



Forschungszentrum Karlsruhe
in der Helmholtz-Gemeinschaft

Wissenschaftliche Berichte
FZKA 6989

**Streulichtexperimente an
asphärischen Aerosolpartikeln:
Depolarisation und
Vorwärtsstreuverhältnis von
Mineralstaub und Eiskristallen**

S. Büttner

Institut für Meteorologie und Klimaforschung

April 2004

Forschungszentrum Karlsruhe

in der Helmholtz-Gemeinschaft

Wissenschaftliche Berichte

FZKA 6989

**Streulichtexperimente an
asphärischen Aerosolpartikeln:
Depolarisation und Vorwärtsstreuverhältnis
von Mineralstaub und Eiskristallen***

Simone Büttner

Institut für Meteorologie und Klimaforschung

*Dissertation genehmigt von der Fakultät für Bauingenieur-, Geo- und
Umweltwissenschaften der Universität Fridericiana zu Karlsruhe

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

2004

Impressum der Print-Ausgabe:

**Als Manuskript gedruckt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor**

**Forschungszentrum Karlsruhe GmbH
Postfach 3640, 76021 Karlsruhe**

**Mitglied der Hermann von Helmholtz-Gemeinschaft
Deutscher Forschungszentren (HGF)**

ISSN 0947-8620

**Streulichtexperimente an
asphärischen Aerosolpartikeln:
Depolarisation und Vorwärtsstreuverhältnis
von Mineralstaub und Eiskristallen**

Zur Erlangung des akademischen Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften an der
Fakultät für Bauingenieur-, Geo- und Umweltwissenschaften der
Universität Karlsruhe
genehmigte

Dissertation

von

Simone Büttner

aus

Bochum

2004

Tag der mündlichen Prüfung: 04.02.2004

Referent: Prof. Dr. M. Meurer

Korreferent: Prof. Dr. U. Schurath

Streulichtexperimente an asphärischen Aerosolpartikeln: Depolarisation und Vorwärtsstreuverhältnis von Mineralstaub und Eiskristallen

Am Institut für Meteorologie und Klimaforschung des Forschungszentrums Karlsruhe wurden die Streulichteigenschaften von Mineralstaub und Eiskristallen in zwei Aerosolkammern (AIDA, ASA) untersucht. Dafür wurde ein linear polarisierter Laser der Wellenlänge 488 nm horizontal durch die jeweilige Kammer geleitet. Das vom Aerosol gestreute Licht wurde in Vorwärts- (4°) und Rückwärtsrichtung (176°) mit Photomultipliern detektiert, wobei in Rückwärtsrichtung die Detektion polarisationsaufgelöst durchgeführt wurde.

Die zu erwartenden Messwerte der Depolarisation und des Vorwärtsstreuverhältnisses wurden unter der Annahme von Sphäroiden verschiedener Formen und Größen mit Hilfe von T-Matrix-Rechnungen berechnet.

Verschiedene Mineralstaubproben mit einer typischen Größe von $0.5\ \mu\text{m}$ wurden bei Raumtemperatur auf ihre Streulichteigenschaften am ASA-Behälter untersucht. Aufgrund der drehbaren Eingangspolarisation des Laser konnten zusätzlich einige Elemente der Streumatrix bestimmt werden.

Eiskristalle zwischen $0.8\ \mu\text{m}$ und $70\ \mu\text{m}$ wurden in der AIDA-Kammer mittels adiabatischer Expansion durch heterogene Nukleation mit Mineralstaub als Ausgangsaerosol erzeugt. Größe und Form der Eispartikel wurden mit einem Cloud Particle Imager bestimmt. Es konnte sowohl eine Größen-, als auch eine Formabhängigkeit der Depolarisation nachgewiesen werden. Diese Messergebnisse wurden mit den Ergebnissen eines Modells mit geometrischer Optik verglichen.

Light scattering experiments with aspherical aerosol particles: depolarisation and forward scattering ratio of mineral dust and ice crystals

Scattering properties of mineral dust and ice crystals were investigated in two aerosol chambers (AIDA, ASA) at the Institut für Meteorologie und Klimaforschung at Forschungszentrum Karlsruhe. For this purpose, a linear polarised laser (wavelength 488 nm) was directed horizontally through the chamber. The light scattered by the aerosol was detected with photomultipliers in the forward (4°) and in the backward (176°) directions whereas the detection in the backward direction was realised polarisation resolved.

