Probleme beeinträchtigt, welche erst mit viel Aufwand behoben werden konnten. Kaputtgegangene Photomultiplier mussten ausgetauscht werden, konnten infolge eines Wechsels in der Produktpalette der Hersteller nur durch ein nicht baugleiches Modell ersetzt werden. Dies führte zu großen Verzögerungen während der Charakterisierungsmessungen. Ebenso musste der Laser ersetzt werden, was die Messung zusätzlich zeitlich verzögerte und die Vergleichbarkeit mit vorherigen Messung zunichte machte.

2.6 Messgrößen

Durchströmen Aerosolpartikel den F-OPS und damit den Laserstrahl, werden unterschiedliche Signale von den Photomultipliern detektiert. Aus der Detektion dieser Signale lassen sich vier Partikeleigenschaften ableiten, die sich teilweise aus dem Signal eines einzelnen Photomultiplier und teilweise aus der Kombination dem Vergleich von mehreren Kanälen ergeben. Diese vier Größen sind Partikelanzahl, Partikelgröße, Fluoreszenz sowie eine Information über die Form des detektierten Partikels.

2.6.1 Partikelanzahl

Die Partikelanzahl lässt sich prinzipiell aus jedem Photomultiplier auslesen. Dazu werden lediglich die aus dem Grundrauschen herausragenden Signalbeiträge gezählt. Effektiv wird nur CH2 benutzt, da hier der größte Eintrag an Streulicht vorliegt. Die Anzahl der fluoreszierenden Partikel (fP) kann aus der Anzahl der Signale in CH3 abgeleitet werden (siehe Kap. 2.6.3). Die Software-Lösung zum Zählen der Partikel wird in Kapitel 2.7 beschrieben.

2.6.2 Partikelgröße

Die Partikelgröße lässt sich aus der Signalamplitude am Photomultiplier ableiten. Nach [Bohren und Huffmann, 1998] ist die Intensität der durch Partikel gestreuten Strahlung nach folgender Formel definiert:

$$I = \frac{\pi \cdot Q_s \cdot I_0 \cdot D_p^2}{4 \cdot F} \quad 2.10$$

Wobei

- Q_s der dimensionslose Streukoeffizient,
- D_p der Durchmesser des Partikels,

- I_0 die Intensität des einfallenden Strahls und
 F die vom Streulicht bestrahlte Fläche ist.

Daraus ergibt sich ein allgemeine Näherung für Partikel mit $D_p > 1 \mu\text{m}$ zu:

$$\sqrt{I} \propto D_p \quad . \quad 2.11$$

Die Wurzel der Intensität des gestreuten Lichtes ist demnach proportional zum Durchmesser des Partikels. Vereinfacht lässt sich sagen, dass damit die Partikelgröße direkt aus dem elektrischen Signal der Photomultiplier (genauer aus der Wurzel des Signals) ausgelesen werden kann. Dies wird im Betrieb mit dem Kanal CH2 sowie mit der Summe aus CH0 und CH1 gemacht, wobei CH2 die bevorzugte Wahl im Rahmen dieser Arbeit war.

2.6.3 Anzahl der fluoreszierenden Partikel

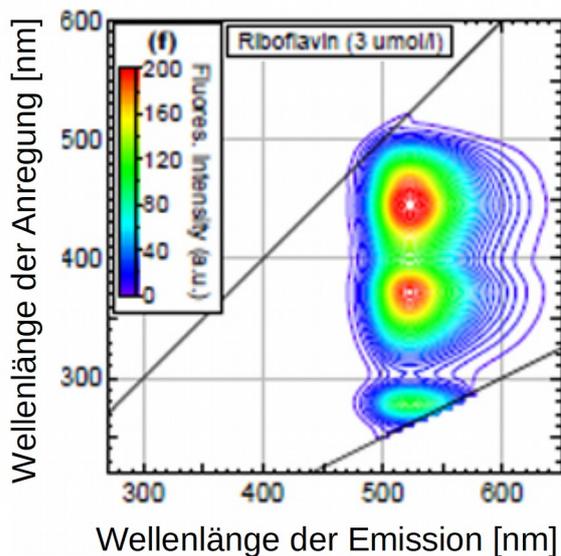


Abbildung 2.11: Fluoreszenzbereich von Riboflavin in Abhängigkeit von der Anregungswellenlänge. Mit leichten Änderungen nach [Pöhlker, 2012]

Der Photomultiplier für CH3 wird dazu benutzt, um die Anzahl der fluoreszierenden Partikel zu ermitteln. Durch den Laser angeregt, emittieren fluoreszenzfähige Stoffe Licht beim elektronischen Übergang eines angeregten Zustandes in den Grundzustand. Das emittierte Licht ist in der Regel energieärmer und hat damit eine längerer Wellenlänge als das zuvor absorbierte Licht. Wie in Abb 2.11 [Pöhlker, 2012] zu sehen ist, liegt der hier verwendete 405 nm Laser genau im Anregungsbereich von Riboflavin ($\text{C}_{17}\text{H}_{20}\text{N}_4\text{O}_6$).

Durch den Einsatz des optischen Langpassfilters (vgl. Abb. 2.10), welchen nur Wellenlängen größer 450 nm passieren können, muss ein mit CH3 detektiertes Signal durch Fluoreszenzprozesse entstanden sein. Das Maximum der Emission von Riboflavin liegt etwa bei einer Wellenlänge von 520 nm, welche den optischen Filter passieren kann.

Wird über CH3 ein Fluoreszenzsignal aufgezeichnet, so entsteht dies hauptsächlich aus der Fluoreszenz von Riboflavin. Da Riboflavin ein Vitamin aus dem B-Komplex ist, kann man es als einen Marker für biologisches Material heranziehen und somit indirekt auf die Anzahl der biologischen Partikel schließen.

2.6.4 Form der Partikel

Die Form der Partikel wird aus den Signalen der Photomultiplier CH0 und CH1 abgeleitet. Das durch das Verzögerungsplättchen zirkularpolarisierte Laserlicht wird an den durch die Optik strömenden Partikeln gestreut. Beim Durchgang durch das zweite Verzögerungsplättchen wird das Streulicht wieder in linear polarisiertes Licht umgewandelt (2.10). Je nachdem ob das Licht vorher rechts- oder links-zirkular polarisiert (P_{RC} und P_{LC}) war, wird es im Strahlteilwürfel in die beiden orthogonalen Komponenten (vertikal oder horizontal orientiert) aufgeteilt. So kann über die zwei Photomultiplier CH0 und CH1 eine Aussage über die Depolarisation des Streulichtes getroffen werden. Dabei ist unter Depolarisation die Änderung des Polarisationszustandes des Streulichtes zu verstehen.

Eine ausführlich Herleitung des im F-OPS benutzen Polarisationsverhältnisses „ P_{44}/P_{11} “ ist in [Hu et al., 2003] und [Bundke et al., 2010] zu lesen. Das Polarisationsverhältnis ergibt sich demnach zu:

$$\frac{P_{44}}{P_{11}} = \frac{P_{RZ} - P_{LZ}}{P_{RZ} + P_{LZ}} = \frac{CH0 - CH1}{CH0 + CH1} \quad 2.12$$

wobei das Polarisationsverhältnis abhängig von den Anteilen des rechts- bzw. links-zirkularen Streulichtes ist, was direkt aus den Signalintensitäten der Photomultiplier CH0 und CH1 ausgelesen werden kann. Mit dem Polarisationsverhältnis P_{44}/P_{11} lässt somit ein Aussage über die Oberflächenbeschaffenheit treffen. Laut [Hu et al., 2003] ist damit eine Unterscheidung in sphärische und asphärischen Partikel möglich, was einen Rückschluss auf Tröpfchen oder gewachsenen Eispartikeln zulässt.

Die Abbildung 2.12 zeigt, dass der maximale Unterschied zwischen Eiskristallen (Prismen, Stäbchen und Agglomerate) und Wassertröpfchen (sphärisch) unter einem Streuwinkel von $115^\circ \pm 15^\circ$ zu erwarten ist. Aus diesem Grund ist der Aufbau der Optik so gewählt, dass die Photomultiplier das Streulicht in einem Winkel von 115° detektieren. Das P_{44}/P_{11} -Verhältnis

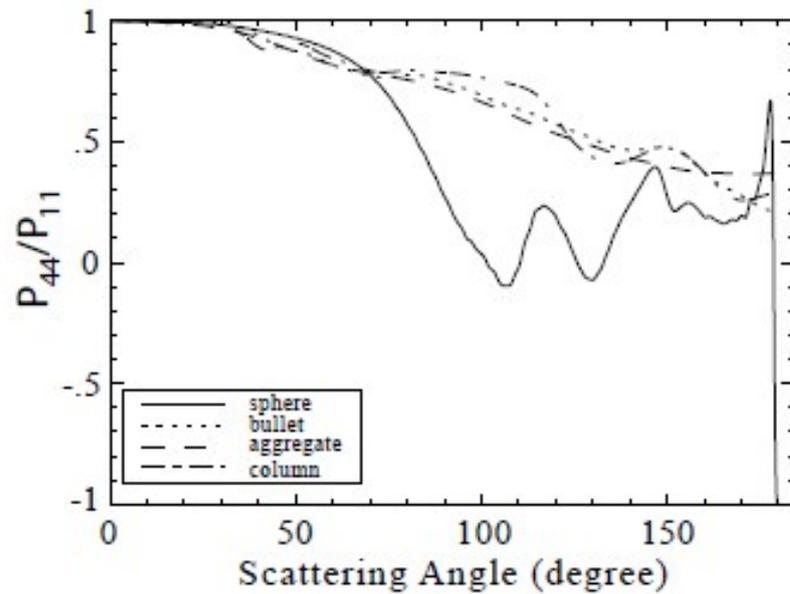


Abbildung 2.12: P_{44}/P_{11} -Verhältnisse bei Wassertropfen und verschiedenen Eiskristallformen in Abhängigkeit des Streuwinkels [Hu et al., 2003].

ist abhängig von einer Kalibration für Wassertropfen. Idealsphärische Partikel weisen keine Depolarisation auf und das P_{44}/P_{11} -Verhältnis wird damit null.

Tabelle 2.4 fasst die Partikeleigenschaften, die aus der Detektion mit den Photomultipliern der Optik abgeleitet werden können, noch einmal zusammen. Aus diesen Eigenschaften lässt sich wiederum die Anzahlkonzentrationen der in FINCH aktivierten Partikel (INP) sowie die Anzahl der biologischen Partikel (fP) sowie der biologischen INP (fINP) ableiten. Dies wird anschließend in Kap. 2.7 gezeigt.

Tabelle 2.4: Zusammenfassung der ermittelten Partikeleigenschaften aus den Signalen der Photomultiplier der FINCH-Optik.

Abgeleitete Größe	Kanal
Anzahl	CH2; Zählen der Signale
Partikelgröße	CH2; über $\sqrt{I} \sim D_p$
Form der Partikel	CH0, CH1; über P_{44}/P_{11}
Anzahl biologischer Partikel	CH3; Zählen Fluoreszenz-Signale

2.7 Software Optik

Die Softwaresteuerung der FINCH-Optik wurde im Rahmen dieser Arbeit ebenfalls neu programmiert, wozu wie auch bei der FINCH-Wachstumskammer das grafische Programmiersys-

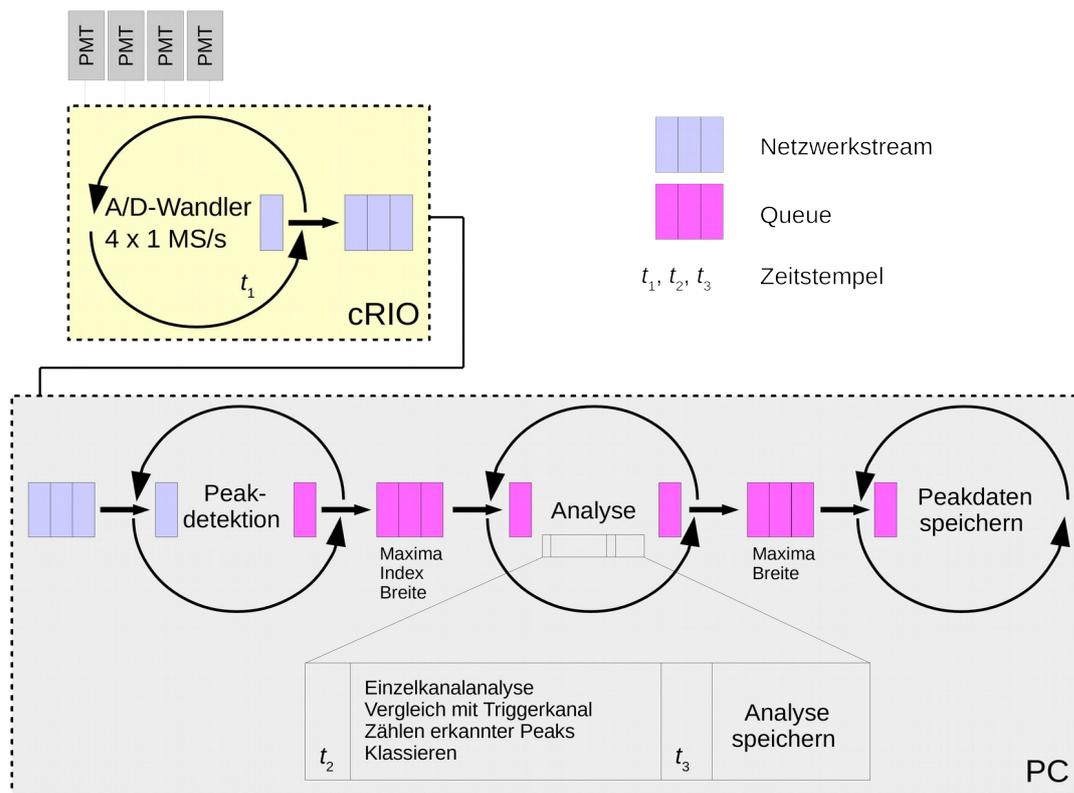


Abbildung 2.13: Schematischer Aufbau der neuen Software-Steuerung der FINCH-Optik.

tem LabVIEW der Firma „National Instruments“ benutzt wurde. LabVIEW bietet sich in diesem Fall vor allem durch die einfache Integration der vorhandenen Hardware an, welche ebenfalls von der Firma „National Instruments“ bezogen wurde.

Der programmatische Ablauf der neuen Software gliedert sich in Datenaufnahme, Peakdetektion, Analyse und Speichern der Daten (Abb. 2.13). Die Photomultiplier detektieren Licht, das von den einzelnen Partikeln, die die Optik durchströmen, als Streulicht oder Fluoreszenz abgegeben wird, und geben dieses in Form einer Spannung von 0 bis 5 V aus.

Dieses analoge Voltsignal der Photomultiplier wird über die Analog/Digital-Wandler im Modul NI 9223 des 9074 cRIO digitalisiert. Die Abtastung erfolgt mit einer Rate von 1 MS/s synchron in jedem der vier Kanäle, was einer Abtastung pro Mikroskunde entspricht. Auf diese Weise wird ein Datenfeld (Array) mit 4 x 1000 Abtastungen erzeugt, welches über Ethernet zum angeschlossenen PC gestreamt wird. Der Netzwerkstream wirkt an dieser Stelle wie ein Puffer, um einen Datenverlust zu verhindern. Nach dem Einfügen eines Elementes in den Stream wiederholt sich die Datenerfassung und es wird ein nächstes Element hinzugefügt. Jedes dieser Elemente enthält Datenmaterial von einer Millisekunde Probenzeit für jeden der Kanäle.

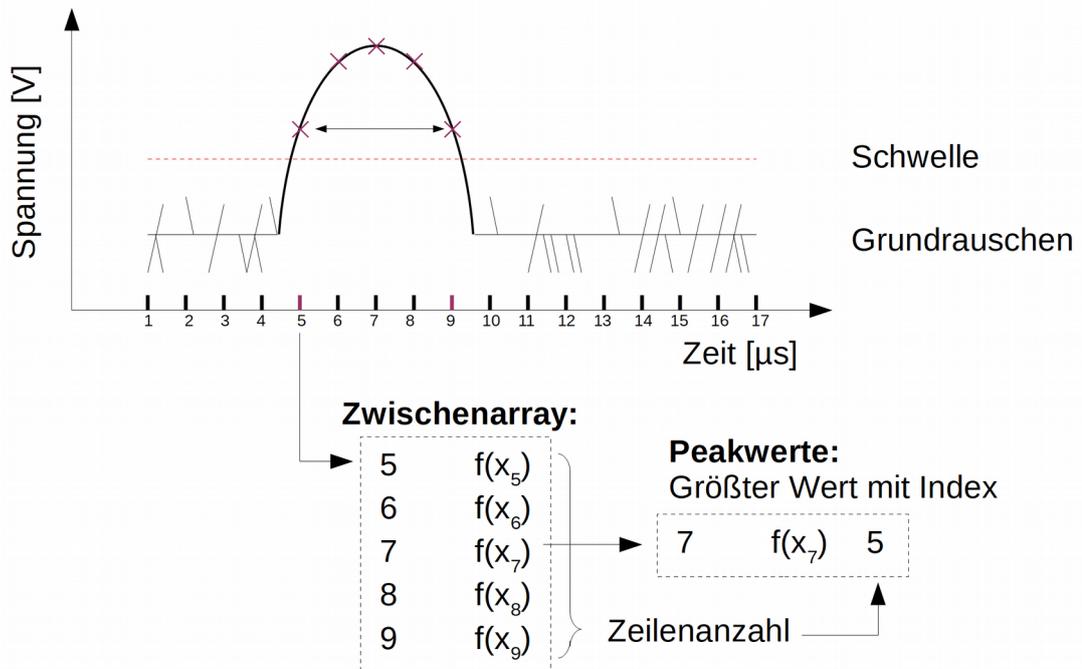


Abbildung 2.14: Schematischer Ablauf der einfachen Peakdetektion.

Die weitere Datenverarbeitung des Messprogrammes erfolgt auf dem PC, auf welchem die einzelnen Signale ermittelt und analysiert werden (Peakdetektion). Um Rechenzeit zu sparen, wird eine einfache Spitzenwertanalyse durchgeführt, mit der durch eine festgelegte Rauschgrenze und logischen Operatoren ein Maximalwert, eine triviale Breite und ein zeitlicher Indexpunkt für jeden Spitzenwert ermittelt werden (siehe Abb. 2.14).

Sobald ein Messwert den Schwellenwert übersteigt, wird dieser und der zugehörige Zeitpunkt (in Schritten von einer Mikrosekunde) in ein Zwischenarray eingetragen. Mit allen weiteren Messwerten, die größer als der Schwellenwert sind, wird ebenso verfahren. Sobald ein folgender Messwert unterhalb der Schwelle liegt, wird aus dem erstellten Zwischenarray der Maximalwert ermittelt und dieser mit dem zugehörigen Indexwert des Zeitschrittes weitergegeben. Des Weiteren wird über die Anzahl der im Zwischenarray erstellten Zeilen die einfache Breite der Basislinie des Peaks ermittelt, welche ebenfalls in den nächsten Programmteil übergeben wird. Die Breite wird an dieser Stelle genutzt, um Fehlzählungen durch nicht deutlich abgegrenzte Peaks auszuschließen. Es können mit einer definierten unteren (W_l) und oberen Breitengrenze (W_u) Peaks bestimmter Breiten ausgesondert werden. Auf diese Weise werden Fehler durch nicht exakt abgetastete Spitzenwerte und Fehldeutungen durch zu breite Verteilungen verhindert.

Diese Spitzenwertermittlung wird für alle vier Kanäle parallel ausgeführt. Auf eine Kurvenanpassung der einzelnen Peaks wurde bewusst verzichtet, da die Rechenleistung des Systems für einen solchen Vorgang nicht ausreicht.

Im Programmverlauf schließt die „Analyse-Schleife“ an, in welcher die Peakwerte aller vier Kanäle miteinander verglichen und bewertet werden. Dazu wird ein Triggerkanal gewählt (im

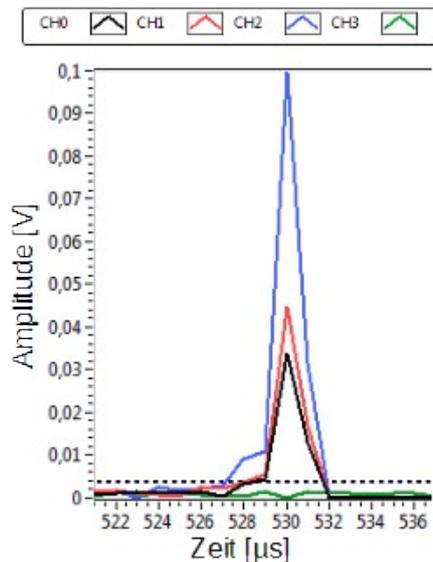


Abbildung 2.15: Beispiel eines Peaks in den Kanälen CH0 - CH2, wobei die Maxima der Kanäle in einem Sampleschritt (hier 530) liegen. Der Kanal für Fluoreszenzmessung zeigt keinen Eintrag.

Regelfall ist dies der CH2-Kanal, zur Detektion des vorwärts gestreuten Lichts) mit dem die restlichen Kanäle verglichen werden.

Das Zählen der Partikel im Programm lässt sich folgendermaßen nachvollziehen: Wurde im Triggerkanal ein Peak ermittelt, gibt es dazu einen weitergegebenen Indexwert des Arrays. Die Anzahl der gezählten Partikel im Datenmaterial einer Millisekunde ergibt sich somit aus der Anzahl der gültigen Indexwerte im Array.

Die Anzahl der fluoreszierenden Partikel werden ebenfalls auf diese Weise gezählt, wobei lediglich die Signale die mit CH3 detektiert werden ausgewertet werden. Dies geschieht ohne Einfluss des Triggerkanals.

Für die Auswertung der Messwerte in den Kanälen CH0 und CH1 (Polarisationsverhältnis), sowie für den Vergleich mit dem Triggerkanal, werden die Peakdaten beider Kanäle (CH0, CH1) nach den Indizes des Triggerka-

nals durchsucht. Bei einem Treffer werden die zugehörigen Amplituden ausgewählt und mit den Werten von CH2 und CH3 in ein neues Datenfeld geleitet. Im Falle von „kein Treffer“, also der Index des Triggerkanals ist nicht in den anderen Kanälen auffindbar (d. h. Für CH0, CH1 und oder CH3 existiert kein Peak zum Zeitpunkt des Peaks im Triggerkanal), wird in das Datenfeld ein „NaN“ eingetragen. Für das in Abbildung 2.15 gegebene Beispiel wird ein Streulichtpeak eines Partikels in den Kanälen CH0 - CH2 detektiert. Die Maxima aller Kanäle können mit dem Index „530“ lokalisiert werden und somit lässt sich für dieses Partikel ein Polarisationsverhältnis berechnen.

Um Datenverlust auszuschließen werden die so gewonnenen Daten über einen Queue (Zwischenspeicher in Form einer „Warteschlange“) zwischengepuffert und in eine ASCII-Datei (genannt „Peak-Datei“, vgl. Anhang I) gespeichert. Dies ist notwendig, da gerade der Speichervorgang der Peakdaten eine rechenzeitintensive Operation ist. Ergänzend werden in der

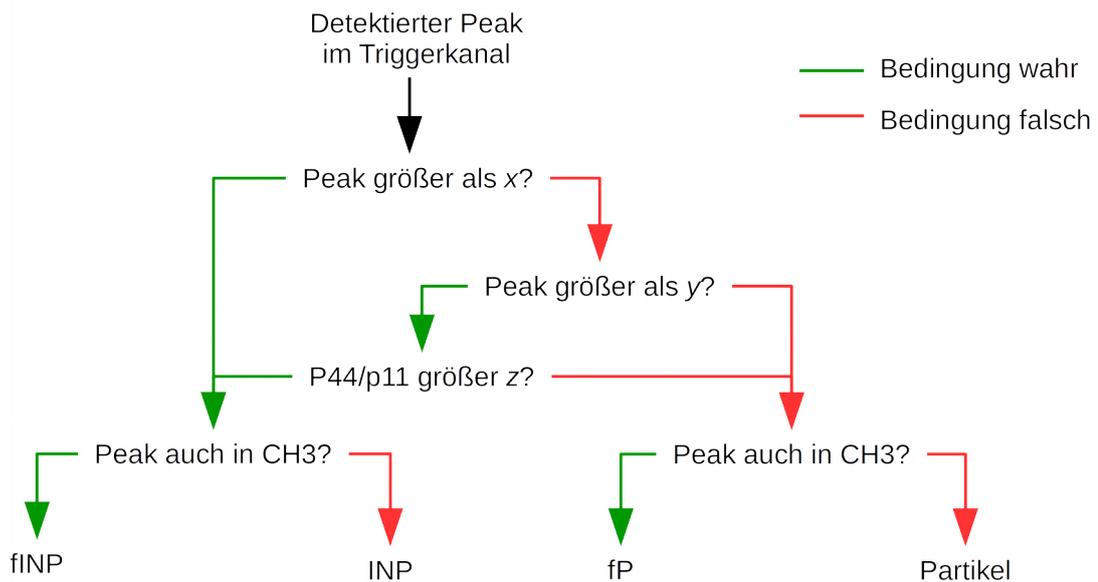


Abbildung 2.16: Vereinfachte Darstellung der Klassierung der Partikel. "Wahre" Bedingungen werden als grüne, falsche Bedingungen als rote Pfeile dargestellt

ASCII-Datei noch die Breiten und die Zeitstempel (vgl. Abbildung 2.13) für eine spätere Auswertung eingetragen.

Partikelanzahl, die Anzahl der INP und fINP können ohne spätere Auswertung direkt ausgelesen werden. Die Klassierung zu einem INP oder fINP erfolgt durch den Vergleich der Peakdaten der einzelnen Kanäle nach folgendem Schema:

Um ein Partikel als Eispartikel zu klassifizieren muss es angewachsen sein. Es kann also über die Größe als Eispartikel bestimmt werden. Auf Abbildung 2.16 sind dazu die logischen Bedingungen abgebildet. Ist beispielsweise ein Peak im Triggerkanal CH2 größer als ein Grenzwert x und zum gleichen Zeitpunkt auch im Kanal CH3 ein Peak vorhanden, so handelt es sich um ein fluoreszierendes Eispartikel. Wird die erste Bedingung verneint, dann greift das P_{44}/P_{11} -Kriterium, wozu aber wiederum eine minimale Größe von y überschritten werden muss. Ist das P_{44}/P_{11} -Verhältnis des gezählten Partikels im nächsten Schritt größer als z (im Regelfall ist $z = 0,45$, vgl. Kap. 2.6.4) dann wird das Partikel ebenfalls als INP gezählt und es folgt der Vergleich mit CH3, um weiter eine evtl. Fluoreszenz zu ermitteln.

Ist dies nicht der Fall, also das Partikel ist weder größer x noch y und/oder das P_{44}/P_{11} -Verhältnis ist kleiner als z , wird ein Vergleich mit CH3 durchgeführt. Ist ein Peak zu diesem Zeitpunkt in CH3 vorhanden, dann muss es sich um ein fluoreszierendes Partikel handeln. Wird keine der Bedingungen erfüllt handelt es sich um ein Aerosolpartikel, ohne dass weitere Eigenschaften festgestellt werden können.

Die Bedingungsgrößen x , y und z sind abhängig von der Kalibration der Optik und müssen vor einem Messvorgang bestimmt werden. Weiter gilt $x > y$.

Um eine Zeitreihe der Werte zu erzeugen werden nacheinander jeweils 1000 Arrays aus der Peakdetektion auf diese Weise verarbeitet. Da jedes Array einer Probenzeit von einer Millisekunde entspricht, ergibt sich so ein Sekundenwert für die Anzahl der Partikel. Für die klassierten Werte von INP, fINP und fP wird ebenfalls so verfahren. Diese Werte werden in eine zweite ASCII-Datei (die sogenannte „Mittel-Datei“) abgespeichert. Eine Auflistung aller aufgezeichneten Daten der Mittel- und Peak-Datei findet sich im Anhang I.

Es ist zu beachten, dass die Verarbeitung des Datenmaterials für eine Sekunde Probenzeit etwa sechs bis acht Sekunden benötigt. Aus diesem Grund werden die Zeitstempel t_1 bis t_3 aufgezeichnet, um die genaue Probenzeit ermitteln zu können (vgl. Abb. 2.13).

2.8 Elektrische Verarbeitung

Ein Problem in der Entwicklung des optischen Partikelzählers stellte die „Elektromagnetische Verträglichkeit“ (EMV), genauer die Einstrahlungsfestigkeit des Detektors dar. Es zeigte sich schnell, dass der an die Kammer angeflanschte Partikelzähler in Kombination mit den neu verbauten Photomultipliern sehr empfindlich auf elektromagnetische Wellen (unterschiedlicher Frequenzbereiche) reagierte. Je nach Art und Abstand der Störquelle wurde so ein Signal von bis zu 10% (~ 500 mV) des Detektionsbereiches aufgenommen.

Die Ursache der Störungen kann durch die Ausbildung einer Induktivität durch Rack, Partikelzähler und deren Versorgungs- und Signalleitungen erklärt werden. Abhängig von Lage und Länge der Leitungen bildete sich so eine „Spule mit einer Windung“, in welcher durch die Änderung eines äußeren Magnetfeldes die Induktionsspannung entsteht.

Die Störsignale wurden in unterschiedlichen Formen abgegriffen. Je nach Störquelle zeigten sich einfache Sinus-Schwingung, abgegrenzte Wellenpakete durch Überlagerungen mehrerer Störsignale oder aperiodische Phänomene. Abbildung 2.17 zeigt Beispiele für typische Störungen in unterschiedlichen Zeiträumen.

Die Graphen geben jeweils den zeitlichen Verlauf der Amplitude der gemessenen Spannung wieder. In Abb. 2.17c) zeigt die Störung eine maximale Amplitude von über 200 mV. Deutlich geringer sind die Amplituden in 2.17a) und b), allerdings ist ein periodisches Auftreten der Wellenpakete zu erkennen. Wohingegen Abb. 2.17c) kein deutliches periodisches Verhalten zeigt. In allen Beispielen kann ein Einfluss durch Partikel und Streulicht ausgeschlossen werden, da zum Zeitpunkt der Aufnahmen der Laser ausgeschaltet und die Streukammer lichtdicht verschlossen war. Somit mussten die Phänomene rein elektrischer Natur sein.

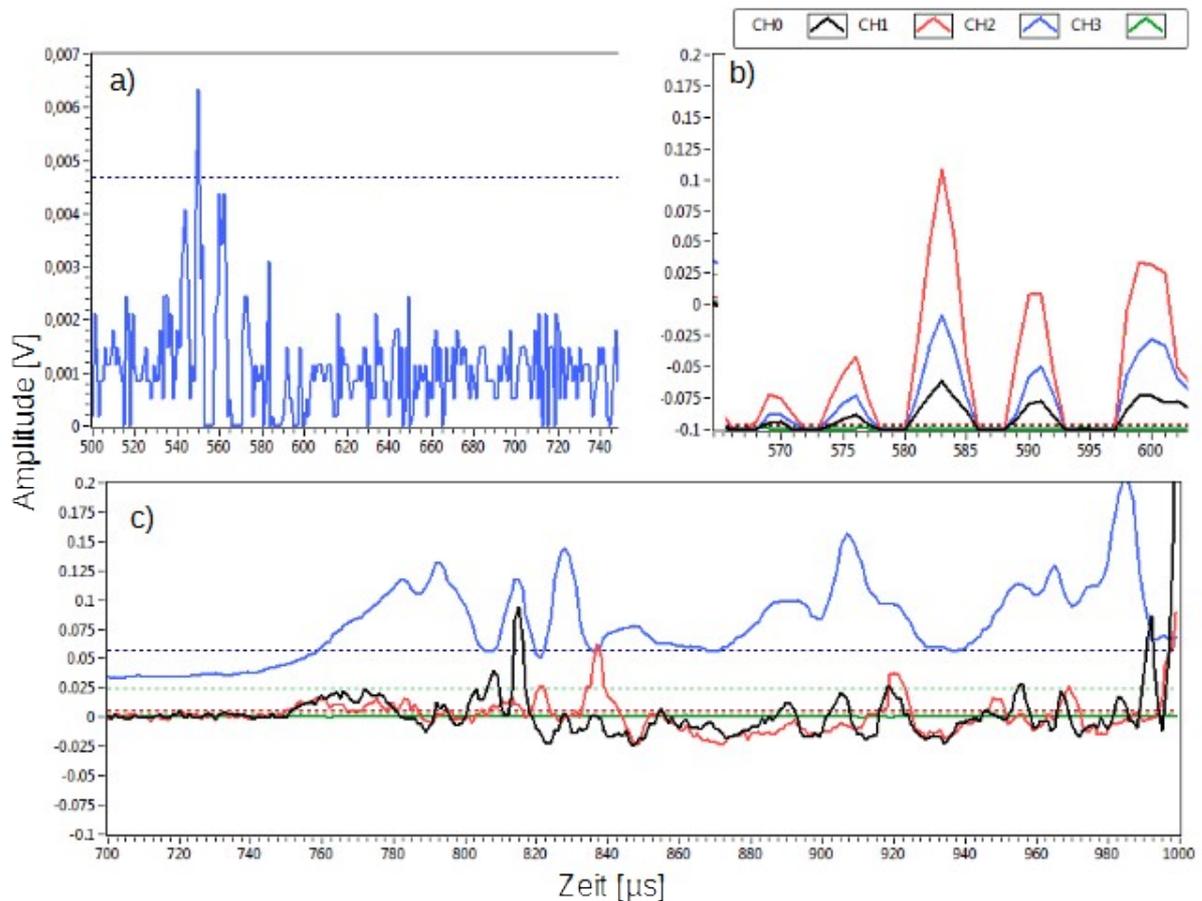


Abbildung 2.17: Unterschiedliche Erscheinungsformen der elektromagnetischen Störungen aufgenommen durch die Photomultiplier. Bei der Aufnahme war der Laser aus und die Streukammer lichtdicht verschlossen, um „echte“ Signale auszuschließen. Die Graphen a) und b) zeigen periodische Störungen, in b) deutlich als Wellenpaket ausgeprägt. Graph c) zeigt dagegen Störungen ohne erkennbar periodisch Anteile.

Da diese Störsignale weit über dem Grundrauschen liegen, würden diese fälschlicherweise als Partikel gezählt. Um diesem Problem zu begegnen, wurde in enger Zusammenarbeit mit dem hauseigenen Elektronik-Labor mehrere Schritte unternommen, um diese Fehldetektionen durch elektromagnetische Einstrahlung auszuschließen. Dazu wurden zunächst Abschirmmaßnahmen getroffen. Die Zuleitungen der Photomultiplier sowie die Signalleitungen wurden mit leitfähigem Drahtgeflecht ummantelt. Auch die Signalleitung zum cRIO wurde weitgehend durch eine symmetrische Kabelführung ersetzt (durch geschirmtes Twisted-Pair-Kabel aus der Netzwerktechnik). Die Gehäuse der Photomultiplier wurden zudem durch einen Isolator vom restlichen Gehäuse des Partikelzählers und somit von FINCH elektrisch (bzw. leitfähig) getrennt. Durch eine elektrische Verbindung zwischen der Gehäusemasse von FINCH und dem Gehäuse des cRIOs wurde ein Potentialausgleich beider Geräte erzielt.

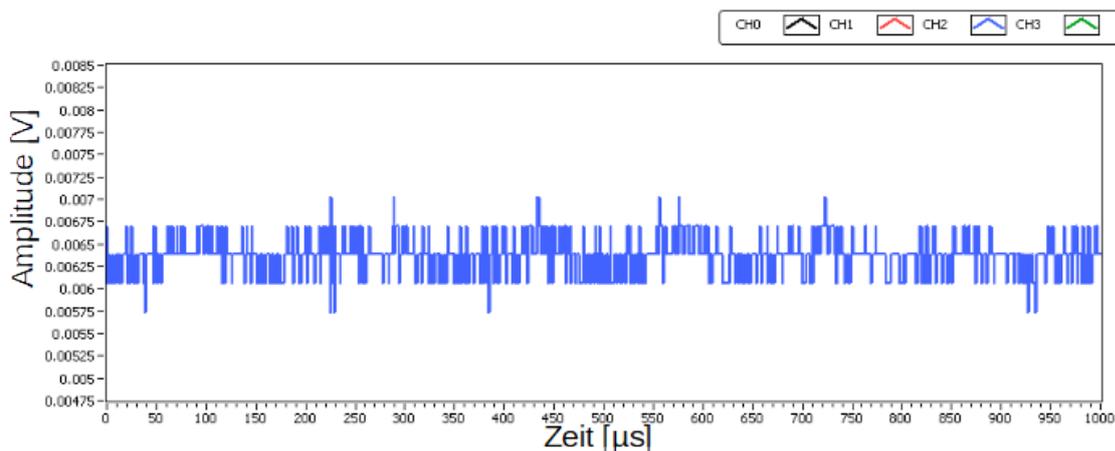


Abbildung 2.18: Störungsfreies Grundrauschen der FINCH-Optik. Bei der Aufnahme war der Laser abgeschaltet und die Streukammer lichtdicht verschlossen.

Durch diese Maßnahmen konnten die Störung deutlich verringert, allerdings nicht vollständig ausgeschlossen werden. Aus diesem Grund sollte das elektrische Hintergrundsignal in regelmäßigen Abständen überprüft werden.

Abbildung 2.18 zeigt das störungsfreie elektronische Grundrauschen welches auf den Quantisierungsfehler bei der Analog-Digital-Umsetzung zurück zu führen ist. Auch bei dieser Aufnahme war der Laser aus und die Streukammer lichtdicht verschlossen. Mit Abbildung 2.18 ist die Grundlage für störungsfreie Messungen mit dem F-OPS dargestellt.

2.8.1 Übertrager

Ein Ansatz zur Lösung der EMV-Problematik war der Einsatz von Übertragern zur Potentialtrennung zwischen den Photomultipliern und der Analog-Input-Karte des cRIOs. Unter „Übertrager“ versteht man ein elektronisches Bauteil in gleicher Bauweise wie ein Transformator. Während Transformatoren aber meist nur bei einer Frequenz oder einem schmalen Frequenzband die gewünschte Effizienz erreichen, sind Übertrager im Gegensatz dazu auf breitbandige Informationsübertragung und hohe Signalqualität ausgelegt.

Die Sekundärspannung der Übertrager kann vereinfacht als proportional zur Änderung des Magnetfeldes im Kern angesehen werden. Dadurch wird auch klar, dass bei abnehmendem Magnetfeld eine negative Spannung gemessen werden kann. Dieses „negative Nachschwingen“, welches flächengleich mit den positiven Peaks ist, stellte sich als problematisch heraus.

Auf Abbildung 2.19 ist eine Aufnahme einer Testmessung mit Übertrager zu sehen. Mit einer an einen Funktionsgenerator gekoppelten LED wurde in der Optik eine Rechteckspannung mit einer Frequenz ca. 5 kHz erzeugt.

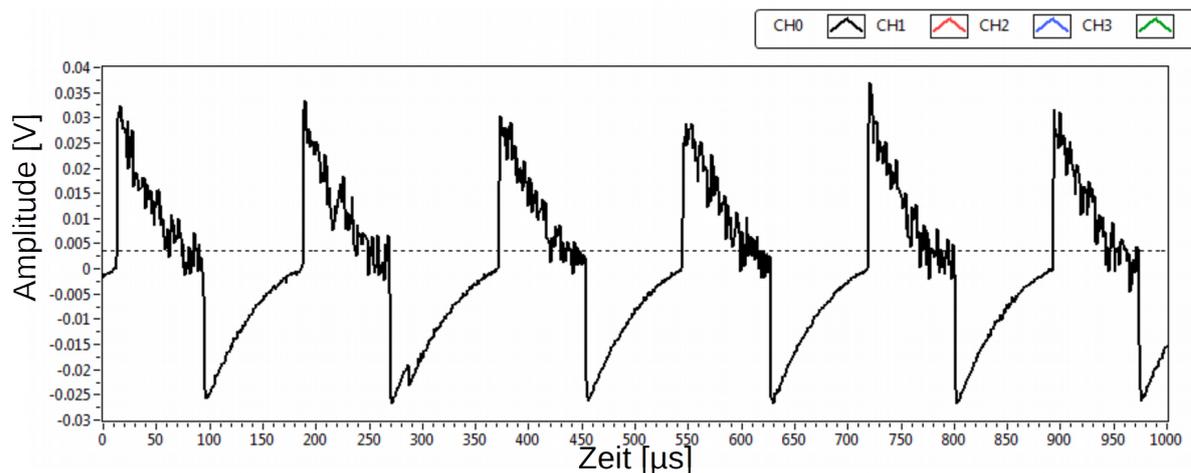


Abbildung 2.19: Die Abbildung zeigt das durch eine blinkende LED initiierte Ausgangssignal eines Übertragers im CH2. Das "Nachschwingen" in den negativen Bereich ist deutlich zu erkennen. Die Abbildung wurden mit der Quicklook-Funktion der Software erzeugt.

Deutlich zu erkennen ist, dass durch den Einsatz der Übertrager die rechteckige Darstellung der Signale grundsätzlich verloren geht. Auch die negativen Spannungswerte sind deutlich zu sehen. Eine weitere, grundlegende Eigenschaft von Übertragern bzw. Transformatoren ist es, dass der Gleichspannungsanteil der Primärspannung nicht übertragen wird, so auch bei der Messung auf Abbildung 2.19. Das hat zur Folge, dass eine Änderung der Verstärkungsspannung der Photomultiplier lediglich zu einer Erhöhung der Spitzenwerte führt, nicht aber zu einer Verlagerung des Grundrauschens.

Kommt es im Falle einer Streulichtmessung nun dazu, dass ein weiteres Partikel kurze Zeit später ein Streulichtsignal auslöst, kann es sein, dass sich der Übertrager gerade im Zustand des abnehmenden Magnetfeldes befindet. Dies entspricht etwa dem Bereich der negativen Flanken auf Abbildung 2.19. Demnach würde die neu auftretende Spannungsspitze auf einer neuen Grundlinie (einer niedrigeren) basieren. Genauer die neue Spannungsspitze und der aktuelle Spannungszustand durch das erste Partikel müssten addiert werden. Effektiv heißt dies, es besteht die Möglichkeit, dass durch die Übertrager Amplitude und damit Größeninformation verloren geht.

Da dieser Effekt zu Beginn der Umbaumaßnahmen nicht beachtet wurde (in der Software wurden die negativen Werte heraus gefiltert) wurde zwischen Januar und Juli 2016 mit diesem System gearbeitet. Auch auf der Messkampagne „INUIT-BACCHUS-ACTRIS Cyprus 2016“ in Zypern waren die Übertrager verbaut. Nach Bekanntwerden der oben beschriebenen Nachteile wurden die Übertrager aus dem System entfernt und die in Kapitel 2.8 gemachten Änderungen weiter verfolgt.

2.8.2 Frequenzfilter

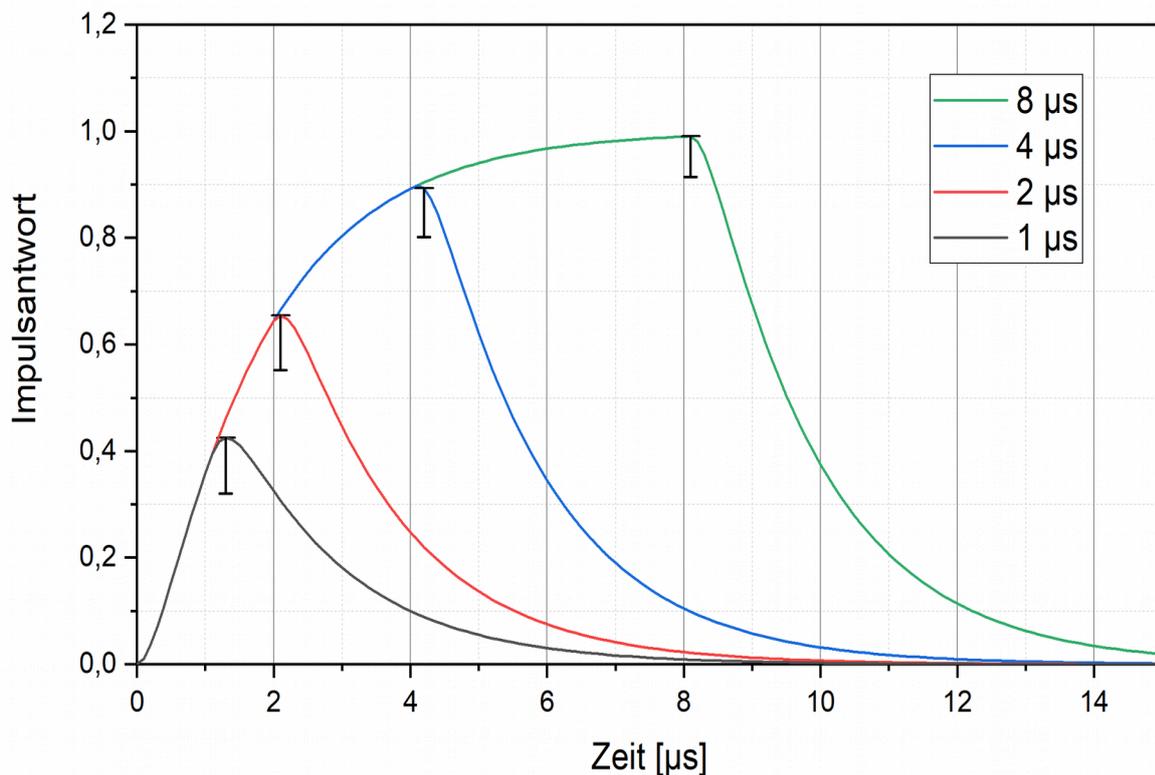


Abbildung 2.20: Simuliertes Ausgangssignal des Tiefpassfilters bei exemplarischen Eingangsimpulsen unterschiedlicher Breite ($1 \mu\text{s}$, $2 \mu\text{s}$, $4 \mu\text{s}$ und $8 \mu\text{s}$) und einer Amplitude von 1. Zusätzlich sind die Abtastfehler der Maxima eingezeichnet.

Eine weitere, grundlegende Änderung im elektrischen Aufbau ist das Entfernen eines elektronischen Filters im Zuge des Einbaus des neuen Photomultiplier-Modells. Grundsätzlich verändern Filter abhängig von der Frequenz des elektrischen Signals dessen Amplitude und Phasenlänge. Aufgrund der verbauten Schaltung in der „Elektronik-Box“ handelte es sich um einen Tiefpassfilter, der die Amplituden höherer Frequenzen dämpft.

Es ist davon auszugehen, dass dieser Filter benutzt wurde, um als „Schnelllösung“ die hochfrequente Störungen zu unterdrücken, welche durch die Mängel im Aufbau des F-OPS als Störsignale aufgenommen wurden. (vgl. Kap. 2.8). Dabei entstandene Dämpfungen der Signalamplituden wurden in Kauf genommen. Der Frequenzgang des entfernten Filters wurde auf eine Eckfrequenz von 250 kHz dimensioniert.

Bei der Verifikation des Messaufbaus hat sich gezeigt, dass die Signale kleiner Partikel zu sehr abgeschwächt wurden. Dies wird in Abbildung 2.20 verdeutlicht. Im Plot der Impulsantwort ist die berechnete Antwort des Tiefpassfilters für vier verschiedene Impulsbreiten eines Rechtecksignals dargestellt.