The expected values for the depolarisation and the forward scattering ratio were computed with the help of T-matrix calculations for spheroids with different sizes and aspect ratios.

The scattering properties of several samples of mineral dust (typical size: $0.5\ \mu\text{m}$) were investigated at room temperature in the ASA chamber. Because of the rotatable laser polarisation, some elements of the scattering matrix were determined, additionally.

Ice crystals with sizes between $0.8\ \mu\text{m}$ and $70\ \mu\text{m}$ were generated in the AIDA chamber by the adiabatic cooling technique with heterogeneous nucleation on mineral dust. Size and habit of the ice crystals were investigated with a Cloud Particle Imager. Both a size dependency and a habit dependency was demonstrated by the experiments. The results were compared with the predictions of a model based on geometric optics.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen der Lichtstreuung	4
2.1	Darstellung von polarisiertem Licht mit Stokes-Vektoren	4
2.2	Streumatrizen von optischen Elementen	6
2.3	Streumatrizen von Partikelensembles	8
3	Streulichtaufbauten an AIDA und ASA	11
3.1	Spezifikationen der Streulichtaufbauten	11
3.2	Justage der Streugeometrie	13
3.3	Justage der optischen Elemente bei der Lasereinkopplung	14
3.4	Bestimmung der Depolarisation	16
3.5	Bestimmung des Vorwärtsstreuverhältnisses	19
4	Ergebnisse von T-Matrix-Rechnungen	22
4.1	Prolate und oblate Sphäroide	23
4.1.1	Depolarisation	24
4.1.2	Vorwärtsstreuverhältnis	24
4.2	Partikel mit großen Achsenverhältnissen	25
4.3	Kugel-Dimere	27
5	Streulichtexperimente am ASA-Behälter	30
5.1	Referenzexperiment mit kugelförmigen Partikeln	30
5.1.1	Depolarisation beim Glaskugelexperiment	31
5.1.2	Abgleich der Photomultiplier in Rückwärtsrichtung	34
5.1.3	Kalibration des Vorwärtsstreuverhältnisses	35
5.2	Streulichtmessungen an Mineralstaub	36
5.2.1	Eigenschaften der untersuchten Mineralstäube	37
5.2.2	Ergebnisse der Streulichtmessungen	39
5.3	Vorschläge zur Verbesserung des Streulichtaufbaus	47

6	Eisnukleationsexperimente an der AIDA-Kammer	51
6.1	Kalibration der Streulichtapparatur	51
6.2	Instrumentierung während der Messkampagne	52
6.2.1	Cloud Particle Imager	52
6.2.2	Particle Counter Sizer	57
6.3	Charakterisierung und Verlauf der Eisexpansionsexperimente . . .	61
6.3.1	Experimentverlauf	61
6.3.2	Charakterisierung der durchgeführten Experimente	65
6.4	Streueigenschaften von Eiskristallen	65
6.4.1	Abhängigkeit der Depolarisation von der Eiskristallgröße .	67
6.4.2	Abhängigkeit der Depolarisation von der Eiskristallform .	70
6.5	Vergleich der Messergebnisse mit Modellrechnungen	71
6.5.1	T-Matrix-Rechnungen zur Depolarisation	71
6.5.2	Rechnungen mit geometrischer Optik zur Depolarisation .	73
6.6	Vergleich der Depolarisationsergebnisse mit Feldmessungen	78
6.7	Übertragung auf atmosphärische Bedingungen	80
7	Zusammenfassung	84
A	Müllermatrizen der verwendeten optischen Elemente	87
A.1	Lineare Polarisatoren	87
A.2	$\lambda/4$ -Plättchen	88
B	Geometrie des Streuvolumens	89
C	Bilder der vom CPI abgebildeten Eiskristalle	90
	Literaturverzeichnis	98
	Abbildungsverzeichnis	100
	Abkürzungsverzeichnis	101

Kapitel 1

Einleitung

Die Veränderung des globalen Strahlungshaushaltes durch anthropogene Einflüsse ist für die unterschiedlichen Einflussparameter verschieden gut charakterisiert. Während der Strahlungsantrieb durch gasförmige Emissionen (CO_2 , CH_4 , N_2O , halogenierte Kohlenwasserstoffe) mit zusammen etwa 2.5 W m^{-2} quantifizierbar ist ([IPC01]), sind die Wirkungsmechanismen für diejenigen Prozesse, an denen Partikel verschiedener Quellen beteiligt sind, oft nur unzureichend bekannt. Dazu gehören Sulfatpartikel, Ruß, Partikel aus Biomasseverbrennung und mineralische Aerosole. Auch die indirekten Effekte dieser Partikelemissionen, die auf die Wolkenbildung bzw. -zusammensetzung wirken, sind nur wenig untersucht.