Gerade bei den kleineren Impulsen ist die Abschwächung der Amplitude signifikant womit der Tiefpassfilter Einfluss auf die Größeninformation eines Partikelimpulses hat. Aus diesem Grunde wurde entschieden die Elektronik zu ändern und die Tiefpassfilter nicht weiter im System zu lassen, wobei der Einfluss auf größere Partikel zu vernachlässigen gewesen wäre. Ähnlich wie auch im Falle der Übertrager wurde dieser Fakt aber erst im Rahmen der EMV-Fehlersuche entdeckt. Bis November 2016 deshalb wurde mit den eingebauten Frequenzfilter gemessen.

2.9 Experimentieraufbauten

2.9.1 Versuchsaufbau: LED

Ziel des Aufbaus ist es durch eine blinkende LED Lichtimpulse unterschiedlicher Amplitude und Frequenz zu erzeugen und diese mit der FINCH-Optik zu detektieren. Die FINCH-Optik wird dabei ohne Kammer alleine in einer Halterung auf dem Labortisch betrieben.

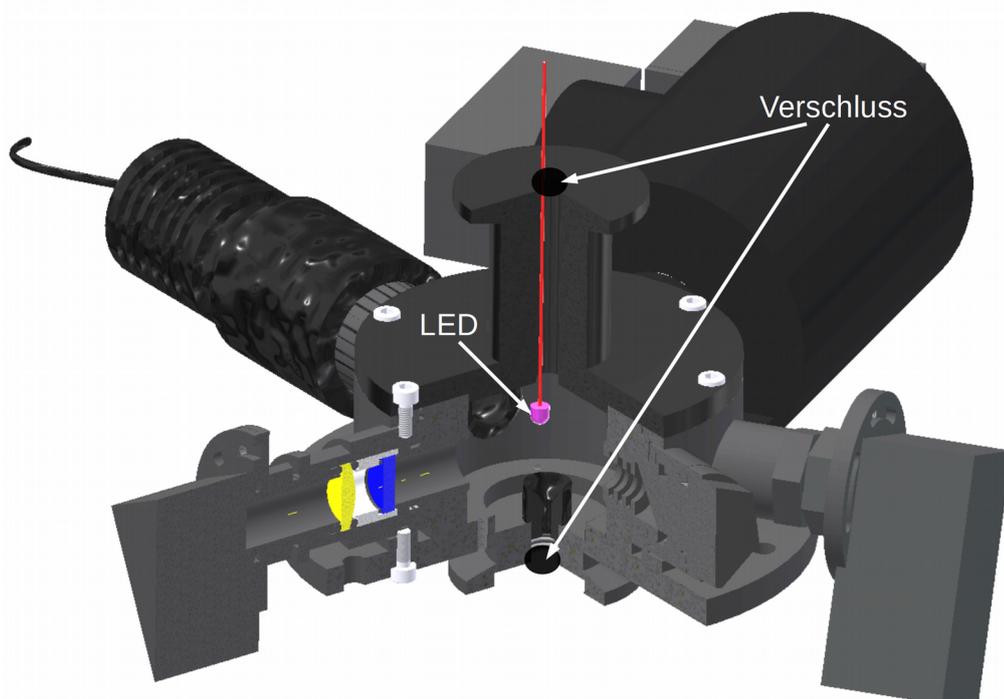


Abbildung 2.21: FINCH-Optik im LED-Aufbau. Gezeigt ist ein Ausschnitt der Optik mit durch den Aerosoleinlass eingelassener LED.

Abbildung 2.21 zeigt den Schnitt durch den F-OPS im LED-Betrieb. Die LED wird über den Aerosoleinlass in die Streukammer eingeführt, welcher dann mit schwarzem Dämmmaterial lichtdicht verschlossen wird. Der untere Kammereinlass wird mit schwarzem Isolierband lichtdicht verschlossen.

Die LED wird über einen Funktionengenerator (Voltcraft 7202) betrieben, womit unterschiedliche Signale erzeugt werden können. Neben der Variation von Amplitude und Frequenz ist dies die Änderung der Form der Signale. Breite Peaks können durch Rechteckimpulse und schmale Peaks mit feinen Spitzen durch Dreieckssignale simuliert werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine LED der Wellenlänge 405 nm benutzt, um das Laser- bzw. Streulicht zu simulieren.

Der LED-Aufbau wurde für Experimente genutzt, die zur Untersuchung der EMV-Problematik und zur Charakterisierung der Signalverarbeitung (vgl. Kap. 3.2) dienen.

2.9.2 Versuchsaufbau: Wärmetauscher

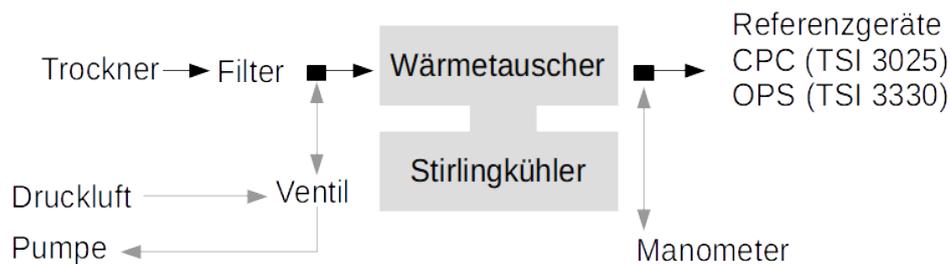


Abbildung 2.22: Messaufbau zur Überprüfung der Wärmetauscher. Ein-gezeichnet sind zwei optionale Versuchsreihen: In schwarz ist eine Messaufbau mit Partikelzähler gezeigt, während in grau der Wärmetauscher druckdicht verschlossen wird und unter Überdruck gesetzt oder evakuiert wird.

Für Experimente zur Untersuchung von Kontaminationen (Kap. 4.3) wurden die Wärmetauscher der Flüsse Q_A und Q_C aus FINCH ausgebaut und extern betrieben. Dazu wurde jeweils ein Stirlingkühler mit einem Wärmetauscher (nach Abb. 2.3) versehen und in einem Aufbau nach Abbildung 2.22 betrieben. Hierzu wurde getrocknete und gefilterte Probenluft in den Wärmetauscher eingeleitet und dahinter die Partikelkonzentration mit zwei Referenzmessgeräten (CPC, OPS) gemessen (schwarze Pfeile in Abb. 2.22)

In einem weiteren Aufbau wurden die Kühlköpfe unter erhöhtem Druck oder evakuiert betrieben (Abb. 2.22 graue Pfeile).

Beide Versuchsreihen wurden bei unterschiedlich starker Kühlung der Wärmetauscher durchgeführt.

2.9.3 Versuchsaufbau: Partikelmessungen/Testaerosol

Um die Eigenschaften von FINCH bzw. des F-OPS zu untersuchen, wurden im Labor einige Experimente mit Probeaerosol durchgeführt. Dazu wurde, wie in Abbildung 2.23 zu sehen,

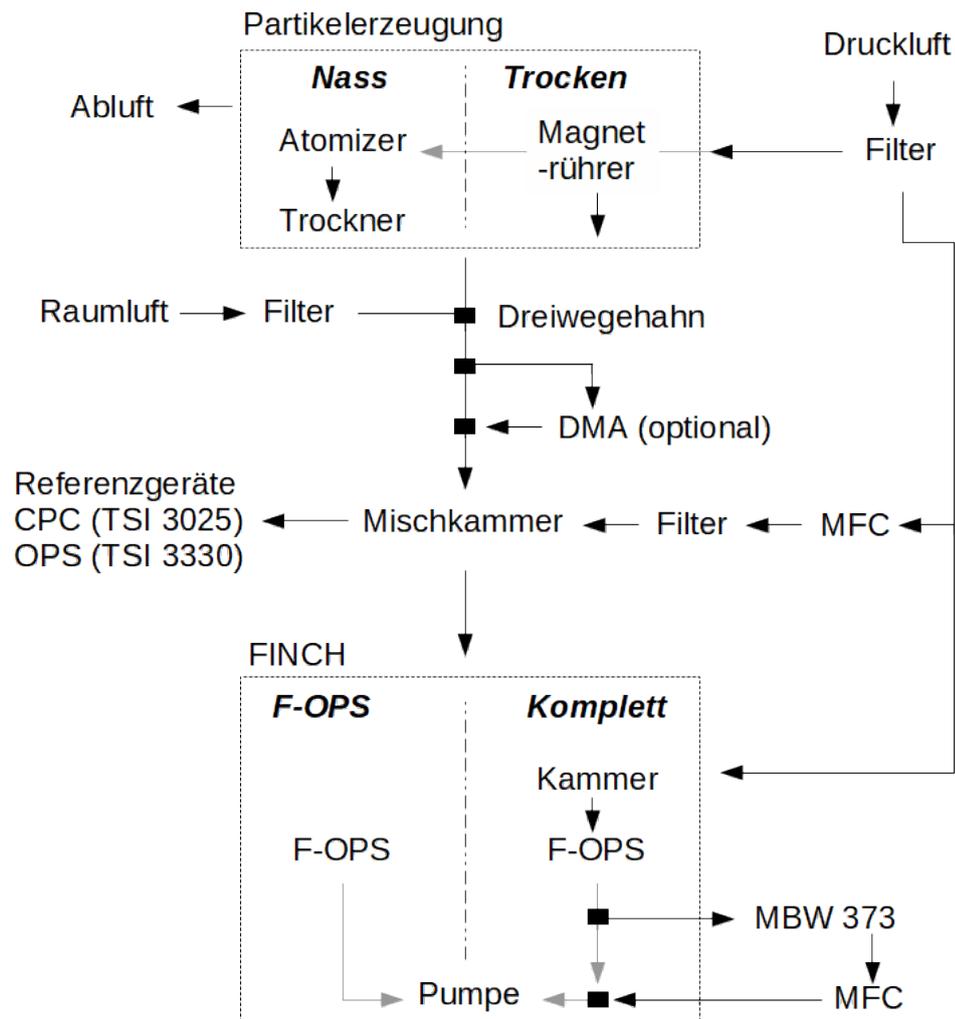


Abbildung 2.23: Versuchsaufbau der Laborexperimente mit Probeaerosol. Bei der Generierung der Testpartikel wurde entweder ein "trockene" Erzeugung durch Druckluft und Magnet-rührer oder eine "nasse" Erzeugung mit in VE-Wasser suspendierten Partikeln genutzt. Auch FINCH wurde entweder komplett, d. h. mit an der Kammer angeflanschter Optik benutzt oder der Partikelzähler wurde extern betrieben.

ein flexibler Versuchsaufbau gewählt, welcher den Betrieb von FINCH als Gesamtgerät wie auch der Optik alleine zulässt und einen Vergleich mit Referenzmessgeräten (z. B. CPC, OPS) erlaubt.

Zur Aerosolgenerierung wurden zwei Möglichkeiten vorgesehen, um verschieden Aerosole zu erzeugen. Zum einen ist es möglich trockene Stoffe durch Magnet-rührer und Druckluft im Probenfluss zu dispergieren. Es können aber auch in VE-Wasser gelöste bzw. suspendierte Proben über einen Atomizer in den Probenfluss eingebracht werden. Im Fall der „nassen“ Partikelerzeugung mit VE-Wasser wird ein Silikageltrockner (SiO_2) nachgeschaltet um die entstandenen Tröpfchen zu verdunsten. Somit bleiben die Aerosolpartikel der Probe übrig, wel-

che dann in eine Mischkammer gelangen. Die Mischkammer ist ein luftdicht abgeschlossener Edelstahlbehälter mit einem Volumen von ca. 2 Litern, welcher mit zwei Ein- und Ausgängen versehen ist. Durch einen Dreiwegehahn vor der Mischkammer lässt sich zudem schnell eine Nullfiltermessung durchführen.

Die Flüsse in die Mischkammer sowie zu den angeschlossenen Geräten wurden so angepasst, dass bei Nutzung eines Differentiellen Mobilitätsanalysators (DMA, Modell 3080 von TSI) zwischen 0,3 und 0,5 L min⁻¹ Probenfluss gezogen wurden. Den DMA können abhängig von der eingestellten Spannung sowie den Abmessungen des Gerätes nur Partikel einer bestimmten elektrischen Mobilität verlassen. Durch den Betrieb mit dem eben beschriebenen Probenflüssen lässt sich somit monodisperses Aerosol in einem Größenspektrum von 100 bis 1000 nm erzeugen.

Der Probenfluss Q_A aus der Mischkammer wurde so gehalten, dass durch die FINCH-Optik stets 7 L min⁻¹ strömten. Durch die konstante Strömungsgeschwindigkeit bleiben die Eigenschaften der Partikel, welche durch die Strömungsgeschwindigkeit beeinflusst werden (z. B. Aufenthaltszeit im Laserstrahl und damit Peakbreite) im Verlauf der Experimente gleich.

Für den Betrieb des F-OPS alleine ergab sich für den Probenfluss demnach 7 L min⁻¹. Für den Betrieb von FINCH als Gesamtsystem ergab sich ein Probenfluss von 2 L min⁻¹, da sich in diesem Fall die weiteren Mischflüsse (Q_W , Q_C und Q_M) mit dem Q_A zu einem Gesamtfluss von 7 L min⁻¹ durch die FINCH-Optik addieren. Tabelle 2.5 zeigt in einer Übersicht die benutzten Flussraten während der Experimente in dieser Arbeit.

Tabelle 2.5: Übersicht über die bei den Experimenten benutzten Flüsse in FINCH oder im Aufbau mit der FINCH-Optik alleine.

FINCH komplett [L min ⁻¹]		F-OPS alleine [L min ⁻¹]	
Q_A	2	Q_A	7
Q_C	4		
$Q_W + Q_M$	1		
Summe:	7		7

Als Referenz zur Bestimmung der Luftfeuchtigkeit kann nach FINCH auch noch ein Taupunktspiegel (MBW 373) über einen Dreiwegehahn in den Aufbau integriert werden. Ein dafür notwendiger weiterer MFC wird, wie ebenfalls die MFCs zur Steuerung der Mischluft in der Mischkammer, über einen PC gesteuert, auf welchem auch die Auswertprogramme der

externen Messgeräte ausgeführt wird. Der benötigte Fluss für den MBW wird durch die Pumpe in FINCH mitbedient, wie es auf Abbildung 2.23 zu sehen ist.

Unter Umständen ist es notwendig die mit FINCH und/oder FINCH-Optik ermittelten Werte in gängige Einheiten umzurechnen. Dies ist besonders im Hinblick auf den Vergleich der FINCH-Optik mit anderen Messgeräten notwendig. Wie aus Kapitel 2.7 bekannt, werden die Daten des F-OPS als Anzahl der gemessenen Partikel pro Sekunde [s^{-1}] aufgeschrieben.

Die Anzahlkonzentration (N) ergibt sich aus der Anzahl der gezählten Partikel (n) in einem Zeitintervall (t) bezogen auf die Flussrate des Probenflusses (Q):

$$N = \frac{n}{t \cdot Q} \quad 2.13$$

Angaben zum statistischen Fehler finden sich im Anhang III. Bei den Labormessungen wurden weiter verschiedene Probesubstanzen benutzt, welche in Tabelle 2.6 kurz erläutert werden sollen. Die als „Teststäube“ bezeichneten Stoffe werden lediglich zu Überprüfung der Funktionalität der FINCH-Optik benutzt. Eine genauere Erläuterung ist deshalb nicht notwendig.

Tabelle 2.6: Übersicht der im Labor benutzten Substanzen.

Substanz	Kurzbeschreibung
Snomax [®]	Polydisperser „Snowinducer“ auf Basis von <i>Pseudomonas syringae</i> , wird mit VE-Wasser und Atomizer verbreitet.
Riboflavin	als Lebensmittelfarbe in Form von polydisperserem Pulver erhältlich.
Ammoniumsulfat	ein Salz, leicht löslich in Wasser, wird mit VE-Wasser und Atomizer verbreitet.
PSL	Polysterene Latex; kommerziell beziehbare monodisperse Polymerpartikel in wässriger Lösung; erhältlich in unterschiedlichen Größen.
Melamin	Melaminharzpartikel; kommerziell beziehbarer, monodisperser Feststoff; erhältlich in unterschiedlichen Größen.
Teststäube	
argentinischer Staub	Staubprobe aus Argentinien (keine genauere Angabe)
Illit (NX)	Referenzstoff aus Tonmineralien
namibischer Staub	Staubprobe aus Namibia (keine genauere Angabe)
Pinienpollen	Probe der Pollen der italienischen Steinkiefer
Saharastaub	Staubprobe aus der Sahara (keine genauere Angabe)
tunesischer Staub	Staubprobe aus Tunesien (keine genauere Angabe)

3 Charakterisierung: Optik

In diesem Kapitel sind erste Messungen und Ergebnisse mit der neuen FINCH-Optik dargestellt. Zunächst werden die optimalen Grundeinstellungen beschrieben und die elektrische Aufnahme geprüft. Erste Streulichtmessungen sowie weitere Charakterisierungen der Optik schließen daran an.

3.1 Wahl der Verstärkungsspannungen

Die Verstärkungsspannung U_C der Photomultiplier hat direkten Einfluss auf die Sensitivität dieser (vgl. Kap. 2.5). Eine optimale Wahl der Verstärkungsspannungen ergibt sich, wenn kleine Partikel noch detektiert werden können und gleichzeitig für große Partikel noch eine gute Größenunterscheidung möglich ist.

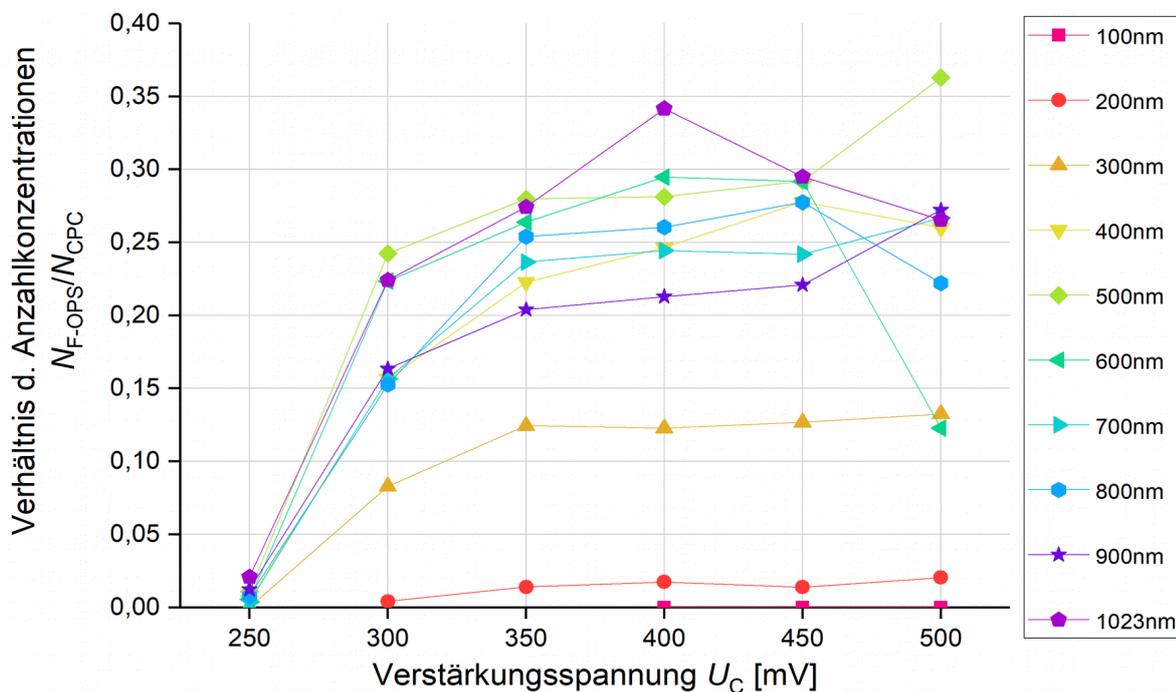


Abbildung 3.1: Verhältnis der gezählten Partikel unterschiedlicher Größe von FINCH-Optik und einem CPC (TSI 3025) aufgetragen gegen die Variation der Verstärkungsspannung. Dargestellt sind Werte des „Forward-Kanals“ CH2.

Um ein optimale Wahl der Verstärkungsspannungen zu treffen, wurde im Versuchsaufbau nach Kapitel 2.9.3 Ammoniumsulfat-Partikel ($(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$) größenselektiert durch die FINCH-Optik geleitet. Die Optik wurde alleine (d. h. ohne Kammer) betrieben und die Ammoniumsulfat-Partikel wurden „nass“ mit dem Atomizer erzeugt. Die Verstärkungsspannungen des CH2 wurden variiert und bei unterschiedlichen Partikeldurchmessern (von 100 nm bis ca.

1000 nm) die mit dem F-OPS gemessene Anzahlkonzentration zur Anzahlkonzentration eines parallel betriebenen Partikelzählers (TSI 3025 CPC) ins Verhältnis gestellt.

Abbildung 3.1 zeigt eine Variation von U_c des CH2 im Bereich von 250 bis 500 mV bei unterschiedlichen Partikelgrößen. Bei kleinen Partikelgrößen (100 und 200 nm) werden nur wenige Partikel von der FINCH-Optik detektiert, wodurch das dargestellte Verhältnis zwischen F-OPS und CPC (TSI 3025) am geringsten ist. Selbst bei hohen Verstärkungsspannungen erreicht der F-OPS hier nur etwa 3 % der Konzentration des CPCs.

Ab einer U_c von 350 mV liegen die Zählverhältnisse jeder Partikelgröße in etwa auf einem Maximum (für $D_p = 400 - 1023$ nm bei 20 - 30 %). Es bietet sich demnach an, für CH2 eine Verstärkungsspannung von mind. 350 mV zu benutzen, so dass eine bestmögliche Zähleffizienz ermöglicht wird.

Da die Photomultiplier nur einen Ausgabebereich von 0 bis 5 V haben ist es weiter notwendig auch die obere Grenze zu betrachten. Ist die Verstärkungsspannung sehr hoch gewählt, erreichen auch kleinere Partikel schon einen hohen Wert der Ausgabespannung, nahe des Maximums. Kleine und große Partikel erzeugen dann ein ähnlich hohes Signal, d. h. eine eindeutige Größenauflösung wird dadurch nicht mehr möglich.

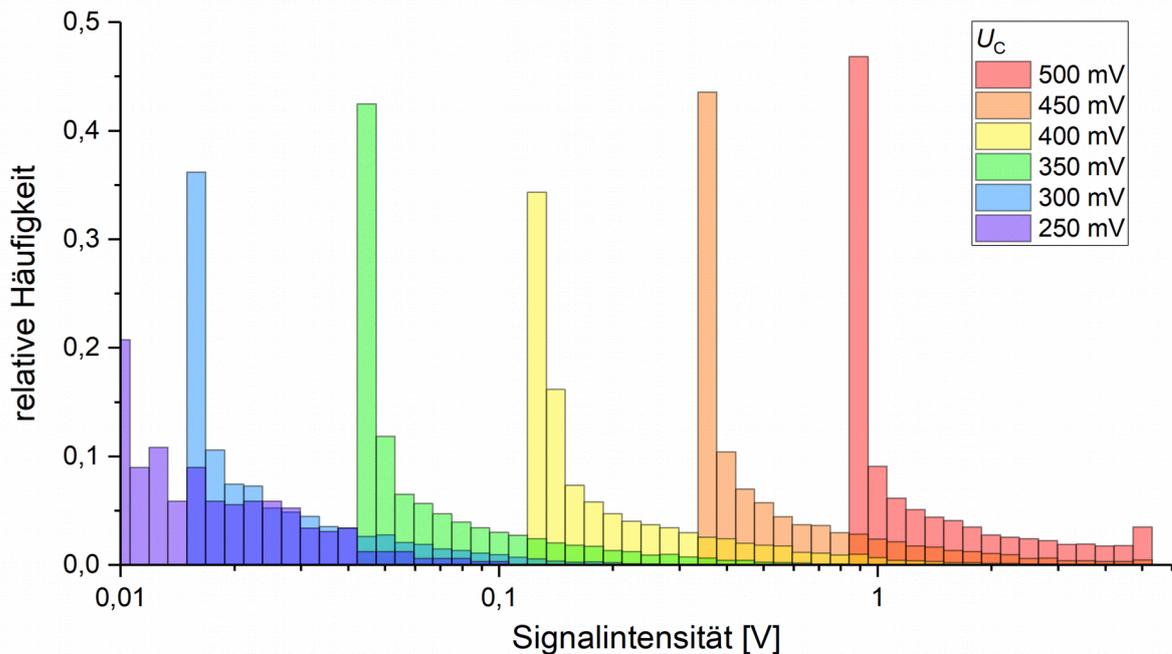


Abbildung 3.2: Häufigkeitsverteilungen von 800 nm Ammoniumsulfat-Partikeln bei unterschiedlichen Verstärkungsspannungen.

Dieses Verhalten ist für CH2 auf Abbildung 3.2 zu erkennen. Hier wird die Verteilung der Signal-Intensitäten von 800 nm Ammoniumsulfat-Partikeln gezeigt. Deutlich erkennbar ist, dass

sich mit zunehmender U_c die Verteilungen in Richtung der höheren Ausgabespannungen verschieben. Bereits bei 450 mV sieht man einen deutlichen Eintrag im 5 V -Kanal der Verteilung.

Daraus ergibt sich, dass für CH2 eine U_c von 350 mV am geeignetsten ist. U_c ist damit hoch genug um eine gute Detektionseffizienz bei $D_p \geq 400$ nm zu erreichen und niedrig genug um große Partikel ($D_p > 1 \mu\text{m}$) aufzulösen.

Die Verstärkungsspannungen für die anderen Kanäle lassen sich auf gleicher Weise ermitteln, wie es für CH2 geschehen ist. Alle verwendeten U_c -Werte liegen im mittleren Bereich der möglichen Einstellung und bieten so einen guten Schnitt zwischen den eben gestellten Bedingungen. Tabelle 3.1 zeigt die Einstellungen aller Photomultiplier wie sie für alle weiteren Experimente genutzt wurden.

Auffallend ist, dass CH2 nur mit einer Verstärkungsspannung von 350 mV betrieben wird, während die anderen Kanäle mit 500 mV betrieben werden. Dies liegt daran, dass in Vorwärtsrichtung die höchste Intensität des gestreuten Lichtes detektiert wird und somit der beschriebene Effekt schon eher eintritt.

Tabelle 3.1: Übersicht über die gewählten Verstärkungsspannungen der einzelnen Photomultiplier.

Photomultiplier	U_c [mV]
CH0	500
CH1	500
CH2	350
CH3	500

3.2 Signalaufnahme und Verarbeitung

Um eine Referenz über die Leistungsfähigkeit und die Verarbeitungszeit der FINCH-Optik zu erhalten, wurde wie in Kapitel 2.9.1 beschrieben der F-OPS mit einer LED betrieben. Mit dieser Methode werden periodische, elektrische Impulse in optische Signale umgewandelt, die dann von den Photomultiplier detektiert werden können.

Abbildung 3.3 zeigt das Ergebnis einer solchen Messung. Dargestellt ist unter a) der zeitliche Verlauf einer Rechteckfunktion mit einer am Frequenzgenerator eingestellten Frequenz von mit $f_g \approx 10$ kHz. Durch Definieren einer unteren und oberen Breitengrenze eines Peaks (vgl. Kap. 2.7) ist es möglich, jedes einzelne Rechteck als einen Peak zu zählen. So kann (je nach

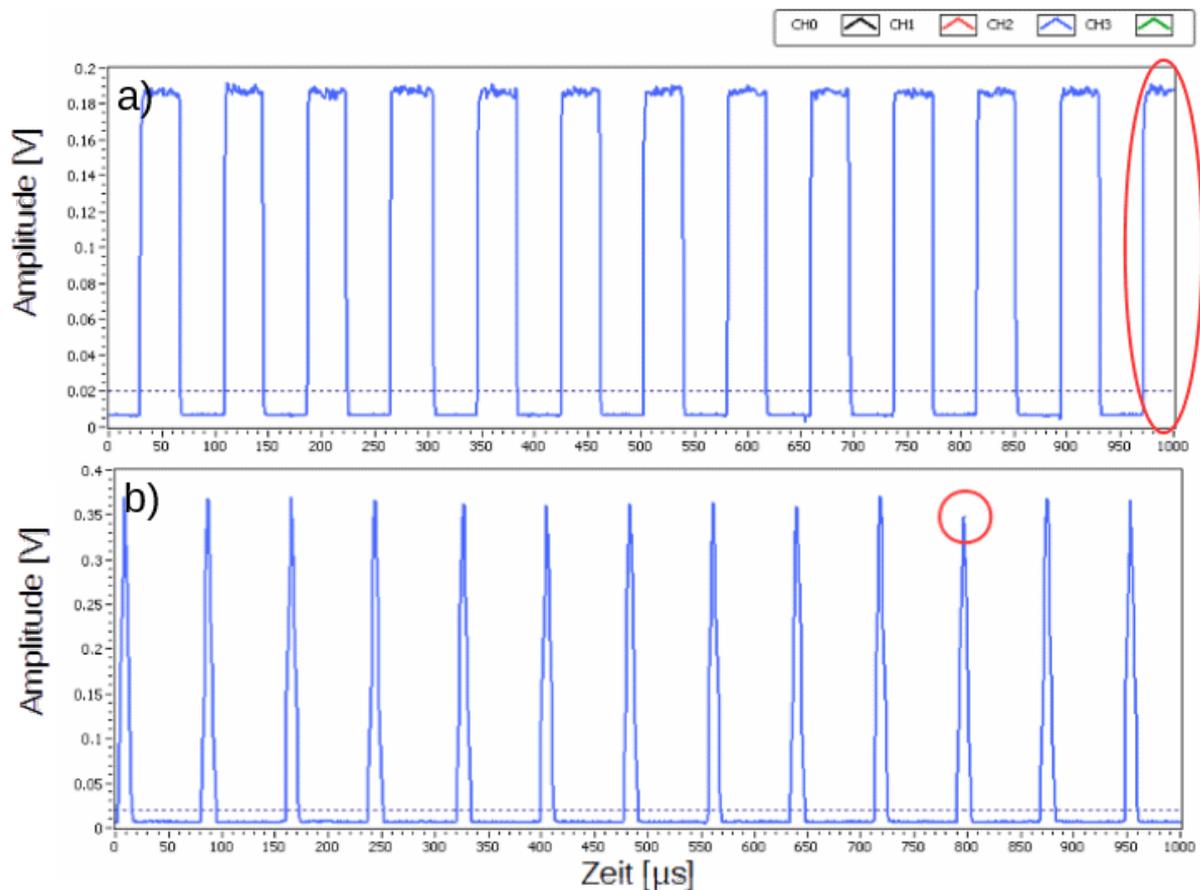


Abbildung 3.3: Zeitlicher Verlauf der Amplituden des CH2 bei Detektion eines Signal mit einer Frequenz von 10 kHz. Oben (a) wurde ein Rechtecksignal gewählt und unten (b) ein Dreieckssignal.

gewählter Breite des Peaks) ein Signal nicht gezählt werden, wenn die Mindestbreite unterschritten oder die maximale Begrenzung überschritten wird. In dem Beispiel in Abbildung 3.3a) kann man dies am letzten Rechteck ab etwa 970 μs erkennen. Das Rechteck ist abgeschnitten und wird so, bei entsprechende Einstellung, nicht mehr gezählt.

Der daraus resultierende Fehler in der Anzahl der detektierten Spitzen ist abhängig von der Frequenz und somit von der Breite der einzelnen Impulse. Je kleiner die Frequenz ist, desto größer die Wahrscheinlichkeit für eine Fehlzählung. Die Anzahl der Impulse wird demnach unterschätzt.

Eine weitere Beobachtung zeigt sich ebenfalls auf Abbildung 3.3: Bei beiden Abbildungen werden 13 Signalspitzen dargestellt. Bei einer Frequenz von 10 kHz und einer Abtastungsrate von 1MS/s sollten allerdings nur 10 Spitzen in einem Sample von einer Millisekunde gezählt werden. Mit einer Oszilloskop-Messung (Tektronix TDS 1012) direkt am Ausgang des Photomultipliers konnte ausgeschlossen werden, dass es sich um ein Umwandlungsproblem zwischen elektrischem und optischem Signal handelt. Daraus resultiert, dass nur die Aufnahme

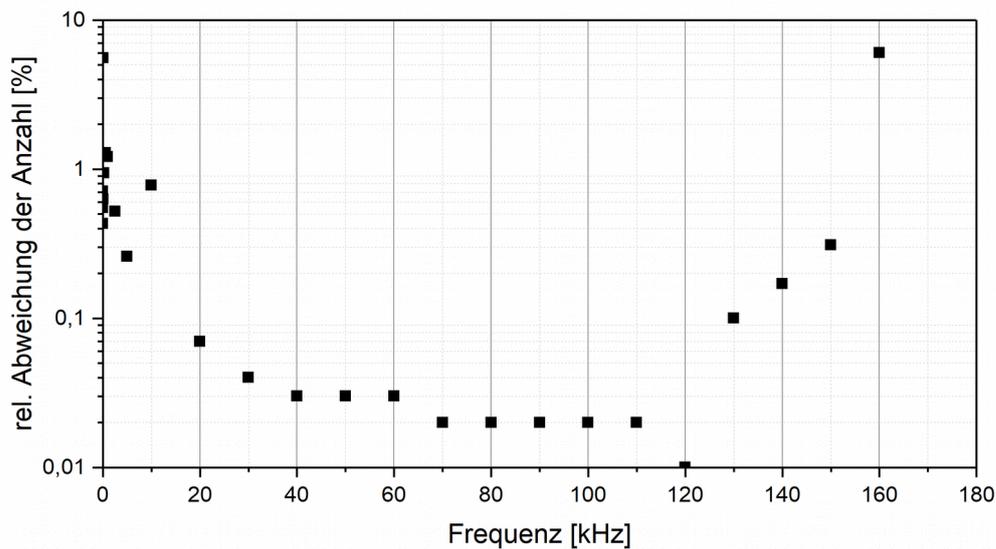


Abbildung 3.4: Relative Abweichungen der zweiminütigen Mittel einer Messung bei unterschiedlichen Blinkfrequenzen der LED.

über den cRIO als Ursache in Frage kommt. Demnach muss die Abtastung durch den cRIO mit einer Rate geringer als die angegebene 1 MS/s erfolgen muss.

Durch Variation der Frequenz zeigte sich ein linearer Zusammenhang zwischen der eingestellten Frequenz der LED sowie der gezählten Spitzen durch das System der FINCH-Optik (Abb. 3.5). Im Bereich von 10 – 130 kHz kann die Abhängigkeit der gezählten Impulse von der eingestellten Frequenz als streng linear angenommen werden. Erst ab 140 kHz zeigt sich keine Änderungen mehr bzw. die Anzahl der Impulse geht gegen Null. Ursache ist auch hier die Abtastrate des cRIOs. Auch bei niedrigen Frequenzen (in Abb. 3.5 sind auch Frequenzen zwischen 1 – 500 Hz aufgetragen) gilt dieser lineare Zusammenhang nicht.

Die in Abbildung 3.5 gezeigten Daten beziehen sich jeweils auf arithmetische Mittelwerte einer zweiminütigen Messung pro Frequenz. Für das obige Beispiel mit 10 kHz (Abb. 3.3) ergibt sich ein Mittelwert von 13.513 gezählten Impulsen pro 1000 verarbeiteten Samples. Die Standardabweichung beträgt dabei $\pm 0,78\%$. Dies entspricht demnach den 13 gezeigten Impulsen auf Abbildung 3.3. Mit der aus Abbildung 3.5 abgeleiteten linearen Gleichung lässt sich ein Rückschluss auf die Abtastrate des cRIOs ermitteln. Im Frequenzbereich von 10 – 130 kHz ergibt es sich, dass die Dauer einer Abtastung im Mittel $1,30 \pm 0,02 \mu\text{s}$ beträgt. Daraus lässt sich auch ableiten, dass im Gegensatz zur Herstellerangabe das System aus cRIO 9074 und NI 9223 in Verbindung mit dem eingesetzten PC „nur“ eine Sample-Rate von etwa 770 kS/s erreicht.

Für die Standardabweichungen der gezählten Impulse gilt nach Abbildung 3.4, dass diese im betrachteten Frequenzbereich zwischen 20 und 120 kHz deutlich unter einer Promille liegt.

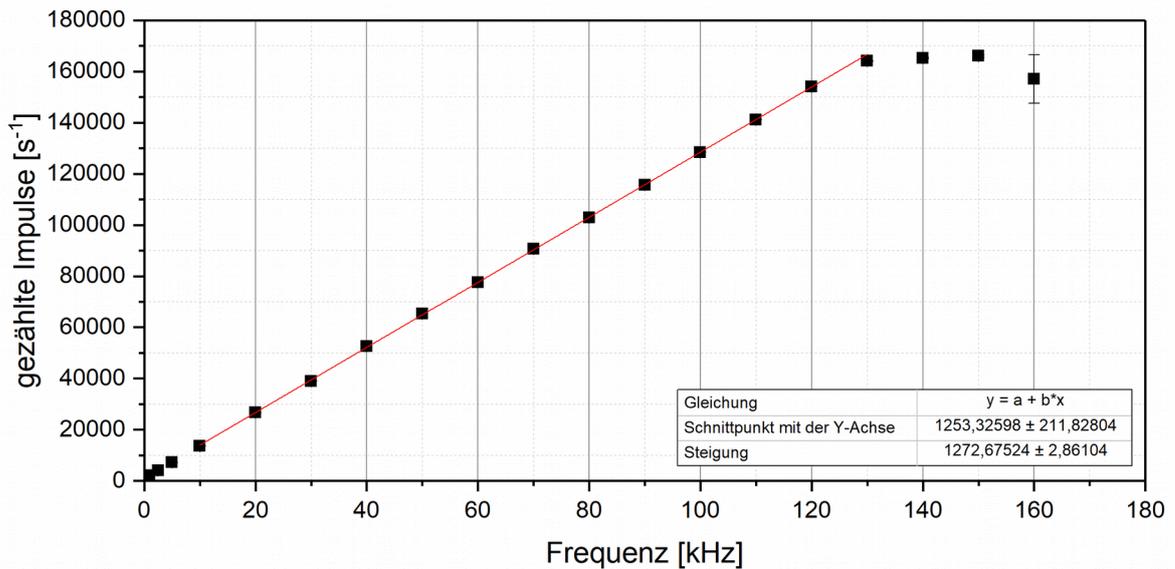


Abbildung 3.5: Variation der Blinkfrequenz der LED und gezählte Lichtimpulse mit dem F-OPS. Aufgetragen ist jeweils das arithmetische Mittel der gezählten Impulse pro 1000 Samples einer zweiminütigen Messung.

Wie erwartet nimmt die Abweichung mit abnehmender Frequenz zu (vgl. Abb. 3.3 a). Auch zu höheren Frequenzen steigt die Abweichung deutlich an und liegt bei 160 kHz schon bei etwa 6 % (vg. Abb. 3.5).

Eine weitere Fehlerquelle zeigt sich bei schmalen Impulsen und damit den höheren Frequenzbereichen. Die Abbildung 3.3 b) zeigt dazu ein Dreieckssignal mit schmalen Spitzen. Je schmaler der Impuls, desto höher die Wahrscheinlichkeit, dass dessen Maximum nicht genau abgetastet wird und damit die Höhe des Signals unterschätzt wird. Der markierte Peak in Abbildung 3.3 b) ist beispielsweise sichtbar niedriger als die angrenzenden Spitzen. Die Fehlschätzung der Amplitude ist dabei abhängig von der Abtastrate des cRIO. Je höher die Abtastrate, desto genauer lassen sich die eigentlichen Amplituden detektieren.

Die Möglichkeit größen aufgelöste Messungen mit dem F-OPS zu machen kann ebenfalls im Aufbau nach 2.9.1 gezeigt werden. Hierzu wurde bei gleicher Blinkfrequenz der LED ($f_g \approx 10$ kHz) die Amplitude variiert. Abbildung 3.6 zeigt dazu die relativen Häufigkeiten unterschiedlicher Amplituden. Die Variationen sind von 1 - 6 nummeriert und orientieren sich lediglich grob an der analogen Einstellmöglichkeit des Funktionengenerators. Die Höhe der Amplitude des LED-Signals wurde von Schritt 1 zu 6 erhöht. Es zeigt sich deutlich, dass die Variation der Amplitude des LED-Signals auch zu einer Änderung in der Intensitätsverteilung führt. Die

Verteilungen sind dabei recht schmal und haben im Mittel eine Standardabweichung von 0,001 V, was für eine exakte Abbildung der Amplitudenvariation spricht.

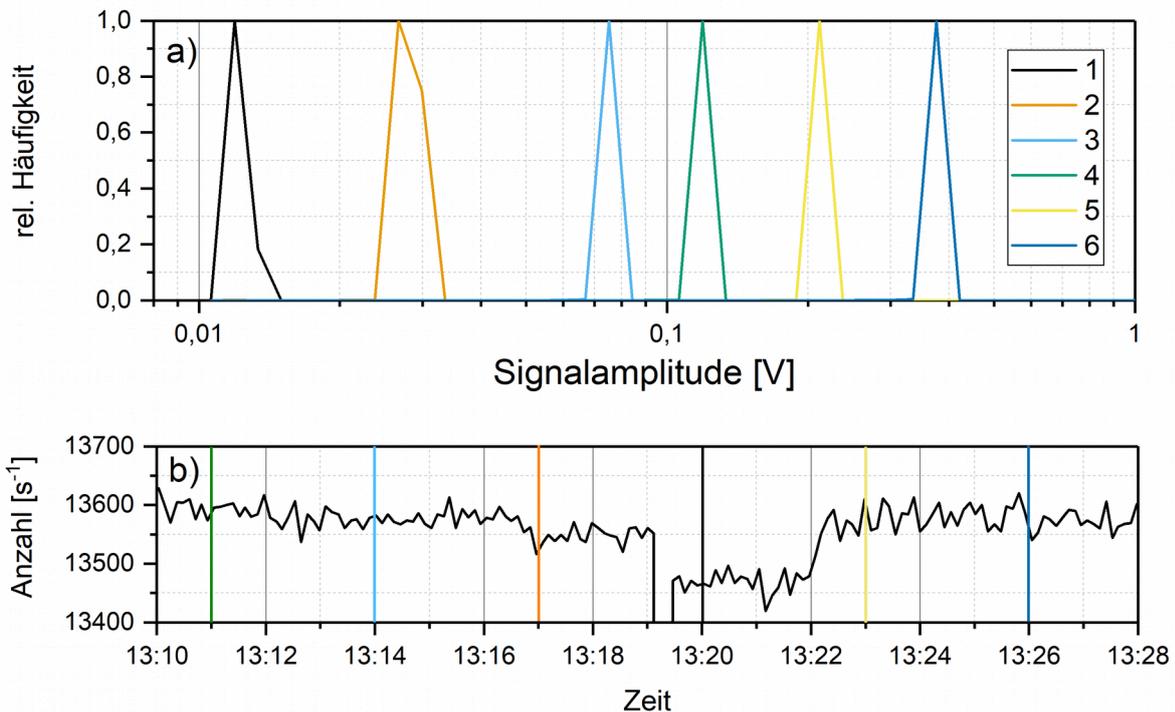


Abbildung 3.6: (a) Relative Häufigkeitsverteilungen der Amplitudenintensität. (b) Anzahl der gezählten Impulse im betrachteten Zeitraum aufgetragen.

Die Anzahl der gezählten Impulse ist ebenfalls auf Abbildung 3.6b) aufgetragen. Diese deckt sich mit den vorherigen Erkenntnissen und liegt über den Zeitraum bei 13509 ± 477 gezählten Impulsen $[s^{-1}]$. Wie erwartet ändert sich bei einer Variation der Amplitude nicht die Anzahl der gezählten Impulse.

3.3 Messung von Testaerosol

Die im vorherigen Kapitel gewonnenen Erkenntnisse beziehen sich rein auf die optisch/elektrische Verarbeitung des F-OPS. Effekte von Streuung an Aerosolpartikeln werden im folgenden behandelt. Dabei werden mit dem in Kapitel 2.9.3 beschriebenen Messaufbau unterschiedliche Partikel erzeugt und durch den F-OPS geleitet.

3.3.1 Erste Streulichtmessung

Zuerst wird eine Messung mit gröbenselektierten Snomax[®]-Partikeln ($D_p = 200$ nm) gezeigt, welche über den Atomizer erzeugt wurden und durch die FINCH-Kammer zur FINCH-Optik geleitet wurden.

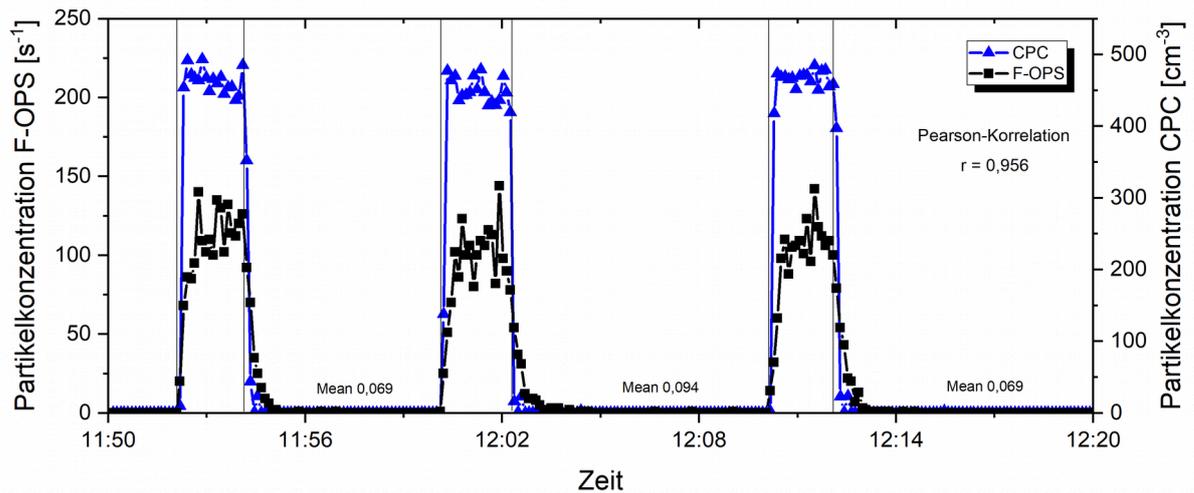


Abbildung 3.7: Dargestellt sind Snomax[®]-Partikelimpulse mit einer Dauer von zwei Minuten. Die schwarze Linie gibt die von F-OPS aufgenommene Partikelanzahl [s^{-1}] wieder und in blau wurde als Referenz ein CPC eingezeichnet. Die Mittelwerte der Konzentration nach Schließen des Ventils sind ausgegeben.

Abbildung 3.7 zeigt eine Zeitreihe der F-OPS-Partikelanzahl sowie der Konzentration eines parallel betriebenen CPCs.

Durch Änderung des Zuflusses mittels Dreiwegehahn wurde in regelmäßigen Abständen zwischen Probenluft mit Snomax[®]-Aerosol und partikelfreier Luft gewechselt. Bei Öffnen des Ventils stieg die Konzentration am CPC schnell auf einen Maximalwert an, der F-OPS erreicht ebenfalls ein Maximum, benötigt aber mehr Zeit zum Erreichen des Plateaus. Auch beim Umschalten auf gefilterte Luft erkennt man dieses Verhalten: die Konzentration des CPCs fällt rasch auf null zurück, während die mit dem F-OPS ermittelten Werte langsamer auf den Nullwert zurückfallen.

Es ist aber auf Abbildung 3.7 grundsätzlich ersichtlich, dass der Verlauf der Kurven von CPC und F-OPS deutlich einander folgen. Mathematisch lässt sich das durch eine sehr starke Korrelation (nach Pearson⁴ $r = 0,956$) ausdrücken. Demnach lässt sich bereits jetzt feststellen, dass die FINCH-Optik in der beschriebenen Form inkl. aller Umbau- und Erweiterungsmaßnahmen sowie neuer Software die Funktion eines Partikelzählers erfüllen kann.

Betrachtet man die Filterphasen des Experimentes, lassen sich weitere Aussagen über die Funktionsfähigkeit des F-OPS treffen. Nachdem auf Filter geschaltet wurde, nahm die Partikelkonzentration im F-OPS deutlich ab und ging schnell gegen null. Im Mittel werden zwischen den Partikelimpulsen etwa $0,07 s^{-1}$ gezählt, was etwa einem Partikel alle 14 Sekunden entspricht. Dabei muss es sich aber um verbleibende Partikel in Kammer oder Aerosolzulei-

4 benannt nach dem britischen Mathematiker Karl Pearson (1857 – 1936).

tung handeln, da die Wahrscheinlichkeit eines Counts mit der Dauer der Nullfilterphase abnimmt. Nach dem dritten Partikelimpuls im obigen Beispiel findet sich beispielsweise ab 12:15 kein gezähltes Partikel mehr. Auf diese Weise können auch Fehlinterpretationen durch elektrische Fehlwerte ausgeschlossen werden.

3.3.2 Zähleffizienz

Das Verhältnis der gemessenen Partikelkonzentrationen von F-OPS und einem CPC lässt auf die Zähleffizienz der FINCH-Optik schließen. Um eine solches Verhältnis zu berechnen müssen zunächst die F-OPS-Daten nach Kap. 2.9.3 in Konzentrationen der Einheit $[\text{cm}^{-3}]$ umgerechnet werden. Eine Anpassung an die Erkenntnisse aus Kapitel 3.2 kann durch Dividieren von n durch 1,3 erfolgen (da die mittlere Dauer eines Samples $1,3 \mu\text{s}$ beträgt und demnach die gesamte Samplezeit 1,3 Sekunden beträgt). Da allerdings nicht direkt von den periodischen Signalverläufen auf Partikelmessungen geschlossen werden kann, wird dies zunächst vernachlässigt.

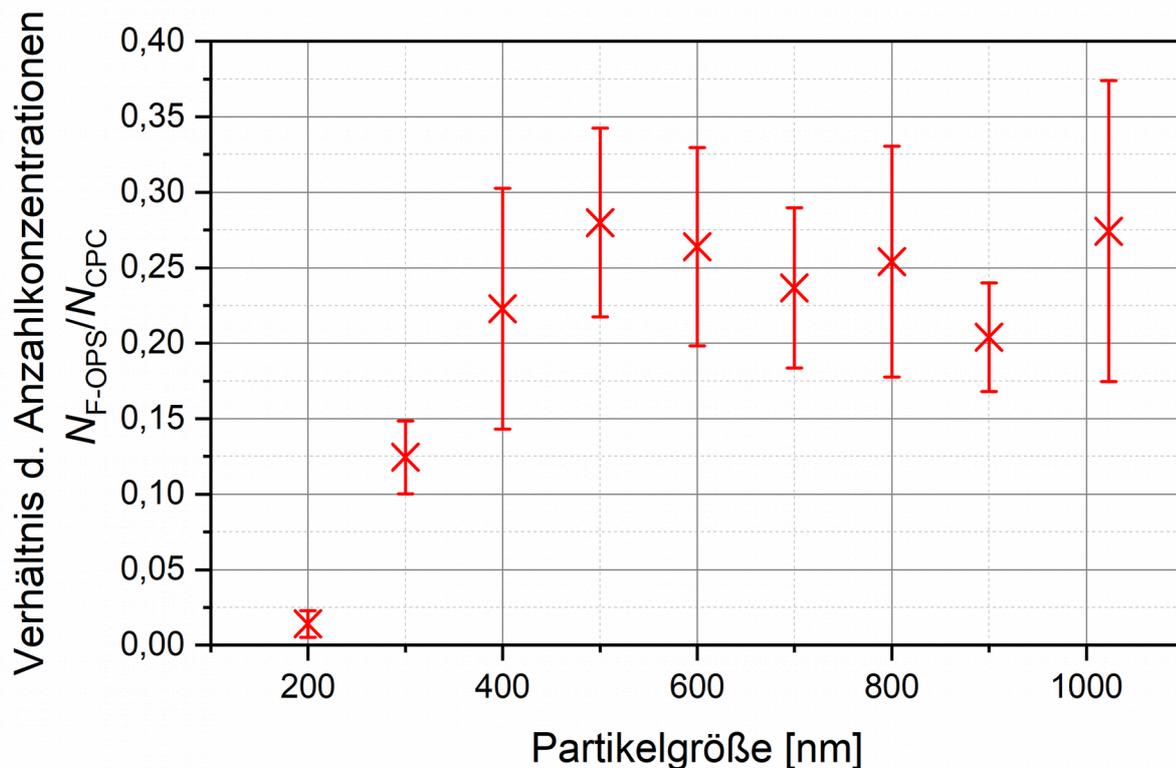


Abbildung 3.8: Zähleffizienz des F-OPS im Vergleich mit einem CPC (TSI 3025). Die roten Kreuze geben die Mittelwerte der Messzeiträume an. Die Fehlerbalken werden durch die Standardabweichungen beider Messgrößen bestimmt.

Um die Zähleffizienz der FINCH-Optik zu bestimmen, wurde wieder der Messaufbau aus Abb. 2.23 benutzt, um über den DMA gröbenselektierte Ammoniumsulfat-Partikel durch den

F-OPS (ohne FINCH-Kammer) zu leiten. Das Verhältnis der Partikelanzahlkonzentrationen zwischen F-OPS und CPC wurde in Abbildung 3.8 aufgetragen. Dabei ist zu erkennen, dass das Verhältnis der Konzentrationen und damit die Zähleffizienz des F-OPS bei kleinen Partikelgrößen (bis 400 nm) stark ansteigt, bevor ab 500 nm das Verhältnis im Mittel bei etwa 25 % liegt ($25,2 \pm 6,5$ %).

Somit kann man festhalten, dass die gemessenen Partikelkonzentrationen mit der FINCH-Optik etwa mit einem Faktor 4 multipliziert werden müssen, damit die im Größenbereich ermittelten Referenzkonzentrationen erreicht werden.

Dies gilt allerdings nur im Betrieb ohne FINCH-Kammer, da eventuelle Verluste in dieser hierbei nicht berücksichtigt werden (dies folgt in Kap. 4.2).

3.3.3 Größenverteilung

Für die Analyse der Anzahlgrößenverteilung eines Probeaerosols wird eine Häufigkeitsverteilung der mit dem F-OPS detektierten Signalamplituden erstellt. Ein erster Eindruck kann bereits in-situ mit dem Quicklook-Tool der Software gemacht werden. Abbildung 3.9 zeigt dazu einige erste Größenverteilungen von CH2 (rechte Seite) sowie CH0 + CH1 (linke Seite). Gezeigt sind jeweils die über F-OPS aufgenommen Amplituden in Volt. Die Graphen a) und b) zeigen eine Messung mit wenigen Partikeln mit kleiner Amplituden (das Maximum der Anzahl liegt bei CH2 zwischen 0,02 und 0,03 V). Der Unterschied zwischen CH0 + CH1 ist hier auch wieder die Sensitivität der eingesetzten Photomultiplier sowie die Abfrage in der Auswertung. Es gibt demnach deutlich weniger Partikel die einen Eintrag in CH0 und CH1 haben und gleichzeitig im Triggerkanal CH2 gesehen wurden.

In Reihe 2 der Abbildung 3.9 (Graphen c) und d)) lässt sich ganz deutlich eine zweite Mode erkennen, welche von großen Partikeln dominiert werden muss. In beiden Graphen werden Amplitudenwerte bis zum maximalen Ausgabewert gezeigt, wobei diese sich deutlich von der von der kleineren Mode abgrenzen.

Im Gegensatz dazu stehen die Graphen e) und f), in welchem jeweils ein volles Spektrum von Signalamplituden dargestellt ist. Allerdings lässt sich auch hier ein Maximum bei niedrigeren Amplituden sowie ein weiteres im Maximalwert erkennen.

Zur Kalibrierung der FINCH-Optik wurden gröbenselektierte Partikel im Aufbau nach Kap. 2.9.3 gemessen. Zunächst wurden dafür Ammoniumsulfat-Partikel über den DMA selektiert und durch den F-OPS geleitet. Abbildung 3.10 zeigt dieses Experiment. Da die Wurzel der Intensität erst ab $D_p \approx 1 \mu\text{m}$ proportional zum Durchmesser des Partikels ist, ist in der Abbil-

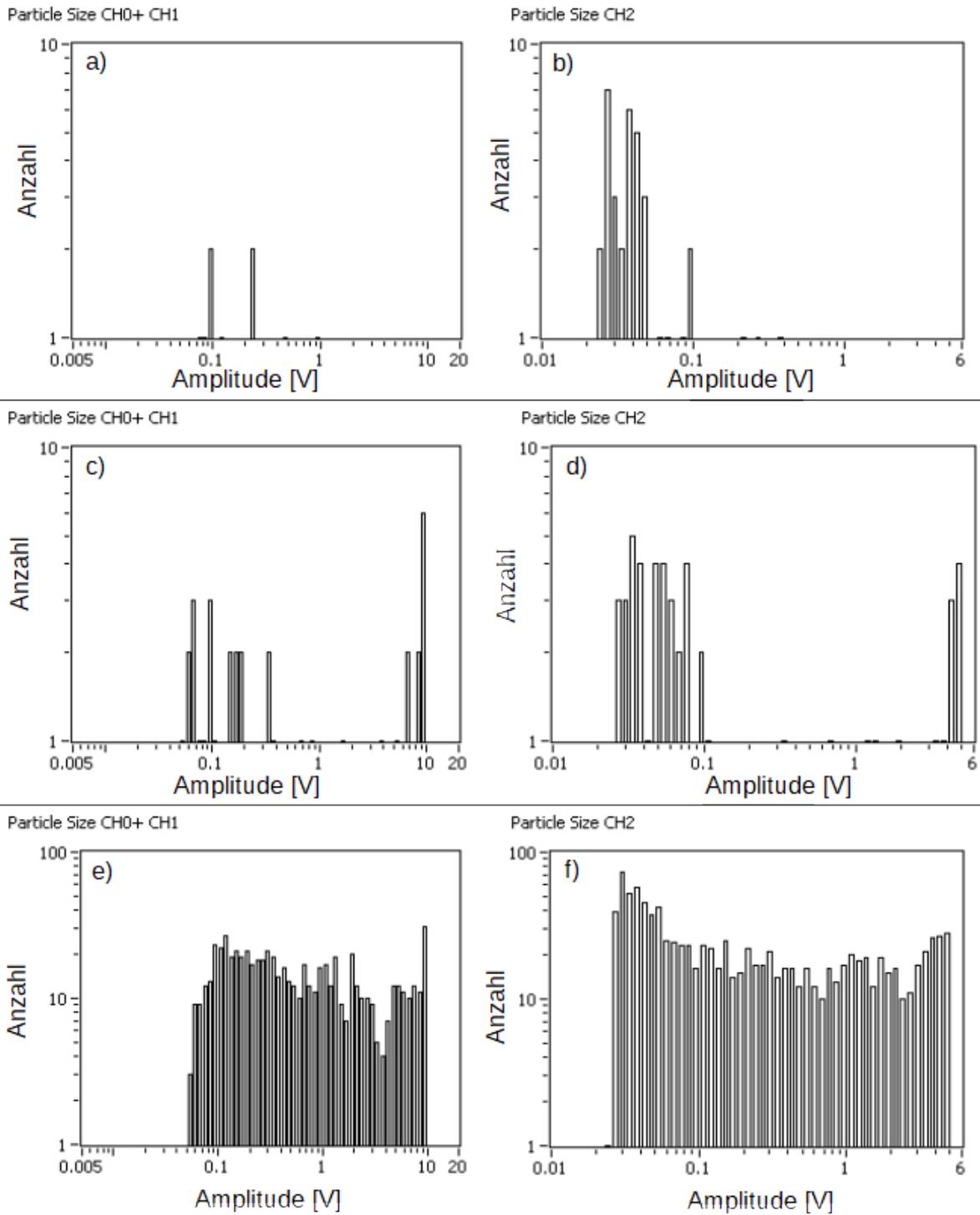


Abbildung 3.9: Mit dem Quicklook-Tool der F-OPS-Software erstellte, drei beispielhafte Größenverteilungen. Dargestellt sind jeweils auf der linken Seite die Amplitude von CH0 + CH1 sowie rechts CH2.

dung auch die ungewurzelte Verteilung der Intensitäten zu sehen (3.10b). Für die weiteren Experimente wird lediglich die Wurzel der Intensitäten dargestellt.

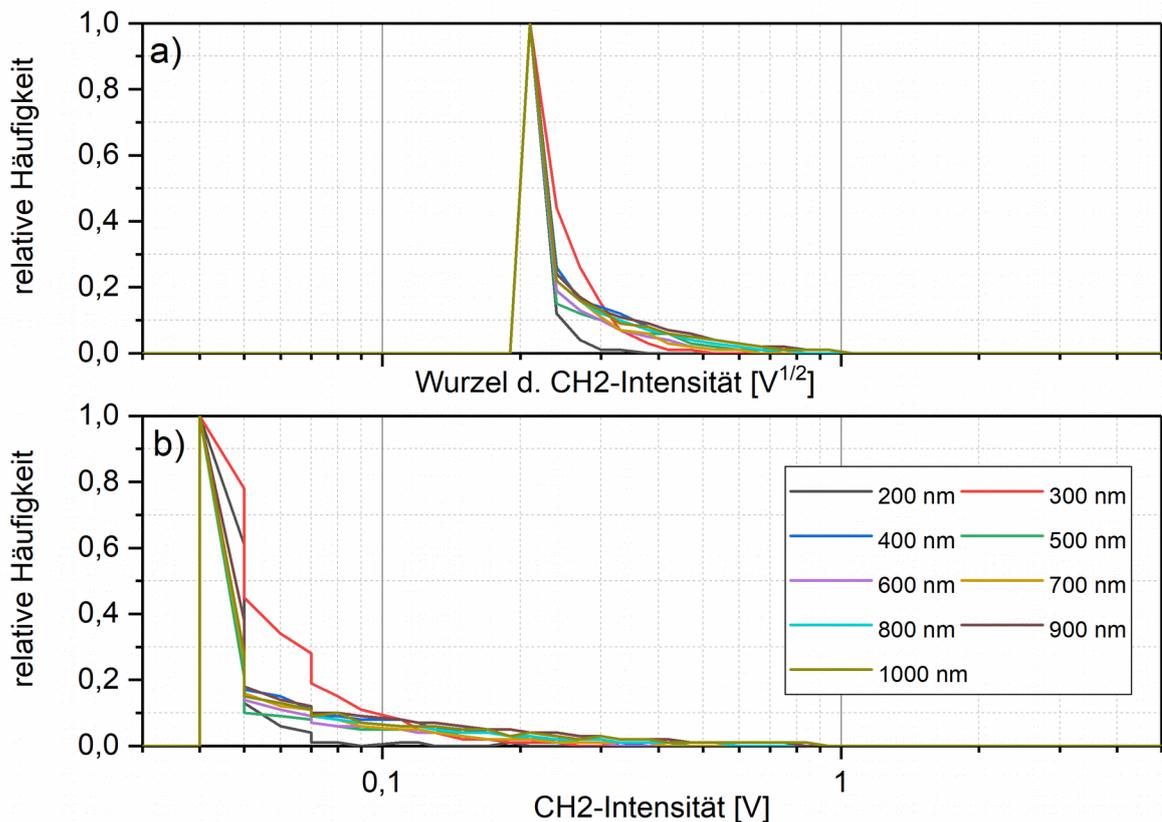


Abbildung 3.10: Anzahlgrößenverteilung für größenselektierte Ammoniumsulfat-Partikel mit $D_p = 200 - 1000$ nm. a) sind gewurzelte Intensitäten und b) die ursprünglichen Signale.

Abbildung 3.10 zeigt, dass sich im Bereich von 200 bis 1000 nm die Anzahlverteilungen kaum unterscheiden. Die Maxima liegen dicht übereinander und auch der Flankenverlauf scheint für alle Größen ähnlich zu verlaufen.

Um größere Partikel in die Charakterisierung aufzunehmen, wurden im nächsten Schritt Melamin-Partikel der Größe 4, 7, und 9,5 μm „trocken“ in das System eingebracht und parallel mit einem TSI 3330 OPS gemessen. Abbildung 3.11 zeigt die dazugehörige gemittelte Verteilung einer Messung von jeweils einer Minute pro Größe.

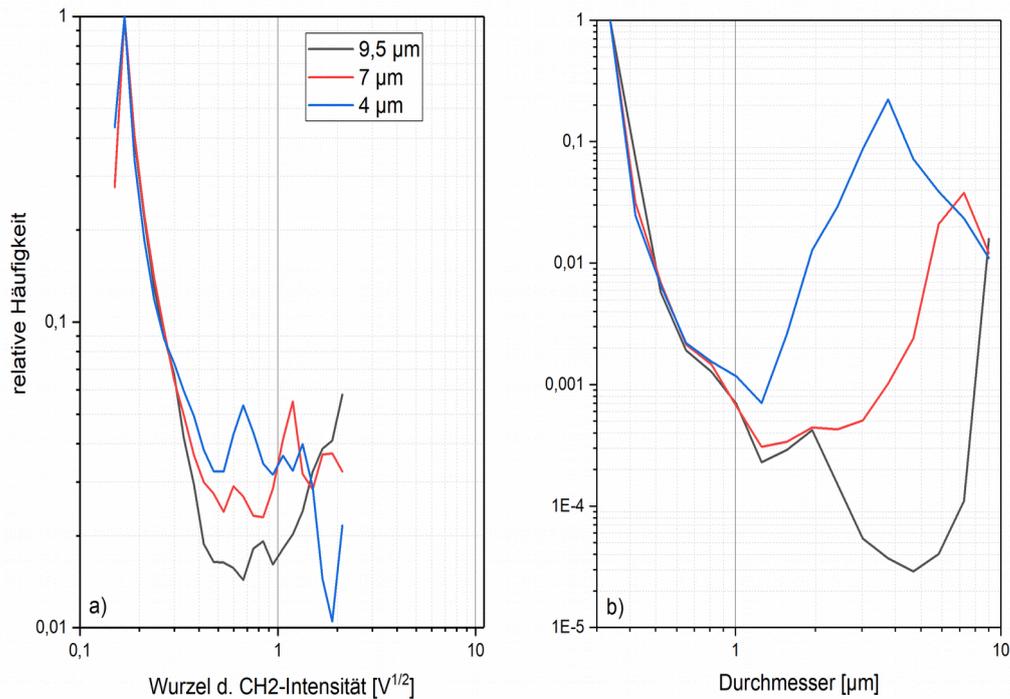


Abbildung 3.11: Größenverteilungen der Melaminpartikelmessungen für den F-OPS (a) und den TSI OPS (b).

Die Verteilungen beider Geräte besitzen ein Maximum bei kleinen Partikelgrößen, welches durch den Hintergrund bestimmt wird. Ein weiteres Maximum als Mode für die eingebrachten Melamin-Partikelgröße ist zu erkennen. Die Maxima in der Auflösung der TSI-OPS-Daten sind hier deutlich besser erkennbar als in den F-OPS-Daten. Durch Abziehen des Hintergrundsignals, also der Anzahlgrößenverteilung der Hintergrundluft, von den Messungen mit Probeaerosol lassen sich die Maximalwerte deutlich besser erkennen. Dies wird auf Abbildung 3.12 gezeigt.

Hier wird deutlich, dass sich das Maximum der Anzahl mit zunehmender Partikelgröße in Richtung höhere Werte von $I^{1/2}$ verschiebt. Es ist aber auch ersichtlich, dass es zu Überlagerungen der Partikelgrößen gekommen ist. Dies liegt an der eingeschränkten Möglichkeit die „großen“ Melaminpartikel zuverlässig in das System einzubringen.

Die Lage der Maxima der gezeigten Verteilungen und die zugehörigen Standardabweichungen wurden in Tabelle 3.2 eingetragen. Weiter wurde die Tabelle durch zwei weitere Partikelgrößen ergänzt. Hierbei handelt es sich um PSL-Partikel mit einer Größe von 2 und 3 μm, welche „nass“ über den Atomizer in das System eingebracht wurden. Die Verteilungen wurden auf gleiche Weise wie auch die Melaminpartikel ermittelt.

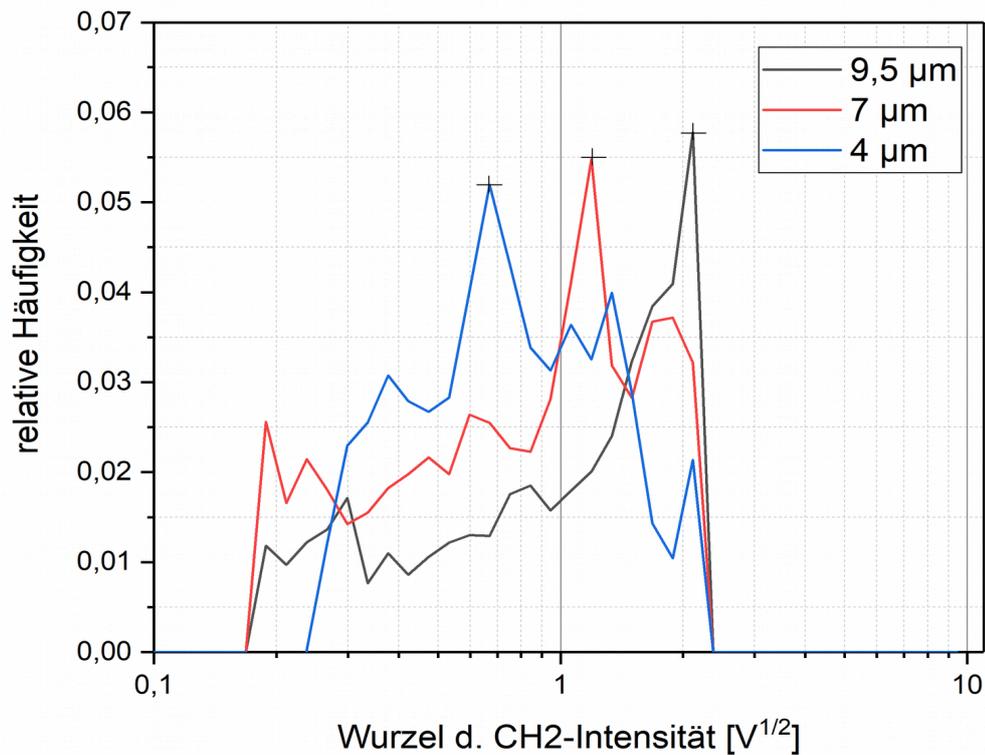


Abbildung 3.12: Größenverteilung von Melaminpartikeln nach Abzug des Hintergrundsignals

Tabelle 3.2: Statistische Kennzahlen der Partikelgrößenverteilungen der Messungen mit PSL- und Melaminpartikel.

Durchmesser [μm]	Modalwert [$\text{V}^{1/2}$]	Mittelwert [$\text{V}^{1/2}$]	Standardabw. [$\text{V}^{1/2}$]	Partikelart
2	0,266	0,320	0,095	PSL
3	0,474	0,568	0,299	PSL
4	0,669	0,862	0,470	Melamin
7	1,190	0,956	0,580	Melamin
9,5	2,112	1,145	0,656	Melamin

Es wird deutlich, dass Mittelwert und Modalwert mit zunehmender Partikelgröße ebenfalls ansteigen. Um eine Kalibration des F-OPS durchzuführen wurden die Modalwerte der Größenverteilungen gegen die dazugehörigen Partikeldurchmesser der benutzen Aerosolpartikel aufgetragen und eine lineare Anpassung vorgenommen (Abb. 3.13).

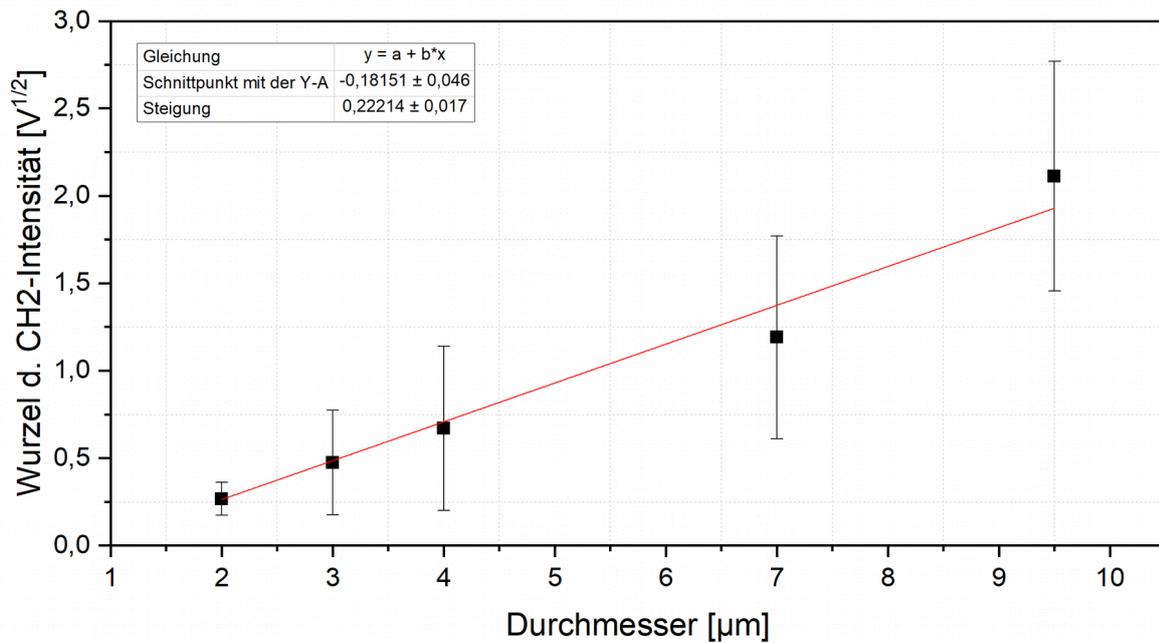


Abbildung 3.13: Kalibrierung der Partikelgröße: lineare Anpassung der Modalwerte der mit dem F-OPS ermittelten Größenverteilungen und der zugehörigen Partikelgröße. Fehlerbalken stellen Standardabweichungen dar.

Über die ermittelte Gleichung:

$$y = -0,181 \sqrt{V} + 0,222 \frac{\sqrt{V}}{\mu\text{m}} \cdot x \quad 3.1$$

lässt sich eine direkte Beziehung zwischen dem Partikeldurchmesser und der Intensität der gemessenen Signale ableiten. Es gilt aber festzuhalten, dass diese Approximation streng genommen nur in dem gezeigten Größenbereich gilt.

Um auch für kleinere Partikel eine Ableitung zu bekommen, wurden Größenverteilungen von TSI OPS und F-OPS gegenübergestellt. Abbildung 3.14 zeigt beispielhaft jeweils eine Größenverteilung aus zwei Zeiträumen einer Außenluftmessung (vgl. Kap. 3.4), bei welchen jeweils die Daten beider Messgeräte in einem Graph aufgeführt wurden.

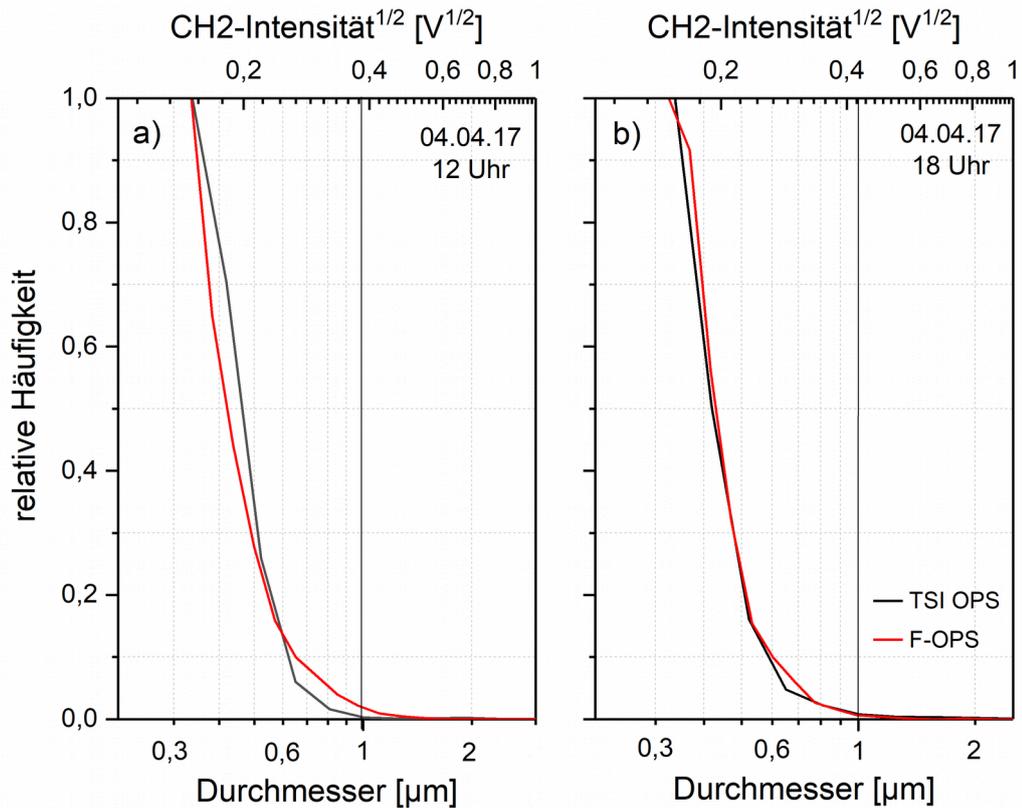


Abbildung 3.14: zwei beispielhafte Größenverteilungen von F-OPS und TSI OPS, wobei die obere X-Achse sich auf den F-OPS bezieht (rote Linie) und die untere X-Achse auf den TSI OPS (schwarz).

Man erkennt, dass für beide Zeiträume der Abfall der Flanken zu größeren Partikeln ähnlich verläuft. Aus dieser Tatsache, sowie der in Abbildung 3.14 verwendeten zweiten X-Achse lässt sich ein Zusammenhang zwischen dem mittels TSI OPS ermittelten Partikeldurchmesser und des F-OPS-Signals von $I^{1/2}$ herleiten.

Auch hier ergibt sich ein linearer Zusammenhang mit:

$$y = 0,030 \sqrt{\bar{I}} + 0,372 \frac{\sqrt{\bar{I}}}{\mu\text{m}} \cdot x \quad , \quad 3.2$$

welche eine deutlich höhere Steigung als Gleichung 3.1 aufweist. Der letzte Punkt bei 2 μm liegt dadurch auch höher als der im PSL-Versuch ermittelte Wert. Allerdings lässt sich durch diese Abschätzung auch eine genauere Beziehung für Partikel mit $D_p < 1 \mu\text{m}$ machen, was mit der anderen Methode nicht möglich war.

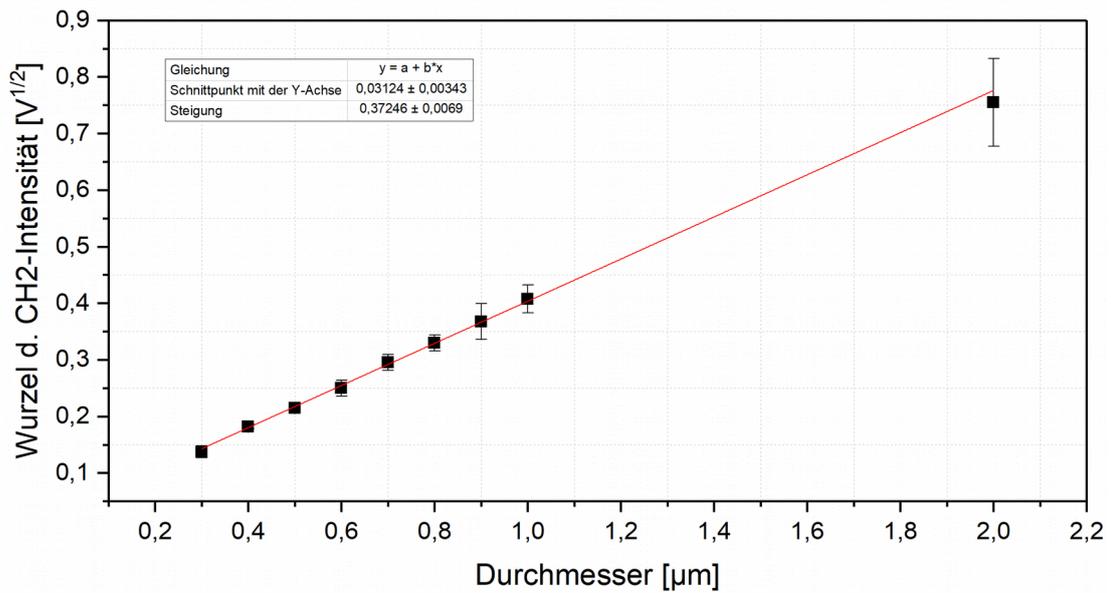


Abbildung 3.15: Aus den Kurvenflanken abgeleitete Zuordnung von Partikeldurchmesser [μm] und der Wurzel der CH2-Intensität [$I^{1/2}$], mit linearer Anpassung.

Die in Kapitel 2.9.3 eingeführten Teststäube sollen an dieser Stelle eine erste Anwendung der kalibrierten Größenverteilung sein. Dazu wurde eine jeweils zweiminütige Messung nach Gleichung 3.2 angepasst und als Boxplot aufgetragen (Abb. 3.16).

Alle Stäube zeigen eine schiefe Verteilung, deren Mittelwert zu größeren Partikeldurchmessern vom Median verschoben ist. Der Median der Pinienpollenprobe liegt etwa bei $0,9 \mu\text{m}$, während der Median der anderen Proben darunter liegt. Auch hat die Probe der Pinienpollen die breiteste Verteilung.

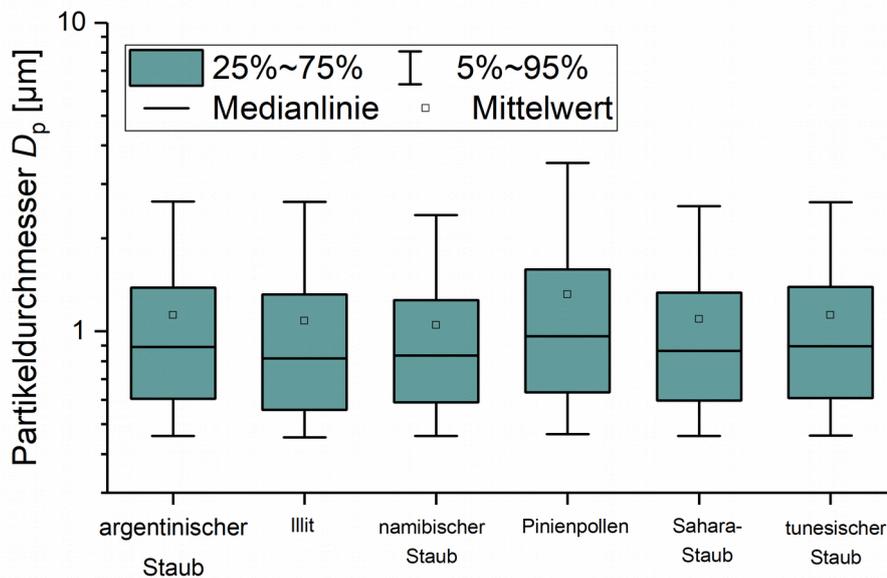


Abbildung 3.16: Größenverteilungen der Teststäube ermittelt über CH2 nach Anpassung über linearen Zusammenhang in Gleichung 3.2.

3.3.4 Depolarisation

Um eine Aussage über das Depolarisationsverhältnis eines Aerosolpartikels treffen zu können, wird eine Häufigkeitsverteilung des aus CH0 und CH1 ermittelten P_{44}/P_{11} -Verhältnisses er-

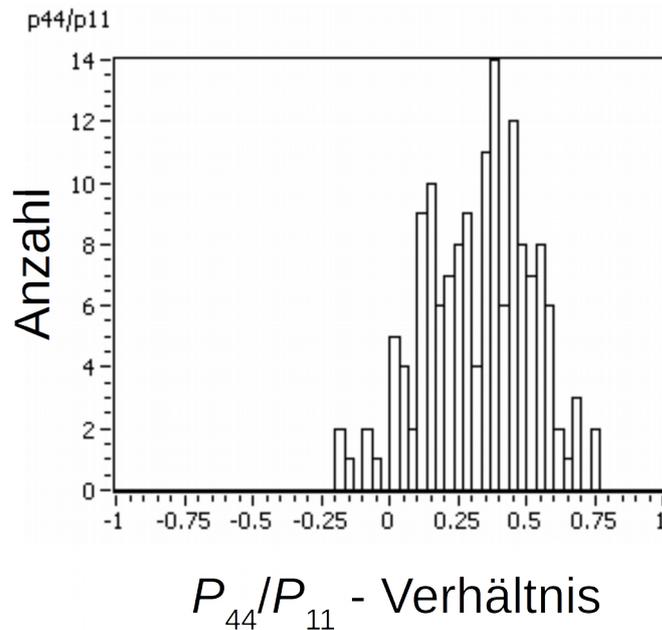


Abbildung 3.17: Häufigkeitsverteilung des P_{44}/P_{11} -Verhältnisses für eine beispielhafte Messung.

stellt. Eine erste Verteilung kann auch hier bereits in-situ mit dem Quicklook-Tool der Software gewonnen werden. Abbildung 3.17 zeigt dieses für eine Messung mit Snomax[®]-Aerosolpartikeln.

Die Darstellung der Verteilungen und der Maxima ist abhängig von der Drehung des im F-OPS verbauten $\lambda/4$ -Plättchens. Für sphärische Partikel soll nach Kapitel 2.6.4 das Maximum bei 0 liegen. In einem Versuchsaufbau nach Kap. 2.9.3 werden aus diesem Grund Wassertropfchen erzeugt und in die Optik geleitet. Durch Drehen des $\lambda/4$ -Plättchens im Uhrzeigersinn verschiebt sich die Lage des Maximums und der Häufigkeitsverteilung. In Abbildung 3.19b) ist dies zu sehen. Aufgetragen sind die Mittelwerte der Normalverteilungen und die dazugehörige Standardabweichung. Das Maximum lässt sich bei etwa einer Viertelumdrehung des $\lambda/4$ -Plättchens von etwa 0 bis etwa 0,4 verschieben.

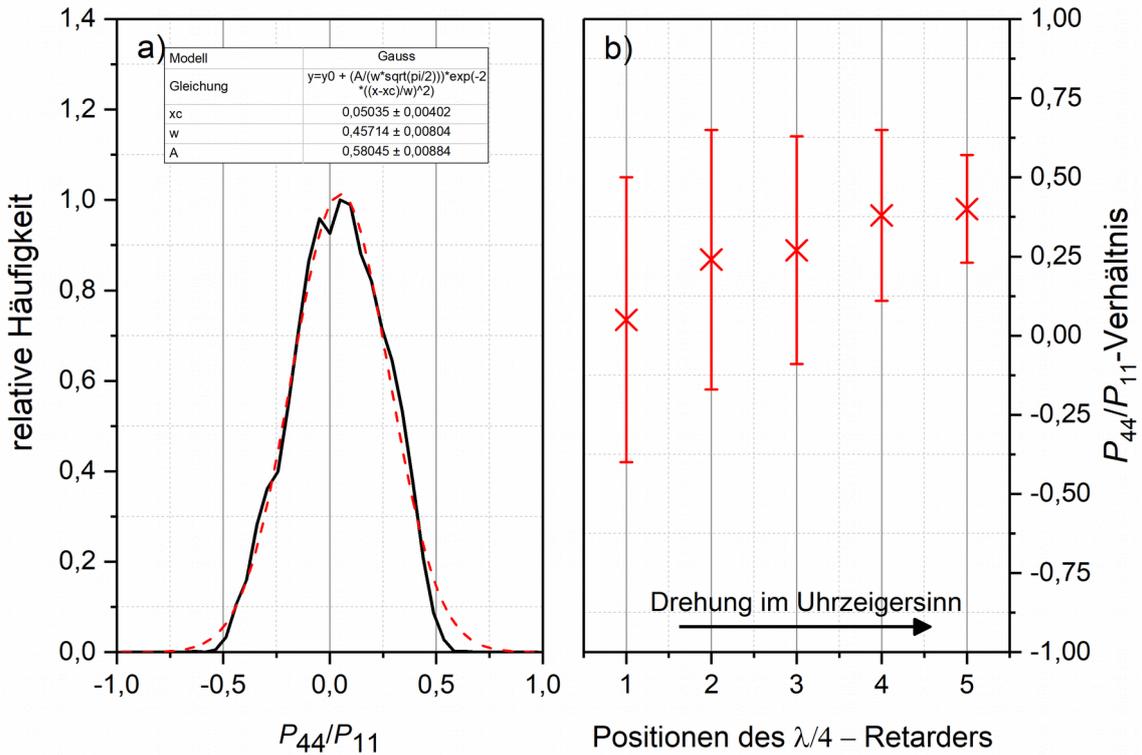


Abbildung 3.19: Grafik a) zeigt die mechanisch auf 0 eingestellte Häufigkeitsverteilung des P_{44}/P_{11} -Verhältnisses mit Gaußscher Anpassung. In b) sind beispielhafte die Änderungen des Mittelwertes der Verteilung (mit Standardabweichungen) beim Drehen des $\lambda/4$ -Plättchens gezeigt.

Für die weiteren Messungen wurde das $\lambda/4$ -Plättchen so lange verdreht, bis das Maximum der Verteilung des P_{44}/P_{11} -Verhältnis bei 0 lag. In dieser Position wurde das $\lambda/4$ -Plättchen mit einer Schraube fixiert, um für zukünftige Messungen Änderungen im P_{44}/P_{11} -Verhältnis durch

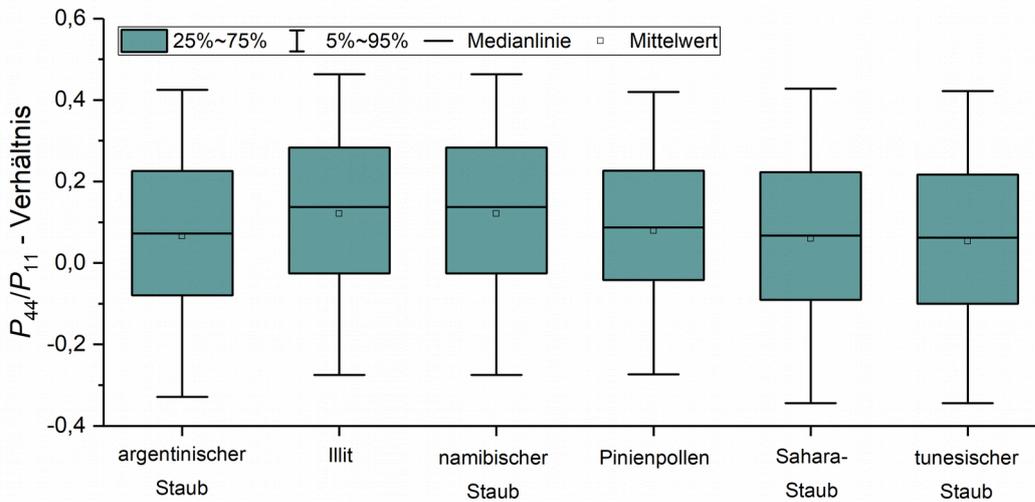


Abbildung 3.18: Boxplotverteilungen der P_{44}/P_{11} -Verhältnisse bei verschiedenen Teststäuben.

mechanische Variation des $\lambda/4$ -Plättchens auszuschließen. Die Verteilung des auf 0 kalibrierten P_{44}/P_{11} -Verhältnisses während der Messung mit Wassertröpfchen ist in Abbildung 3.19a) zu sehen.

Um die Auswertungsmöglichkeiten über das P_{44}/P_{11} -Verhältnis zu testen, wurden auch hier weiter die aus Kapitel 3.3.3 bekannten Teststäube untersucht. Es zeigte sich, dass die Maxima aller Verteilungen zwischen 0,07 und 0,12 zu finden sind. Abbildung 3.18 zeigt dies in Form von Boxplots. Die Verteilungen der Stäube können anhand einiger statistischen Momente dieser Verteilungen unterschieden werden. Beispielsweise ist der Interquartilsabstand (Q_3-Q_1) in der Verteilung für Pinienpollen deutlich geringer als im Vergleich mit den anderen Teststäuben.

3.3.5 Fluoreszenz

Für eine Untersuchung der Fluoreszenz von Partikeln mit dem F-OPS wurde in den bereits bekannten Messaufbau Riboflavin als Testaerosol gegeben.

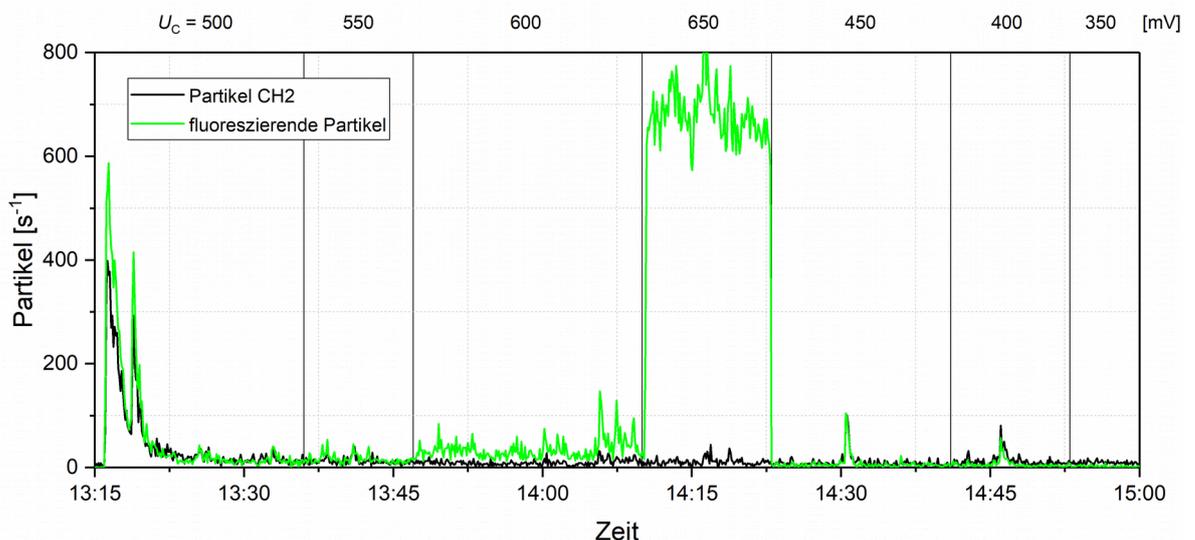


Abbildung 3.20: Detektion von Riboflavin-Partikeln mit der FINCH-Optik bei Variation der Verstärkungsspannung des CH3-Photomultiplier. Gezeigt ist die Anzahl der Gesamtpartikel detektiert mit CH2 (schwarz) sowie die Anzahl der fluoreszierenden Partikeln detektiert mit CH3 (grüne Linie). Die vertikalen Linien geben die Zeitabschnitte gleicher Verstärkungsspannung U_c an.