Die generellen Prozesse des Strahlungstransportes in Zirren werden in [FL93] und [EC92] erläutert. Danach hängen die Strahlungseigenschaften sowohl von Eispartikelgröße als auch vom Eiswassergehalt ab. Optisch dicke Zirren bewirken generell einen kühlenden Effekt auf den Strahlungshaushalt, während für optisch dünnere Zirren eine erwärmende Wirkung festgestellt wurde ([JKT94]). Inwieweit anthropogene Emissionen indirekt zu einer Veränderung der Wolkenbildung und -eigenschaften und damit zu einer Beeinflussung des Strahlungshaushaltes führen, ist jedoch noch unklar ([IPC01]). Dagegen wird der Strahlungsantrieb, der durch die Bildung von Flugzeugkondensstreifen erzeugt wird, mit $0.01 \dots 0.03 \text{ W m}^{-2}$ angegeben ([MSD⁺99]).

Mineralische Aerosole in der Atmosphäre stammen bis zu 30 - 50 % aus anthropogenen Quellen, wie Deflation von Partikeln über vom Menschen veränderten Bodenoberflächen ([TLF96]). Die Größenordnung und das Vorzeichen dieses anthropogenen Anteils am globalen Strahlungshaushalt sind unsicher; die Angabe des globalen Mittelwertes des Strahlungsantriebs aus Modellrechnungen schwankt zwischen $-0.6 \dots +0.4 \text{ W m}^{-2}$ ([IPC01]). Für diese Berechnungen werden etwa gleich große Anteile im kurzwelligen und langwelligen Teil des Strah-

lungsspektrums kombiniert, wodurch die große Unsicherheit in der Angabe des Strahlungsantriebes begründet ist. Die Richtung des Effektes ist vom Verhältnis der Aerosolalbedo zur Oberflächenalbedo abhängig: Über Oberflächen niedriger Albedo, wie Ozeanen, wirken mineralische Partikel aufgrund der Erhöhung der Rückstreuung kühlend. Bei hellen Oberflächen, also z. B. über Schnee, Wolken oder Wüstenflächen, ist ein positiver Effekt auf den Strahlungshaushalt vorhanden, da hier der Mineralstaub den von der Oberfläche reflektierten Anteil der Strahlung aufgrund seines Absorptionsvermögens teilweise absorbiert. Diese Berechnungen nehmen jeweils bestimmte optische Eigenschaften des Mineralstaubes an, die aufgrund der Vielfalt der mineralogischen Zusammensetzungen für atmosphärische Partikel nicht sehr gut charakterisiert sind.

Die oben genannten Berechnungen gehen von einer sphärischen Form der Partikel aus, wogegen reale Mineralstaubpartikel eine asphärische Form aufweisen. Über die Auswirkungen dieser Annahme gibt es unterschiedliche Angaben: In [MLCT95] wird nur eine geringe Abweichung bei der Bestimmung von z. B. Asymmetrieparameter oder Albedo unter der Annahme sphärischer bzw. nicht-sphärischer Partikel beschrieben. Dagegen wird in [vHHP97] ein bis zu einem Faktor 2 größerer negativer Effekt auf den Strahlungshaushalt bei der Annahme asphärischer Partikel in Modellrechnungen beobachtet.

Die Untersuchung von Luftschichten ist mit Hilfe von Fernerkundungsmethoden – von Flugzeug, Boden oder Satellit – möglich. Eine dieser Methoden ist das LIDAR-Verfahren (**L**ight **D**etection and **R**anging), bei dem Laserlicht meist vertikal in die Atmosphäre ausgesendet wird. Das an atmosphärischen Bestandteilen wie Gasen und Partikeln gestreute Licht wird in der Rückstreurichtung detektiert. Aufgrund des Größeneffektes überwiegt bei dem Vorkommen von Aerosolen das Partikelsignal. Viele der atmosphärischen Partikelarten können mit diesem Verfahren detektiert werden, da sie aus wenig absorbierendem, dafür gut streuendem Material bestehen. Dazu gehören Wolkentröpfchen, Eiskristalle, andere feste Phasen wie z. B. Salpetersäurehydrat und Mineralstäube.