Entsprechend der getroffenen Annahmen bei der Entwicklung der FINCH-Optik, bezogen auf die Anregungswellenlänge von 405 nm und die optischen Bauelemente (vgl. Kap. 2.6.3), wird bei einer Messung von Riboflavin das emittierte Licht des fluoreszierenden Stoffes von CH3 aufgenommen. Dabei gilt die Annahme, dass jedes Riboflavin-Partikel fluoresziert, wodurch jedes in diesem Experiment gezählte Partikel ein Signal in CH3 erzeugen sollte.

Abbildung 3.20 zeigt die Anzahl der fluoreszierenden Partikel mit Änderung der Verstärkungsspannung des CH3 sowie die Gesamtanzahl der von CH2 detektierten Signale.

Die „Standardeinstellung“ von $U_C = 500$ mV für CH3, welche in Kapitel 3.1 diskutiert wurde, ist in der ersten Periode bis 13:36 zu sehen. In dieser Phase stimmt der Verlauf der Konzentration der fluoreszierenden Partikel mit dem der Gesamtpartikel überein.

Als Gegenbeispiel übertrifft die Anzahl der fluoreszierenden Partikel bei $U_C = 650$ mV die Anzahl der über CH2 ermittelten Partikel im Mittel um ein 80-faches.

Betrachtet man das Verhältnis zwischen fluoreszierender Partikelanzahl und Partikelanzahl detektiert mit CH2 bei unterschiedlichen Verstärkungsspannungen ergibt sich Abbildung 3.21. Neben dem eben beschriebenen Effekt bei 650 mV sieht man auch, dass das arithmetische Mittel bei 500 mV mit einer Relation von $fP/P = 1,06$ der 1:1-Linie am nächsten ist. Damit bestätigt sich die Aussage, dass auch für CH3 eine Verstärkungsspannung von 500 mV sinnvoll ist, da dadurch im Mittel jedes Riboflavinpartikel als fluoreszierendes Partikel gezählt wird. Bei $U_C < 500$ mV wird die Anzahl der fluoreszierenden Partikel deutlich unterschätzt, bei $U_C > 500$ mV deutlich überschätzt.

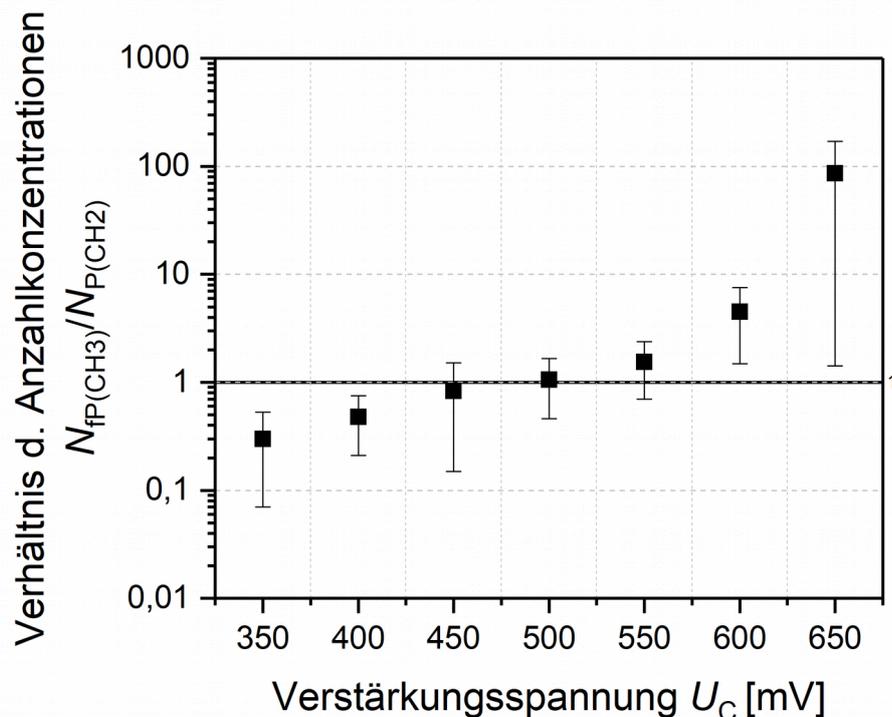


Abbildung 3.21: Verhältnis der Anzahl an fluoreszierenden Partikeln (ermittelt über CH3) zur Partikelanzahl (ermittelt über CH2) mit Standardabweichung als Fehlerbalken. Datenpunkte sind Mittelwerte über einzelne Messzeiträume und Fehlerbalken deren Standardabweichungen.

Das deutliche Überschätzen der Konzentrationen bei höheren Verstärkungsspannungen kann mehrere Ursachen haben. Zum einen werden durch die höhere Sensitivität des Photomultiplier auch „kleinere“ Partikel noch erkannt (was für CH2 nicht der Fall ist, da die Anpassung von U_C nur in CH3 gemacht wurde). Zum anderen lassen sich auch elektrische Phänomene bei höheren Verstärkungsfaktoren nicht mehr ausschließen. Dies soll hier aber nicht weiter untersucht werden.

Auch die Teststäube aus Kapitel 2.6.2 können auf ihre fluoreszierenden Eigenschaften und damit auf biologische Anteile hin untersucht werden. Abbildung 3.22 zeigt dazu wiederum das Verhältnis der Anzahl fluoreszierenden Partikel zur durch CH2 ermittelten Partikelanzahl. Bei der Pinienpollenprobe liegt der Anteil der fluoreszierenden Partikel deutlich am höchsten. Hier wird im Schnitt jedes zweite Partikel (der Median liegt bei 0,6) als fluoreszierend gezählt. Es werden auch Partikel als fluoreszierend gezählt, zu denen es keinen Eintrag im CH2 gibt. Es lässt sich vermuten, dass die Partikel in der Streulichtmessung nicht erkannt werden, da die Detektionsschwelle zu hoch gewählt wurde. Um eine genauere Untersuchung dieses Phänomens zu machen, sind weitere Experimente notwendig, welche aber nicht mehr Teil dieser Arbeit sind.

Alle weiteren Proben haben deutlich geringere fluoreszierende Anteile. Insbesondere die Illit-Probe, in welcher 75% aller Datenpunkte unter einem Verhältnis von 0.04 liegen. Dies entspricht den Erwartungen, da die Illit-Probe kein biologisches Material enthält.

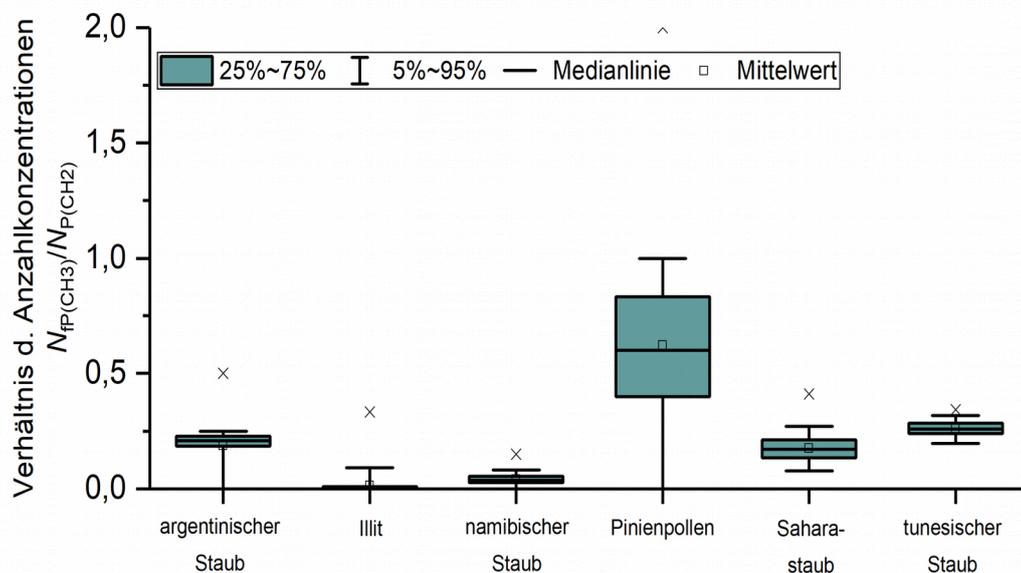


Abbildung 3.22: Statistische Verteilungen des Verhältnisses von Anzahl der fluoreszierenden Partikeln zu CH2-Partikelanzahl bei verschiedenen Teststäuben.

3.4 Außenluftmessung

Zum Schluss der Betrachtungen zum F-OPS wird noch eine Vergleichszeitreihe einer Außenluftmessung gezeigt. Dazu wurde durch die Mischkammer über Edelstahlrohr und einen Wandeinlass Außenluft gepumpt. Der Einlass befindet sich im dritten Obergeschoss des Gebäudes für Geowissenschaften der Universität Frankfurt am Main im Stadtteil Kalbach/Riedberg. Die Messung fand über einen Zeitraum von 30 Stunden vom 03.04.2017 18 Uhr bis zum 05.04.2017 00 Uhr statt. Als Referenz wurde die Mischkammer zusätzlich mit einem TSI 3330 OPS verbunden.

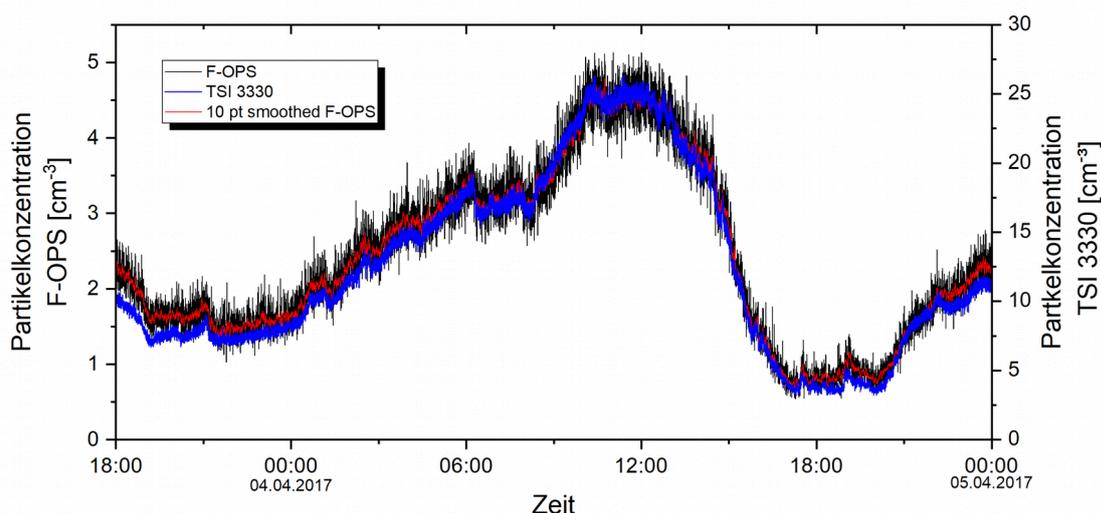


Abbildung 3.23: Zeitreihen von F-OPS und einem TSI 3330 OPS einer dreißig stündigen Außenluftmessung beginnend ab 03.04.2017 ab 18 Uhr. Die blaue Linie stellt die Zeitreihe der Partikelkonzentrationen des TSI OPS dar, während in schwarz die durch den F-OPS ermittelten Anzahlkonzentrationen aufgetragen ist. Die rote Linie ergibt sich aus einem 10 Punkte umfassenden gleitenden Mittel der F-OPS-Werte.

Abbildung 3.23 zeigt die Zeitreihen der ermittelten Konzentration von F-OPS und TSI OPS dieser Messung. Auf den ersten Blick wird deutlich, dass beide Kurven sich im Verlauf sehr ähneln. Eine Korrelation beider Kurven ergibt mit einem Korrelationskoeffizienten nach Pearson von $r = 0,984$ eine sehr starke Korrelation. Allerdings kann man auch erkennen, dass die F-OPS Daten deutlich breiter streuen. Aus diesem Grund wurde ein gleitendes Mittel (10 Punkte) der F-OPS Daten errechnet und als rote Linie in Abbildung 3.23 aufgetragen. Dieses gleitende Mittel korreliert mit $r = 0,995$ noch besser, was vermuten lässt das die engere, zeitliche Auflösung die Ursache für die breiteren Streuung der F-OPS-Daten ist.

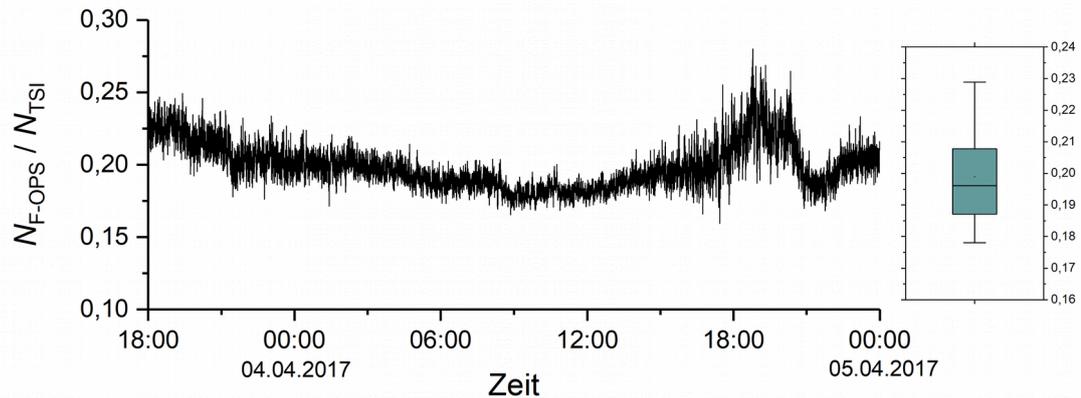


Abbildung 3.24: Verhältnis der Partikelkonzentrationen von F-OPS zu TSI 3330 OPS in einer Zeitreihe. Weiter können dem Boxplot die statistischen Kennwerte der Verteilung des Verhältnisses in diesem Zeitraum entnommen werden.

Betrachtet man das Verhältnis zwischen der durch das gleitende Mittel berechneten Partikelkonzentrationen des F-OPS und des TSI Referenzgerätes (Abb. 3.24) liegt dieses im Mittel bei 0,198 (der Median bei 0,196). Aus der Zeitreihe ist jedoch eine zeitliche Variation des Verhältnisses erkennbar, so gibt es am 04.04.17 gegen 19 Uhr ein Maximum. Ein solches zeitlich lokales Ereignis deutet auf eine Änderung der Aerosolgrößenverteilung in diesem Zeitraum hin. Da der F-OPS unterschiedliche Partikelgrößen unterschiedlich gut detektiert, ergibt sich auch eine Änderung im Verhältnis.

Aus diesem Grund, soll die Größenverteilung beider Geräte noch einmal heran gezogen werden. Dazu wurde nach Gleichung 3.2 die Peakdaten von CH2 angepasst.

Abbildung 3.25 zeigt den zeitlichen Verlauf der Größenverteilung. Die Verteilungen beider Geräte ähneln sich stark. Auf dieser Abbildung findet sich am 04.04. gegen 19 Uhr ein Minimum gerade bei Partikeln mit $D_p < 400$ nm, was sich mit den kumulierten Partikelanzahlkonzentrationen in Abb. 3.23 deckt.

Ein sichtbarer Unterschied beider Geräte ist ein lokales Maximum des TSI-OPS am 04.04.17 gegen 12 Uhr. Hier wird ein abgegrenzter Bereich von Partikeln der Größe 1 – 2 μm detektiert. In der Darstellung für den F-OPS fehlt an dieser Stelle eine hervorgehobene Mode. Dies könnte auch ursächlich für die leicht erhöhte Zähleffizienz am 04.04. gegen 19 Uhr sein. Es sieht so aus, als würden alle Anteile in ähnlichem Umfang verringert auftreten. Lediglich die 1 – 2 μm Mode ist gänzlich nicht mehr sichtbar.

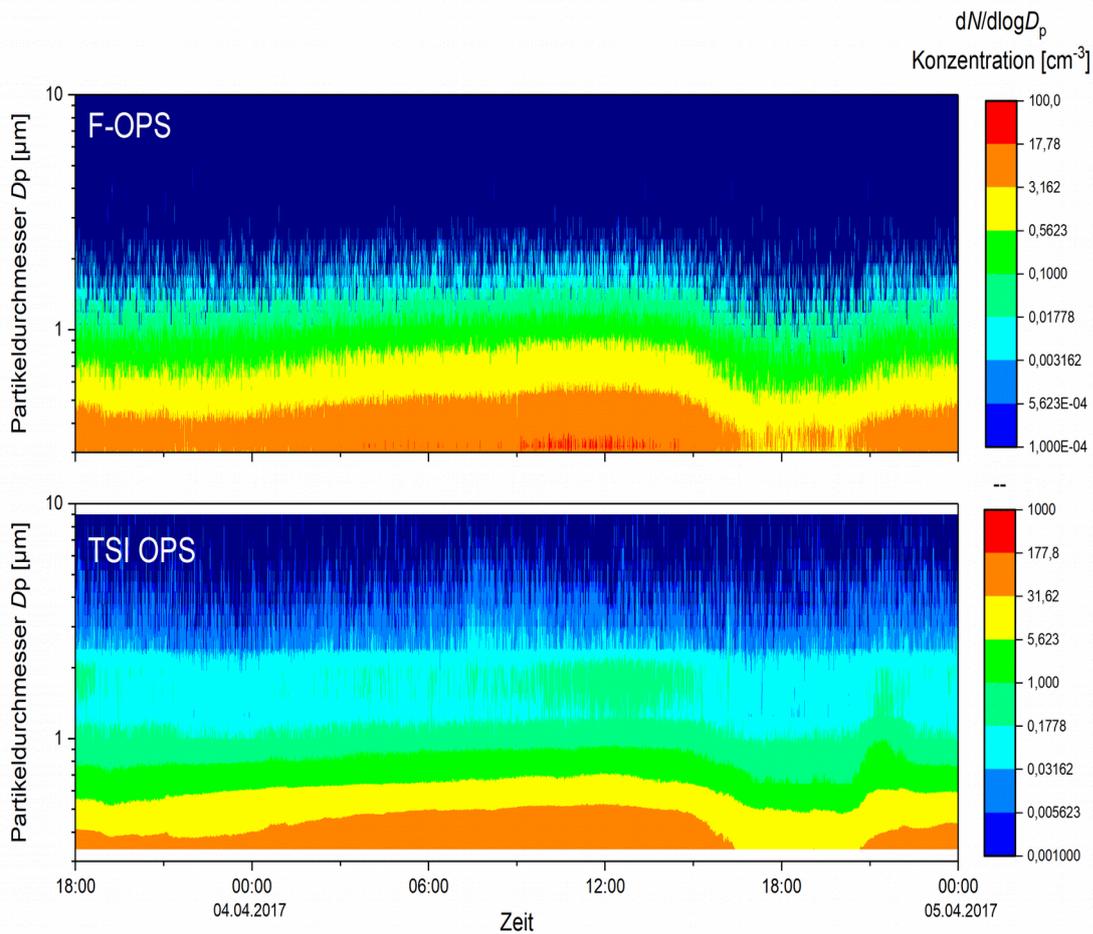


Abbildung 3.25: Anzahlgrößenverteilungen von F-OPS (oben) und TSI 3330 OPS (unten) bei einer Außenluftmessung. Farblich aufgetragen sind die normierten Konzentrationen ($dN/d\log D_p$) die aus Minutenmittelwerten der Konzentration in [cm^{-3}] errechnet wurden. Die Y-Achse entspricht dem Partikeldurchmesser, beim F-OPS über Gleichung 3.2 ermittelt.

4 Charakterisierung: FINCH

Aufbauend auf den Ergebnissen mit der FINCH-Optik soll an dieser Stelle eine weitere Charakterisierung von FINCH als Komplettsystem vorgenommen werden. Zunächst sollen Kameraufenthaltszeit und Partikelverluste thematisiert werden, um dann erste Aktivierungsexperimente zu erläutern.

4.1 Aufenthaltszeit

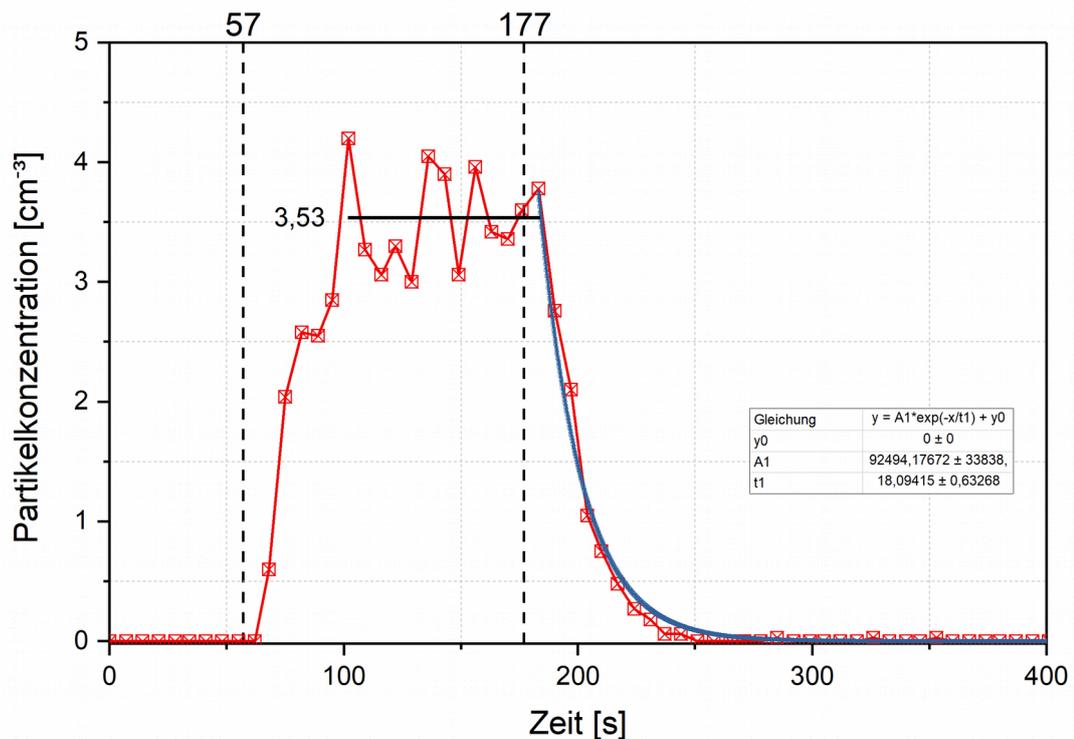


Abbildung 4.1: Beispielhafter Partikelimpuls mit 200 nm Snomax[®]-Partikeln mit einer Dauer von 2 Minuten. Die blaue Kurve ist eine exponentielle Anpassung an den zeitlichen Abfall der Konzentration in der Kammer. Die schwarze Linie gibt den Mittelwert des Partikelmaximums wieder und „gestrichelt“ sind die Ventiländerungszeiten angegeben.

Durch die bereits in Kapitel 3.3.1 beschriebenen Experimente mit Partikelimpulsen lässt sich zusätzlich eine Information zur Aufenthaltszeit in der Wachstumskammer ableiten. Während in Kap. 3.3.1 lediglich der F-OPS alleine genutzt wurde, wird nun auch FINCH als Komplettsystem in die Messung einbezogen.

Dazu wurden wiederholte Experimente mit unterschiedlichen Partikelgrößen und unterschiedlichen Impulsdauern durchgeführt. Abbildung 4.1 zeigt exemplarisch einen Partikelimpuls mit 200 nm Snomax[®]-Partikeln als Testaerosol. Zunächst wurde eine Nullfiltermessung gemacht. 57 s nach Beginn des Experimentes wurde die Verbindung zu den Partikeln geöffnet und nach

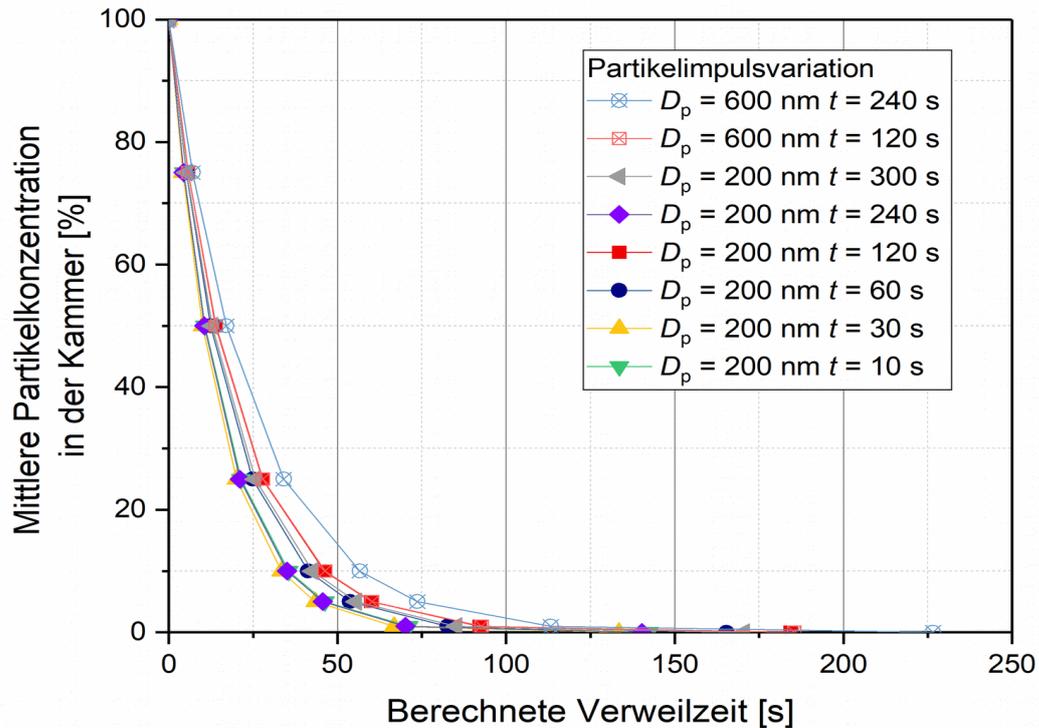


Abbildung 4.2: Verweilzeiten von Snomax©-Partikeln unterschiedlicher Größe in der FINCH-Kammer. Die Y-Achse wurde auf den Maximalwert normiert und in Prozent angegeben. Der Nullpunkt aller Experimente liegt auf dem Zeitpunkt des „Schließens des Ventils“.

weiteren 120 Sekunden wieder zurück auf Filter geschaltet. Nach Starten des Partikelflusses nimmt die Konzentration langsam zu bevor sie nach etwa 30 Sekunden ein Plateau erreicht. Nach Schließen des Ventils geht die Partikelkonzentration nicht diskret auf den Nullwert zurück, sondern folgt einem exponentiellen Abfall. Dies liegt am Aufbau des Systems. Es ist anzunehmen, dass nicht alle Partikel dem idealen, laminaren Fluss durch die Kammer folgen, sondern aus dem idealen Fluss ausscheren. Deshalb kommt es für jedes Partikel zu unterschiedlich langen Aufenthaltszeiten.

Der exponentielle Abfall wurde mit einer Funktion angepasst, so dass es möglich wurde die Aufenthaltszeit der Partikel für bestimmte Kenngrößen (z. B. 50% der verbleibenden Partikel) zu berechnen. Durch Anpassen der Zeitachsen der einzelnen Experimente (der Startpunkt bei 0 Sekunden wird an den Zeitpunkt des Ventilschließens angepasst) und eine Normierung auf einen Mittelwert der jeweiligen Partikelimpulsmaxima (in Abbildung 4.1 ist dies beispielhaft anhand der schwarzen Linie zu erkennen) lässt sich eine Aussage über die Verweilzeiten in der Kammer treffen.

Die Kurven auf Abbildung 4.2 zeigen genau diese Vorgehensweise für 8 unterschiedliche Experimente. Hierbei wurden Experimente mit zwei verschiedenen Partikeldurchmessern (D_p)

und sechs unterschiedlichen Impulsdauern (t) verwendet. Zu sehen ist, dass alle Kurven einen ähnlichen Verlauf zeigen. Die Kurve für $D_p = 600$ nm und $t = 240$ s hat noch den größten Abstand zu dem restlichen Ensemble. Allerdings liegt auch hier der Unterschied zum Ensemblemittel bei 25 % verbleibenden Partikeln nur bei etwa 4 s.

Für den exponentiellen Abfall einer aus allen Experimenten gemittelten Kurve ergibt sich folgender Zusammenhang:

$$y(t) = y_0 + A_1 \exp\left(\frac{-t}{B_1}\right) \quad 4.1$$

Dabei ist $y_0 = 0$ und $A_1 = 100$. B_1 ermittelt sich aus den Werten der einzelnen exponentiellen Ableitungen und beträgt im Mittel $B_1 = 18,36 \pm 4,17$.

Über die aus den durchgeführten Experimenten ermittelte Gleichung 4.1 lassen sich weiter einige Kenngrößen für die Verweilzeit ermitteln. Diese sind in Tabelle 4.1 zusammen gefasst. Es zeigt sich, dass 50 % der Partikel bereits nach etwa 13 Sekunden die Kammer verlassen haben. Bis 99 % aller Partikel die Kammer verlassen haben, dauert es hingegen etwa 84 Sekunden.

Tabelle 4.1: Kenngrößen der Aufenthaltszeiten von Partikeln in der FINCH-Kammer. Die vergangene Zeit ermittelt sich aus dem Mittelwert der durchgeführten Experimente mit zugehöriger Standardabweichung.

Verbleibende Partikel [%]	Zeit nach Schließen des Ventils	
	Mittelwert [s]	Standardabw. [s]
75	5,3	0,9
50	12,7	2,2
25	25,4	4,3
10	42,1	7,2
5	54,8	9,4
1	84,3	14,4
0,01	168,5	28,8

Mit Gleichung 4.1 und dem aus den Messungen ermittelten Parameter B_1 lässt sich zu dem auch die mittlere Verweilzeit eines Partikel bestimmen. Diese ergibt sich nach Gleichung 4.2.

$$\bar{t} = \frac{\sum_i c_i \cdot t_i}{c_{ges}} \quad , \quad 4.2$$

wobei mit c_i die Konzentrationen zu diskreten, verstrichenen Zeiten t_i bezeichnet werden. Die mittlere Verweilzeit \bar{t} eines Partikel beläuft sich damit auf 18,5 s. Außer acht gelassen wurde hierbei die Zuleitungen zur Kammer im Rack. Durch die Messungen mit der CPC-Referenz und bestimmen der Leitungslänge, kann die Verweilzeit bis zum Kammereinlass aber auf etwa 4 s abgeschätzt werden. Dadurch ergibt sich eine mittlere Verweilzeit von $\bar{t} = 14,5$ s in der Kammer.

Im Gegensatz zur mittleren Verweildauer lässt sich auch die Zeit der zu erst detektierten Partikel ermitteln. Nachdem der Dreiwegehahn im bekannten Aufbau auf die Partikelquelle gestellt wurde, dauert es im Mittel $10,7 \pm 2,2$ s bis erste Partikel gezählt werden. Diese entsprechen dann den schnellsten Partikeln im optimalen, nicht durch Turbulenzen gestörten Fluss durch die Kammer. Allerdings sei angemerkt, dass diese Messung von den Zeitintervallen der Abtastung beeinflusst wird.

4.2 Partikelverluste

In Kapitel 3.3.2 wurde gezeigt, dass die FINCH-Optik für Partikel mit einem Durchmesser von $D_p \geq 500$ nm im Mittel etwa 25 % der Partikel eines TSI 3025 CPC detektiert. Das dort beschriebene Experiment wurde erneut durchgeführt, mit der Änderung, dass FINCH im Komplettsystem betrieben wurde. Auf diese Weise soll ein Rückschluss auf die Partikelverluste in der Kammer gezogen werden. Der restliche Messaufbau entspricht Kap. 2.9.3 wobei erneut Ammoniumsulfat-Partikel über den Atomizer und DMA monodispers durch die Kammer geleitet wurden.

Die Abbildung 4.3 zeigt dieses Experiment bei zwei unterschiedlichen Kammertemperaturen (Raumtemperatur und -15 °C). Wie auch im Falle der alleinigen Messung der FINCH-Optik (ohne Kammer) sieht man, dass die Zähleffizienz bei Partikelgrößen bis 500 nm ansteigt, bevor ein Plateau erreicht wird.

In diesem Plateau ab 500 nm liegt die mittlere Zähleffizienz der FINCH-Optik bei Raumtemperatur bei 15 ± 1 % des TSI 3025 CPCs. Bei -15 °C Betriebstemperatur liegt diese Effizienz ähnlich hoch bei 16 ± 1 %. Man kann demnach davon ausgehen, dass die Kammer im gekühlten Betriebszustand keinen merklichen Unterschied der Partikelverluste erzeugt als bei Raumtemperatur.

Weiter lässt sich festhalten, dass die mit der an die Kammer angeschlossenen FINCH-Optik gemessenen Partikelkonzentrationen ungefähr mit einem Faktor 6,5 korrigiert werden müssen, um auf die wahre Partikelkonzentration zu kommen.

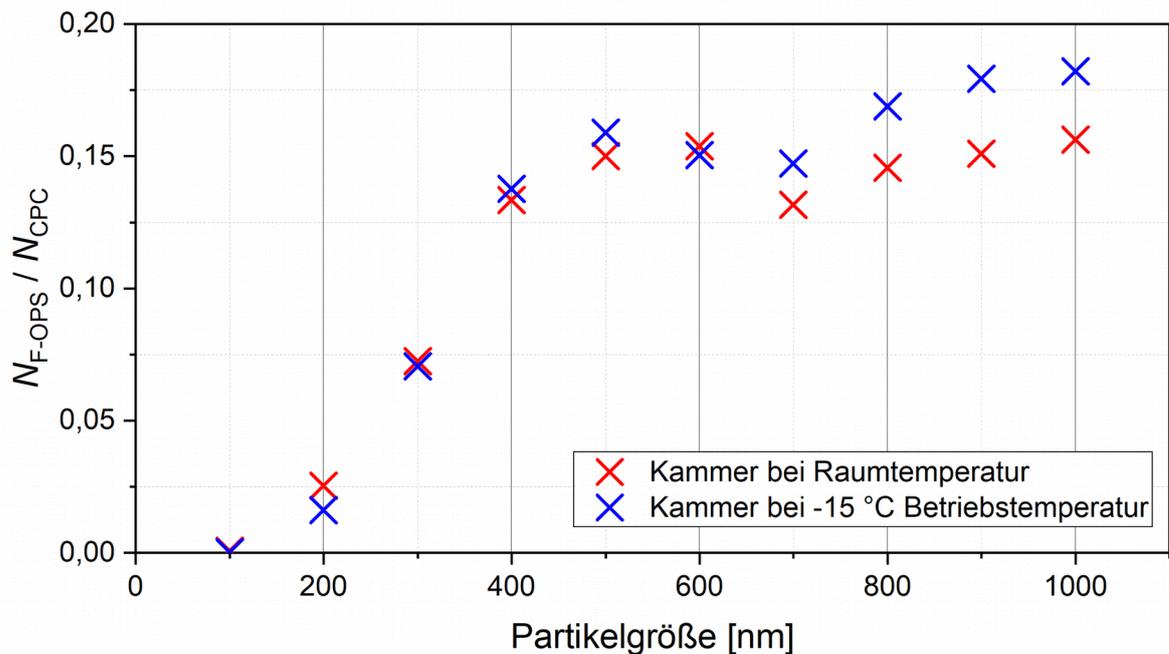


Abbildung 4.3: Zähleffizienz des F-OPS im Vergleich mit einem CPC (TSI 3025). Die roten Kreuze geben das Verhältnis bei Raumtemperatur an. Die blauen Kreuze wurden im Betriebszustand bei einer Misch- und Kammertemperatur von -15 °C gemessen. Gemessen wurde monodisperse Ammoniumsulfat-Partikel.

Da im direkten Vergleich von FINCH-Optik und CPC die Zähleffizienz bei 25 % lag, lässt sich schließen, dass im Betrieb mit Kammer ca. 40 % ($1 - (0,15/0,25) = 0,4$) aller Partikel in der Kammer verloren gehen müssen. Wobei es sich hier immer um Partikel mit $D_p > 500\text{ nm}$ handelt.

4.3 Kontaminationen

Bei Experimenten nach Kap. 2.9.3 mit CPC hinter dem FINCH-Aufbau zeigte sich, dass während Nullfilterphasen Partikel mit dem CPC (aber nicht mit der FINCH-Optik) gezählt wurden. Dabei wurden mit dem CPC Partikel-Konzentrationen bis zu 50 cm^{-3} gemessen. Diese Partikel traten lediglich im gekühlten Zustand auf.

Als Ursache konnten die Wärmetauscher für Q_A und Q_C ausgemacht werden, welche zu genaueren Betrachtung aus dem FINCH-System ausgebaut und, wie in Kap 2.9.2 beschrieben, untersucht wurden. In einem ersten Versuch wurden die Wärmetauscher evakuiert um Undichtigkeiten zu registrieren. Der Versuch mit Unterdruck im Wärmetauscher als auch ein über Druckluft erzeugter Überdruck im Wärmetauscher zeigten, dass diese mit fallender Temperatur undicht wurden. Im Falle des Überdruck-Versuches konnte der Verschluss und damit der

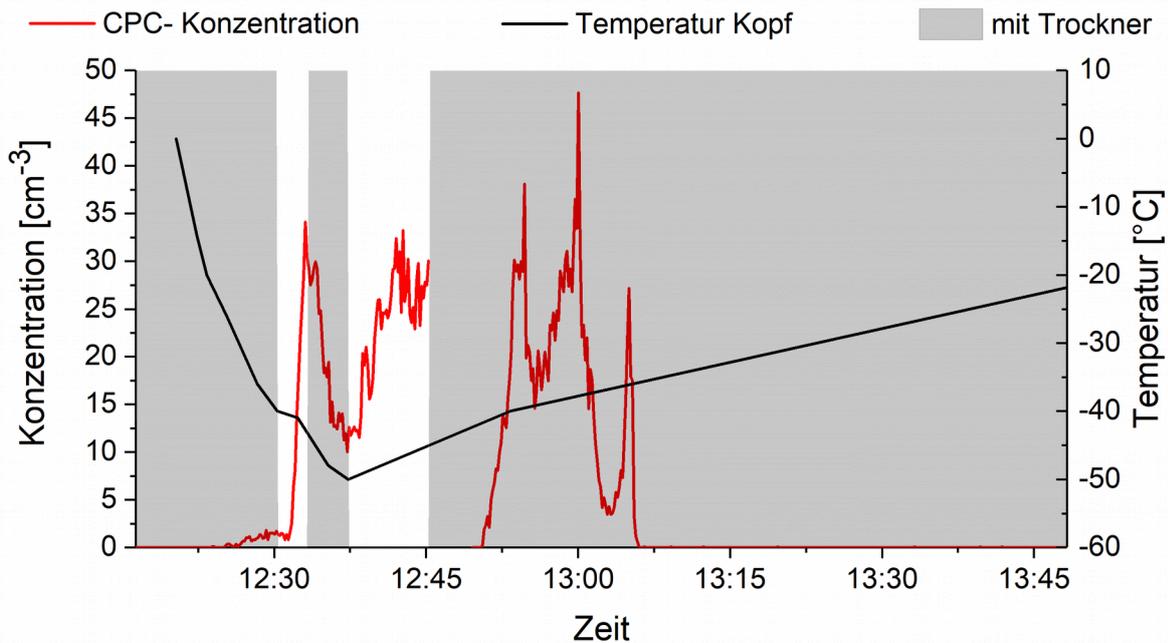


Abbildung 4.4: Partikelkonzentrationen (rot) gemessen mit einem TSI 3025 CPC hinter dem Wärmetauscher (Benutzt wurde hier die Q_C -Bauart). Die schwarze Linie zeigt die Temperatur des Wärmetauschers. Grau hinterlegt sind Zeiten in welchen ein Silikageltrockner vor dem Wärmetauscher benutzt wurde.

eingesetzte Dichtungsring mit Lecksuchspray als Ursache ausgemacht werden. Durch neue, für den Temperaturbereich besser geeignete Dichtungsringe und einem Metallring über dem Deckel, welcher für einen gleichmäßigeren Anpressdruck des Deckels sorgt, konnten diese Undichtigkeiten behoben werden.

Trotz dieser Maßnahmen wurde weiter eine Partikelanzahlkonzentration hinter den Wärmetauschern gemessen. Um dies genauer zu untersuchen wurden die mit neuen Dichtungsringen ausgestatteten Wärmetauscher im Aufbau nach Kap. 2.9.2 mit einem CPC verbunden. Ein wahlweise vor dem Wärmetauscher abgeschlossener Silikageltrockner diente dazu, die relative Feuchte der einströmenden Luft zu variieren.

Abbildung 4.4 zeigt die Temperatur des Wärmetauschers und die hinter dem Wärmetauscher gemessene Partikelkonzentration. Der Wärmetauscher wurde bis auf eine Temperatur von -50 °C gekühlt (12:38 Uhr) und ab diesem Zeitpunkt wieder erwärmt. Ab einer Temperatur von -20 °C wurden erste Partikelkonzentrationen gemessen. Kurz nach Entfernen des Silikageltrockners stiegen diese bis auf etwa 34 cm^{-3} an, sanken nach Anschluss des Trockners aber wieder. Auch in der Phase des Erwärmens mit angeschlossenem Trockner wurden Partikel gezählt. Die Konzentration lag im Maximum bei etwa 47 cm^{-3} . Ab einer Temperatur von -35 °C lag die Partikelkonzentration wieder bei 0 cm^{-3} .

Da die Dichtigkeit der Wärmetauscher bereits festgestellt wurde, mussten die gemessenen Partikelkonzentrationen aus dem Wärmetauscher selbst kommen. Ein Partikeleintrag durch einen ungenügenden Filter ist ebenfalls auszuschließen. Allerdings ist anzunehmen, dass durch Feuchtigkeit die Partikelkonzentration ansteigt, was durch das Entfernen des Trockners zu erkennen ist. Dies deutet darauf hin, dass es in den Wärmetauschern zur Bildung von Eis kommt, welches sich an der Oberfläche im Inneren ablagert. Um auszuschließen, dass es sich bei den detektierten Partikeln um reine Eiskristalle handelt, wurde in einem weiteren Experiment die Verrohrung zwischen CPC und Wärmetauscher ausreichend lang gewählt, so dass Eispartikel wieder vollständig verdunstet sein mussten. Allerdings zeigte dieser Versuch keinen Unterschied im Verlauf der gemessenen Partikelkonzentration. Bei den detektierten Partikeln kann es sich demnach nicht um reine Eispartikel handeln. Eine Vermutung wäre, dass sich durch die Eisbildung im Wärmetauscher Partikel aus der Oberfläche des Wärmetauschers lösen, welche dann im CPC detektiert werden. Rein optisch zeigte sich im Wärmetauscher eine weiße, korrodierte Schicht aus (vermutlich) Aluminiumoxid, welche als Ursache der Partikelproduktion in Frage kommt.

Zur Lösung dieses Problems wurden die Wärmetauscher eloxiert, um vor weiterer Korrosion zu schützen und der Aerosol-Wärmetauscher wird, wenn möglich, nicht kälter als 0 °C gekühlt.

Diese Erkenntnisse zeigen aber auch die Wichtigkeit von Nullfiltermessungen während regulären Messphasen auf. Nur so kann ausgeschlossen werden, dass Fremdpartikel oder Verunreinigungen gemessen oder aktiviert werden. Im Falle der Partikel aus den Wärmetauschern kann durch Aktivierungs-Messungen gezeigt werden, dass diese nicht die Messung mit der FINCH-Optik beeinflussen, da die Partikel erstens zu klein sind um vom F-OPS detektiert zu werden und zweitens in der Kammer auch nicht zu größeren Partikeln anwachsen (vgl. auch Kap. 4.5).

4.4 Randbedingungen Aktivierungsmessungen

In Kapitel 2.2.1 und 2.2.2 wurde bereits eine Übersicht aller für die Mischungsrechnung nötigen Werte gegeben. Bei einer Mischung der Flüsse Q_{AWM} und Q_C im Druckluftbetrieb ist eine Unbekannte die Restfeuchtigkeit in der Druckluft. Um diese zu Bestimmen wurde der im Messaufbau eingesetzte Taupunktspiegel (MBW 373; vgl. Abb. 2.23) betrieben, wobei Q_A und Q_C unterschiedlich stark gekühlt wurden. Auf eine Kühlung der Kammer wurde hierbei verzichtet, um lediglich den Einfluss der Kühlung auf die Flüsse zu betrachten.

Grundsätzlich wurden zwei Versuchsreihen durchgeführt: zum einen um die eben besprochene Luftfeuchtigkeit der Druckluft zu bestimmen, zum anderen aber auch um eine Referenz der Restfeuchtigkeit des Aerosolprobenflusses zu erhalten. Es ist anzunehmen, dass durch ausreichende Kühlung der Kühlköpfe und damit Erreichen des Sättigungsdampfdruck, in beiden Köpfen Wasserdampf kondensiert und sich in flüssigem und/oder festem Zustand ablagert. Dieser Effekt sollte somit die Restfeuchtigkeit in den Flüssen verringern.

In zwei separaten Experimenten wurden deshalb der Q_A und Q_C stufenweise abgekühlt und dann langsam wieder erwärmt. Dabei wurde eine Endtemperatur des Q_A -Kühlkopfes von $T_{CD\text{ Aerosol}} \approx -55\text{ °C}$ und eine Endtemperatur des Q_C -Kühlkopfes von $T_{CD\text{ cold}} \approx -70\text{ °C}$ erreicht, was an der unterschiedlichen Bauform der Wärmetauscher liegt (vgl. Kap. 2.1).

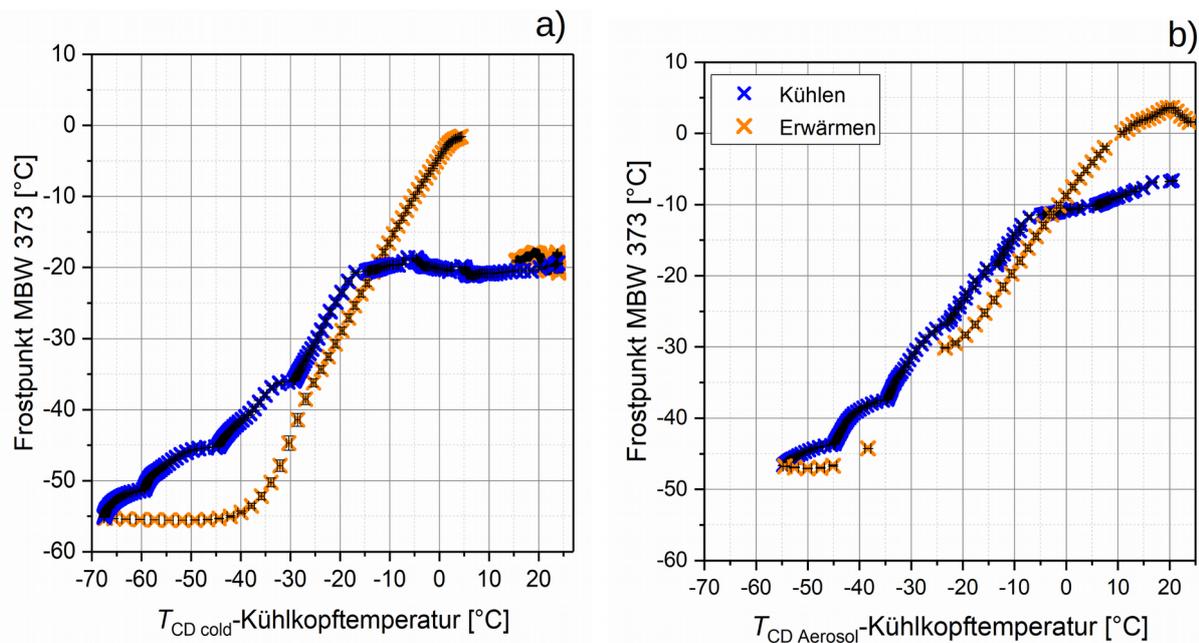


Abbildung 4.5: Mit einem MBW 373 ermittelten Frostpunkt des Q_C und Q_A und der zugehörigen Kühlkopf-temperatur in einem Abkühlvorgang (blau) und beim Erwärmen (orange).

Abbildung 4.5a) zeigt hierzu die $T_{CD\text{ cold}}$ -Kühlkopf-temperatur des kalten Flusses (Q_C) aufgetragen gegen die durch den MBW 373 ermittelte Frostpunkttemperatur. Bei diesem Versuch wurden lediglich 4 L min^{-1} Q_C durch die Kammer geleitet, die weiteren Flüsse waren ausgestellt. Damit ergab sich der Frostpunkt der durch die Kammer strömenden Luft ausschließlich aus der Feuchtigkeit, die über die gekühlte Druckluft eingetragen wurde. Zu Beginn der Messung betrug der Frostpunkt etwa -20 °C (dies entspricht einer relativen Feuchte von etwa $4,4\%$ bei 20 °C Raumtemperatur). Mit Start der Kühlung blieb der Frostpunkt zunächst konstant bei ca. -20 °C , so lange bis die Kühlkopf-temperatur auf -20 °C abgesunken war. Bei dieser Tempera-

tur trat Sättigung ein, d. h. in der Druckluft vorhandener Wasserdampf friert aus. Mit weiterer Kühlung des Kaltkühlkopfs sank die Frostpunktttemperatur jeweils in selbiger Rate.

In guter Näherung kann man damit sagen, dass der Frostpunkt des Q_C der Kühlkopfttemperatur entspricht, wenn die Kühlkopfttemperatur niedriger als die Frostpunktttemperatur der Druckluft ist. Beim Erwärmen zeigt sich eine durch das im Kühlkopf abgelagerten Wasser bzw. Eis hervorgerufene Hysterese. Sobald sich der Kühlkopf auf eine Kühlkopfttemperatur von $T_{CD\ cold} = -40\text{ °C}$ erwärmt hat, kann man ein deutliches Ansteigen der Frostpunktttemperatur erkennen. Die Frostpunktttemperatur steigt bis auf etwa -3 °C an, was der abgelagerten Feuchtigkeit geschuldet ist. Erst nachdem diese Feuchtigkeit aus dem System entwichen ist, liegt der Frostpunkt wieder bei etwa -20 °C , wie zu Beginn des Experimentes.

Ein ähnliches Verhalten wird durch den Aerosolkühlkopf erzeugt. Auch hier kann der resultierende Frostpunkt gut mit der Kühlkopfttemperatur genähert werden.

Diese Versuchsreihe wurde komplett im Versuchsaufbau nach Kapitel 2.9.3 (vgl. Abb. 2.23) durchgeführt, d. h. es wurde auch ein Silikageltrockner nach der nassen Aerosolerzeugung eingesetzt, um den Vorgang während einer realen Messung zu simulieren. Lediglich ein Partikelfilter wurde dem Silikageltrockner nachgeschaltet. Der Fluss durch den Kühlkopf wurde mit $Q_A = 2\text{ L min}^{-1}$ betrieben. Der Kühl- bzw. Erwärmvorgang des Q_A -Wärmetauschers wird auf Abbildung 4.5b) gezeigt. Auch hier zeigt sich beim Erwärmen ebenfalls die angesprochene Hysterese. In guter Näherung für den in den Aktivierungsmessungen benutzten Temperaturbereich gilt allerdings wiederum, dass der Frostpunkt des Aerosolflusses der Kühlkopfttemperatur entspricht.

Abbildung 4.6 zeigt das Verhältnis der Frostpunktttemperaturen des MBW-Taupunktspiegels und dem in FINCH eingebauten Q_{AWM} HYT-Sensor im zeitlichen Verlauf der eben beschriebenen Messung. Während der Kühlung liegt dieses Verhältnis durchgehen auf der 1:1-Linie (im Mittel bei 1,04). Erst in der Phase der Erwärmung gehen die Frostpunktttemperaturen auseinander. Die deutlichen Unterschiede beginnen bei ca. 0 °C , also mit der Phasenumwandlung des abgelagerten Wassers im Kühlkopf.

Fehlinterpretationen durch den HYT, gerade im Bereich der Sättigung, können demnach nicht ausgeschlossen werden können. Um dies zu vermeiden, sollte man den Kühlkopf für Q_{AWM} nur bei einer Kühlkopfttemperatur von $T_{CD\ Aerosol} \leq -5\text{ °C}$ oder $T_{CD\ Aerosol} \geq 5\text{ °C}$ betreiben.

Problematischer sind Ablagerungen von Feuchtigkeit in der Nähe des Sensors, welche so ebenfalls zu Fehlinterpretationen führen können. In diesem Fall würde durch den HYT-Sensor eine relative Feuchte von 100 % ausgegeben, auch wenn der Fluss nicht gesättigt ist.

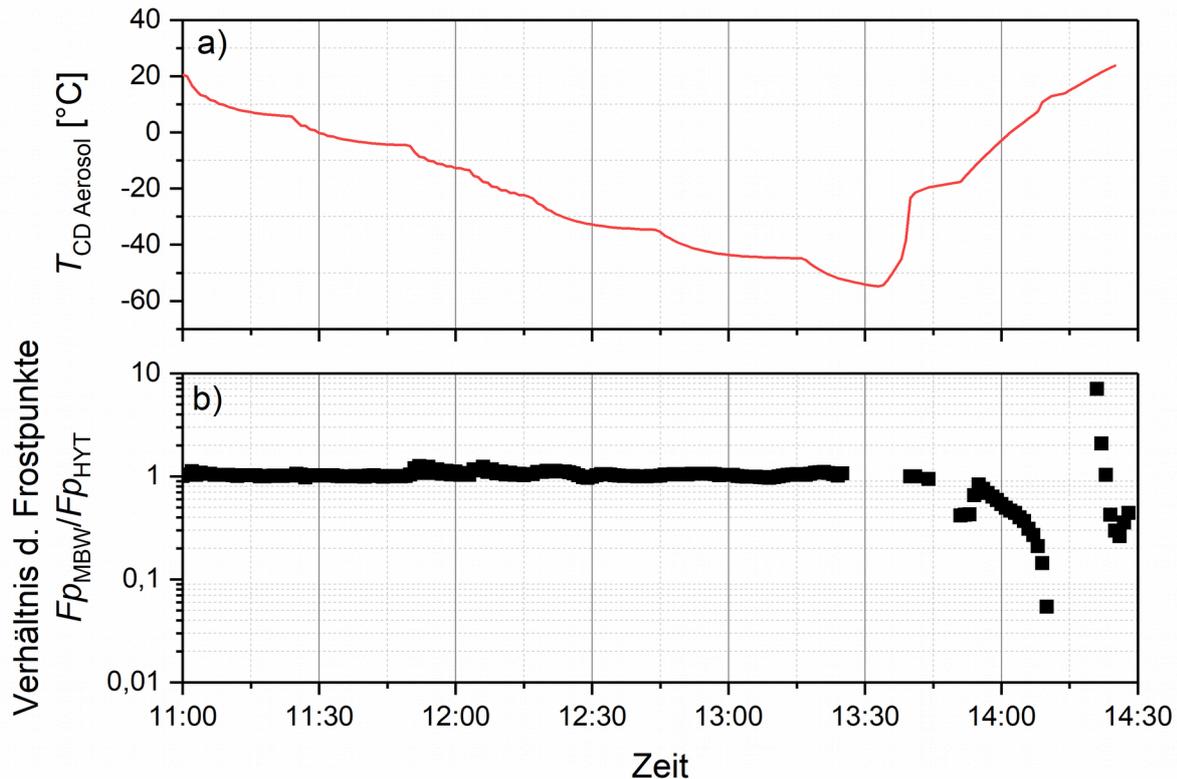


Abbildung 4.6: Verhältnis der Frostpunktttemperaturen ermittelt mit dem MBW Taupunktspiegel und dem HYT_{AWM} -Sensor (b). Temperaturverlauf des Q_A -Kühlkopfes (a).

4.5 Erste Aktivierungsexperimente

Im Rahmen eines ersten Mischexperimentes soll nun die grundsätzliche Funktionalität von FINCH als Eiskeimzähler gezeigt werden. Im Experimentieraufbau aus Kapitel 2.9.3 wird eine Snomax[®]-Lösung über den Atomizer vernebelt, getrocknet und über den DMA größenselektiert ($D_p = 400$ nm) in die Kammer und durch die Optik geleitet.

Um eine Referenz des Snomax[®]-Aerosols zu haben, wird zunächst das Aerosol im ungekühlten Zustand durch die Kammer geleitet. Ist eine ausreichende Statistik gesammelt, werden die Kühler der Kammer und der beiden Kühlköpfe für Q_A und Q_C angestellt.

In diesem Experiment soll die Zieltemperatur $T_{Mik} = -15$ °C und die Zielsättigung $S_{Mik} = 1,1$ bezogen auf die Eissättigung sein.

Weitere Anfangsbedingungen können der folgenden Tabelle 4.2 entnommen werden. Diese folgt der Darstellung aus Kapitel 2.2.1 für die Mischung aus Q_{AWM} und Q_C .

Tabelle 4.2: Überblick über die Sollwerte des gezeigten Mischexperimentes.

Variable	Q_{AWM}	Q_C	$Q_{AWM} + Q_C$
T_i	Soll: 0 °C Ist: HYT-Sensor	Soll: Gleichung 2.4 $T_{cold\ flow} = -26,25\text{ °C}$ Ist: pt100-Sensor	
Q_i	Soll: $Q_A = 2\text{ L m}^{-1}$ $Q_M + Q_W = 1\text{ L m}^{-1}$ Ist: MFC	Soll: $Q_C = 4\text{ L m}^{-1}$ Ist: MFC	
T_{Mix}			Soll: $T_{Mix} = -15\text{ °C}$ Ist: pt100-Sensor
S_{Mix}			Soll: $S_{ice} = 1,2\text{ S}$ Ist: Gleichung 2.3

Die gemessenen Temperaturverhältnisse in der Kammer, an der Kammerwand und für die Flüsse Q_C und Q_{AWM} können in Abbildung 4.7 eingesehen werden. Zu sehen ist der Kühlvorgang und das Erreichen der Zieltemperatur.

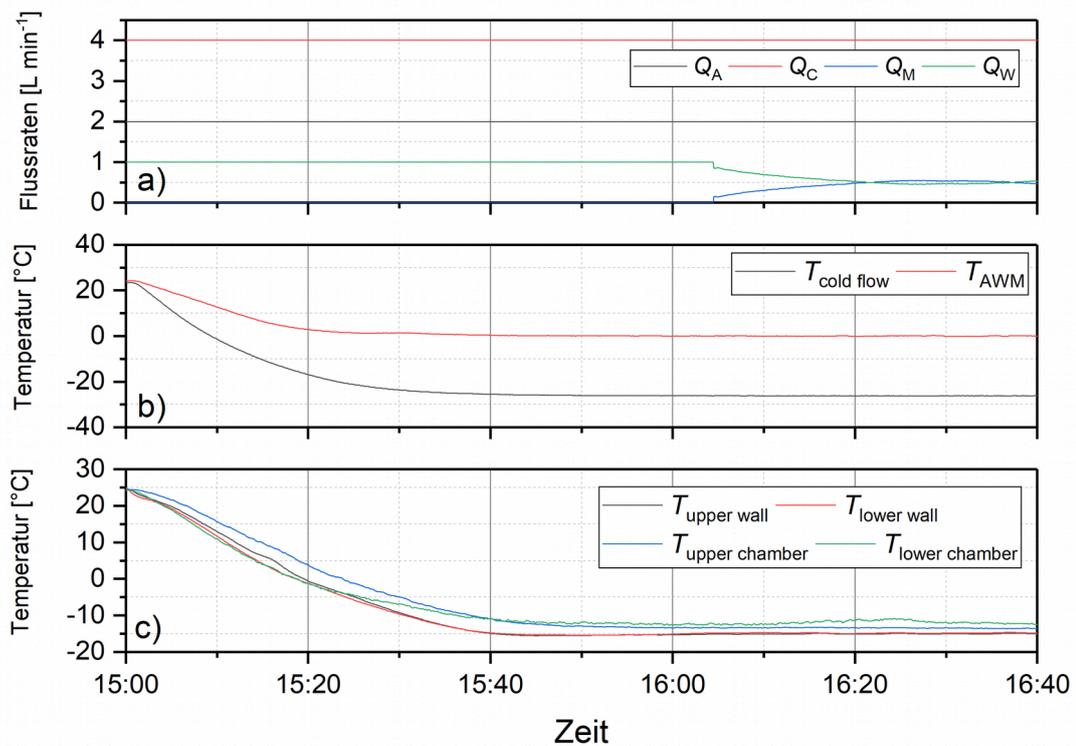


Abbildung 4.7: Flussraten (a) und Temperaturen (b), (c) in FINCH während einer ersten Aktivierungsmessung mit 400 nm Snomax[®]-Aerosolpartikeln.

Ebenfalls aufgetragen sind die gemessenen Flussraten. Ab etwa 16:02 Uhr beginnt die Regelung des feuchten Flusses Q_M , was deutlich zu sehen ist. Auch die antiproportionale Regelung des Q_W ist dabei zu erkennen. Das damit erzielte Sättigungsverhältnis im oberen Kammerteil S_{upper} ist in Abbildung 4.8 b zu sehen.

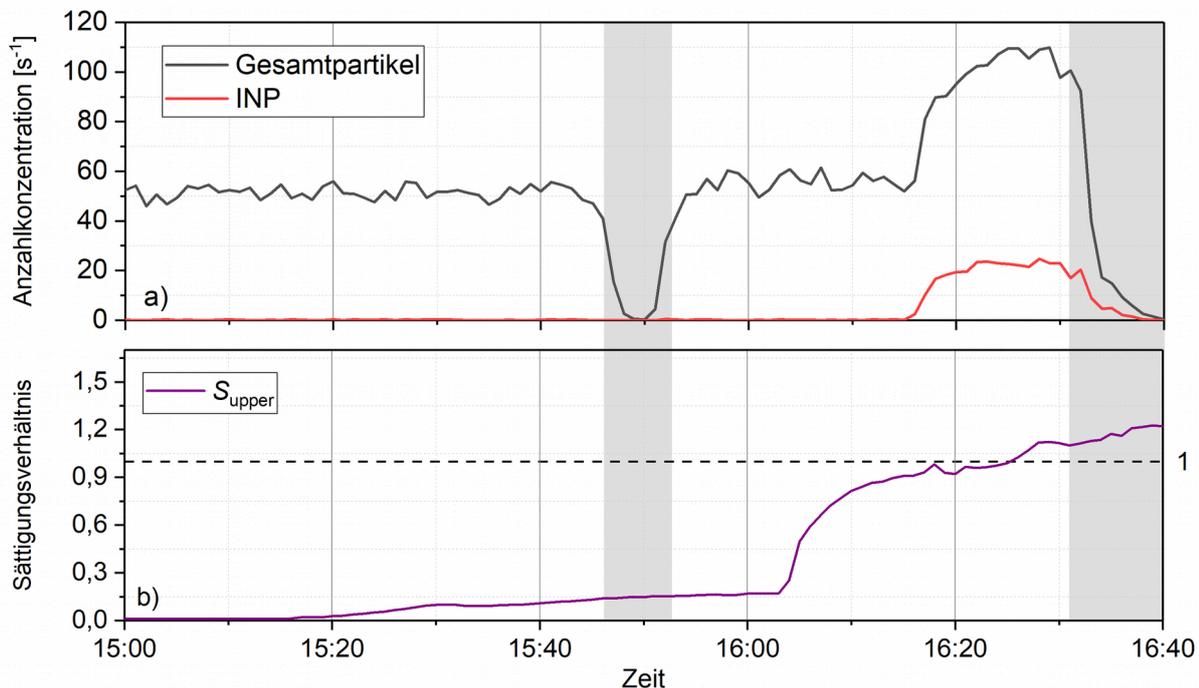


Abbildung 4.8: Verlauf der über CH2 ermittelten Gesamtpartikelkonzentration (a), INP-Konzentration und Sättigungsverhältnis (b) S_{upper} einer ersten Aktivierungsmessung mit 400 nm Snomax[®]-Aerosolpartikeln. Grau hinterlegt sind Zeiten mit Nullfiltermessung.

Die Konzentration der mit CH2 ermittelten Partikel ist ebenfalls auf Abbildung 4.8 zu sehen. Diese bleibt bis 16:10 Uhr ziemlich konstant und ist lediglich durch eine Nullfilterphase unterbrochen. Nach Beginn der Feuchterege lung und Erreichen von $S_{\text{upper chamber}} = 0,92$ beginnt die Anzahlkonzentration zu steigen. Gleichzeitig steigt auch die Anzahlkonzentration der INP, welche nach Abbildung 2.16 klassiert wurden. Dabei wurde ein Partikel als INP klassiert, wenn die CH2 Amplitude $x > 0,9$ ($x \approx 2,4 \mu\text{m}$ nach Gl. 3.2) oder die CH2 Amplitude $y > 0,5$ ($y \approx 1,8 \mu\text{m}$ nach Gl. 3.2) und P_{44}/P_{11} mit $z = 0,45$ ist (die Variablen folgen ebenfalls Abb. 2.16). Dabei wurden die Werte so gewählt, dass unaktivierte Snomax[®]-Partikel nicht als INP klassiert wurden.

Nach ca. 10 Minuten Messung unter den genannten Bedingungen wurde im laufenden Betrieb, d. h. die Q_m -Regelung war weiterhin an und damit S_{upper} über 1,1, eine erneute Nullfilterphase durchgeführt. Hier ist zu sehen, dass die Anzahlkonzentrationen der Gesamtpartikel als auch

der INP auf 0 zurück gehen, womit ausgeschlossen werden kann, dass Fremdpartikel o. ä. aktiviert wurden und es sich lediglich um gewachsene Snomax[®]-Partikel handelte.

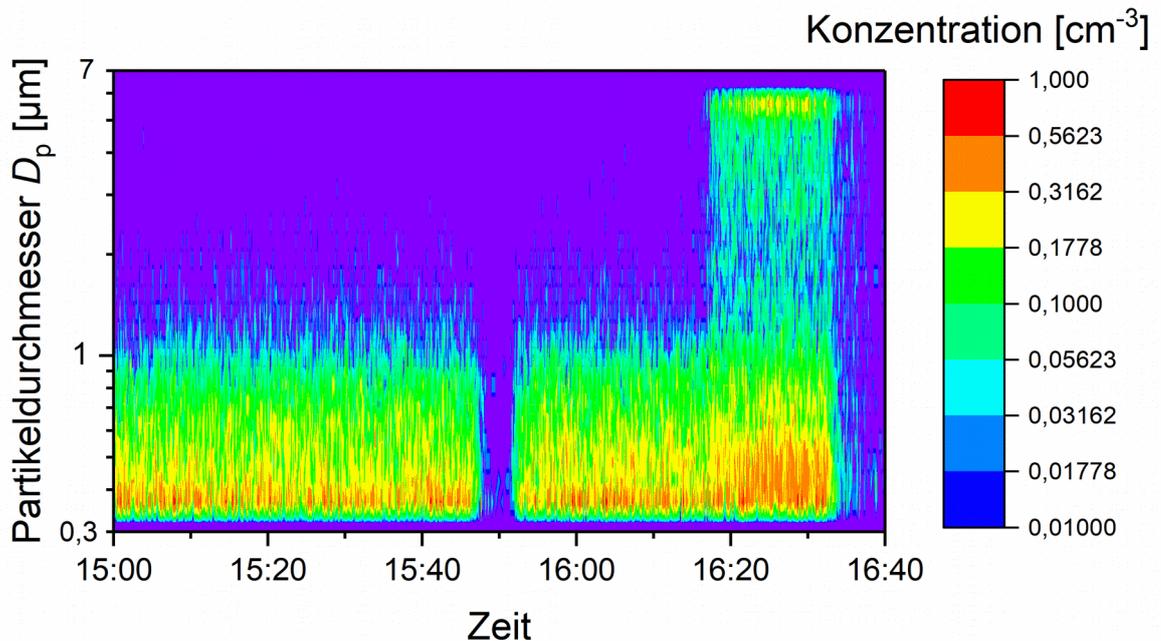


Abbildung 4.9: Anzahlgrößenverteilungen von F-OPS bei einer ersten Aktivierungsmessung. Farblich aufgetragen sind die Anzahlkonzentrationen in $[cm^{-3}]$. Die Partikelgröße wurde dabei mit Gleichung 3.2 angepasst.

In der Farbdarstellung der Größenverteilung ist das Anwachsen der Partikel ebenfalls gut zu sehen (Abb. 4.9).

Analog zu den eben betrachteten Anzahlkonzentrationen kann man in der Darstellung der Größenverteilung etwa ab 16:15 Uhr eine deutliche zweite Mode erkennen. Während im vor-

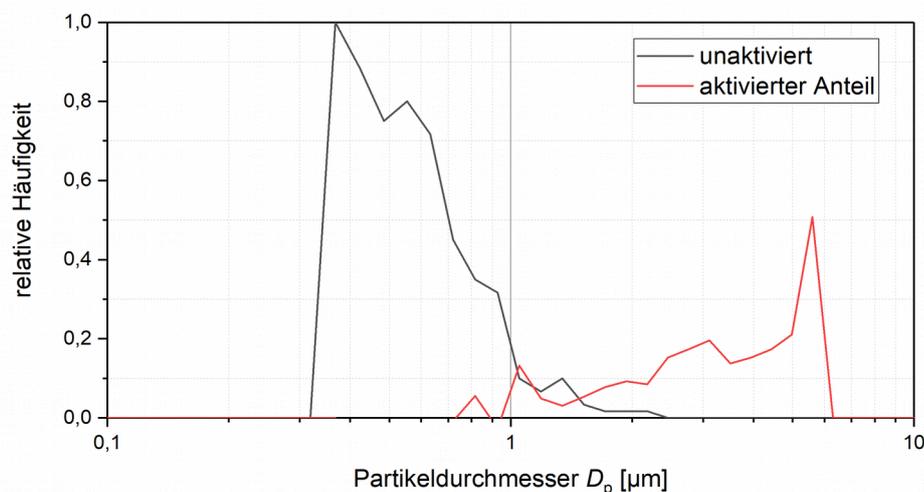


Abbildung 4.10: Zeitlicher Mittelwert der Größenverteilungen im Aktivierungsexperiment mit 400 nm Snomax[®]-Aerosolpartikeln, wobei die unaktivierten Hintergrundpartikel von der Größenverteilung zum Zeitpunkt der Aktivierung abgezogen wurden.

hergehenden Zeitraum die Größenverteilung mit einem Maximum bei etwa $0,4 \mu\text{m}$ liegt, sind in der Phase der Aktivierung auch Partikel mit $D_p > 6 \mu\text{m}$ zu erkennen. Es tritt demnach eine Änderung in der Größenverteilung ein.

Wenn man sich das zeitliche Mittel der Größenverteilungen zum Zeitpunkt der Aktivierung sowie der Hintergrundmessung von nicht-aktivierten 400 nm Snomax[®]-Aerosolpartikeln verdeutlicht (Abb. 4.10), sieht man die Verschiebung der Größenverteilung deutlicher. Die rote Kurve in Abbildung 4.10 ergibt sich dabei, indem das Hintergrundsignal der nicht aktivierten Partikel von der Verteilung während der Aktivierung abgezogen wurde. Man erkennt das zweite Maxima mit D_p bei etwa $6 \mu\text{m}$, was allerdings auch bereits dem letzten Kanal der Größenverteilung entspricht. $6 \mu\text{m}$ entspricht dabei etwa $5,1 \text{ V}$ in der CH2-Ausgabe und somit auch dem Ende des Ausgabebereiches der Photomultiplier.

Die Verteilung des P44/P11-Verhältnisses (Abb. 4.11) zeigt keine deutliche Verschiebung des Maximums der Verteilung während der Messung oder gar eine separierte Mode. Während der gesamten Messphase lag das Maximum im Bereich von $0,05 - 0,15$. Zur Zeit der Aktivierung werden lediglich deutlich mehr Partikel gezählt. Allerdings ist nicht auszuschließen, dass dies an der Zählmethode der CH0 bzw. CH1 Impulse liegt.

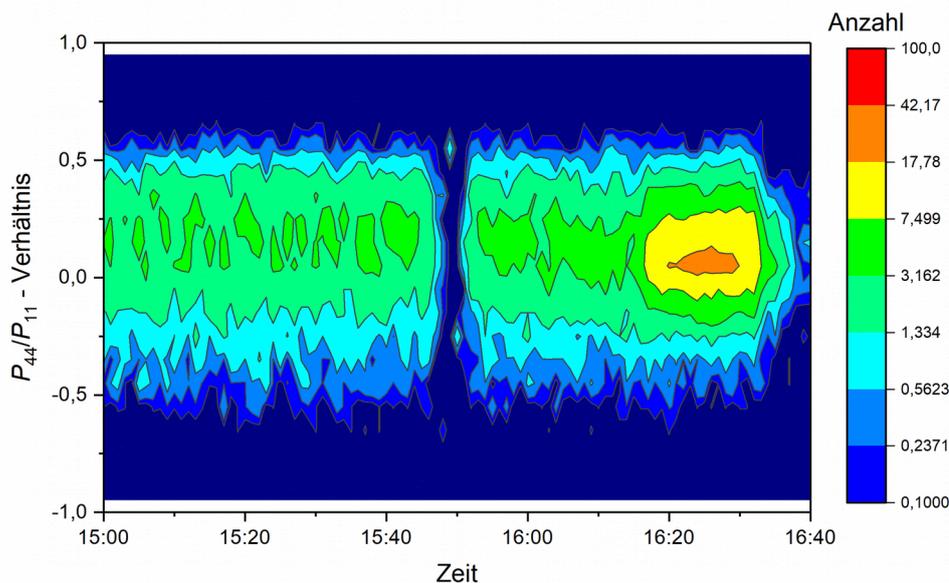


Abbildung 4.11: Minutenmittel der P_{44}/P_{11} -Verteilungen während der beschriebenen Snomax[®]-Messung.

4.6 Überprüfung der Regelung

Das eben beschriebene Mischexperiment soll noch weiter vertieft werden. Nach dem die grundsätzliche Funktionalität gezeigt ist, soll weiter die Ansteuerung der Zielwerte überprüft werden. Nach Kap. 2.1 und Kap. 2.4 bestimmen vier Regelgrößen die Temperaturen und die

Feuchtigkeit in der Kammer. Diese sind die Temperatur der Kammerwand, die Temperaturen von Q_A und Q_C sowie die Flussrate von Q_M .

Die Kammerwand kann über die Stirlingbatterie sehr genau und stabil angesteuert werden. Die Zieltemperatur T_{Mix} wird hierbei als Wandtemperatur der Kammer gesetzt. Die Prozessvariable des Regler ist in diesem Falle variabel und kann als Temperatur „Kammerwand oben“ ($T_{\text{upper chamber}}$) oder „Kammerwand unten“ ($T_{\text{lower chamber}}$) gewählt werden. Im Regelfall wird ($T_{\text{upper chamber}}$) gewählt (vgl. Lage der Sensoren nach Kap. 2.1).

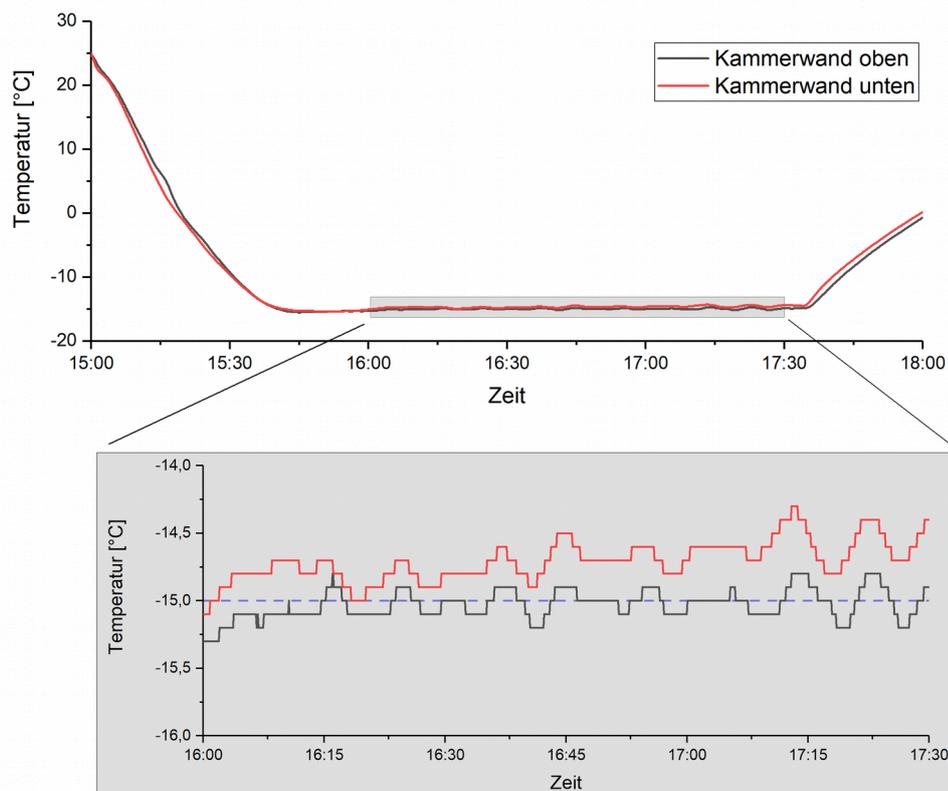


Abbildung 4.12: Temperaturzeitreihe des Kammerkühlvorganges. Gezeigt sind die Wandtemperaturen im "oberen" und "unteren" Bereich der Kammer. Der zeitliche Ausschnitt zeigt die Variation der Wandtemperaturen im Laufe der Messphase. Die Zieltemperatur ist als blau gestrichelte Linie eingefügt.

Abbildung 4.12 zeigt den Kühlvorgang der Kammerwand mit den beiden Wandtemperaturen. Um von Raumtemperatur (im Beispiel ca. 25 °C; Start der Kühlung war 15 Uhr) auf die Zieltemperatur von -15 °C zu kommen, brauchen die Kühler der Kammer etwa 35 – 40 Minuten. Über den PID-Regler-Baustein in der Software wird die Variable über den gesamten Messzeitraum möglichst „nahe“ an der Zieltemperatur gehalten. Im vergrößerten Ausschnitt auf Abbildung 4.12 ergibt sich über einen Zeitraum von 1,5 h ein arithmetisches Mittel für die Tempe-

ratur der Kammerwand oben von $-15,0 \pm 0,1 \text{ }^\circ\text{C}$. Die Zieltemperatur der Kammer wird demnach mit einer sehr geringen Abweichung gehalten.

Die Temperatur im unteren Bereich der Kammerwand ($T_{\text{lower chamber}}$) ist mit $-14,7 \pm 0,3 \text{ }^\circ\text{C}$ etwa $0,3 \text{ }^\circ\text{C}$ wärmer als die Temperatur oben ($T_{\text{upper chamber}}$). Hierbei ist zu beachten, dass die Durchflussmenge des Kühlmittels im Kühlkreislauf durch mechanische Ventile beeinflusst werden kann. Dadurch wird es möglich die untere Wandtemperaturen der Prozessvariable oben anzugleichen, wodurch der geringe Temperaturunterschied zwischen Wand oben und unten möglich ist. Temperaturunterschiede durch Bauart des Sensor oder Anbringung an der Kammer können dabei nicht berücksichtigt werden.

Die Temperaturzielwerte der Kühlung für Q_A und Q_C ergeben sich aus den Anfangsbedingungen und – für den Q_C – aus der Mischungsrechnung. Im hier gezeigten Beispiel beträgt der Zielwert für $T_{\text{AWM}} = 0 \text{ }^\circ\text{C}$ und der Zielwert für $T_{\text{cold flow}} = -26,25 \text{ }^\circ\text{C}$. Im Umkehrschluss lässt sich mit Gleichung 2.4 zeigen, dass die Mischung aus Q_{AWM} und Q_C (bei $Q_{\text{AWM}} = 3 \text{ L min}^{-1}$ und $Q_C = 4 \text{ L min}^{-1}$) eine Mischtemperatur von $T_{\text{Mix}} = -15 \text{ }^\circ\text{C}$ ergibt.

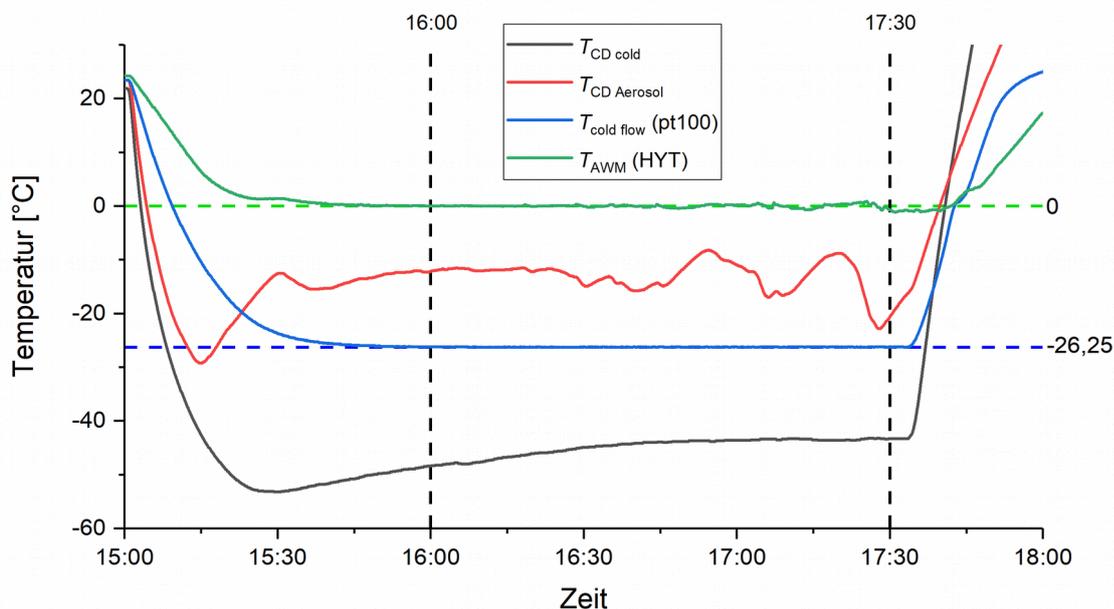


Abbildung 4.13: Temperaturen von Q_{AWM} und Q_C sowie den zugehörigen Kühlköpfen. In der Abbildung sind weiter die Zieltemperaturen beider Flüsse (horizontale, gestrichelte Linien) und der Referenzzeitraum (vertikale Linien) (vgl. Abb. 4.12) eingezeichnet.

Abbildung 4.13 zeigt den Kühlvorgang der Flüsse sowie der zugehörigen Temperaturen der Wärmetauscher. Im bereits betrachteten Zeitraum von 16:00 – 17:30 Uhr ergibt sich so ein Mittelwert der AWM-Temperatur von $T_{\text{AWM}} = 0,0 \pm 0,3 \text{ }^\circ\text{C}$. Die Dauer bis der Zielwert erreicht wird, beläuft sich auf ca. 45 Minuten.

Ebenfalls etwa 45 Minuten dauert es bis die Zieltemperatur von Q_C erreicht wird. Das arithmetische Mittel ergibt sich zu $T_{\text{cold flow}} = -26,25 \pm 0,05 \text{ °C}$ im bekannten Zeitraum. Es zeigt sich somit, dass die Temperatur des kalten Flusses deutlich weniger variiert als die Temperatur des Q_{AWM} . Dies kann auch anhand der Kühlkopftemperaturen erkannt werden. Während der Kühlkopf des kalten Flusses wenig Änderungen in der Temperatur zeigt (schwarze Linie), ist die Kühlkopftemperatur von Q_A deutlich variabler (rote Linie). Dies resultiert aus den Änderungen der Flusszusammensetzung während der Messphase, wodurch die Regelungselemente der Temperatur der Zieltemperatur angepasst werden müssen.

Betrachtet man nur diese Abweichungen vom Mittel erkennt man die nötigen Phasen stärkerer Regelung.

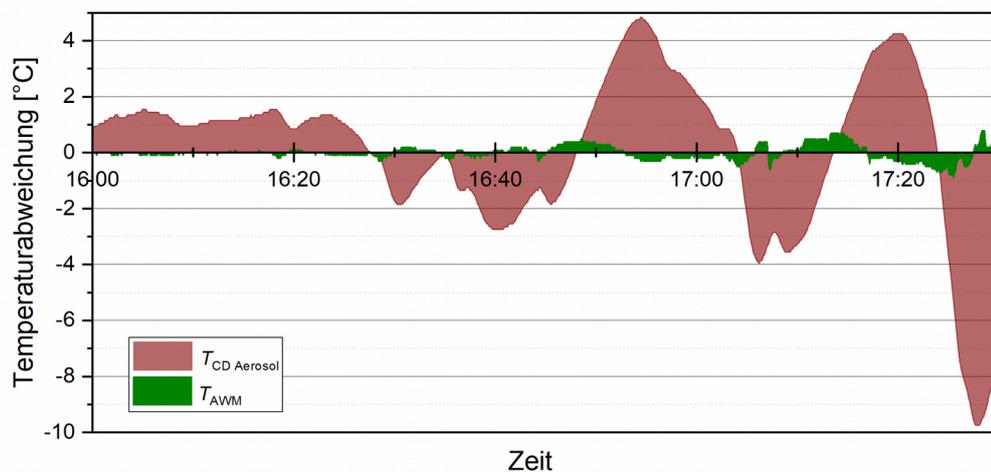


Abbildung 4.14: Abweichungen der HYT-Temperatur (grün) und QA-Kühlkopftemperatur vom zeitlichen Mittelwert.

Der Wärmetauscher des Q_A zeigt im besprochenen Zeitraum Schwankungen von bis zu 10 °C , wie in Abbildung 4.14 zu sehen ist (braun). Die Temperatur im Fluss (grün) variiert deutlich weniger. Es wird aber deutlich, wie sehr die Wärmetauscher abgekühlt werden müssen, um eine gezielte Wirkung zu erreichen. Durch diese starke Variation ergibt sich auch eine Variation in der Restfeuchte des Q_A , welcher durch den Wärmetauscher bestimmt wird (vgl. Kap. 4.4). Um dieses zu umgehen ist es möglich die Regelung der Flusstemperaturen zu umgehen und direkt die Kühlkopftemperaturen als Prozessvariablen zu benutzen.

4.7 Genauigkeit der Sättigung

Letzte der regelbaren Variablen ist das Sättigungsverhältnis über das Verhältnis zwischen warmem (Q_w) und feuchtem Fluss (Q_M). Im eben beschriebenen Experiment mit Snomax[®]-Partikeln lässt sich erkennen, dass die Aktivierung der Partikel bei einem Sättigungsverhältnis von $S_{\text{upper}} = 0,92$ beginnt (Abb. 4.15).

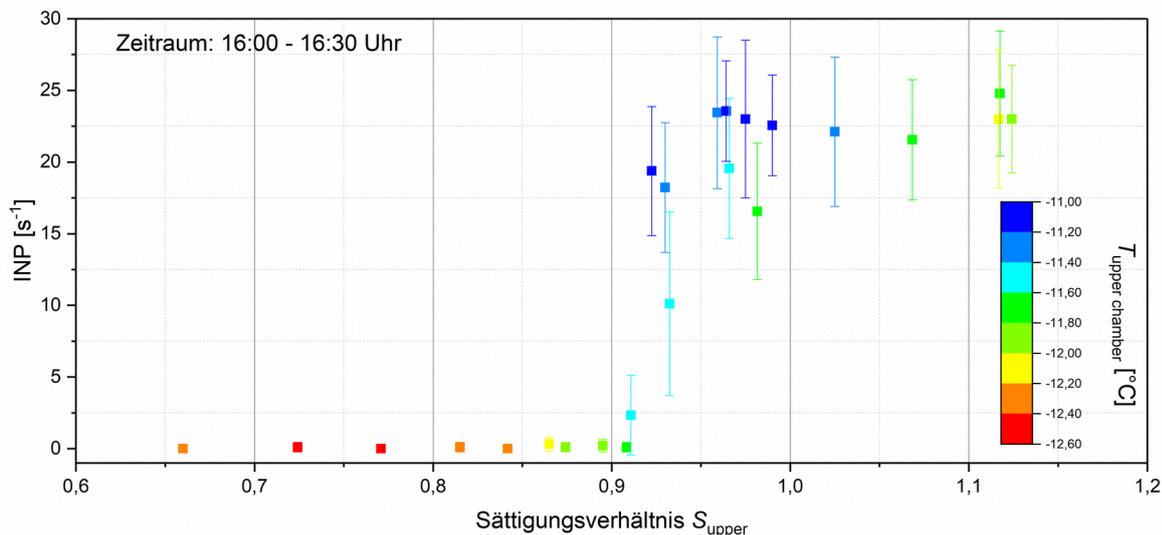


Abbildung 4.15: INP-Anzahlkonzentration aufgetragen gegen das Sättigungsverhältnis S_{upper} . Farbkodiert ist die Kammertemperatur $T_{\text{upper chamber}}$.

Ab einem Sättigungsverhältnis von $S_{\text{upper}} \approx 0,95$ erreicht die INP-Konzentration ein Plateau. Durch die Farbkodierung in Abbildung 4.15b ist zu dem zu erkennen, dass zu Beginn der Aktivierung die Temperatur $T_{\text{upper chamber}}$ leicht (um etwa 1 °C) ansteigt.

Die Bezugstemperatur ist dabei der dominierende Einfluss auf die Sättigungsverhältnisse in der Kammer. Abbildung 4.16a zeigt die Sättigungsverhältnisse im Aktivierungsexperiment. Es zeigt sich deutlich, dass der Verlauf von S_{upper} , S_{lower} und S_{mix} stark korrelieren. Lediglich der Wert variiert zwischen den Verhältnissen. S_{mix} liegt im betrachteten Zeitraum im Mittel bei $1,3 \pm 0,3$ und ist somit das höchste Sättigungsverhältnis, während S_{upper} bei $1,0 \pm 0,2$ den niedrigsten Wert hat.

Der Unterschied liegt hier in der Bezugstemperatur (vgl. Abb. 4.16a). Die aus der Mischung errechnete T_{mix} ist im Mittel 2,7 °C kälter als die gemessene $T_{\text{upper chamber}}$. Die Ursachen dafür können u. a. in unzureichender Abdeckung der Sensoren liegen. Die gemessene Temperatur im unteren Bereich der Kammer ($T_{\text{lower chamber}}$) ist um etwa 1,2 °C kälter als $T_{\text{upper chamber}}$. Hier spielt auch der Einfluss einer ungleichmäßigen Wandkühlung eine Rolle.

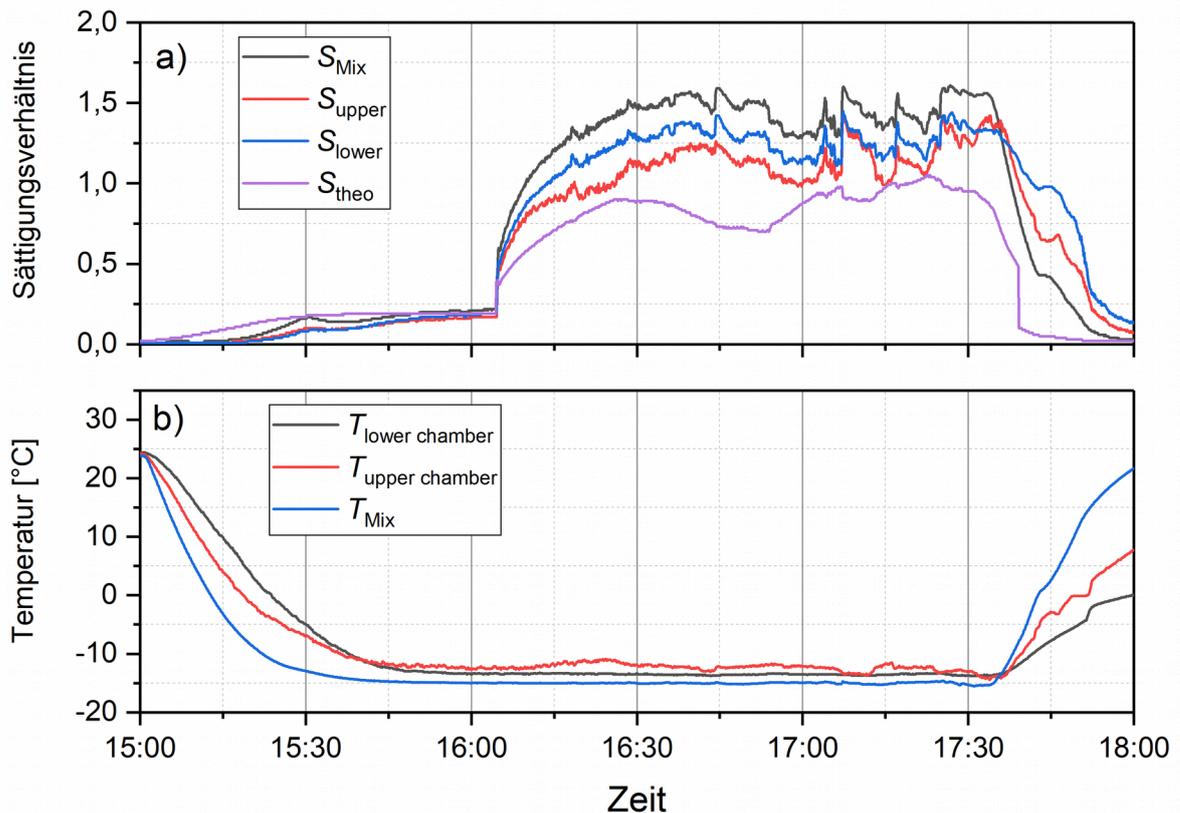


Abbildung 4.16: Sättigungsverhältnisse (a) und Kammertemperaturen (b) einer Aktivierungsmessung

Noch nicht betrachtet wurde bisher das Sättigungsverhältnis S_{theo} , welches auf der auf Annahmen basierten Mischung über vier Flüsse berechnet wird (siehe Kap. 2.2.2). Auf Abbildung 4.16 liegt S_{theo} deutlich unter den anderen Sättigungsverhältnissen (im Mittel bei $0,7 \pm 0,2$). Dies liegt aber an der Bedienung durch den Benutzer von FINCH. Die Regelung erfolgte auf S_{upper} , wodurch versucht wird diese, über das Auslesen der Istwerte, konstant zu halten. Für S_{theo} müssen die Annahmen manuell angepasst werden, was für lange Messungen schwer machbar ist. Für einen dauerhaften Messbetrieb ist deshalb die Rechnung mit zwei Flüssen (s. Kap. 2.2.1) der Mischungsrechnung mit allen vier Flüssen vorzuziehen. Für ein besseres Verständnis der Vorgänge in der Kammer und bessere Interpretationsmöglichkeiten der Wechselwirkungen mit der Kammerwand, bietet diese Variante über S_{theo} aber auch Vorteile. So ist es beispielsweise möglich gezielt die aktuelle Kammertemperatur zu simulieren.