Wird die Streulichtdetektion polarisationsaufgelöst durchgeführt, ist zudem eine Forminformation zugänglich: Die Depolarisation als Maß für den Anteil des Lichtes, das durch die Streuung in eine andere Polarisationsrichtung überführt wird, ist für sphärische Partikel 0; bei Partikelformen, die von der Kugelform abweichen, nimmt die Depolarisation dagegen Werte größer 0 ein. Diese Forminformation kann z. B. bei Wolkenpartikeln für die Unterscheidung der Partikelphase (Eiskristalle bzw. Wolkentröpfchen) genutzt werden ([Sas91]). Ebenfalls mit polarisationsauflösendem LIDAR konnte die Typisierung der in polaren stratosphärischen Wolken vorkommenden Partikel vorgenommen werden ([BBI⁺90]).

Auch die Identifikation von mineralischen Partikeln in der Atmosphäre, wie sie bspw. bei Sandstürmen auftreten, kann aufgrund der asphärischen Form dieser Partikel mit LIDAR erfolgen ([MSU⁺01], [SSH⁺03], [IS03]).

Für die vorliegenden Arbeit wurde eine Streulichtapparatur an der AIDA-Kammer (**A**erosol **I**nteraction and **D**ynamics in the **A**tmosphere) des Forschungszentrums Karlsruhe genutzt, die ähnlich einem LIDAR an Partikeln rückgestreutes Laserlicht detektiert. Mit diesem Aufbau ist die Messung der Streueigenschaften von Eiskristallen, wie sie in der Kammer durch adiabatische Expansion erzeugt werden, möglich. Parallel dazu wurde eine prinzipiell baugleiche Apparatur an einer zweiten, kleineren Aerosolkammer (ASA) aufgebaut, mit der Messungen des Streuverhaltens von Mineralpartikeln durchgeführt wurden. Dieser Aufbau diente außerdem dem Test einiger Verbesserungen bzw. Erweiterungen.

An beiden Kammern sind mit unterschiedlichen Methoden Informationen über Partikelform und -größe verfügbar, zwei Parameter, die die gemessenen Streusignale maßgeblich beeinflussen. Mit der Durchführung dieser Experimente ist somit die Untersuchung systematischer Abhängigkeiten der Streueigenschaften von verschiedenen Parametern, die bei Feldmessungen nur schwer zugänglich sind, möglich.

Im Folgenden wird zunächst die Theorie der Lichtstreuung erläutert, bevor die verwendeten Aufbauten charakterisiert werden. Im Anschluss wird mit Hilfe von T-Matrix-Rechnungen für verschiedene asphärische Partikel das Verhalten der gemessenen Größen (Depolarisation, Vorwärtsstreuverhältnis) für die verwendete Streugeometrie aufgezeigt. Es folgen die Ergebnisse der Mineralstaubexperimente an der ASA-Kammer sowie der Eisnukleationsexperimente an der AIDA-Kammer, jeweils mit einer Beschreibung der durchgeführten Kalibrationsexperimente. Abschließend wird die Bedeutung der Ergebnisse für atmosphärische Messungen diskutiert.

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen der Lichtstreuung

Die Wellennatur des Lichtes lässt sich durch elektromagnetische Wellen beschreiben, wobei die Schwingungsebenen des elektrischen und magnetischen Vektors senkrecht zur Ausbreitungsrichtung stehen. Im Unterschied zu unpolarisiertem Licht besitzt polarisiertes Licht eine bevorzugte Ausrichtung der Feldvektoren.

Im Folgenden wird aufgezeigt, wie mit Hilfe der Stokes-Vektoren quasi-monochromatisches, polarisiertes Licht vollständig beschrieben werden kann. Im Anschluss daran wird diskutiert, wie sich die Polarisierungseigenschaften des Lichtes durch Interaktion mit optischen Elementen sowie mit streuenden Partikeln ändern.

2.1 Darstellung von polarisiertem Licht mit Stokes-Vektoren

Eine transversale elektromagnetische Welle am Ort z zum Zeitpunkt t kann allgemein dargestellt werden als:

$$E(z, t) = Ae^{i(kz - \omega t + \chi)}. \quad (2.1)$$

Für die beiden Komponenten E_φ und E_ϑ dieser Welle in der φ - und ϑ -Ebene gilt damit:

$$E_\varphi = E_{0\varphi} \cos(kz - \omega t), \quad (2.2)$$

$$E_\vartheta = E_{0\vartheta} \cos(kz - \omega t + \chi), \quad (2.3)$$

mit χ Phasenwinkel der beiden Wellen.

Der Wert des relativen Phasenwinkels χ dieser beiden Wellen bestimmt den Polarisationszustand des Lichtes. Im Allgemeinen ist die Projektion des resultierenden Vektors $E(z, t)$ auf die Normalenebene (φ, ϑ) zur Ausbreitungsrichtung eine Ellipse. Deren Form und räumliche Lage können durch Azimuth γ und Elliptizität ϵ beschrieben werden (Abb. 2.1). Dabei ist die Elliptizität das Verhältnis von kleiner zu großer Halbachse:

$$|\tan\epsilon| = \frac{b}{a}. \quad (2.4)$$

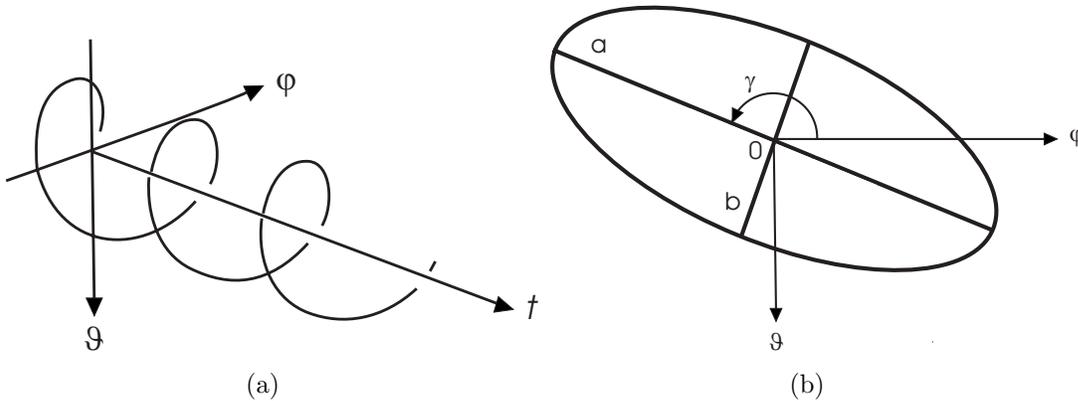


Abbildung 2.1: Elliptische Polarisation (a) Zeitverlauf der Spitze des Feldvektors an konstantem Ort z in der Ebene (φ, ϑ) (b) Darstellung als Projektion mit großer Halbachse a , kleiner Halbachse b und Azimuth γ (aus [MTL02]).

Über diese Ellipseigenschaften wird der sog. Stokes-Vektor \mathbf{I} definiert als:

$$\mathbf{I} = \begin{pmatrix} I \\ Q \\ U \\ V \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} c^2 \\ -c^2 \cos 2\epsilon \cos 2\gamma \\ c^2 \cos 2\epsilon \sin 2\gamma \\ -c^2 \sin 2\epsilon \end{pmatrix}, \quad (2.5)$$

$$(2.6)$$

$$\text{mit } c^2 = a^2 + b^2.$$

Diese elliptische Polarisierung hat zwei Spezialfälle: nimmt der relative Phasenwinkel ein Vielfaches von π ein ($-\pi, 0, \pi, 2\pi, \dots$), schwingt der resultierende Vektor in einer Ebene. Dadurch ist linear polarisiertes Licht definiert, und die kleine Halbachse der Projektionsellipse hat die Länge 0.

Haben dagegen die beiden Einzelwellen $E_{0\varphi}$ und $E_{0\theta}$ die gleiche Amplitude und ist zudem die Bedingung

$$\epsilon = \frac{\pi}{2} + m\pi \quad \text{mit } m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots \quad (2.7)$$

erfüllt, hat die Projektionsellipse zwei gleich lange Halbachsen. Dabei handelt es sich um zirkuläre Polarisierung, wobei zwischen links- und rechtszirkularem Licht unterschieden wird. Abb. 2.2 zeigt einige mögliche Polarisationsrichtungen mit den zugehörigen Stokes-Parametern.