Grundsätzlich sei erwähnt, dass die Sättigung durch den feuchten Fluss geregelt wird. Eine Korrelation im betrachteten Zeitraum ergibt zwischen S_{upper} und Q_m einen Korrelationskoeffizient von $r = 0,83$. Ähnlich hoch liegt die Korrelation zwischen rH_{AWM} und S_{upper} , nämlich bei $r = 0,84$. Überlagernde Effekte können an Änderungen in den Temperaturverhältnissen liegen.

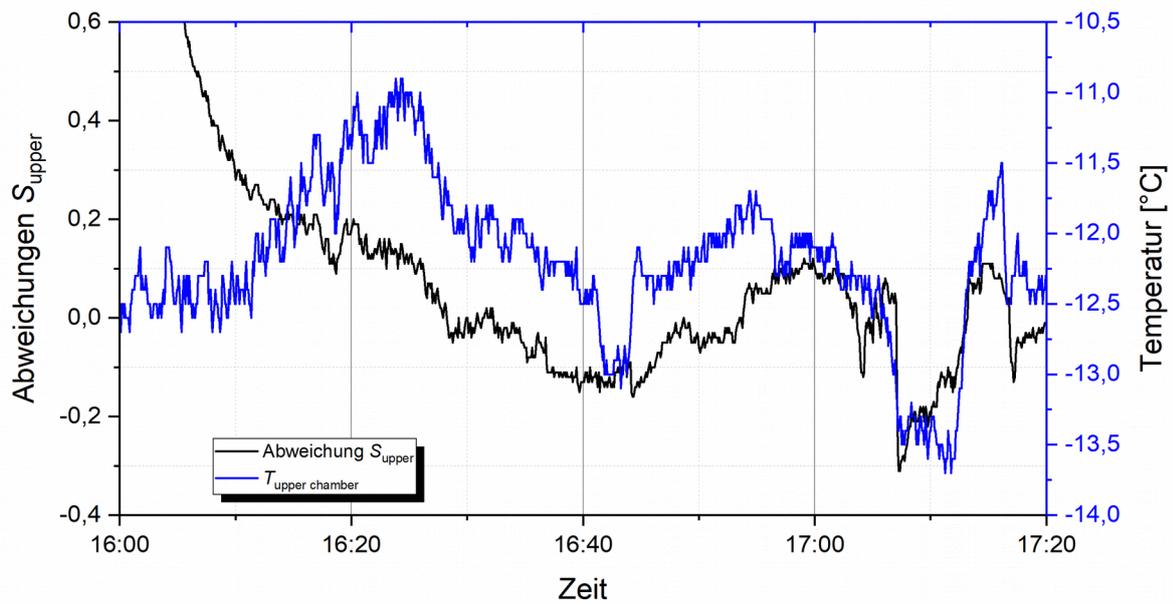


Abbildung 4.17: Abweichung von S_{upper} zum Zielwert sowie $T_{upper\ chamber}$ im betrachteten Experiment.

Abbildung 4.17 zeigt dazu die Abweichungen von S_{upper} (Zielwert – S_{upper}) und die Temperatur im oberen Kammerbereich. Man kann erkennen, dass gerade gegen 17:10 Uhr beide Kurven gleichzeitig einbrechen. Ein ähnliches Phänomen ist gegen 16:42 Uhr zu sehen. Allerdings bricht hier nur die Temperaturkurve ein und die Abweichung der Sättigung zeigt keine große Veränderung.

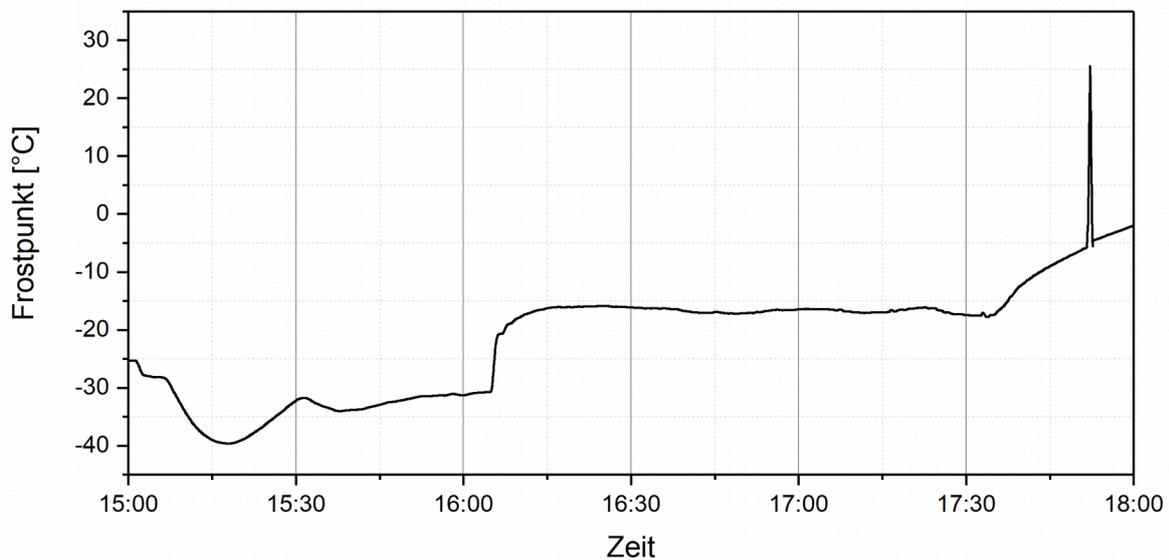


Abbildung 4.18: Mit dem MBW 373 hinter der Kammer ermittelte Frostpunkttemperatur im Verlauf des Snomax[®]-Experimentes.

Betrachtet man den Verlauf der Frostpunktstemperatur, welche mit dem MBW 373 Taupunktspiegel hinter der Kammer ermittelt wurde, erkennt man auch hier das Einschalten des feuchten Flusses gegen 16:05 Uhr (Abb. 4.18).

Wird der Frostpunkt vor Einschalten des Q_m noch von der Restfeuchte von Druckluft und Probenfluss beeinflusst, so bleibt der Frostpunkt für den restlichen Messzeitraum ziemlich konstant ($-16,5 \pm 0,4$ °C). Es ist anzunehmen, dass die Oberfläche der Wand ab diesem Zeitpunkt gesättigt ist und der Frostpunkt aus diesem Grund der Wandtemperatur folgt. Festzuhalten ist, dass der Frostpunkt in dem konstanten Zeitraum (von 16:15 Uhr bis 17:30) etwa $1,5$ °C kälter als $T_{\text{upper wall}}$ ist (vgl. Kap. 4.6).

Erst zu Ende der Messung steigt die Frostpunkttemperatur wieder an, da (ab etwa 17:30 Uhr) die Kammer und die Kühlköpfe wieder erwärmt werden und so die vorher im System abgelagerte Feuchte auf diesem Weg wieder frei wird.

4.8 Weitere Aktivierungsmessungen

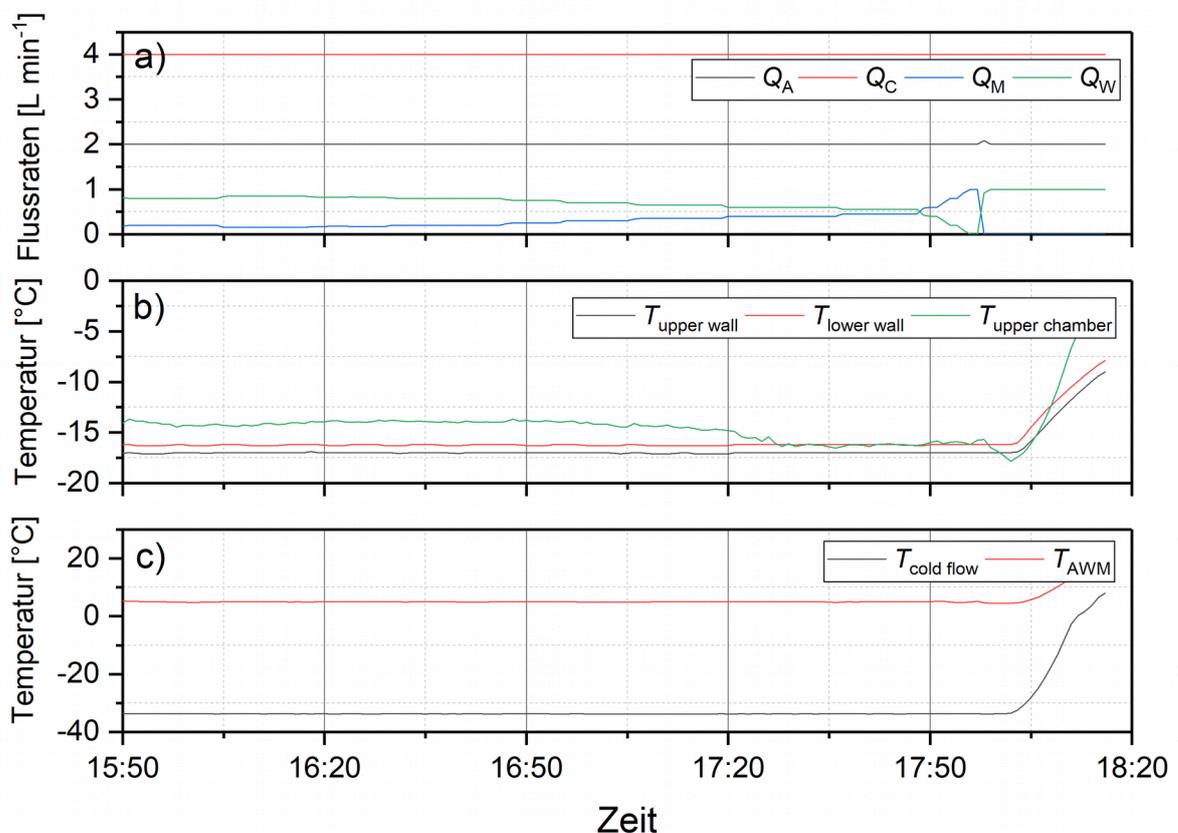


Abbildung 4.19: Flussraten (a) und Temperaturen (b), (c) in FINCH während einer Aktivierungsmessung mit 100 nm Snomax®-Aerosolpartikeln. Die Flussrate von Q_M wurde manuell variiert.

Zur weiteren Vertiefung des Messvorganges mit FINCH soll an dieser Stelle noch weitere Beispiele eines Messablaufes betrachtet werden. Dazu wurde nach Kap. 2.9.3 über den DMA ($D_p = 100 \text{ nm}$) Snomax[®]-Partikel erzeugt und mit FINCH aktiviert. Grundlegender Unterschied zu den eben besprochenen Messung ist, dass Q_M im Laufe der Messung manuell variiert wurde. Dabei wurde die Flussrate bis zur maximalen Ausgabe des MFC (in diesem Fall 1 L min^{-1}) erhöht.

Abbildung 4.19 zeigt in einer Übersicht die Flussraten und die Temperaturen in der FINCH-Kammer. Gut zu sehen ist, dass die Flussrate des Q_M (und über das konstante Verhältnis von Q_W und Q_M eben auch Q_W (vgl. Kap. 2.3)) in Stufen angesteuert wurde. Die Temperaturen sind wie in den vorangegangenen Kapitel 4.5 und 4.6 eingestellt, womit sich eine Zieltemperatur von -15 °C ergibt.

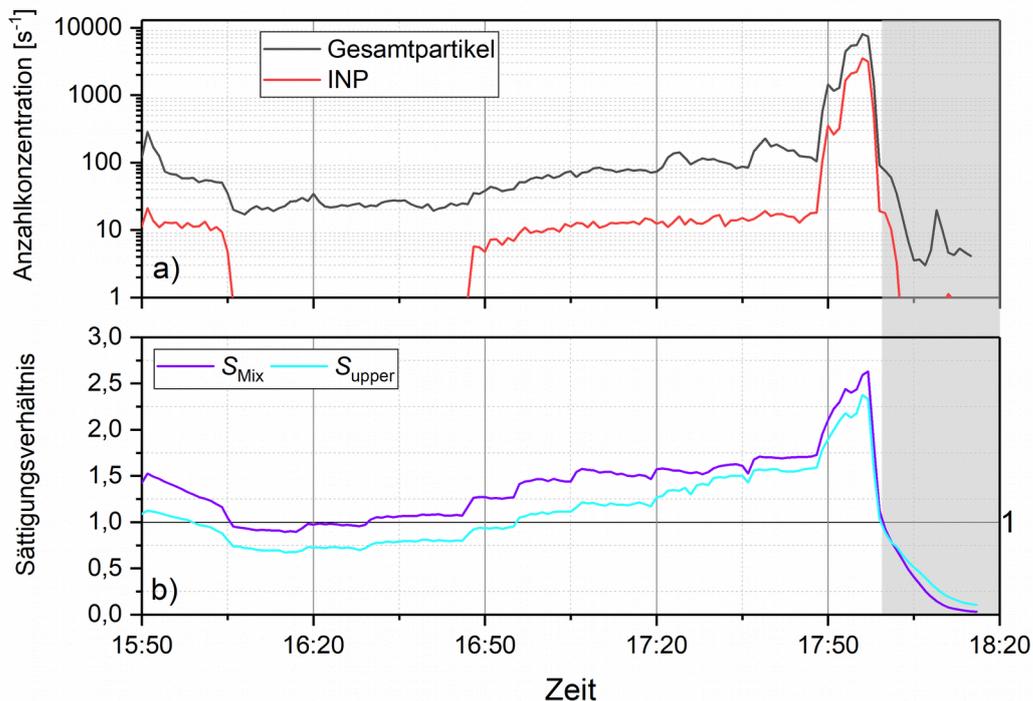


Abbildung 4.20: Verlauf der über CH2 ermittelten Gesamtpartikelkonzentration (a), INP-Konzentration und Sättigungsverhältnis (b) S_{upper} und S_{Mix} einer Aktivierungsmessung mit 100 nm Snomax[®]-Aerosolpartikeln. Grau hinterlegt sind Zeiten mit Nullfiltermessung.

Die resultierenden Partikelkonzentrationen sind in Abbildung 4.20 zu sehen. Es ist zu erkennen, dass die Aktivierung von Partikeln mit Unterschreiten der Sättigung gegen 16:06 Uhr aufhört und erst wieder beginnt, wenn auch S_{Mix} bzw. S_{upper} wieder steigen. Damit wird gezeigt, dass die Mischung die Aktivierung bedingt und nicht etwa Diffusionsprozesse von der Wand. Durch das Ändern des Q_M ist es somit möglich relativ schnell die Feuchte zu variieren. Der

feuchte Fluss Q_M korreliert im betrachteten Zeitraum mit $r = 0,77$ mit den dargestellten Sättigungsverhältnissen.

Im weiteren Verlauf der Messung wurde der Q_M weiter erhöht, bis gegen 17:55 Uhr das Maximum von 1 L min^{-1} erreicht war. Es fällt auf, dass die INP- aber auch die CH₂-Partikelkonzentration bereits ab 17:49 (bei $Q_M = 0,6 \text{ L min}^{-1}$ und damit $S_{\text{upper}} = 1,7$) um eine Größenordnung, im weiteren Verlauf um zwei Größenordnungen ansteigen. Es ist zu vermuten, dass es zu diesem Zeitpunkt zu einem „Durchbrechen“ der Tröpfchen kommt. Erst ab dieser relativ hohen Feuchte können Tröpfchen groß genug wachsen, um am Ende der Kammer von der Optik detektiert zu werden. In vorhergehenden Feuchteverhältnissen würden Tropfen zu Gunsten der Eispartikel auf dem Weg durch die Kammer wieder verdunsten.

Um 17:58 wurde der QM ausgeschaltet und man erkennt, dass die Anzahlkonzentrationen deutlich zurückgehen. Bevor der Filter an das System geschlossen wurde, erkennt man noch einen Messpunkt der INP, welche der vorherigen Eisfraktion entsprechen könnte. Danach gehen beide Konzentrationen gegen 0. Auf der Übersichtsabbildung 4.19 ist nun das Einschalten der Heizelemente und das Erwärmen der Kammer zu sehen.

Die nachfolgende Abbildung 4.21 zeigt den Verlauf einer weiteren Messung mit Snomax[®]-Aerosolpartikeln. Hierbei wurden im bekannten Aufbau 650 nm Partikel erzeugt. Das Sättigungsverhältnis S_{upper} wurde als Regelparameter benutzt und kontinuierlich erhöht (4.21c).

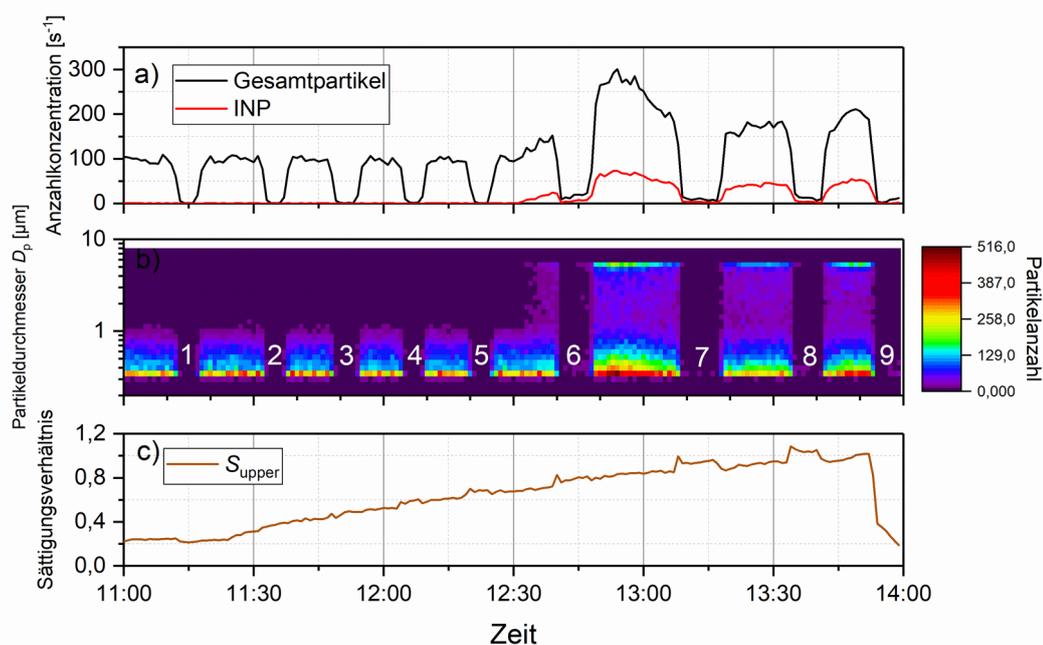


Abbildung 4.21: Partikelkonzentration (a), CH₂-Signalintensität (b) und Sättigungsverhältnis (c) einer Messung mit 650 nm Snomax[®]-Partikeln.

Als Unterschied zu eben genannten Beispiel wurden in regelmäßigen Abständen Nullfiltermessungen gemacht, welche in der Abbildung von 1 - 9 durchnummeriert sind.

Es ist zu erkennen, dass die Anzahl der Hintergrundpartikel mit der Zeit der Messdauer ansteigt. Ein besonderer Anstieg ist zu Beginn der Aktivierung zu erkennen.

Im Mittel werden in den Nullfilterphasen ohne Aktivierung (aber bereits regelndem Q_M) etwa $0,8 \pm 0,3$ Partikel s^{-1} gemessen. INPs werden nicht gezählt. Ab Filterphase 6 nimmt dies deutlich zu: hier werden $2,7 \pm 0,8$ INPs und $11,0 \pm 2,1$ Gesamtpartikel pro Sekunde detektiert.

Dieses Resultat unterstreicht die Wichtigkeit der Nullfiltermessungen sowie einer notwendigen Angleichung der Messwerte (durch Abziehen des Hintergrundsignals).

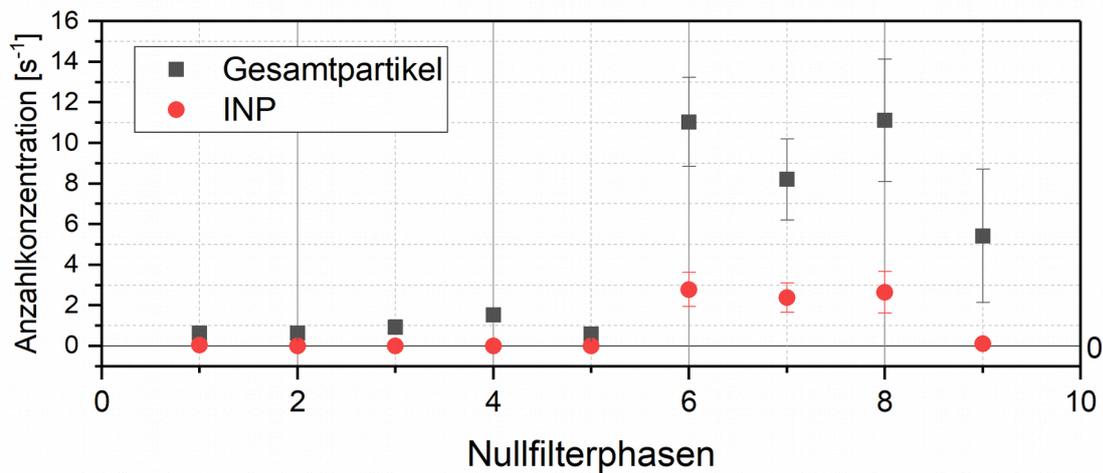


Abbildung 4.22: Mittelwert der Partikelkonzentrationen während der Nullfilterphasen. Fehlerbalken sind Standardabweichungen.

5 Erste Anwendungen von FINCH

Am Ende dieser Arbeit werden zwei Anwendungen von FINCH mit F-OPS gezeigt. Zum einen soll eine Labormessung mit Snomax[®]-Aerosol mit Literaturwerten verglichen werden und zum anderen soll ein Auszug aus einer Feld-Messkampagne auf dem Jungfraujoch aus dem Frühjahr 2017 gezeigt werden.

5.1 Snomax[®]-Aktivierung

Um einen Vergleich der Messkonfiguration von FINCH mit anderen Messgeräten zu erhalten, wurden Snomax[®]-Aerosolpartikel (über DMA mit $D_p = 650$ nm) im Aufbau nach Kapitel 2.9.3 im Atomizer erzeugt und in die Kammer geleitet. Der Messablauf folgt dabei grundsätzlich Kapitel 4.5. Die Temperaturen wurden angesteuert und die Feuchte langsam hoch geregelt, bis die INP-Konzentrationen ein Plateau erreicht haben. Danach erfolge eine Variation der Temperatur und ein neue Messphase.

Aus den Daten des während der Messung mitlaufenden TSI 3025 CPC (vgl. Abb. 2.23) sowie den über den F-OPS ermittelten INP-Konzentrationen im Plateau wurde die aktivierte Eisfraktion f_{ice} berechnet. Für die aktivierte Fraktion gilt:

$$f_{ice} = \frac{n_{INP}}{n_{partikel}} = \frac{n_{F-OPS}}{n_{CPC}} \quad 5.1$$

und ist demnach das Verhältnis zwischen der Anzahlkonzentration der Eiskeime und dem gesamten Aerosolpartikelkonzentration.

Die aktivierten Fraktionen der einzelnen Snomax[®]-Messungen wurden mit Snomax[®]-Messungen aus LACIS verglichen. LACIS (engl. „*Leipzig Aerosol cloud interaction simulator*“) lässt Untersuchungen von Wolkentröpfchen unter atmosphärischen Bedingungen zu [Stratmann et al., 2004]. Die Flussröhre von LACIS ist 7 m lang und in jeweils 1 m lange Sektionen unterteilt, welche unterschiedlich gekühlt werden können. Die Snomax[®]-Partikel wurden wie in FINCH aus einer Snomax[®]-Lösung über Atomizer erzeugt und untersucht [Hartmann et al., 2013].

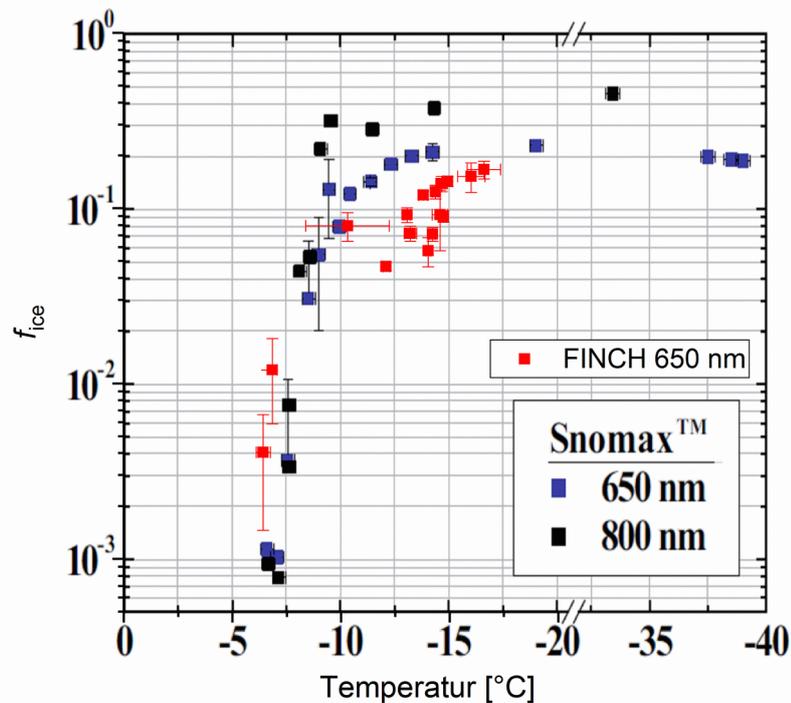


Abbildung 5.1: Aktivierte Fraktion als Funktion der Temperatur. Die FINCH-Daten sind auf $T_{\text{upper chamber}}$ bezogen. Weitere Werte nach [Hartmann et al., 2013].

Abbildung 5.1 zeigt die Messungen der Studie nach Hartmann et al. und der in dieser Arbeit angefertigten Werte für f_{ice} der Snomax[®]-Partikelmessungen (rote Quadrate) [Hartmann et al., 2013]. Es ist zu sehen, dass ab $T_{\text{upper chamber}} \approx -6,5 \text{ °C}$ erste Eisfraktionen ermittelt wurden. Diese liegt im Mittel bei 0,004. Mit kälteren Temperaturen werden auch Eisfraktion zwei Größenordnungen höher ermittelt ($f_{\text{ice}} = 0,16$).

Im Vergleich mit Hartmann et al. liegen die ersten mit FINCH ermittelten Eisfraktionen leicht bei wärmeren Temperaturen, die Größenordnung der Eisfraktion ist aber ähnlich hoch. Ab etwa -12 °C liegen die Eisfraktion der Snomax[®]-Partikel unter den aktivierten Fraktionen aus Hartmann et al. Außerdem sind diese zu etwas kälteren Temperaturen verschoben. Allerdings sei auch hier erwähnt, dass die ermittelten f_{ice} relativ nahe an den Literaturwerten liegen. Es ist nicht auszuschließen, dass dies durch die unterschiedlichen Messmethodik oder durch eine unterschiedliche Snomax[®]-Probe zustande gekommen ist.

In [Wex et al., 2015] wurden frühere Ergebnisse aus Snomax[®]-Messungen mit FINCH veröffentlicht (Abbildung 5.2). Deutlich zu erkennen ist, dass die aus jener Studie stammenden FINCH-Messungen deutlich höhere Eisfraktionen hervorgebracht hat als die Messungen in dieser Arbeit.

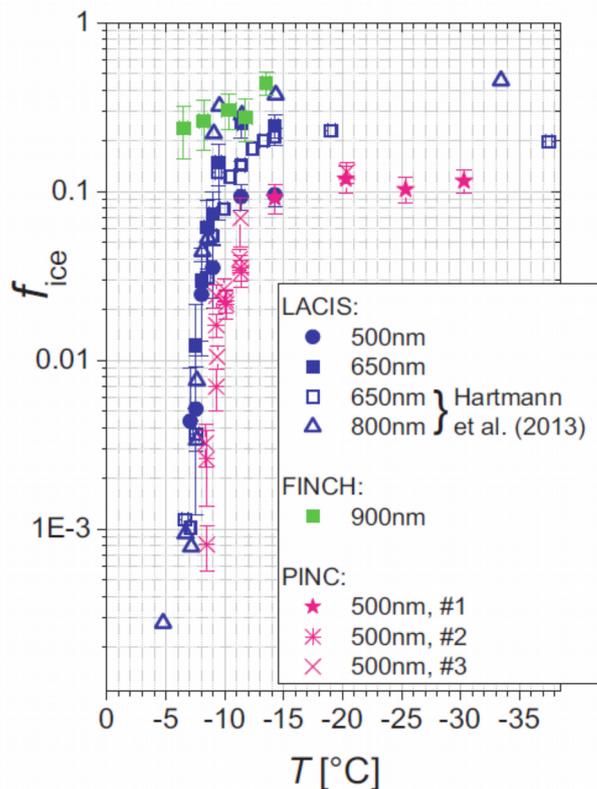


Abbildung 5.2: Aktivierte Fraktion als Funktion der Temperatur für verschiedene Snomax[®]-Größen und Experimente. [Wex et al., 2015]

Bei einer Temperatur von $-13,5\text{ }^{\circ}\text{C}$ liegt die aktivierte Fraktion bereits bei 0,45, während in dieser Arbeit bei $-13\text{ }^{\circ}\text{C}$ $f_{ice} \approx 0,1$ ist. Allerdings ist auch hier zu bemerken, dass es sich um unterschiedliche Snomax[®]-Partikelgrößen handelte. Um einen Vergleich mit Hartmann et al. zu erzielen wurden Snomax[®]-Partikel mit $D_p = 650\text{ nm}$ benutzt, während die FINCH-Daten aus [Wex et al., 2015] auf $D_p = 900\text{ nm}$ basieren.

Weiter wurde bei Wex et al. für FINCH als einziges in der Studie verglichenes Messgerät kein Anstieg in der Eisfraktion festgestellt. Dieser Anstieg konnte in dieser Arbeit nachgestellt werden. Der Verlauf der Kurven entspricht somit besser den anderen Messinstrumenten, wobei weiter die Unterschiede in Technik und Methode bestehen.

5.2 Jungfraujoch 2017 Messung

Während der INUIT/CLACE Kampagne 2017, welche vom 22. Januar bis zum 20. Februar 2017 auf dem Jungfraujoch (Schweiz) stattfand, wurde FINCH erstmals in der beschriebenen Konfiguration außerhalb des Labors betrieben. Exemplarisch soll an dieser Stelle eine Messphase beschrieben werden.

Das Jungfraujoch liegt auf dem Verbindungsgrat zwischen den Bergen Jungfrau (4158 m) und Mönch (4107 m) in den Berner Alpen. Die Unterkünfte der Forschungseinrichtung liegen auf ca. 3450 m. Richtung Nordwesten und Südosten fällt das Gelände ab, wobei sich im Südosten der Aletsch-Gletscher befindet. Die Messplattform im Sphinx-Observatorium liegt noch einmal ca. 100 m höher auf 3580 m sehr prominent in mitten des Grats. Während das Gelände des Jungfraujochs durch Bahnhof, Restaurants und diversen Shops auf internationalen Tourismus ausgelegt ist, ist der Zugang zum Observatorium nur wissenschaftlichem und technischem Personal gestattet. Die Besucherplattform unterhalb des Observatoriums ist allerdings



Abbildung 5.3: Satellitenbild von Europa am 12.02.2017, 12 UTC [SRF, 2017]

für jedermann geöffnet. Gerade in den Besucherzeiten (von ca. 09:00 – 17:00 Uhr) kann es deshalb zu Beeinträchtigungen durch Besucher kommen.

Die monatlichen Durchschnittstemperaturen liegen für Januar und Februar zwischen $-14,2\text{ °C}$ und $-10,5\text{ °C}$. Der mittlere Luftdruck auf Höhe der Forschungsstation liegt bei etwa 654 hPa. Während der

Messung am 12.02.2017 begann der Tag mit dünnen Wolken in großer Höhe sowie dichtem Hochnebel über dem Mittelland. Gegen Mittag wurden die Wolken dünner (vgl. Abb. 5.3) und ab Nachmittags war es sonnig. Die Nullgradgrenze lag bei 2400 m [SRF, 2017].

FINCH war während der Kampagne über Edelstahlrohr u. a. mit einem Total-Inlet verbunden. Ein Abzweig in der Einlassleitung ermöglichte zudem das Wechseln auf einen Filter ohne dabei den Fluss zu verändern.

Die Zieltemperatur von FINCH wurde auf -25 °C eingestellt und das Sättigungsverhältnis über einen konstanten Q_M geregelt. S_{upper} lag während der Messphase von 11 Uhr bis 14:30 Uhr bei $S_{\text{upper}} = 1,2 \pm 0,1$ und war damit durchgehend übersättigt. Abbildung 5.4c) zeigt auch die weiteren Sättigungsverhältnisse in der Kammer. Eine Variation ist auch hier wieder auf $T_{\text{upper chamber}}$ zurückzuführen, was (gerade zwischen 12 Uhr und 12:30 Uhr) deutlich schwankt. Die weiteren Kammertemperaturen (Abb. 5.4d) bleiben über den Messzeitraum recht konstant.

Die Messung ist durch Nullfilterperioden unterbrochen. In der letzten Filterphase beginnt das Heizen der Kühlköpfe, wodurch die Anzahlkonzentration nicht auf 0 zurück geht.

Für die Anzahl der INPs können drei Phasen ausgemacht werden. Zwischen 11:20 Uhr und 12:50 Uhr beträgt die mittlere, mit FINCH ermittelte INP-Konzentration $1,4 \pm 4,1\text{ L}^{-1}$. Am frühen Nachmittag, zwischen 12:50 Uhr und 14:00 Uhr, stiegen die INP-Konzentrationen deutlich an. In diesem Zeitraum wurde ein Mittelwert von $52 \pm 30\text{ L}^{-1}$ gemessen. Ab 14 Uhr sinken die INP-Konzentrationen wieder und erreichen bis zum Beginn der Heizphase ein Mittel von $2,0 \pm 3,3\text{ L}^{-1}$.

Eisnukleierende Partikel werden auf dem Jungfraujoch in mehreren Kampagnen bereits seit dem Jahr 2000 untersucht [Bukowiecki et al., 2016]. Dadurch ist es möglich einige lokale Referenzen an INP-Anzahlkonzentrationen zu zitieren. Chou et al. finden eine mittlere Konzentration von 8 INP L^{-1} im März und 14 L^{-1} im Juni 2009, bestätigen aber auch, dass durch Stau-

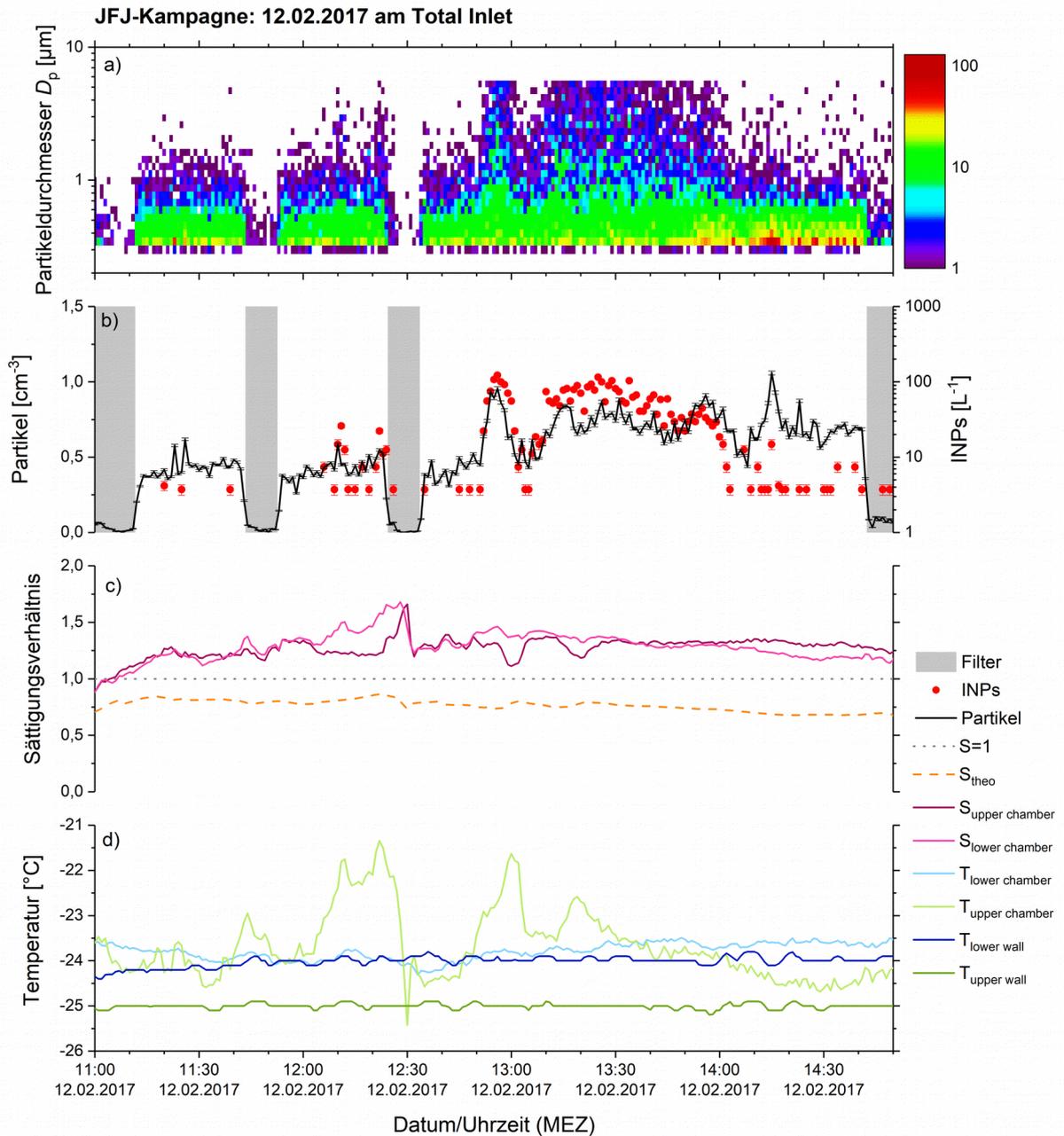


Abbildung 5.4: FINCH-Messung während der INUIT/CLACE Kampagne 2017 am 12.02.2017. a) zeigt die Größenverteilung der über CH2 detektierten Signale, b) die INP und Partikelkonzentrationen, c) die Sättigungsverhältnisse in der Kammer und d) die Temperaturen im Messverlauf.

beitragen die INP-Konzentration um eine Größenordnung steigen kann [Chou et al., 2011]. Boose et al. finden im Januar 2012 im Depositionsnukleationsregime $1,09 \pm 0,78 \text{ INP L}^{-1}$. Im Bereich von Kondensationsgefrieren wurde eine Anzahlkonzentration von $4,7 \pm 8,3 \text{ L}^{-1}$ während CLACE2014 ermittelt [Boose et al., 2016]. Niedrigere Konzentrationen im Winter 2015 und 2016 messen Lacher et al. mit $\leq 0,2 \text{ L}^{-1}$ ohne Wassersättigung. Über Wassersättigung werden im Mittel $3,7 \text{ INP L}^{-1}$ gemessen [Lacher et al., 2017]. In diesen Zahlen sind einzelne

Events mit deutlich höheren INP-Konzentrationen nicht berücksichtigt. Auch Boose et al. berichten von Staubevents mit deutlich höheren Konzentrationen [Boose et al., 2016]. Conen et al. berichten für Immersionsgefrieren bei warmen Temperaturen (-8 °C) zwischen 1 und 10 INP m^{-3} im Sommer und $< 0,1\text{ m}^{-3}$ in den Wintermonaten [Conen et al., 2015].

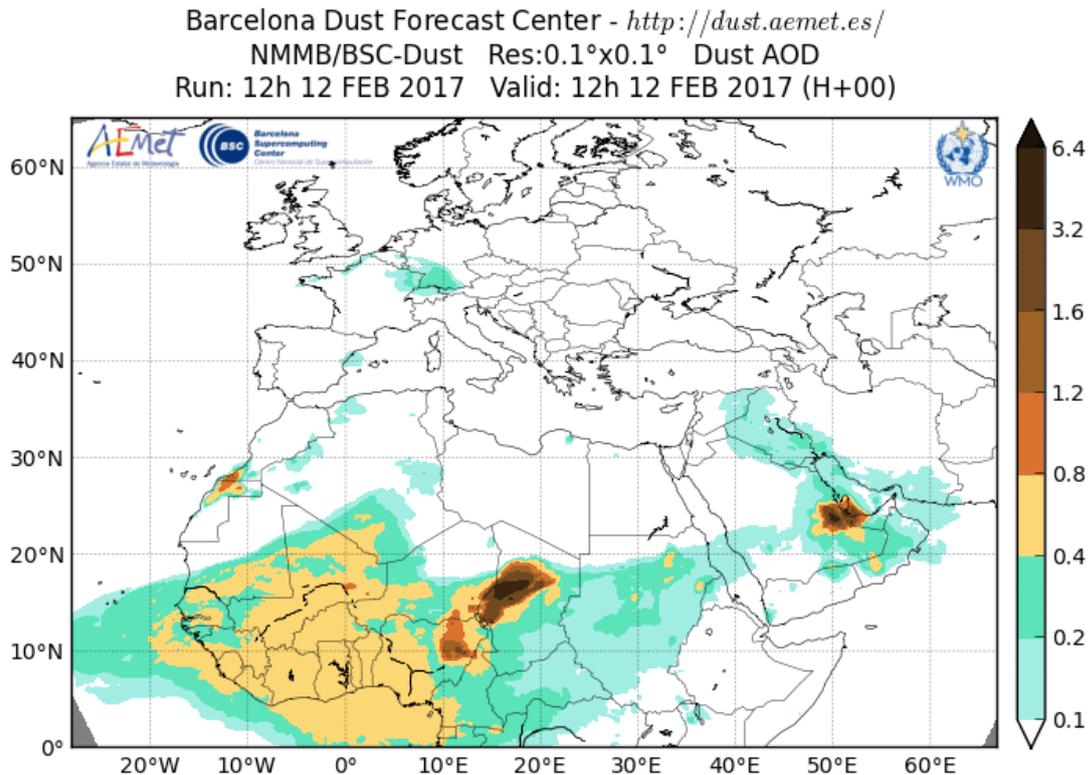


Abbildung 5.5: Optische Dichte von Aersolschichten am 12.02.2017 [BSC, 2017]

Je nach Methode und Gefrierregime ist die INP-Anzahlkonzentration auf dem Jungfraujoch relativ unterschiedlich, bewegt sich aber im Bereich von wenigen INP L^{-1} bis hin zu mehreren hundert INP L^{-1} während Staubeignissen [Bukowiecki et al., 2016]. Die Messungen mit FINCH am 12.02.2017 fügen sich somit in bekannte Größenordnungen ein. Es stellt sich die Frage, was zu dem Anstieg der INP-Konzentrationen zwischen 12:50 Uhr und 14:00 Uhr führte. Ein Vergleich mit dem NMMB/BSC-Dust-Model (Abbildung 5.5), zeigt dass am 12.02.2017 ein leichter Eintrag an Staub über der Schweiz und Süddeutschland zu sehen ist. Der parallel zu FINCH betriebene TSI 3330 OPS am Total-Inlet zeigte ebenfalls eine Änderung der Partikel Zusammensetzung ab 14 Uhr (Abb. 5.6). Ab diesem Zeitpunkt nahm die Anzahl von Partikel mit $D_p < 400\text{ nm}$ deutlich zu und im Gegenzug war ein Einbrechen der Anzahl von größeren Partikeln zu erkennen. Auch Partikel der Größe $1\text{ }\mu\text{m}$ werden weniger. Besonders deutlich wird der kleine Peak gegen 14:15 Uhr auf TSI OPS und F-OPS dargestellt.

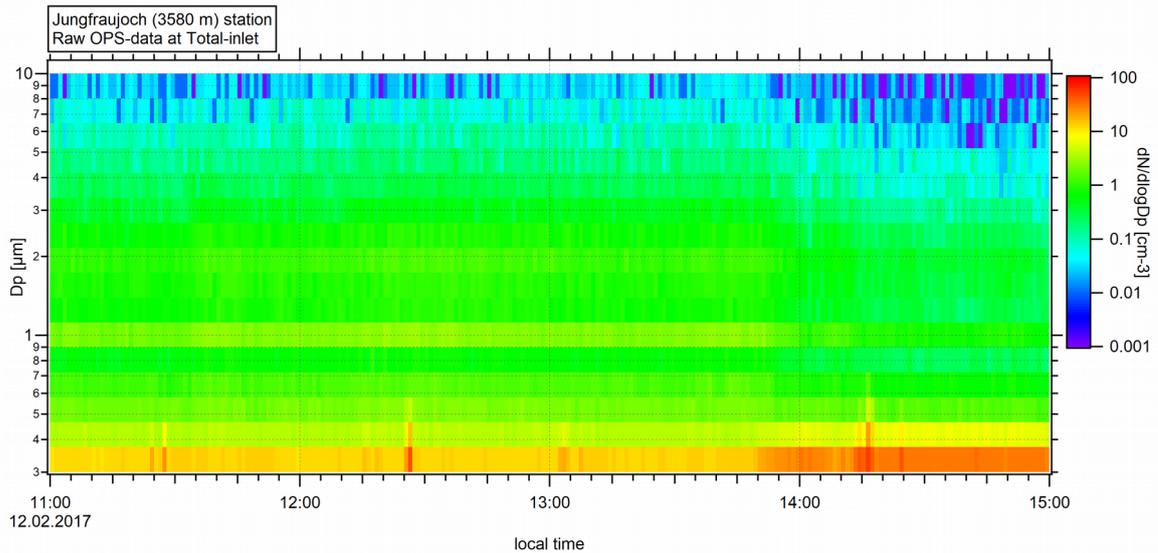


Abbildung 5.6: Aerosolpartikel-Größenverteilung am 12.02.2017 gemessen mit einem TSI 3330 OPS in der Total-Inlet-Einlassleitung.

Eine Änderung vor 12:50 Uhr ist auf der OPS-Abbildung nicht ersichtlich. Damit muss der Anstieg der INP-Konzentrationen andere Ursachen haben. Dies wird allerdings im Rahmen einer ausführlichen Betrachtung der gesamten Messkampagne an anderer Stelle untersucht.

6 Diskussion und Schlussfolgerungen

6.1 FINCH-Optik

In dieser Arbeit wird gezeigt, dass mit dem F-OPS als Partikelzähler und Größenspektrometer zuverlässig gemessen werden kann. Die Zählstatistik lässt sich dabei sehr gut mit einem TSI OPS (Abb. 3.23) vergleichen, was ebenfalls für die Größenauflösung (Abb. 3.25) gilt. Die elektrische Signalverarbeitung wurde in den LED-Experimenten verifiziert. Im betrachteten Frequenzbereich kann jeder Signalimpuls gezählt werden, was zudem die Neuentwicklung der Software bestätigt. Auch die vorher bekannten Probleme mit elektromagnetischer Einstrahlung konnten vollständig behoben werden. Es wird allerdings eine regelmäßige Überprüfung empfohlen.

Grundsätzlich ist festzuhalten, dass die gemachten Messungen nur mit den festgelegten Grundeinstellungen wie beispielsweise den Verstärkungsspannungen der Photomultiplier nach Tabelle 3.1 gültig sind. In Bezug auf Partikelmessungen ist vor allem der Fluss durch die Optik eine große Variable. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Flussrate durch die Optik konstant bei 7 L min^{-1} gehalten. Den Einfluss der Flussrate auf die Partikelmessung und/oder Größenauflösung sollte aber in weiteren Experimenten ebenfalls charakterisiert und weiter untersucht werden. Selbiges gilt für die Düse, welche im F-OPS verbaut ist. Diese ist mit einer Verschraubung versehen und lässt sich so einfach austauschen. Die Düse bestimmt so auch die Abdeckung des Laserstrahls, also inwiefern alle Partikel auch durch den Laserstrahl gelangen. Der Laserstrahl des im F-OPS verbauten Lasers ist selber ebenfalls eine Variable, welche im Rahmen dieser Arbeit konstant gehalten wurde, aber eigentlich weitere Betrachtung bräuchte. Zum einen ist nicht endgültig geklärt, wie bzw. ob sich die Laserleistung mit der Zeit ändert und zum anderen sind Lackschäden im Gehäuse durch den Laser nicht auszuschließen. So wurden „eingebrennte“ Stellen in der Strahlfalle und an den optischen Bauelementen entdeckt. Dies macht erforderlich, dass Laser, Gehäuse und optische Bauelemente regelmäßig auf Schäden überprüft werden und ggf. ersetzt werden müssen. Die Schäden in der Oberfläche des F-OPS-Gehäuses können zu ungewollten Reflexionen des Laserlichts führen, was wiederum einen Einfluss auf die Zählstatistik hat.

Einen ähnlichen Einfluss hat der Fokus des Laserstrahls. Dieser wird mittels einer kleinen Optik am Gehäuse des Lasers manuell so eingestellt, dass der Fokuspunkt ca. 0,5 mm hinter der Auslassdüse des F-OPS liegt. Dadurch wird erreicht, dass die Breite des Laserstrahl die komplette Einlassdüse abdeckt, wobei allerdings trotzdem nicht gegeben sein muss, dass jedes Partikel auch durch den Laserstrahl fliegt. Im laminaren Fluss sollte dies aber der Fall sein.

Eine Abweichung des Fokuspunktes von ca. 2 mm zeigt schon deutliche Änderungen in der elektrischen Aufnahme und somit auch in Anzahlkonzentration und Größenverteilung der Aerosolpartikel. Aus diesem Grund ist notwendig den Laserfokus immer in der selben Position zu belassen oder aber neue Charakterisierungsmessungen durchzuführen. Ein Verstellen des Fokuspunktes während einer Messung ist durch Verschraubung und Kontermuttern ausgeschlossen. Nach einer Reinigung des F-OPS muss der Laser allerdings wieder in seine ursprüngliche Position gebracht werden, was bedeutet, dass auch der Fokuspunkt neu justiert werden muss.

Während mit einer Zähleffizienz der Optik ab einer Partikelgröße von $D_p = 500$ nm etwa 25 % eines CPCs ein sehr guter Wert erreicht wird, ist die Auflösung von Partikelgrößen noch nicht optimal (Abb. 3.12). Allerdings können ebenfalls technische Probleme bei der Aufgabe der Aerosolpartikel ab einem Durchmesser von $D_p = 1$ μm zu unsauberem Messergebnissen führen. Die Parametrisierung gerade für kleine Partikel (Abb. 3.15) liefert aber ein zufriedenstellendes Ergebnis für eine Größenkalibrierung. Auch während Aktivierungsphasen ist das Anwachsen der Partikel deutlich zu erkennen. Da viele Partikel im letzten Kanal der Größenverteilung sind, kann nur gesagt werden, dass INP auf eine Größe von $D_p \geq 6$ μm anwachsen. Eine differenziertere Auflösung wäre erstrebenswert, wozu aber die Verstärkungsspannung reduziert werden muss.

Ähnliches gilt für das P_{44}/P_{11} -Verhältnis. Hier sind weitere Untersuchungen notwendig, um für die neue Optik-Konfiguration eine optimale Unterscheidung zwischen sphärischen und asphärischen Partikeln zu erreichen. Es liegt die Vermutung nahe, dass ab einer noch unbestimmten Signalintensität, demnach nur für größere Partikel, das Verhältnis korrekt wiedergegeben wird. Auch sollte die Berechnung ohne den CH2-Triggerkanal erfolgen, so dass lediglich die CH0 und CH1-Signale direkt verarbeitet werden. In jetziger Form werden CH0 und CH1 nur bei gültigem CH2-Eintrag verarbeitet. Dies benötigt auch weitere Untersuchung. Ebenfalls weiter untersucht werden sollte in diesem Zusammenhang das Ermitteln der Größenauflösung über die Summe von CH0 und CH1.

Im Bereich der fluoreszierenden Partikel kann ebenfalls von erfolgreichen Messungen gesprochen werden (z. B. Abb. 3.22). Fluoreszenz von Partikeln wird detektiert und die Partikel folglich eindeutig klassiert. Um die Genauigkeit der mit dem F-OPS ermittelten Anzahlkonzentration der fluoreszierenden Partikel zu bestimmen, sollten in Zukunft Vergleichsmessungen mit anderen Bioaerosol-Spektrometern durchgeführt werden (z. B. mit einem WIBS). Es ist auch noch nicht abschließend geklärt, welchen Einfluss die Partikelgröße auf das Fluores-

zenzsignal hat. Ebenfalls noch nicht ausreichend untersucht sind Fluoreszenzeigenschaften unter einer Eis- oder Wasserhülle, also wenn das fluoreszierende Partikel aktiviert wurde.

Grundsätzlich empfiehlt es sich, einen kommerzielles Durchfluss-Aerosolgrößenspektrometer als Vergleichs-Referenz für die FINCH-Optik zu betreiben. Dies gilt zum einen als Ausfallreserve für die teilweise doch sensible Optik, zum anderen aber auch um den Eigenbau von Kammer und Optik weiter zu verifizieren. Versuche mit klassischen OPS oder CPC hinter der FINCH-Kammer konnten aus technischen Gründen nicht zufriedenstellen durchgeführt werden.

Mit leistungsfähigerer Hardware (u. a. mit höherer Abtastrate) könnte die Auflösung sowie die Verarbeitungszeit der Optik verbessert werden, was zudem die Auswertung deutlich vereinfachen könnte.

6.2 FINCH

Eisnukleierende Partikel zu messen ist derzeit immer noch eine wissenschaftliche und technische Herausforderung. In dieser Arbeit konnte gezeigt werden, dass es mit FINCH möglich ist Aerosolpartikel zu aktivieren und diese mit dem F-OPS zu zählen und zu klassieren.

Grundsätzlich sei erwähnt, dass die gezeigten Ergebnisse aus den Labormessungen im Kapitel 5.1 die Literaturwerte gut widerspiegeln. Auch im gezeigten Beispiel der Messung am Jungfrauoch (Kap. 5.2) liegen die Messwerte in dem zu erwartenden Rahmen und repräsentieren einschlägig bekannte Größenordnungen an Eiskeimen (vgl. Kap. 1.1.1).

Während der Entwicklung des neuen FINCH-Setups konnten bekannte Probleme behoben und weitere, neue Erkenntnisse hinzugewonnen werden. So haben beispielsweise nach etwa 13 s 50% aller Partikel die Kammer verlassen. Die Konzentration nimmt dabei exponentiell ab, was bedeutet, dass die Aerosolpartikel unterschiedliche Aufenthaltszeiten in der Kammer haben. Dadurch werden diese unterschiedlich lang den (Über-)Sättigungen ausgesetzt, womit auch das Partikelwachstum auf unterschiedliche Weise erfolgen kann. Dieses Phänomen gilt es in zukünftigen Arbeiten genauer zu betrachten.

Probleme mit der Dichtigkeit des System sowie mit Verunreinigungen oder Partikel aus der Oberfläche der Kühlköpfe konnten im Rahmen der Arbeit lokalisiert und behoben werden (vgl. Kap. 4.3). Durch die Lösung, den Q_A -Kühlkopf nur eingeschränkt zu kühlen, wird allerdings die minimale Zieltemperatur erhöht. Dies könnte durch ein neues Kühlkopfdesign behoben werden. Um den Q_C noch kälter zu kühlen, wurden bereits Versuche mit einer Kaskade aus Stirlingkühlern unternommen, mit welcher man diesem Problem ebenfalls begegnen kann.

FINCH ist ein Eiskeimzähler, mit welchem im Vergleich zu anderen Geräten zeitlich höher aufgelöste Messungen gemacht werden können. Einschränkungen in der zeitlichen Datenaufnahme ergeben sich aus dem Verhältnis zwischen Eisphase und Aufheizzeit, was abhängig von der in der Probenluft enthaltenen Feuchtigkeit ist. Die Luftfeuchtigkeit von Druckluft (im Druckluftbetrieb) sowie von der Aerosolprobenluft kann durch einen externen Taupunktspiegel sehr gut bestimmt werden. Der Frostpunkt beider Flüsse entspricht dabei der Temperatur des jeweiligen Wärmeaustauschers (vgl. Kap. 4.4). Dies bedeutet, dass Wasserdampf in den Kühlköpfen ausfriert und letztendlich für einen Verschluss der Zuleitung sorgt. Durch vorgeschaltete Trockenmaßnahmen (z. B. durch eine Silicagel-Falle) kann die Messdauer deutlich verlängert werden. Durch bessere Trockner und Maßnahmen zum Entfernen des Wasserdampfes aus der benutzten Luft, kann die Messzeit und auch die Stabilität der Regelung in FINCH noch weiter verbessert werden.

Die Steuer- und Regelung in FINCH ist noch optimierbar. Teilweise reagiert das System träge. Auch die Kühlung könnte schneller ablaufen, wozu man allerdings auf ein anderes Kühlsystem setzen müsste. Dies hätte allerdings wiederum grundsätzliche Änderungen im System zur Folge. Mit dem jetzigen System werden erste Zieltemperaturen bei einem Temperaturunterschied von etwa 30 °C innerhalb einer Stunde angesteuert und gehalten (Kap. 4.6). Schwankungen der Temperatur werden durch die Kühlköpfe ausgeglichen. Allerdings ist dadurch auch immer das Sättigungsverhältnis in der Kammer betroffen. Das Sättigungsverhältnis S_{upper} bezogen auf die Temperatur in der oberen Kammer ($T_{\text{upper chamber}}$) scheint dem realen Wert am nächsten zu sein. Allerdings ist diese auch durch die Änderungen von $T_{\text{upper chamber}}$ besonders beeinträchtigt. In Zukunft sollte weiteres Augenmerk auf das Freiwerden von Wärme durch den Phasenübergang bei der INP-Aktivierung gelegt werden. Es ist zu sehen, dass mit beginnender Aktivierung $T_{\text{upper chamber}}$ steigt, was durch den Phasenübergang ausgelöst werden könnte. Um den plötzlichen Temperaturanstieg zu kompensieren, müssen die Kühler wieder stärker kühlen, womit sich die Variation in der Kammertemperatur erklären lässt. Möglicherweise bring die Einführung einer neuen Variable, einer angenommenen, korrigierten Temperatur mit langsam einfließender Temperaturänderung durch den Phasenänderung o. ä. konstantere Bedingungen. Auch die Position des Sensors für $T_{\text{upper chamber}}$ (mitten im Fluss) ist in dieser Hinsicht zu diskutieren. Dies gilt ebenfalls für $T_{\text{lower chamber}}$. Durch kleine Änderungen in der Bezugstemperatur lässt sich bereits das Gefrierregime ändern, was die Wichtigkeit über die Kenntnis der „wirklichen“ Bezugstemperatur betont.

Versuche, um mittels Messapparatur im Innern der Kammer ein Feuchte- und Temperaturprofil zu erstellen, mussten aufgegeben werden. Durch den Einlass bzw. Auslass von FINCH war es nicht möglich genügend Sensoren für ein solches Vorhaben zu bekommen.

Für zukünftige Projekte wäre es so sicherlich von Vorteil neue Simulationsrechnungen mit numerischen Strömungssimulations-Programmen anzustreben, um ein noch tieferes Verständnis der Sättigungs- und Temperaturverhältnisse in der Kammer zu bekommen. Außerdem müssten sich auf diese Weise auch das Wachstum der Partikel simulieren lassen, um einen Vergleich der Partikelgröße D_p mit den gemessenen Werten zu erhalten.

Weitere bekannte Einschränkungen ergeben sich durch die in FINCH verbauten Sensoren. Gerade die HYT-Sensoren sind sehr anfällig, wenn diese mit Flüssigkeit benetzt sind. Dies machte einen öfteren Austausch der Sensoren nötig. Hier sollte nach zuverlässigeren Optionen gesucht werden.

Der Temperatur-Messbereich von FINCH ist weiter auch nicht voll ausgeschöpft. Bei wärmeren Temperaturen wird die Sättigung durch die MFC limitiert. Hier müsste für den Q_M und Q_W MFCs mit größerem Flussdurchlass eingesetzt werden, um die nötige Feuchte zu erreichen. Bei tieferen Temperaturen ist die Feuchte der Druckluft der limitierende Faktor, welche deshalb weiter reduziert werden müsste (oder z. B. durch synthetische Luft ersetzen), um konstante Sättigungsverhältnisse zu erreichen.

Eine weitere Möglichkeit um andere Sättigungs- und Temperaturbereiche anzufahren ist durch eine Änderung in der Flussrate der Mischflüsse möglich. Dazu müsste evtl. allerdings auch der Gesamtfluss durch die Optik variiert werden, was wiederum zu einem Einfluss auf die Optikkalibrierung führt (Kap. 6.1).

Zusammengefasst lässt sich sagen: Der Eiskeimzähler FINCH ist gerade durch den Umbau im Zuge dieser Arbeit in seiner Entwicklung weit fortgeschritten und steht für weitere Messungen zur Verfügung. Fehlmessungen können sowohl durch den Einsatz der neuen Software und der überarbeiteten Elektrik ausgeschlossen werden, als auch durch die Änderungen im System zur Vermeidung von Kontaminationen. Der F-OPS kann als separates Gerät zuverlässig betrieben werden. F-OPS und FINCH sind zudem deutlich besser Verstanden. Ein zukünftiges Augenmerk sollte auf einer Steigerung der Performance und einer Sicherung der Qualität der Ergebnissen von FINCH und F-OPS liegen.

7 Zusammenfassung

Eisnukleierende Partikel (INP) sind ein wichtiger Bestandteil des atmosphärischen Aerosols. Trotz ihrer geringen Konzentrationen in der Atmosphäre haben sie Einfluss auf die Bildung von Eiskristallen und auf den Niederschlag. Durch Änderungen in Anzahlkonzentration oder anderer Eigenschaften der INP können sich Wolkenparameter wie Lebensdauer und Tröpfchendichte ändern, was weiter eine Ursache für Änderungen im globalen Strahlungshaushalt sein kann.

Der Anteil zum globalen Strahlungshaushalt durch „*Wolken-Anpassungen aufgrund von Aerosolen*“, stellt weiterhin die größte Unsicherheit des Strahlungsantriebes dar. Aus diesem Grund sind Messungen und Studien über atmosphärische Aerosole und INP notwendig.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde der Eiskeimzähler FINCH („*fast ice nucleus chamber*“) grundlegend überholt und für Messungen von INP optimiert. FINCH ist ein in-situ Eiskeimzähler der durch Mischung unterschiedlicher Luftströme eine Übersättigung der Probeluft mit Wasserdampf erzeugt, um auf diese Weise die zu untersuchenden Aerosolpartikel zu Eiskristallen wachsen zu lassen. Am Ende einer Wachstumskammer werden die Partikel durch eine Optik, dem FINCH-OPS, anhand von Streueigenschaften klassifiziert und ausgewertet.

Um FINCH im erwarteten Umfang benutzen zu können, wurden am F-OPS der Laser und die zur Detektion des Streulichts benutzten Photomultiplier ersetzt. Weiter wurde die Software zur Detektion der Partikel neu entwickelt. Durch diese Änderungen ist es möglich Partikelanzahl, Partikelgröße sowie eine Information über die Form der Partikel abzuleiten. Über einen weiteren Photomultiplier im F-OPS ist es zudem möglich eine Information über Fluoreszenz des Partikels zu gewinnen, um so auf einen biologischen Ursprung des Partikels zu schließen.

Vorangegangene Probleme durch elektromagnetische Einstrahlung und dadurch entstandene Inkonsistenzen während Messungen konnten im Rahmen dieser Arbeit identifiziert und ausgeschlossen werden. Ebenfalls konnten die zur Flusskühlung benutzten Wärmetaucher als Ursache für Verunreinigungen und Kontamination ausgemacht werden. Auch dieser, für Messungen ungeeignete Zustand, wurde im Rahmen dieser Arbeit behoben.

Ausführliche Charakterisierungsmessungen konnten die Funktionsfähigkeit des F-OPS, als einzelnes Messgerät ohne FINCH-Kammer, belegen. Durch Messungen mit einer steuerbaren Lichtquelle in der Optik konnte zudem die elektrische Verarbeitung sowie die Zählqualität der Optik verifiziert werden. Weiter kann durch diese Experimente gezeigt werden, dass mit dem F-OPS größen aufgelöst gemessen werden kann.

Auch in den ersten Streulichtexperimenten mit Testaerosol kann die Funktionsfähigkeit der Optik gezeigt werden. Für Partikelgröße von $D_p > 400$ nm wird eine Zähleffizienz von 25% eines TSI 3025 CPCs erreicht. Die über den F-OPS abgeleitete Partikelgröße kann durch Messungen mit monodispersen Aerosolpartikeln und einer parallelen Messung mit einem TSI 3330 OPS parametrisiert werden. Weiter kann die Fluoreszenz von ausgewählten Referenzstoffen gezeigt werden.

Im Betrieb von F-OPS hinter der FINCH-Kammer, also FINCH als Komplettsystem, wurden weitere Charakterisierungsmessungen durchgeführt. Es wurde festgestellt, dass die Anzahlkonzentration der Partikel nach Schließen eines Ventils exponentiell abfällt. Die Partikel folgen demnach nicht nur einem laminaren Fluss durch die Kammer. 50% der Partikel haben nach ca. 13 s die Kammer verlassen. Auch wurde ermittelt, dass ca. 40% der Partikel in der Kammer verloren gehen.

Erste Aktivierungsexperimente zeigen, dass Eispartikel in der Kammer auf eine Größe von $D_p > 6$ μm anwachsen. Durch Nullfiltermessungen in Aktivierungsphasen, sowie Ändern des zur Aktivierung notwendigen feuchten Flusses, wird zudem gezeigt, dass die Aktivierung der INP durch Mischung erfolgt und außerdem keine Fremdpartikel aktiviert werden.

Die neue Steuerung der Kammer lässt es zu Temperaturen in etwa einer Stunde gezielt anzusteuern. Es wird gezeigt, dass Schwankungen in der Sättigung hauptsächlich durch Temperaturphänomene beeinflusst werden.

Abschließend wurden beispielhaft Laborexperimente mit Snomax[®] durchgeführt, welche sehr gut mit Werten aus der Literatur verglichen werden konnten. Auch eine erste Außenluftmessung am Jungfraujoch (Schweiz) wird in dieser Arbeit präsentiert. Die gemessenen INP-Konzentrationen im gezeigten Zeitraum liegen zwischen $1,4 \pm 4,1$ L^{-1} und 53 ± 30 L^{-1} und entsprechen somit wiederum bekannten Literaturwerten.

8 Abstract

Ice nucleating particles (INP) are an important component of the atmospheric aerosol. Despite their low atmospheric concentrations they influence the formation of ice crystals and precipitation. Changes in the number concentration or chemical properties of INP may affect cloud parameters such as lifetime and droplet density, additionally can be a cause of changes in the global radiation budget.

The quantity of the global radiation budget by „cloud adjustments due to aerosols” continues to be the biggest uncertainty of the radiative forcing. For this reason, measurements and studies on atmospheric aerosols and INP are still necessary.

In the course of this work, the INP-counter FINCH (*"fast ice nucleus chamber"*) was fundamentally overhauled and optimized for measurements of INP. FINCH is an in-situ INP-counter in which the saturation of the sample air is produced by mixing different air streams, which leads to the ice crystal growth in the FINCH-chamber. At the end of the growth chamber, the particles are classified and evaluated by an optics, the FINCH-OPS, on the basis of their scattering properties.

In order to be able to use FINCH as expected, the laser and the photomultiplier (which were used to detect the scattered light) were replaced at the F-OPS. Further, the software for detecting the particles has been newly developed. With these changes, it is possible to derive the particle number concentration, the particle size and an information on the shape of the particles. With another photomultiplier in the F-OPS, it is also possible to obtain information about fluorescence of the particles to conclude on a biological origin of the particles.

Previous problems caused by electromagnetic radiation and thereby resulting inconsistencies while measuring with FINCH, were identified and excluded in this study. Also the heat exchangers could be considered a cause of contamination. This state, which was unsuitable for measurements, was also fixed during this work.

Detailed characterization measurements could occupy the functional capability of the F-OPS as a single measuring device without the FINCH-chamber. By measurements with a controllable light source in the optics the electrical processing as well as the counting quality of the optics could be verified. Furthermore, it can be shown by these experiments that it is possible to measure in a size-resolved manner with the F-OPS.

The functional capability of the optics can also be demonstrated in the first scattering experiments with test aerosol. A counting efficiency of 25% of a TSI 3025 CPC is achieved for particle sizes of $D_p > 400$ nm. The particle size derived via the F-OPS can be parameterised by

measurements with monodisperse aerosol particles and a parallel measurement with a TSI 3330 OPS. Furthermore, the fluorescence of selected reference substances can be shown.

In operation of the F-OPS behind the FINCH chamber (FINCH as a complete system) further characterization measurements were performed. It was found that the number concentration of the particles decreases exponentially after closing of a valve. The particles therefore follow not only a laminar flow through the chamber. 50% of the particles left the chamber after approx. 13 s. It was also found that about 40% of the particles are lost in the chamber.

First activation experiments show that ice particles in the chamber grow to a size of $D_p > 6 \mu\text{m}$. By means of zero filter measurements in activation phases, as well as changes in the moist flow required for activation, it is also shown that the activation of the INP is carried out by mixing and, in addition, no foreign particles are activated.

The new programmed controlling software of the chamber allows to reach the target temperature in less than one hour. It is shown that fluctuations in saturation are mainly influenced by temperature phenomena.

Finally, laboratory experiments with Snomax[®] were carried out, which could be compared very well with values from the literature. A first field measurement at the Jungfrauoch (Switzerland) is also presented in this work. The measured INP concentrations in the shown period are between $1,4 \pm 4,1 \text{ L}^{-1}$ und $53 \pm 30 \text{ L}^{-1}$ and therefore they correspond well to known literature values.

Anhang

I Liste der gespeicherten Daten

Die nachfolgende Tabelle listet alle Variablen, die mit der FINCH-Software in eine „FINCH_DATUM_UHRZEIT.txt“-Datei gespeichert werden. Zusätzlich wurden Einheiten und Beschreibungen der einzelnen Variablen eingefügt. Die Zeilen der Tabelle entsprechen den Spaltenbezeichnungen der Originaldateien.

Variable	Einheit	Beschreibung
Date/Time	Zeit	Datum und Uhrzeit
MFC_set_aero	[sl min ⁻¹]	Sollwert des MFC Q_A
MFC_set_cold	[sl min ⁻¹]	Sollwert des MFC Q_C
MFC_set_moist	[sl min ⁻¹]	Sollwert des MFC Q_M
MFC_set_warm	[sl min ⁻¹]	Sollwert des MFC Q_W
MFC_calc_aero	[sl min ⁻¹]	Zwischenwert des MFC Q_A für Rechnungen
MFC_calc_cold	[sl min ⁻¹]	Zwischenwert des MFC Q_C für Rechnungen
MFC_calc_moist	[sl min ⁻¹]	Zwischenwert des MFC Q_M für Rechnungen
MFC_calc_warm	[sl min ⁻¹]	Zwischenwert des MFC Q_W für Rechnungen
T_MFC_aero	[°C]	MFC Q_A interne Temperatur
T_MFC_cold	[°C]	MFC Q_C interne Temperatur
T_MFC_moist	[°C]	MFC Q_M interne Temperatur
T_MFC_warm	[°C]	MFC Q_W interne Temperatur
T_upper_wall	[°C]	Temperatur an der oberen Kammerwand
T_lower_wall	[°C]	Temperatur an der unteren Kammerwand
T_cold_cooling	[°C]	Temperatur des Kühlkopfes für Q_C
T_aero_cooling	[°C]	Temperatur des Kühlkopfes für Q_A
T_lower_chamber	[°C]	Temperatur im unteren Kammerteil
T_upper_chamber	[°C]	Temperatur im oberen Kammerteil
T_humidifier	[°C]	Temperatur im Wasserbad
T_cold_flow	[°C]	Temperatur von Q_C
T_HYT_aero_inlet	[°C]	Temperatur am Aerosoleinlass
T_HYT_awm	[°C]	Temperatur von Q_{AWM}
T_HYT_cold	[°C]	Derzeit nicht benutzt
T_HYT_not_in_use	[°C]	Derzeit nicht benutzt
RHw_aerosol_inlet	[%]	Relative Feuchte am Aerosoleinlass

Variable	Einheit	Beschreibung
RHw_awm	[%]	Relative Feuchte von Q_{AWM}
RHw_cold	[%]	Derzeit nicht benutzt
RHw_not_in_use	[%]	Derzeit nicht benutzt
p_chamber	[bar]	Druck in der Kammer
p_pre	[bar]	Vordruck vor den MFC
p_diff	[bar]	Differenzdruck in der Einlassleitung
p_not_in_use	[bar]	Derzeit nicht benutzt
T_assumed_aero	[°C]	Angenommene Q_A -Temperatur für Mischungsrechnungen
T_assumed_cold	[°C]	Angenommene Q_C -Temperatur für Mischungsrechnungen
T_assumed_moist	[°C]	Angenommene Q_M -Temperatur für Mischungsrechnungen
T_assumed_warm	[°C]	Angenommene Q_W -Temperatur für Mischungsrechnungen
RHw_assumed_aero	[%]	Angenommene relative Feuchte für Q_A für Mischungsrechnungen
RHw_assumed_cold	[%]	Angenommene relative Feuchte für Q_C für Mischungsrechnungen
RHw_assumed_moist	[%]	Angenommene relative Feuchte für Q_M für Mischungsrechnungen
RHw_assumed_warm	[%]	Angenommene relative Feuchte für Q_W für Mischungsrechnungen
T_target	[°C]	Zieltemperatur
S_target		Zielsättigung
T_aero_setpoint	[°C]	Anfangstemperatur von Q_{AWM}
Qm_moist_autoset	[sl min ⁻¹]	Berechneter Fluss Q_M zum Erreichen des Sättigungszieles
Ice=1/water=0	1 od. 0	Bei „1“ berechnet sich das System in Bezug auf die Eisoberfläche, für „0“ wird flüssiges Wasser angenommen.
MBW: on=1/off=0	1 od. 0	Bei „1“ bei der Flussberechnung der MBW berücksichtigt. „0“ hat keine Auswirkungen.
Comp. on=1/off=0	air: 1 od. 0	Bei „1“ bei der Flussberechnung die Druckluft berücksichtigt. „0“ hat keine Auswirkungen.
MFC_read_aero	[sl min ⁻¹]	Istwert des MFC Q_A
MFC_read_cold	[sl min ⁻¹]	Istwert des MFC Q_C
MFC_read_moist	[sl min ⁻¹]	Istwert des MFC Q_M

Variable	Einheit	Beschreibung
MFC_read_warm	[sl min ⁻¹]	Istwert des MFC Q_W
Overwrite MFC t/f	1 od. 0	Bei „1“ wird die Flusssteuerung automatisch übernommen. „0“ hat keine Auswirkungen.
MFC_qv_aero	[vl min ⁻¹]	Istwert des MFC Q_A in Volumenlitern
MFC_qv_cold	[vl min ⁻¹]	Istwert des MFC Q_C in Volumenlitern
MFC_qv_moist	[vl min ⁻¹]	Istwert des MFC Q_M in Volumenlitern
MFC_qv_warm	[vl min ⁻¹]	Istwert des MFC Q_W in Volumenlitern
T_Mix	[°C]	Istwert der Mischungstemperatur
S_Mix		Istwert der Mischungssättigung
S_upper_chamber		Istwert der Mischungssättigung bezogen auf die Kammertemperatur oben.
S_lower_chamber		Istwert der Mischungssättigung bezogen auf die Kammertemperatur unten.
S_theo_upper		Errechneter Wert der Mischungssättigung bezogen auf die Kammertemperatur oben.
S_theo_lower		Errechneter Wert der Mischungssättigung bezogen auf die Kammertemperatur unten.

Über die Software der FINCH-Optik werden zusätzlich zwei weitere *.txt-Files erzeugt. Auch diese sollen hier erläutert werden.

Die folgende Tabelle erläutert die „Mittel_DATUM_UHRZEIT.txt“-Datei:

Variable	Einheit	Beschreibung
Date/Time	Zeit	Datum und Uhrzeit Zeitstempel T ₂
Particles [#/sec]	[s ⁻¹]	Anzahl der gezählten Partikel
INPs [#/sec]	[s ⁻¹]	Anzahl der gezählten INPs
fINPs [#/sec]	[s ⁻¹]	Anzahl der gezählten, fluoreszierenden INPs
triggered fPs [#/sec]	[s ⁻¹]	Anzahl der gezählten, fluoreszierenden Partikel in Bezug auf den Triggerkanal
fPs [#/sec]	[s ⁻¹]	Anzahl der gezählten, fluoreszierenden Partikel lediglich aus CH ₃
Date/Time	Zeit	Datum und Uhrzeit Zeitstempel T ₃
Timer cRIO	Zeit	Datum und Uhrzeit Zeitstempel T ₁

Die zweite über die F-OPS-Software erzeugte Datei heißt „Peaks_DATUM_UHRZEIT.txt“ und enthält:

Variable	Einheit	Beschreibung
Date/Time	Zeit	Datum und Uhrzeit Zeitstempel
CH0 [V]	[V]	Peakamplitude in CH0
CH1 [V]	[V]	Peakamplitude in CH1
CH2 [V]	[V]	Peakamplitude in CH2
CH3 [V]	[V]	Peakamplitude in CH3
width [μ s]	[μ s]	Einfache Breite des Triggerkanals

II Feuchtigkeitsmaße und Umrechnung

Der Wasserdampf kann unter den Bedingungen der Atmosphäre als ideales Gas angenommen werden und kann somit folgender Zustandsgleichung beschrieben werden:

$$p_v = \rho_v \cdot R_v \cdot T \quad \text{II.1}$$

Wobei

- p_v der Wasserdampfpartialdruck [Pa],
- ρ_v die Dichte des Wasserdampfes [kg/m^3],
- R_v die spezifische Gaskonstante für Wasserdampf $R_v = 461,5 \text{ J} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$ und
- T die Temperatur [K] ist.

Nach dem Gesetz von Dalton⁵ setzt sich der Atmosphärendruck aus den Partialdrücken der einzelnen Teilgase zusammen:

$$p = \sum_i p_i = p_d + p_v \quad \text{II.2}$$

Demnach setzt sich der Druck p aus den Partialdrücken der trockenen Luft p_d (engl.: dry) und des Wasserdampfes zusammen. Abhängig von Druck und Temperatur kann sich für den Wasserdampfpartialdruck die sogenannte „Sättigung“ einstellen. Man versteht darunter, dass in gleichem Maße Wassermoleküle die flüssige Phase verlassen und in die gasförmige Phase übergehen, wie in in umgekehrter Richtung. Es gilt demnach:

$$S = \frac{p_v}{p_s} \quad \text{II.3}$$

5 1805 von John Dalton (1766 – 1844), einem britischem Naturforscher und Lehrer formuliert.

Wobei mit p_s der Wasserdampfpartialdruck bei Sättigung, kurz Sättigungsdampfdruck, beschrieben wird.

Für die empirische Berechnung des Sättigungsdampfdruck über der ebenen Wasseroberfläche gibt es unterschiedliche Quellen (z. B.: nach [Kraus, 2004]. Die Weltorganisation für Meteorologie (WMO) empfiehlt die Goff-Gratch-Formel, welche für den Sättigungsdampfdruck über der Flüssigwasseroberfläche folgende Form annimmt [Murphy und Koop, 2005]:

$$\begin{aligned} \log_{10}(p_{s,w}) = & -7,90298 \cdot \left(\frac{T_1}{T} - 1\right) + 5,02808 \cdot \log_{10}\left(\frac{T_1}{T}\right) \\ & - 1,3816 \cdot 10^{-7} \left(10^{11,344\left(1 - \frac{T}{T_1}\right)} - 1\right) \\ & + 8,1328 \cdot 10^{-3} \left(10^{-3,49149\left(\frac{T_1}{T} - 1\right)} - 1\right) + \log_{10}(p_0) \end{aligned} \quad \text{II.4}$$

Wobei mit T die absolute Lufttemperatur in Kelvin angegeben wird und T_1 die Siedepunkttemperatur von Wasser ($T_1 = 373,16$ K) ist. p_0 bezeichnet den mittleren Luftdruck mit $p_0 = 1013,246$ hPa. Für den Sättigungsdampfdruck über der Eisoberfläche wird die Formel zu [Murphy und Koop, 2005]:

$$\begin{aligned} \log_{10} p_{s,ice} = & -9,09718 \left(\frac{T_0}{T} - 1\right) - 3,56654 \log_{10}\left(\frac{T_0}{T}\right) \\ & + 0,876793 \left(1 - \frac{T}{T_0}\right) + \log_{10}(p_1) \end{aligned} \quad \text{II.5}$$

Die Variablen folgen dabei der obigen Beschreibung, wobei zusätzlich mit p_1 der Sättigungsdampfdruck von Wasser bei 0 °C mit $p_1 = 6,1071$ hPa und mit T_0 die Tripelpunkttemperatur von Wasser ($T_0 = 273,16$ K) ergänzt wurde. Weiter kann mit den Werten des Wasserdampfpartialdruckes und des Sättigungsdampfdruckes ein Sättigungsverhältnis definiert werden. So gilt:

$$S_w = \frac{p_v}{p_{s,w}} \quad \text{und} \quad S_{ice} = \frac{p_v}{p_{s,ice}} \quad , \quad \text{II.6}$$

mit den Variablen für das Sättigungsverhältnis in Bezug auf die Wasser- (S_w) und Eisoberfläche (S_{ice}). Nach dieser Gleichung ist das Sättigungsverhältnis S_w oder $S_{ice} = 1$, wenn Sättigung vorliegt. Im ungesättigten Bereichen wird das Verhältnis < 1 , sowie > 1 wenn Übersättigung eingetreten ist.

Während in FINCH das Sättigungsverhältnis als Zielvariable genutzt wird, werden weitere Maße für die Luftfeuchtigkeit zum Umrechnen und Auslesen der Sensoren benötigt. Ein HYT-Feuchtesensor gibt beispielsweise die Luftfeuchtigkeit als „relative Luftfeuchtigkeit (rh)“ aus.

Die relative Luftfeuchtigkeit wird in [%] angegeben und ergibt sich aus dem Sättigungsverhältnis:

$$rh = S_w \cdot 100\% = \frac{p_v}{p_{s,w}} \cdot 100\% \quad . \quad \text{II.7}$$

Da der HYT-Sensor auf die Flüssigwasseroberfläche bezogen wird, ist eine Umrechnung in Bezug auf S_{ice} nicht notwendig.

Eine weiteres Maß für die Feuchtigkeit eines Luftpaketes soll an dieser Stelle noch genannt werden, da diese in der Software von FINCH und im Vergleich mit dem MBW benutzt wird. Dabei handelt es sich um den Tau- bzw. Frostpunkt. Als Taupunkt wird die Temperatur bezeichnet, welche unterschritten werden muss, damit sich Tau bilden kann, also die Luft gesättigt ist. Im Frostpunkt ist das ganze wiederum analog auf die Sättigung über der Eisoberfläche bezogen.

Die Taupunktstemperatur T_D und die Frostpunktstemperatur T_F sind folgendermaßen definiert:

$$p_v = p_{s,w}(T_D) \quad \text{und} \quad p_v = p_{s,ice}(T_F) \quad . \quad \text{II.8}$$

Über Umrechnungen aus den bekannten Gleichung errechnet sich der Taupunkt zu:

$$T_D = 240,7 \log_{10} \left(\frac{p_v}{p_1} \right) / (7,6 - \log_{10} \left(\frac{p_v}{p_1} \right)) \quad . \quad \text{II.9}$$

Für den Frostpunkt gilt:

$$FP = 265,5 \log_{10} \left(\frac{p_v}{p_1} \right) / (9,5 - \log_{10} \left(\frac{p_v}{p_1} \right)) \quad . \quad \text{II.10}$$

Wobei für p_1 in der Form $p_1 = 6,1078$ hPa verwendet wurde.

III Mathematische Methoden der Statistik

Soweit im Text nicht anders angegeben, berechnen sich alle Werte nach folgenden Formeln:

Arithmetischer Mittelwert

Für das arithmetische Mittel $\langle x \rangle$ einer Stichprobe gilt:

$$\langle x \rangle = \frac{x_1 + x_2 + \dots + x_n}{n} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \quad . \quad \text{III.11}$$

Dabei sind mit x_i die Werte der Datenmenge und n deren Anzahl bezeichnet.

Standardabweichung

Die Standardabweichung Δx lässt sich wie folgt berechnen:

$$\Delta x = \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (x_i - \langle x \rangle)^2} \quad . \quad \text{III.12}$$

Fehlerfortpflanzung

Für eine von zwei fehlerbehafteten Messgrößen ($x = \langle x \rangle \pm \Delta x$ und $y = \langle y \rangle \pm \Delta y$) abhängige Größe $z = f(x, y)$ lässt sich der Mittelwert nach $\langle z \rangle = f(\langle x \rangle, \langle y \rangle)$ berechnen. Für den mittleren Fehler des Mittelwertes gilt:

$$\Delta z = \sqrt{\left(\frac{\partial}{\partial x} f(\langle x \rangle, \langle y \rangle) \Delta x \right)^2 + \left(\frac{\partial}{\partial y} f(\langle x \rangle, \langle y \rangle) \Delta y \right)^2} \quad . \quad \text{III.13}$$

Der Messwert ergibt sich somit zu: $x = \langle z \rangle \pm \Delta z$.

Für den Fehler der Anzahlkonzentration der gezählten Partikel nach Gleichung 2.13 gilt in diesem Zusammenhang:

$$\Delta N = \sqrt{\left(\frac{\Delta n}{Q \cdot t}\right)^2 + \left(\frac{n \cdot \Delta Q}{Q^2 \cdot t}\right)^2 + \left(\frac{n \cdot \Delta t}{Q \cdot t^2}\right)^2} \quad \text{III.14}$$

Dabei entspricht ΔQ der Standardabweichung der Aerosolflussrate Q während der Zeit t . Für den Fehler der Zeit wird $\Delta t = 1$ s angenommen. Δn folgt für eine Partikelanzahl < 5 der Poisson-Statistik und wird zu $\Delta n_{(n < 5)} = n$. Für höhere Zählraten geht dies in die Gaußsche Statistik über: $\Delta n_{(n \geq 5)} = (n+1)^{1/2}$.

Korrelationskoeffizient nach Pearson

Der Korrelationskoeffizient r lässt sich folgendermaßen beschreiben:

$$r = \frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \langle x \rangle) \cdot (y_i - \langle y \rangle)}{\sqrt{\left(\sum_{i=1}^n (x_i - \langle x \rangle)^2\right) \left(\sum_{i=1}^n (y_i - \langle y \rangle)^2\right)}} \quad \text{III.15}$$

Es gilt: $-1 \leq r \leq 1$. Mit $r = 1$ für Messpunkte auf einer Geraden.

Gleitender Mittelwert

Der arithmetische Mittelwert der jeweils n letzten Werte:

$$\langle x \rangle^n(t) = \frac{1}{n} \sum_{i=0}^{n-1} x(t-i) \quad \text{III.16}$$

Lineare Interpolation

Mit der linearen Interpolation können fehlenden Werte einer Kurve interpoliert werden. Dazu werden zwei Datenpunkte (x_0, f_0) und (x_1, f_1) durch eine Strecke verbunden. Dabei gilt:

$$f(x) = f_0 + \frac{f_1 - f_0}{x_1 - x_0} \cdot (x - x_0) = f_0 \cdot \frac{x_1 - x}{x_1 - x_0} + f_1 \cdot \frac{x - x_0}{x_1 - x_0} \quad \text{III.17}$$

Normalisierte Konzentration: $dN/d\log D_p$

Zur Berechnung der Partikelkonzentrationen nach $dN/d\log D_p$ gilt:

$$dN / d \log D_p = \frac{dN}{d \log D_p} = \frac{dN}{\log_{10}(D_{p,u}) - \log_{10}(D_{p,l})} \quad \text{III.18}$$

hierbei ist:

- dN die Partikelkonzentration,
- D_p der Partikeldurchmesser,
- $D_{p,u}$ die obere Grenze des Kanals und
- $D_{p,l}$ die untere Grenze des Kanals.

Die Formel für die normalisierte Konzentration ist wiedergeben nach [TSI, 2012].

Weitere benutze statistische Momente wie Median und Interquartilsabstand können in bekannter Literatur nachgelesen werden.

Literaturverzeichnis

- [Atkinson et al., 2013]: Atkinson, James D., Benjamin J. Murray, Matthew T. Woodhouse, Thomas F. Whale, Kelly J. Baustian, Kenneth S. Carslaw, Steven Dobbie, Daniel O’Sullivan, und Tamsin L. Malkin. „The Importance of Feldspar for Ice Nucleation by Mineral Dust in Mixed-Phase Clouds“. *Nature* 498, Nr. 7454 (20. Juni 2013): 355–58. doi:10.1038/nature12278.
- [Augustin et al., 2013]: Augustin, S., H. Wex, D. Niedermeier, B. Pummer, H. Grothe, S. Hartmann, L. Tomsche, u. a. „Immersion freezing of birch pollen washing water“. *Atmos. Chem. Phys.* 13, Nr. 21 (11. November 2013): 10989–3. doi:10.5194/acp-13-10989-2013.
- [Bohren und Huffman, 1998]: Bohren, Craig F., und Donald R. Huffman. Absorption and Scattering of Light by Small Particles. 1. Auflage. John Wiley & Sons, 1998.
- [Boose et al., 2016]: Boose, Yvonne, Zamin A. Kanji, Monika Kohn, Berko Sierau, Assaf Zippori, Ian Crawford, Gary Lloyd, u. a. „Ice Nucleating Particle Measurements at 241 K during Winter Months at 3580 m MSL in the Swiss Alps“. *Journal of the Atmospheric Sciences* 73, Nr. 5 (4. März 2016): 2203–28. doi:10.1175/JAS-D-15-0236.1.
- [BSC, 2017]: Barcelona Supercomputing Center – NMMB/BSC-Dust online multi-scale atmospheric dust model, online verfügbar unter: <https://dust.aemet.es/forecast/nmmb-bsc-dust-forecast-aod?date=2017021200>, zuletzt geprüft am 12.07.2017
- [Bukowiecki et al., 2016]: Bukowiecki, N., Weingartner, E., Gysel, M., Collaud Coen, M., Zieger, P., Herrmann, E., Steinbacher, M., Gäggeler, H. W., and Baltensperger, U.: A review of more than 20 years of aerosol observation at the high altitude research station Jungfraujoch, Switzerland (3580 m asl). *Aerosol Air Qual. Res.*, **16**, 764–788, doi:10.4209/aaqr.2015.05.0305, 2016.
- [Bundke et al., 2008]: Bundke, U., B. Nillius, R. Jaenicke, T. Wetter, H. Klein, und H. Bingemer. „The fast Ice Nucleus chamber FINCH“. *Atmospheric Research* 90, Nr. 2–4 (November 2008): 180–186.
- [Bundke et al., 2010]: Bundke, U., B. Reimann, B. Nillius, R. Jaenicke, und H. Bingemer. „Development of a Bioaerosol single particle detector (BIO IN) for the Fast Ice Nucleus CHamber FINCH“. *Atmospheric Measurement Techniques* 3, Nr. 1 (Februar 23, 2010): 263–271.
- [Chou et al., 2011]: Chou, C., O. Stetzer, E. Weingartner, Z. Jurányi, Z. A. Kanji, und U. Lohmann. „Ice nuclei properties within a Saharan dust event at the Jungfraujoch in the Swiss Alps“. *Atmos. Chem. Phys.* 11, Nr. 10 (20. Mai 2011): 4725–38. doi:10.5194/acp-11-4725-2011.
- [Conen et al., 2015]: Conen, Franz, Sergio Rodríguez, Christoph Hülin, Stephan Henne, Erik Herrmann, Nicolas Bukowiecki, und Christine Alewell. „Atmospheric ice nuclei at the high-altitude observatory Jungfraujoch, Switzerland“. *Tellus B: Chemical and Physical Meteorology* 67, Nr. 1 (1. Dezember 2015): 25014. doi:10.3402/tellusb.v67.25014.

- [Cotton und Yuter, 2009]: Cotton, R., Yuter S., in Levin, Zev, und William R. Cotton. *Aerosol Pollution Impact on Precipitation: A Scientific Review*. 1. Aufl. Springer, 2008.
- [Danielczok, 2015]: Danielczok, Anja: Reevaluierung und Erweiterung des Messverfahrens FRIDGE zur Bestimmung von Depositions-, Kondensations- und Immersionsgefrierkernen, Goethe-Universität Frankfurt, Dissertation, 2015
- [DeMott et al., 2003]: DeMott, Paul J., Kenneth Sassen, Michael R. Poellot, Darrel Baumgardner, David C. Rogers, Sarah D. Brooks, Anthony J. Prenni, und Sonia M. Kreidenweis. „African dust aerosols as atmospheric ice nuclei“. *Geophysical Research Letters* 30, Nr. 14 (Juli 17, 2003): 1732.
- [DeMott et al., 2003a]: DeMott, P. J., D. J. Cziczo, A. J. Prenni, D. M. Murphy, S. M. Kreidenweis, D. S. Thomson, R. Borys, und D. C. Rogers. „Measurements of the Concentration and Composition of Nuclei for Cirrus Formation“. *Proceedings of the National Academy of Sciences* 100, Nr. 25 (12. September 2003): 14655–60. doi:10.1073/pnas.2532677100.
- [DeMott et al., 2010]: DeMott, P. J., A. J. Prenni, X. Liu, S. M. Kreidenweis, M. D. Petters, C. H. Twohy, M. S. Richardson, T. Eidhammer, und D. C. Rogers. „Predicting Global Atmospheric Ice Nuclei Distributions and Their Impacts on Climate“. *Proceedings of the National Academy of Sciences* 107, Nr. 25 (Juni 22, 2010): 11217–11222.
- [DeMott et al., 2011]: DeMott, Paul J., Ottmar Möhler, Olaf Stetzer, Gabor Vali, Zev Levin, Markus D. Petters, Masataka Murakami, u. a. „Resurgence in Ice Nuclei Measurement Research“. *Bulletin of the American Meteorological Society* 92, Nr. 12 (Dezember 2011): 1623–1635.
- [DeMott et al., 2015]: DeMott, P. J., A. J. Prenni, G. R. McMeeking, R. C. Sullivan, M. D. Petters, Y. Tobo, M. Niemand, u. a. „Integrating laboratory and field data to quantify the immersion freezing ice nucleation activity of mineral dust particles“. *Atmos. Chem. Phys.* 15, Nr. 1 (13. Januar 2015): 393–409. doi:10.5194/acp-15-393-2015.
- [Diehl et al., 2014]: Diehl, K., M. Debertshäuser, O. Eppers, H. Schmithüsen, S. K. Mitra, und S. Borrmann. „Particle surface area dependence of mineral dust in immersion freezing mode: investigations with freely suspended drops in an acoustic levitator and a vertical wind tunnel“. *Atmos. Chem. Phys.* 14, Nr. 22 (25. November 2014): 12343–55. doi:10.5194/acp-14-12343-2014.
- [Fletcher, 1962]: Fletcher, N. H. *Physics of Rain Clouds*. Cambridge University Press, 386 pp, (1962).
- [Garimella et al., 2016]: Garimella, S., T. B. Kristensen, K. Ignatius, A. Welti, J. Voigtländer, G. R. Kulkarni, F. Sagan, u. a. „The SPectrometer for Ice Nuclei (SPIN): an instrument to investigate ice nucleation“. *Atmos. Meas. Tech.* 9, Nr. 7 (6. Juli 2016): 2781–95. doi:10.5194/amt-9-2781-2016.
- [Häckel, 2008]: Häckel, Hans. *Meteorologie*. 6., korrigierte Aufl. UTB, Stuttgart, 2008.