Mit Hilfe der Stokes-Parameter kann der Grad der Polarisierung berechnet werden als:

$$P = \frac{\sqrt{Q^2 + U^2 + V^2}}{I}. \quad (2.8)$$

Analog sind der lineare (P_L) und zirkuläre (P_C) Polarisationsgrad definiert als:

$$P_L = \frac{\sqrt{Q^2 + U^2}}{I}, \quad (2.9)$$

$$P_C = \frac{V}{I}. \quad (2.10)$$

Diese Schreibweise wird zur Darstellung der Polarisationsänderungen des Lichtes durch Interaktion mit optischen Elementen oder Partikeln verwendet.

Unter Verwendung der Stokes-Vektoren können Polarisationsänderungen des Lichtes durch Multiplikation mit geeigneten Matrizen berechnet werden. Im Folgenden wird dieses Verfahren anhand der Interaktion mit optischen Elementen erläutert, bevor die Eigenschaften von Streumatrizen aufgezeigt werden.

2.2 Streumatrizen von optischen Elementen

Die Änderung der Polarisationsrichtung und Intensität von Licht durch die Wechselwirkung z. B. mit optischen Elementen oder Partikeln kann mathematisch durch die Multiplikation mit einer sog. Müller-Matrix dargestellt werden. Auch

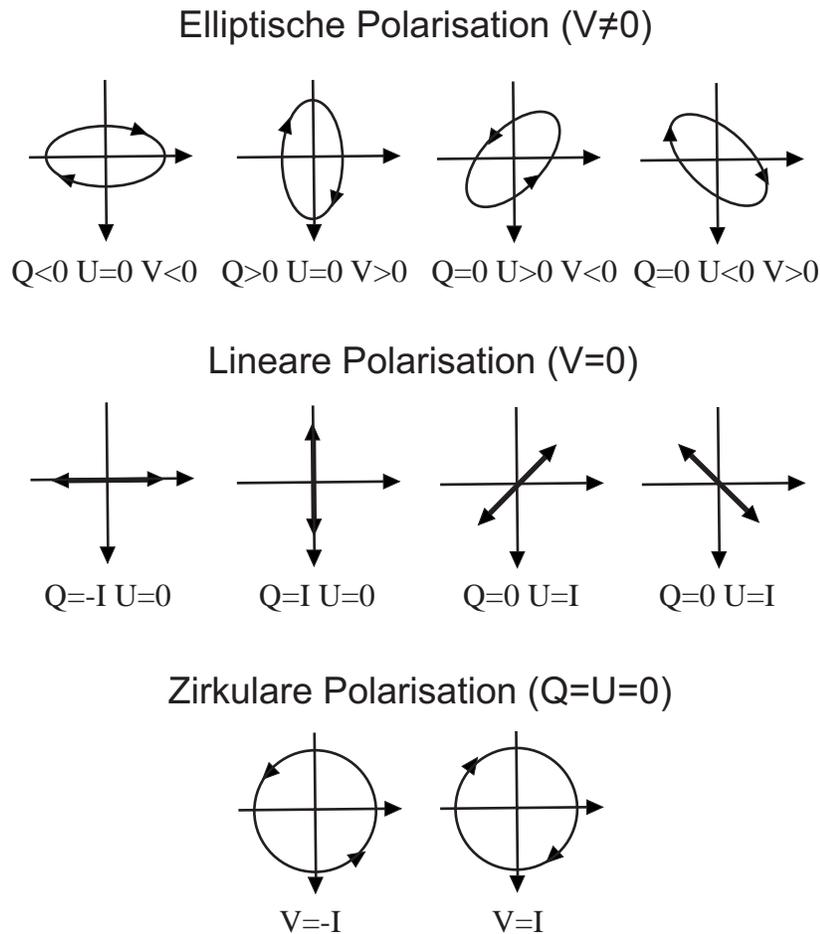


Abbildung 2.2: Elliptische, lineare und zirkulare Polarisation mit den zugehörigen Stokes-Parametern (aus [MTL02]).

die Wirkung von mehreren, hintereinander angeordneten optischen Elementen kann so auf einfache Weise durch mehrfache Multiplikation veranschaulicht werden.