- [Hartmann et al., 2011]: Hartmann, S., D. Niedermeier, J. Voigtländer, T. Clauss, R. A. Shaw, H. Wex, A. Kiselev, und F. Stratmann. „Homogeneous and heterogeneous ice nucleation at LACIS: operating principle and theoretical studies“. *Atmos. Chem. Phys.* 11, Nr. 4 (25. Februar 2011): 1753–67. doi:10.5194/acp-11-1753-2011.
- [Hartmann et al., 2013]: Hartmann, S., S. Augustin, T. Clauss, H. Wex, T. Šantl-Temkiv, J. Voigtländer, D. Niedermeier, und F. Stratmann. „Immersion freezing of ice nucleation active protein complexes“. *Atmos. Chem. Phys.* 13, Nr. 11 (14. Juni 2013): 5751–66. doi:10.5194/acp-13-5751-2013.
- [Henderson-Begg et al., 2009]: Henderson-Begg, S. K., T. Hill, R. Thyrhaug, M. Khan, und B. F. Moffett. „Terrestrial and Airborne Non-bacterial Ice Nuclei“. *Atmospheric Science Letters* 10, Nr. 4 (2009): 215–219.
- [Hiranuma et al., 2015]: Hiranuma, N., S. Augustin-Bauditz, H. Bingemer, C. Budke, J. Curtius, A. Danielczok, K. Diehl, u. a. „A comprehensive laboratory study on the immersion freezing behavior of illite NX particles: a comparison of 17 ice nucleation measurement techniques“. *Atmos. Chem. Phys.* 15, Nr. 5 (6. März 2015): 2489–2518. doi:10.5194/acp-15-2489-2015.
- [Hoffmann et al., 2013]: Hoffmann, N., A. Kiselev, D. Rzesanke, D. Duft, und T. Leisner. „Experimental quantification of contact freezing in an electrodynamic balance“. *Atmos. Meas. Tech.* 6, Nr. 9 (12. September 2013): 2373–82. doi:10.5194/amt-6-2373-2013.
- [Hoose und Möhler, 2012]: Hoose, C., und O. Möhler. „Heterogeneous ice nucleation on atmospheric aerosols: a review of results from laboratory experiments“. *Atmos. Chem. Phys.* 12, Nr. 20 (29. Oktober 2012): 9817–54. doi:10.5194/acp-12-9817-2012.
- [Hu et al., 2003]: Hu, Yong-X, Ping Yang, Bing Lin, Gary Gibson, und Chris Hostetler. „Discriminating between spherical and non-spherical scatterers with lidar using circular polarization: a theoretical study“. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, Electromagnetic and Light Scattering by Non-Spherical Particles*, 79–80 (1. September 2003): 757–64. doi:10.1016/S0022-4073(02)00320-5.
- [IPCC, 2014a]: IPCC, 2013/2014: Klimaänderung 2013/2014: Zusammenfassungen für politische Entscheidungsträger. Beiträge der drei Arbeitsgruppen zum Fünften Sachstandsbericht des Zwischenstaatlichen Ausschusses für Klimaänderungen (IPCC). Deutsche Übersetzungen durch Deutsche IPCC-Koordinierungsstelle, Österreichisches Umweltbundesamt, ProClim, Bonn/Wien/Bern, 2016.
- [IPCC, 2014b]: IPCC, 2014: Klimaänderung 2014: Synthesebericht. Beitrag der Arbeitsgruppen I, II und III zum Fünften Sachstandsbericht des Zwischenstaatlichen Ausschusses für Klimaänderungen (IPCC) [Hauptautoren, R.K. Pachauri und L.A. Meyer (Hrsg.)]. IPCC, Genf, Schweiz. Deutsche Übersetzung durch Deutsche IPCC-Koordinierungsstelle, Bonn, 2016.
- [Kamphus et al., 2010]: Kamphus, M., Ettner-Mahl, M., Klimach, T., Drewnick, F., Keller, L., Cziczo, D. J., Mertes, S., Borrmann, S., and Curtius, J.: Chemical composition

of ambient aerosol, ice residues and cloud droplet residues in mixed-phase clouds: single particle analysis during the Cloud and Aerosol Characterization Experiment (CLACE 6), *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 8077-8095

- [Kanji et al., 2008]: Kanji, Zamin A., Octavian Florea, und Jonathan P. D. Abbatt. „Ice Formation via Deposition Nucleation on Mineral Dust and Organics: Dependence of Onset Relative Humidity on Total Particulate Surface Area“. *Environmental Research Letters* 3, Nr. 2 (2008): 025004. doi:10.1088/1748-9326/3/2/025004.
- [Kanji und Abbatt, 2009]: Kanji, Zamin A., und Jonathan P. D. Abbatt. „The University of Toronto Continuous Flow Diffusion Chamber (UT-CFDC): A Simple Design for Ice Nucleation Studies“. *Aerosol Science and Technology* 43, Nr. 7 (19. Juni 2009): 730–38. doi:10.1080/02786820902889861.
- [Kiselev et al., 2016]: Kiselev, Alexei, Felix Bachmann, Philipp Pedevilla, Stephen J. Cox, Angelos Michaelides, Dagmar Gerthsen, und Thomas Leisner. „Active Sites in Heterogeneous Ice Nucleation—the Example of K-Rich Feldspars“. *Science*, 8. Dezember 2016, aai8034. doi:10.1126/science.aai8034.
- [Kraus, 2004]: Kraus, Helmut. *Die Atmosphäre der Erde: Eine Einführung in die Meteorologie*. 3., erw. u. aktualisierte Aufl. Springer, 2004.
- [Lacher et al., 2017]: Lacher, L., Lohmann, U., Boose, Y., Zipori, A., Herrmann, E., Bukowiecki, N., Steinbacher, M., and Kanji, Z. A.: The Horizontal Ice Nucleation Chamber HINC: INP measurements at Conditions Relevant for Mixed-Phase Clouds at the High Altitude Research Station Jungfraujoch, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, <https://doi.org/10.5194/acp-2017-474>, in review, 2017
- [Levin und Cotton, 2009]: Levin, Zev, und William R. Cotton. *Aerosol Pollution Impact on Precipitation: A Scientific Review*. Softcover reprint of hardcover 1st ed. 2009. Place of publication not identified: Springer, 2010.
- [Lohmann et al., 2016]: Lohmann, Ulrike, Felix Lüönd, und Fabian Mahrt. *An Introduction to Clouds: From the Microscale to Climate*. Cambridge University Press, 2016.
- [Lohman und Diehl, 2006]: Lohmann, U., und K. Diehl. „Sensitivity Studies of the Importance of Dust Ice Nuclei for the Indirect Aerosol Effect on Stratiform Mixed-Phase Clouds“. *Journal of the Atmospheric Sciences* 63, Nr. 3 (1. März 2006): 968–82. doi:10.1175/JAS3662.1.
- [Marcolli et al., 2014]: Marcolli, C. „Deposition nucleation viewed as homogeneous or immersion freezing in pores and cavities“. *Atmos. Chem. Phys.* 14, Nr. 4 (21. Februar 2014): 2071–2104. doi:10.5194/acp-14-2071-2014.
- [Meyers et al., 1992]: Meyers, Michael P., Paul J. DeMott, und William R. Cotton. „New Primary Ice-Nucleation Parameterizations in an Explicit Cloud Model“. *Journal of Applied Meteorology* 31, Nr. 7 (Juli 1992): 708–721.
- [Möhler et al., 2007]: Möhler, O., P. J. DeMott, G. Vali, und Z. Levin. „Microbiology and atmospheric processes: the role of biological particles in cloud physics“. *Biogeosciences* 4, Nr. 6 (3. Dezember 2007): 1059–71. doi:10.5194/bg-4-1059-2007.

- [Murphy and Koop, 2005]: Murphy, D. M. and Koop, T. (2005). Review of the vapour pressures of ice and supercooled water for atmospheric applications. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 131(608):1539#1565.
- [Murray et al., 2010]: Murray, B. J., S. L. Broadley, T. W. Wilson, S. J. Bull, R. H. Wills, H. K. Christenson, und E. J. Murray. „Kinetics of the Homogeneous Freezing of Water“. *Physical Chemistry Chemical Physics* 12, Nr. 35 (25. August 2010): 10380–87. doi:10.1039/C003297B.
- [Murray et al., 2012]: Murray, B. J., D. O’Sullivan, J. D. Atkinson, und M. E. Webb. „Ice Nucleation by Particles Immersed in Supercooled Cloud Droplets“. *Chemical Society Reviews* 41, Nr. 19 (7. Oktober 2012): 6519–54. doi:10.1039/c2cs35200a.
- [Mülmenstädt et al., 2015]: Mülmenstädt, Johannes, O. Sourdeval, J. Delanoë, und J. Quaas. „Frequency of Occurrence of Rain from Liquid-, Mixed-, and Ice-Phase Clouds Derived from A-Train Satellite Retrievals“. *Geophysical Research Letters* 42, Nr. 15 (16. August 2015): 2015GL064604. doi:10.1002/2015GL064604.
- [Niedermeier et al., 2010]: Niedermeier, D., S. Hartmann, R. A. Shaw, D. Covert, T. F. Mentel, J. Schneider, L. Poulain, u. a. „Heterogeneous freezing of droplets with immersed mineral dust particles – measurements and parameterization“. *Atmos. Chem. Phys.* 10, Nr. 8 (19. April 2010): 3601–14. doi:10.5194/acp-10-3601-2010.
- [Nillius, 2008]: Nillius, B. „Entwicklung, Aufbau und Messungen eines schnellen Eiskeimzählers“, Goethe-Universität Frankfurt, Dissertation, 2008
- [O’Sullivan et al., 2016]: O’Sullivan, D., B. J. Murray, J. F. Ross, und M. E. Webb. „The adsorption of fungal ice-nucleating proteins on mineral dusts: a terrestrial reservoir of atmospheric ice-nucleating particles“. *Atmos. Chem. Phys.* 16, Nr. 12 (29. Juni 2016): 7879–87. doi:10.5194/acp-16-7879-2016.
- [Papula, 2001]: Papula, Lothar. *Mathematik für Ingenieure und Naturwissenschaftler Band 3: Vektoranalysis, Wahrscheinlichkeitsrechnung, Mathematische Statistik, Fehler- und Ausgleichsrechnung*. 4., überarb. u. erw. Aufl. 2001. Vieweg+Teubner Verlag, 2001.
- [Papula, 2006]: Papula, Lothar. *Mathematische Formelsammlung: für Ingenieure und Naturwissenschaftler*. 9. Aufl. 2006. Vieweg+Teubner Verlag, 2006.
- [Pöhlker et al., 2012]: Pöhlker, C., J. A. Huffman, und U. Pöschl. „Autofluorescence of atmospheric bioaerosols – fluorescent biomolecules and potential interferences“. *Atmospheric Measurement Techniques* 5, Nr. 1 (Januar 9, 2012): 37–71. doi:10.5194/amt-5-37-2012.
- [Pöschl et al., 2010]: Pöschl, U., S. T. Martin, B. Sinha, Q. Chen, S. S. Gunthe, J. A. Huffman, S. Borrmann, u. a. „Rainforest Aerosols as Biogenic Nuclei of Clouds and Precipitation in the Amazon“. *Science* 329, Nr. 5998 (17. September 2010): 1513–16. doi:10.1126/science.1191056.

- [Pratt et al., 2009]: Pratt, Kerri A., Paul J. DeMott, Jeffrey R. French, Zhien Wang, Douglas L. Westphal, Andrew J. Heymsfield, Cynthia H. Twohy, Anthony J. Prenni, and Kimberly A. Prather. „In Situ Detection of Biological Particles in Cloud Ice-Crystals“. *Nature Geoscience* 2, Nr. 6 (Juni 2009): 398–401. doi:10.1038/ngeo521.
- [Prenni et al., 2007]: Prenni, Anthony J., Paul J. DeMott, Sonia M. Kreidenweis, Jerry Y. Harrington, Alexander Avramov, Johannes Verlinde, Michael Tjernström, Charles N. Long, und Peter Q. Olsson. „Can Ice-Nucleating Aerosols Affect Arctic Seasonal Climate?“ *Bulletin of the American Meteorological Society* 88, Nr. 4 (1. April 2007): 541–50. doi:10.1175/BAMS-88-4-541.
- [Prenni et al., 2009]: Prenni, Anthony J., Markus D. Petters, Sonia M. Kreidenweis, Colette L. Heald, Scot T. Martin, Paulo Artaxo, Rebecca M. Garland, Adam G. Wollny, und Ulrich Pöschl. „Relative roles of biogenic emissions and Saharan dust as ice nuclei in the Amazon basin“. *Nature Geoscience* 2, Nr. 6 (2009): 402–405.
- [Pruppacher und Klett, 2010]: Pruppacher, H. R., und J. D. Klett. *Microphysics of Clouds and Precipitation*. 2nd ed. Springer, 2010.
- [Pummer et al., 2012]: Pummer, B. G., H. Bauer, J. Bernardi, S. Bleicher, und H. Grothe. „Suspendable macromolecules are responsible for ice nucleation activity of birch and conifer pollen“. *Atmos. Chem. Phys.* 12, Nr. 5 (7. März 2012): 2541–50. doi:10.5194/acp-12-2541-2012.
- [Roedel, 2011]: Roedel, Walter. *Physik unserer Umwelt: Die Atmosphäre*. 4., überarb. u. aktualisierte Aufl. Springer, 2011.
- [Rogers, 1988]: Rogers, D.C.: Development of a continuous flow thermal gradient diffusion chamber for ice nucleation studies, *Atmospheric Research*, 22, 149-181, (1988).
- [Schrod et al., 2016]: Schrod, J., A. Danielczok, D. Weber, M. Ebert, E. S. Thomson, und H. G. Bingemer. „Re-evaluating the Frankfurt isothermal static diffusion chamber for ice nucleation“. *Atmos. Meas. Tech.* 9, Nr. 3 (30. März 2016): 1313–24. doi:10.5194/amt-9-1313-2016.
- [Seinfeld und Pandis, 2006]: Seinfeld, John H., und Spyros N. Pandis. *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*. 2. Auflage. John Wiley & Sons, 2006.
- [SRF, 2017]: Wetterbericht 12.02.2017“. Schweizer Radio und Fernsehen (SRF), 12. Februar 2017. <https://www.srf.ch/meteo/wetterbericht/2017-02-12> (Zugriff am 05.07.2017)
- [Stetzer et al., 2008]: Stetzer, Olaf, Björn Baschek, Felix Lüönd, und Ulrike Lohmann. „The Zurich Ice Nucleation Chamber (ZINC)-A New Instrument to Investigate Atmospheric Ice Formation“. *Aerosol Science and Technology* 42, Nr. 1 (1. Januar 2008): 64–74. doi:10.1080/02786820701787944.
- [Stratmann et al., 2004]: Stratmann, F., A. Kiselev, S. Wurzler, M. Wendisch, J. Heintzenberg, R. J. Charlson, K. Diehl, H. Wex, und S. Schmidt. „Laboratory Studies and Nu-

merical Simulations of Cloud Droplet Formation under Realistic Supersaturation Conditions“. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 21, Nr. 6 (1. Juni 2004): 876–87. doi:10.1175/1520-0426(2004)021<0876:LSANSO>2.0.CO;2.

- [Sullivan et al., 2010]: Sullivan, R. C., M. D. Petters, P. J. DeMott, S. M. Kreidenweis, H. Wex, D. Niedermeier, S. Hartmann, u. a. „Irreversible loss of ice nucleation active sites in mineral dust particles caused by sulphuric acid condensation“. *Atmos. Chem. Phys.* 10, Nr. 23 (3. Dezember 2010): 11471–87. doi:10.5194/acp-10-11471-2010.
- [Tobo et al., 2013]: Tobo, Yutaka, Anthony J. Prenni, Paul J. DeMott, J. Alex Huffman, Christina S. McCluskey, Guoxun Tian, Christopher Pöhlker, Ulrich Pöschl, und Sonia M. Kreidenweis. „Biological Aerosol Particles as a Key Determinant of Ice Nuclei Populations in a Forest Ecosystem“. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 118, Nr. 17 (16. September 2013): 10,100-10,110. doi:10.1002/jgrd.50801.
- [TSI, 2012]: Application Note PR-001, Aerosol statistics lognormal distributions and dN/dlogDp, TSI Incorporated, 2012
- [Twinbird, 2012]: Datasheet SC-TD08, Twinbird Corporation, 2012
- [Vali et al., 2015]: Vali, G., P. J. DeMott, O. Möhler, und T. F. Whale. „Technical Note: A proposal for ice nucleation terminology“. *Atmos. Chem. Phys.* 15, Nr. 18 (16. September 2015): 10263–70. doi:10.5194/acp-15-10263-2015.
- [Vali, 2004]: Vali, G. Ice observations in the atmosphere 1949 – 2004, Ice Initiation Workshop, 2004.
- [Wex et al., 2015]: Wex, H., S. Augustin-Bauditz, Y. Boose, C. Budke, J. Curtius, K. Diehl, A. Dreyer, u. a. „Intercomparing different devices for the investigation of ice nucleating particles using Snomax® as test substance“. *Atmos. Chem. Phys.* 15, Nr. 3 (10. Februar 2015): 1463–85. doi:10.5194/acp-15-1463-2015.
- [Yakobi-Hancock et al., 2013]: Yakobi-Hancock, J. D., L. A. Ladino, und J. P. D. Abbatt. „Feldspar minerals as efficient deposition ice nuclei“. *Atmos. Chem. Phys.* 13, Nr. 22 (18. November 2013): 11175–85. doi:10.5194/acp-13-11175-2013.

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1.1: Schätzwerte des globalen Strahlungsantriebs für verschiedene Antriebsparameter im Jahr 2011 bezogen auf 1750, sowie dem jeweiligen Vertrauensniveau. Diese sind mit „sehr hoch“ (SH) bis „gering“ (G) bezeichnet. [IPCC, 2014a].....	5
Abbildung 1.2: Die vier heterogenen Gefriermoden nach [Vali 2004].....	6
Abbildung 1.3: Die unterschiedlichen Nukleationsmoden in Abhängigkeit von Temperatur und Sättigung [Hoose und Möhler, 2012].....	7
Abbildung 1.4: Variabilität der INP-Anzahlkonzentration abhängig von der Temperatur [DeMott et al., 2010].....	8
Abbildung 1.5: Monatsmittelwerte der INP-Konzentrationen gemessen am Taunus-Observatorium in den Jahren 2008 – 2014 [Danielczok, 2015].....	9
Abbildung 1.6: chemische Zusammensetzung verschiedener Aerosolklassen (u. a. Eisresiduen) [Kamphus et al., 2010].....	10
Abbildung 1.7: Zusammenfassung mikrophysikalischer Prozesse in einer konvektiven Wolke mit einer Wolkenbasistemperatur wärmer als 0 °C und einer Temperatur in der Wolkenspitze von kälter als -38 °C. [Lohmann et al., 2016].....	12
Abbildung 1.8: Anteil regnender Wolken mit Eisphase an der Wolkenoberseite in einem Mittel über die Jahre 2006-2011. [Mülmenstädt et al., 2015].....	13
Abbildung 1.9: Schematisches Darstellung der Wirkung von INP verschiedener Quellen auf mittelhohe Regenwolken und Cirruswolken [DeMott et al., 2010].....	13
Abbildung 1.10: Verschiedene Typen von Eiskeimzählern und -instrumenten. Flüssigwassertröpfchen sind als schwarze Punkte und Eiskristalle als hexagonale Plättchen dargestellt. Luftströme sind als Pfeile gekennzeichnet, wobei rot wärmere und blaue kältere Bereiche abbildet. [DeMott et al., 2011]	14
Abbildung 2.1: Konstruktionszeichnung des Eiskeimzählers FINCH im HALO-Rack.....	17
Abbildung 2.2: Schematischer Aufbau von FINCH mit Anordnung der Sensorik und Flussläufen im "closed loop"- (a) und Druckluftbetrieb (b).....	18
Abbildung 2.3: Bauformen der Wärmetauscher für den Aerosolfluss (a), kalten Fluss (b) und für das Kühlmittel zur Kammerkühlung (c). Die gelben Pfeile deuten die Flussrichtung des Kühlmittels an, blaue Pfeile den Luftstrom. Bild (d) zeigt beispielhaft die Verbindung zwischen Kühlkopf und Stirling-Kühler. Teilweise nach [Twinbird, 2012].....	20
Abbildung 2.4: Technische Zeichnung des Kammerdeckels mit Einlässen für QAWM und QC. Gezeigt ist ein Querschnitt sowie eine Seitenansicht mit Beschriftungen der wichtigsten Elemente. Der Anschluss für QWM würde an der markierten Stelle aus der Bildebene herausragen.....	21

Abbildung 2.5: Aufbau von FINCH nach Abb. 2.2 mit besonderer Erläuterung der verbauten Sensorik.....	22
Abbildung 2.6: Kurven des Sättigungsdampfdruckes über der Eis- und Wasseroberfläche. Dargestellt ist weiter der Mischungsdampfdruck für zwei Beispiele. Mit leichten Änderungen nach [Nillius, 2008].....	23
Abbildung 2.7: Schematische Mischung aller vier Flüsse. Die grau markierten Flüsse lassen sich einstellen, während schwarz dargestellte Flüsse bereits aufsummiert sind. orangefarbene Variablen können im System geregelt werden, hellblaue basieren hingegen auf dem vorherigen Mischungsschritt. Die überstrichenen Variablen stellen die Zielwerte dar. Für Variablen, die mit Stern gekennzeichnet sind, können Korrekturen angegeben werden.....	27
Abbildung 2.8: Schematischer Ablauf der Softwaresteuerung von FINCH.....	30
Abbildung 2.9: Evakuieren der Wachstumskammer zur Überprüfung der Dichtigkeit. Dargestellt ist der Kammerdruck (schwarze Linie) sowie als Referenz der MFC-Vordruck in rot. Wichtige Zeitpunkte sind gestrichelt markiert.....	32
Abbildung 2.10: Prinzipskizze des optischen Partikelzählers mit optischen, mechanischen und elektrischen Bauelementen.....	34
Abbildung 2.11: Fluoreszenzbereich von Riboflavin in Abhängigkeit von der Anregungswellenlänge. Mit leichten Änderungen nach [Pöhlker, 2012].....	37
Abbildung 2.12: P44/P11-Verhältnisse bei Wassertropfen und verschiedenen Eiskristallformen in Abhängigkeit des Streuwinkels [Hu et al., 2003].....	39
Abbildung 2.13: Schematischer Aufbau der neuen Software-Steuerung der FINCH-Optik..	40
Abbildung 2.14: Schematischer Ablauf der einfachen Peakdetektion.....	41
Abbildung 2.15: Beispiel eines Peaks in den Kanälen CH0 - CH2, wobei die Maxima der Kanäle in einem Sampleschritt (hier 530) liegen. Der Kanal für Fluoreszenzmessung zeigt keinen Eintrag.....	42
Abbildung 2.16: Vereinfachte Darstellung der Klassierung der Partikel. "Wahre" Bedingungen werden als grüne, falsche Bedingungen als rote Pfeile dargestellt	43
Abbildung 2.17: Unterschiedliche Erscheinungsformen der elektromagnetischen Störungen aufgenommen durch die Photomultiplier. Bei der Aufnahme war der Laser aus und die Streukammer lichtdicht verschlossen, um „echte“ Signale auszuschließen. Die Graphen a) und b) zeigen periodische Störungen, in b) deutlich als Wellenpaket ausgeprägt. Graph c) zeigt dagegen Störungen ohne erkennbar periodisch Anteile.....	45
Abbildung 2.18: Störungsfreies Grundrauschen der FINCH-Optik. Bei der Aufnahme war der Laser abgeschaltet und die Streukammer lichtdicht verschlossen.....	46
Abbildung 2.19: Die Abbildung zeigt das durch eine blinkende LED initiierte Ausgangssignal eines Übertragers im CH2. Das "Nachschwingen" in den negativen Bereich ist	

deutlich zu erkennen. Die Abbildung wurden mit der Quicklook-Funktion der Software erzeugt.....	47
Abbildung 2.20: Simuliertes Ausgangssignal des Tiefpassfilters bei exemplarischen Eingangsimpulsen unterschiedlicher Breite (1 μ s, 2 μ s, 4 μ s und 8 μ s) und einer Amplitude von 1. Zusätzlich sind die Abtastfehler der Maxima eingezeichnet.....	48
Abbildung 2.21: FINCH-Optik im LED-Aufbau. Gezeigt ist ein Ausschnitt der Optik mit durch den Aerosoleinlass eingelassener LED.....	49
Abbildung 2.22: Messaufbau zur Überprüfung der Wärmetauscher. Eingezeichnet sind zwei optionale Versuchsreihen: In schwarz ist eine Messaufbau mit Partikelzähler gezeigt, während in grau der Wärmetauscher druckdicht verschlossen wird und unter Überdruck gesetzt oder evakuiert wird.....	50
Abbildung 2.23: Versuchsaufbau der Laborexperimente mit Probeaerosol. Bei der Generierung der Testpartikel wurde entweder ein "trockene" Erzeugung durch Druckluft und Magnetrührer oder eine "nasse" Erzeugung mit in VE-Wasser suspendierten Partikeln genutzt. Auch FINCH wurde entweder komplett, d. h. mit an der Kammer angeflanschter Optik benutzt oder der Partikelzähler wurde extern betrieben.....	51
Abbildung 3.1: Verhältnis der gezählten Partikel unterschiedlicher Größe von FINCH-Optik und einem CPC (TSI 3025) aufgetragen gegen die Variation der Verstärkungsspannung. Dargestellt sind Werte des „Forward-Kanals“ CH2....	55
Abbildung 3.2: Häufigkeitsverteilungen von 800 nm Ammoniumsulfat-Partikeln bei unterschiedlichen Verstärkungsspannungen.....	56
Abbildung 3.3: Zeitlicher Verlauf der Amplituden des CH2 bei Detektion eines Signal mit einer Frequenz von 10 kHz. Oben (a) wurde ein Rechtecksignal gewählt und unten (b) ein Dreieckssignal.....	57
Abbildung 3.4: Relative Abweichungen der zweiminütigen Mittel einer Messung bei unterschiedlichen Blinkfrequenzen der LED.....	58
Abbildung 3.5: Variation der Blinkfrequenz der LED und gezählte Lichtimpulse mit dem F-OPS. Aufgetragen ist jeweils das arithmetische Mittel der gezählten Impulse pro 1000 Samples einer zweiminütigen Messung.....	59
Abbildung 3.6: Dargestellt sind Snomax©-Partikelimpulse mit einer Dauer von zwei Minuten. Die schwarze Linie gibt die von F-OPS aufgenommene Partikelanzahl [s-1] wieder und in blau wurde als Referenz ein CPC eingezeichnet. Die Mittelwerte der Konzentration nach Schließen des Ventils sind ausgegeben.....	61
Abbildung 3.7: (a) Relative Häufigkeitsverteilungen der Amplitudenintensität. (b) Anzahl der gezählten Impulse im betrachteten Zeitraum aufgetragen.....	61

Abbildung 3.8: Zähleffizienz des F-OPS im Vergleich mit einem CPC (TSI 3025). Die roten Kreuze geben die Mittelwerte der Messzeiträume an. Die Fehlerbalken werden durch die Standardabweichungen beider Messgrößen bestimmt.....	62
Abbildung 3.9: Mit dem Quicklook-Tool der F-OPS-Software erstellte, drei beispielhafte Größenverteilungen. Dargestellt sind jeweils auf der linken Seite die Amplitude von CH0 + CH1 sowie rechts CH2.....	64
Abbildung 3.10: Anzahlgrößenverteilung für gröbselektierte Ammoniumsulfat-Partikel mit $D_p = 200 - 1000$ nm. a) sind gewurzelte Intensitäten und b) die ursprünglichen Signale.....	65
Abbildung 3.12: Größenverteilungen der Melaminpartikelmessungen für den F-OPS (a) und den TSI OPS (b).....	68
Abbildung 3.11: Größenverteilung von Melaminpartikeln nach Abzug des Hintergrundsignals	67
Abbildung 3.15: Kalibrierung der Partikelgröße: lineare Anpassung der Modalwerte der mit dem F-OPS ermittelten Größenverteilungen und der zugehörigen Partikelgröße. Fehlerbalken stellen Standardabweichungen dar.....	73
Abbildung 3.16: zwei beispielhafte Größenverteilungen von F-OPS und TSI OPS, wobei die obere X-Achse sich auf den F-OPS bezieht (rote Linie) und die untere X-Achse auf den TSI OPS (schwarz).....	74
Abbildung 3.13: Aus den Kurvenflanken abgeleitete Zuordnung von Partikeldurchmesser [μm] und der Wurzel der CH2-Intensität [$I^{1/2}$], mit linearer Anpassung.....	70
Abbildung 3.17: Größenverteilungen der Teststäube ermittelt über CH2 nach Anpassung über linearen Zusammenhang in Gleichung 3.2.....	76
Abbildung 3.18: Häufigkeitsverteilung des P44/P11-Verhältnisses für eine beispielhafte Messung.....	76
Abbildung 3.14: Grafik a) zeigt die mechanisch auf 0 eingestellte Häufigkeitsverteilung des P44/P11-Verhältnisses mit Gaußscher Anpassung. In b) sind beispielhafte die Änderungen des Mittelwertes der Verteilung (mit Standardabweichungen) beim Drehen des $\lambda/4$ -Plättchens gezeigt.....	72
Abbildung 3.19: Boxplotverteilungen der P44/P11-Verhältnisse bei verschiedenen Teststäuben.....	78
Abbildung 3.20: Detektion von Riboflavin-Partikeln mit der FINCH-Optik bei Variation der Verstärkungsspannung des CH3-Photomultiplier. Gezeigt ist die Anzahl der Gesamtpartikel detektiert mit CH2 (schwarz) sowie die Anzahl der fluoreszierenden Partikeln detektiert mit CH3 (grüne Linie). Die vertikalen Linien geben die Zeitabschnitte gleicher Verstärkungsspannung UC an.....	80
Abbildung 3.22: Verhältnis der Anzahl an fluoreszierenden Partikeln (ermittelt über CH3) zur Partikelanzahl (ermittelt über CH2) mit Standardabweichung als Fehlerbalken.	

Datenpunkte sind Mittelwerte über einzelne Messzeiträume und Fehlerbalken deren Standardabweichungen.....	82
Abbildung 3.23: Statistische Verteilungen des Verhältnisses von Anzahl der fluoreszierenden Partikeln zu CH ₂ -Partikelanzahl bei verschiedenen Teststäuben.....	84
Abbildung 3.25: Zeitreihen von F-OPS und einem TSI 3330 OPS einer dreißig stündigen Außenluftmessung beginnend ab 03.04.2017 ab 18 Uhr. Die blaue Linie stellt die Zeitreihe der Partikelkonzentrationen des TSI OPS dar, während in schwarz die durch den F-OPS ermittelten Anzahlkonzentrationen aufgetragen ist. Die rote Linie ergibt sich aus einem 10 Punkte umfassenden gleitenden Mittel der F-OPS-Werte.....	85
Abbildung 3.27: Verhältnis der Partikelkonzentrationen von F-OPS zu TSI 3330 OPS in einer Zeitreihe. Weiter können dem Boxplot die statistischen Kennwerte der Verteilung des Verhältnisses in diesem Zeitraum entnommen werden.....	86
Abbildung 3.21: Verweilzeiten von Snomax©-Partikeln unterschiedlicher Größe in der FINCH-Kammer. Die Y-Achse wurde auf den Maximalwert normiert und in Prozent angegeben. Der Nullpunkt aller Experimente liegt auf dem Zeitpunkt des „Schließen des Ventils“.....	80
Abbildung 3.28: Anzahlgrößenverteilungen von F-OPS (oben) und TSI 3330 OPS (unten) bei einer Außenluftmessung. Farblich aufgetragen sind die normierten Konzentrationen (dN/dlogDp) die aus Minutenmittelwerten der Konzentration in [cm ⁻³] errechnet wurden. Die Y-Achse entspricht dem Partikeldurchmesser, beim F-OPS über Gleichung 3.2 ermittelt.....	87
Abbildung 4.1: Beispielhafter Partikelimpuls mit 200 nm Snomax©-Partikeln mit einer Dauer von 2 Minuten. Die blaue Kurve ist eine exponentielle Anpassung an den zeitlichen Abfall der Konzentration in der Kammer. Die schwarze Linie gibt den Mittelwert des Partikelmaximums wieder und „gestrichelt“ sind die Ventiländerungszeiten angegeben.....	88
Abbildung 3.24: Zählereffizienz des F-OPS im Vergleich mit einem CPC (TSI 3025). Die roten Kreuze geben das Verhältnis bei Raumtemperatur an. Die blauen Kreuze wurden im Betriebszustand bei einer Misch- und Kammertemperatur von -15 °C gemessen. Gemessen wurde monodisperse Ammoniumsulfat-Partikel.....	83
Abbildung 3.26: Partikelkonzentrationen (rot) gemessen mit einem TSI 3025 CPC hinter dem Wärmetauscher (Benutzt wurde hier die QC-Bauart). Die schwarze Linie zeigt die Temperatur des Wärmetauschers. Grau hinterlegt sind Zeiten in welchen ein Silikageltrockner vor dem Wärmetauscher benutzt wurde.....	84
Abbildung 4.3: Mit einem MBW 373 ermittelten Frostpunkt des QC und QA und der zugehörigen Kühlkopf Temperatur in einem Abkühlvorgang (blau) und beim Erwärmen (orange).....	94
Abbildung 4.6: Verhältnis der Frostpunkttemperaturen ermittelt mit dem MBW Taupunktspiegel und dem HWTAWM-Sensor (b). Temperaturverlauf des QA-Kühlkopfes (a).....	96

Abbildung 4.7: Flussraten (a) und Temperaturen (b), (c) in FINCH während einer ersten Aktivierungsmessung mit 400 nm Snomax©-Aerosolpartikeln.....	99
Abbildung 4.8: Verlauf der über CH2 ermittelten Gesamtpartikelkonzentration (a), INP-Konzentration und Sättigungsverhältnis (b) Supper einer ersten Aktivierungsmessung mit 400 nm Snomax©-Aerosolpartikeln. Grau hinterlegt sind Zeiten mit Nullfiltermessung.....	104
Abbildung 4.10: Anzahlgrößenverteilungen von F-OPS bei einer ersten Aktivierungsmessung. Farblich aufgetragen sind die Anzahlkonzentrationen in [cm ⁻³]. Die Partikelgröße wurde dabei mit Gleichung 3.2 angepasst.....	106
Abbildung 4.11: Zeitlicher Mittelwert der Größenverteilungen im Aktivierungsexperiment mit 400 nm Snomax©-Aerosolpartikeln, wobei die unaktivierten Hintergrundpartikel von der Größenverteilung zum Zeitpunkt der Aktivierung abgezogen wurden.....	106
Abbildung 4.13: Minutenmittel der P44/P11-Verteilungen während der beschriebenen Snomax©-Messung.....	108
Abbildung 4.15: Temperaturzeitreihe des Kammerkühlvorganges. Gezeigt sind die Wandtemperaturen im "oberen" und "unteren" Bereich der Kammer. Der zeitliche Ausschnitt zeigt die Variation der Wandtemperaturen im Laufe der Messphase. Die Zieltemperatur ist als blau gestrichelte Linie eingefügt.....	109
Abbildung 4.2: Sättigungsverhältnisse (a) und Kammertemperaturen (b) einer Aktivierungsmessung.....	97
Abbildung 4.17: Temperaturen von QAWM und QC sowie den zugehörigen Kühlköpfen. In der Abbildung sind weiter die Zieltemperaturen beider Flüsse (horizontale, gestrichelte Linien) und der Referenzzeitraum (vertikale Linien) (vgl. Abb. 4.15) eingezeichnet.....	110
Abbildung 4.4: Abweichung von Supper zum Zielwert sowie Tupper chamber im betrachteten Experiment.....	98
Abbildung 4.5: Mit dem MBW 373 hinter der Kammer ermittelte Frostpunktttemperatur im Verlauf des Snomax©-Experimentes.....	98
Abbildung 4.18: Abweichungen der HYT-Temperatur (grün) und QA-Kühlkopf Temperatur vom zeitlichen Mittelwert.....	111
Abbildung 4.19: INP-Anzahlkonzentration aufgetragen gegen das Sättigungsverhältnis Supper. Farbkodiert ist die Kammertemperatur Tupper chamber.....	112
Abbildung 4.20: Flussraten (a) und Temperaturen (b), (c) in FINCH während einer Aktivierungsmessung mit 100 nm Snomax©-Aerosolpartikeln. Die Flussrate von QM wurde manuell variiert.....	114
Abbildung 4.21: Verlauf der über CH2 ermittelten Gesamtpartikelkonzentration (a), INP-Konzentration und Sättigungsverhältnis (b) Supper und SMix einer	

Aktivierungsmessung mit 100 nm Snomax [©] -Aerosolpartikeln. Grau hinterlegt sind Zeiten mit Nullfiltermessung.....	115
Abbildung 4.22: Partikelkonzentration (a), CH ₂ -Signalintensität (b) und Sättigungsverhältnis (c) einer Messung mit 650 nm Snomax [©] -Partikeln.....	116
Abbildung 4.9: Aktivierte Fraktion als Funktion der Temperatur für verschiedene Snomax [©] -Größen und Experimente. [Wex et al., 2015].....	105
Abbildung 4.23: Mittelwert der Partikelkonzentrationen während der Nullfilterphasen. Fehlerbalken sind Standardabweichungen.....	117
Abbildung 4.12: Satellitenbild von Europa am 12.02.2017, 12 UTC [SRF, 2017].....	106
Abbildung 5.1: Aktivierte Fraktion als Funktion der Temperatur. Die FINCH-Daten sind auf Tupper chamber bezogen. Weitere Werte nach [Hartmann et al., 2013].....	119
Abbildung 4.14: FINCH-Messung während der INUIT/CLACE Kampagne 2017 am 12.02.2017. a) zeigt die Größenverteilung der über CH ₂ detektierten Signale, b) die INP und Partikelkonzentrationen, c) die Sättigungsverhältnisse in der Kammer und d) die Temperaturen im Messverlauf.....	107
Abbildung 4.16: Aerosolpartikel-Größenverteilung am 12.02.2017 gemessen mit einem TSI 3330 OPS in der Total-Inlet-Einlassleitung.....	109
Abbildung 5.2: Optische Dicke von Aersolschichten am 12.02.2017 [BSC, 2017].....	122

Tabellenverzeichnis

Tabelle 2.1: Überblick über die Soll- und Ist-Werte einer Mischung aus dem QAWM und QC zum Erreichen der Zieltemperatur und Zielfeuchte.....	26
Tabelle 2.2: Überblick über die Soll- und Ist-Werte einer Mischung aus den vier einzelnen Flüssen zum Erreichen der Zieltemperatur und Zielfeuchte.....	28
Tabelle 2.3: Bezeichnungen der Photomultiplier sowie Einsatzart und Typ.....	34
Tabelle 2.4: Zusammenfassung der ermittelten Partikeleigenschaften aus den Signalen der Photomultiplier der FINCH-Optik.....	39
Tabelle 2.5: Übersicht über die bei den Experimenten benutzten Flüsse in FINCH oder im Aufbau mit der FINCH-Optik alleine.....	52
Tabelle 2.6: Übersicht der im Labor benutzten Substanzen.....	54
Tabelle 3.1: Übersicht über die gewählten Verstärkungsspannungen der einzelnen Photomultiplier.....	58
Tabelle 3.2: Statistische Kennzahlen der Partikelgrößenverteilungen der Messungen mit PSL- und Melaminpartikel.....	69
Tabelle 4.1: Kenngrößen der Aufenthaltszeiten von Partikeln in der FINCH-Kammer. Die vergangene Zeit ermittelt sich aus dem Mittelwert der durchgeführten Experimente mit zugehöriger Standardabweichung.....	90
Tabelle 4.2: Überblick über die Sollwerte des gezeigten Mischexperimentes.....	97

Abkürzungen und Symbole

Abkürzungen

CCN	cloud condensation nuclei (Wolkenkondensationskeim) - Ein Aerosolpartikel, welches zur Bildung von Wolkentropfen beiträgt.
CFDC	Continuous Flow Diffusion Chambers – Eine Bauform von Eiskeimzählern.
CPC	condensation particle counter – Partikelzähler, der Partikel durch Kondensation auf eine detektierbare Größe anwachsen lässt.
cRIO	compact reconfigurable input output – Datenverarbeitungssystem von FINCH
CVI	counterflow virtual impactor – Aerodynamischer Partikelabscheider.
CWL	Zentralwellenlänge - mittlere Wellenlänge des Bandpassfilters
DMA	differential mobility analyser – Ein Gerät, welches anhand der elektrostatischen Mobilität eines Partikel die Partikel klassieren kann.
ECMWF	european centre for medium-range weather forecast – Europäisches Zentrum für mittelfristige Wettervorhersagen
F-OPS	FINCH-OPS od. FINCH-Optik - Optisches Messgerät zur Nutzung hinter der FINCH-Kammer
FINCH	Fast ice nuclei chamber – Ein in dieser Arbeit benutzter Eiskeimzähler.
fINP	fluoreszierender Eiskeim
fP	fluoreszierende Partikel
FRIDGE	Frankfurt ice nuclei deposition freezing experiment – Experiment zum Ermitteln der Eiskeimkonzentrationen.
HALO	High Altitude and Long Range Research Aircraft – Name eines Forschungsflugzeuges.
HEPA	High Efficiency Particulate Airfilter – genormter Partikelfilter
INM	eisaktives Makromolekül
INP	ice nucleating particle (Eiskeim) - Ein Aerosolpartikel, welches zur Bildung von Eispartikeln beiträgt.
IPCC	Intergovernmental Panel on climate change – Weltklimarat der Vereinten Nationen
ITCZ	intertropische Konvergenzzone

LACIS	Leipzig Aerosol cloud interaction simulator – Messaufbau zur Untersuchung von Wolkenröpfchen unter atmosphärischen Bedingungen.
MFC	Mass-flow-controller (Massendurchflussregler) – Geräte zur Steuerung von Luftflüssen.
msl	mean sea level - Beschreibt die Höhe des mittleren Meeresspiegels.
OPC	optical particle counter – Partikelzähler der auf Grund von optischen Eigenschaften Partikel detektiert.
OPS	optical particle sizer – Messgerät, welches auf Grund von optischen Eigenschaften Partikel detektiert und nach Größen klassiert.
PID	proportional–integral–derivative controller
PM	Photomultiplier – Elektronenröhre zur Detektion schwacher Lichtsignale
POM	Polyoxymethylen, Kunststoff für Bauteile in FINCH
PSL	Polysterene Latex, monodisperse Testpartikel
SPIN	spectrometer for ice nuclei – Eiskeimzähler von DMT Inc.
UTC	Coordinated Universal Time – Koordinierte Weltzeit. Der Mitteleuropäischen Zeit wird eine Stunde addiert. Alle Zeitangaben in dieser Arbeit beziehen sich auf UTC.

Variablen und Formelzeichen

D_p	Partikeldurchmesser
f_{ice}	aktivierte Fraktion: Verhältnis INP-Anzahl zur Gesamtpartikelanzahl
p	Druck [Pa]
p_{AWM}	Dampfdruck des AWM-Flusses
P_{LC}	Anteil des linkszirkular polarisierten Streulichtes
P_{RC}	Anteil des rechtszirkular polarisierten Streulichtes
p_s	Wasserdampfpartialdruck bei Sättigung
$p_{s, ice}$	Wasserdampfpartialdruck bei Sättigung, auf die Eisoberfläche bezogen
$p_{s, w}$	Wasserdampfpartialdruck bei Sättigung, auf die Wasseroberfläche bezogen
p_v	Wasserdampfpartialdruck [Pa]
Q_A	Rate des Aerosolprobenflusses [$l\ min^{-1}$]

Q_{AWM}	Rate des gemischten Flusses aus Q_A , Q_W und Q_M [$l \text{ min}^{-1}$]
Q_C	Rate des „kalten“ Flusses [$l \text{ min}^{-1}$]
Q_M	Rate des „feuchten“ Flusses [$l \text{ min}^{-1}$]
Q_W	Rate des „warmen“ Flusses [$l \text{ min}^{-1}$]
r	Korrelationskoeffizient
rH	relative Feuchte
R_v	spezifische Gaskonstante für Wasserdampf $R_v = 461,5 \text{ [J} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ K}^{-1}\text{]}$
S_{ice}	Sättigungsverhältnis in Bezug auf die Eisoberfläche
S_{MIX}	Mischsättigung als Zielvariable
S_w	Sättigungsverhältnis in Bezug auf die Wasseroberfläche
T	allgemein für Temperatur, je nach Form in [K] oder [$^{\circ}\text{C}$]
T_{AWM}	Temperatur des Q_{AWM} [$^{\circ}\text{C}$]
$T_{cold \text{ flow}}$	Temperatur des Q_C [$^{\circ}\text{C}$]
T_{MIX}	Mischtemperatur als Zielvariable [$^{\circ}\text{C}$]
$T_{...}$	weitere Temperaturen folgen Abb. 2.5
U_c	Verstärkungsspannung der Photomultiplier [V]
W_l, W_u	Untere und obere Grenze des Breitenkriteriums zum Klassieren von Partikel.
x, y, z	Variablen zur Bestimmung von Partikeleigenschaften
ρ_v	Dichte des Wasserdampfes [kg/m^3]

Weitere, nicht öfter genutzte, Variablen und Formelzeichen sind direkt im Text erläutert.

Erklärung

Ich erkläre hiermit, dass ich mich bisher keiner Doktorprüfung im Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Bereich unterzogen habe.

Frankfurt am Main, den 13.09.17
Fabian Frank

Versicherung

Ich erkläre hiermit, dass ich die vorgelegte Dissertation über die

„Charakterisierung des Eiskeimzählers FINCH“

selbständig angefertigt und mich anderer Hilfsmittel als der in ihr angegebenen nicht bedient habe, insbesondere, dass alle Entlehnungen aus anderen Schriften mit Angabe der betreffenden Schrift gekennzeichnet sind.

Ich versichere, die Grundsätze der guten wissenschaftlichen Praxis beachtet, und nicht die Hilfe einer kommerziellen Promotionsvermittlung in Anspruch genommen zu haben.

Frankfurt am Main, 13.09.17
Fabian Frank