Als Beispiel soll hier die Umwandlung von vertikal in horizontal polarisiertes Laserlicht bei gleichzeitiger Reduktion der Lichtintensität auf die Hälfte des Ausgangswertes dargestellt werden. Diese Umwandlung kann durch Kombination eines $\lambda/4$ -Plättchens in 45° -Stellung und eines linearen Polarisators in 0° -Stellung¹ erreicht werden: Das Verzögerungsplättchen macht dabei aus einfallendem linear polarisiertem links-zirkular polarisiertes Licht. Der nachfolgende Dünnschichtpolarisator wandelt dieses unter Halbierung der Lichtintensität in linear polarisiertes

¹Die Winkelangaben beziehen sich auf ein rechtshändiges Koordinatensystem mit Lichtausbreitung in z -Richtung.

Licht um, wobei die Polarisationsrichtung mit dem Winkel der Polarisatorverkipfung übereinstimmt, hier also 0° beträgt.

In der Schreibweise mit Stokes-Vektoren und Müllermatrizen wird dies ausgedrückt als:

$$\begin{array}{cc} \text{Polarisator} & \lambda/4\text{-Plättchen} \\ \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} & \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}. \end{array} \quad (2.11)$$

Diese Polarisationsdrehung wird bei den in der vorliegenden Arbeit beschriebenen Experimenten am ASA-Behälter durchgeführt (vgl. Kap. 3.3).

Die Matrizen von verschiedenen optischen Elementen, wie Polarisatoren und Verzögerungsplatten, sind unter der Annahme idealer optischer Eigenschaften in [Shu62] tabelliert; Anhang A fasst die in der vorliegenden Arbeit verwendeten zusammen.

2.3 Streumatrizen von Partikelensembles

Analog zur Matrizenschreibweise von optischen Elementen kann auch die Interaktion von Licht mit Partikeln durch Multiplikation eines Stokes-Vektors mit einer geeigneten Matrix dargestellt werden. Bei der Betrachtung spezieller Streuwinkel, Partikelformen oder bei Erfüllen von Symmetriebedingungen vereinfacht sich die 16-elementige Matrix (vgl. [MTL02]).

Allgemein ist die Streustrahlung für einen Winkel θ mit der Streumatrix wie folgt verknüpft ([MT98]):

$$I_{streu}(\theta) = \frac{c_{sca} n_0 dv}{4\pi R^2} F(\theta) I_{inc}, \quad (2.12)$$

mit	$I_{streu}(\theta)$	Stokes-Vektor des Streulichtes,
	c_{sca}	Streuquerschnitt [cm^2],
	n_0	Partikelzahl [cm^{-3}],
	dv	Streuvolumen [cm^3],
	R	Entfernung des Detektors [cm],

$F(\theta)$ Streumatrix,
 I_{inc} Stokes-Vektor des einfallenden Lichtes.

Die Streumatrix kann für die Lichtstreuung in der Streuebene, also der Ebene, die von einfallender Strahlung und Beobachtungsrichtung aufgespannt wird, unter der Annahme von Einfachstreuung angegeben werden als:

$$\begin{pmatrix} F_{11} & F_{12} & F_{13} & F_{14} \\ F_{12} & F_{22} & F_{23} & F_{24} \\ -F_{13} & -F_{23} & F_{33} & F_{34} \\ F_{14} & F_{24} & -F_{34} & F_{44} \end{pmatrix}. \quad (2.13)$$

Ist für jedes Partikel eines Partikelensembles in gleicher Zahl ein Spiegelbild vorhanden, vereinfacht sich die Streumatrix zu:

$$\begin{pmatrix} F_{11} & F_{12} & 0 & 0 \\ F_{12} & F_{22} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & F_{33} & F_{34} \\ 0 & 0 & -F_{34} & F_{44} \end{pmatrix}. \quad (2.14)$$

Dieser Ausdruck mit nur sechs unabhängigen Elementen gilt insbesondere für zufällig orientierte Partikel, falls sich jeweils paarweise Spiegelbilder von Partikeln finden.

In der direkten Vorwärts- und Rückwärtsrichtung der Streuebene sind nur die diagonalen Elemente von 0 verschieden; damit gibt es nur drei bzw. zwei unabhängige Matrixelemente:

$$\text{Rückwärtsrichtung: } \begin{pmatrix} F_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & F_{22} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & F_{22} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & F_{44} \end{pmatrix}, \quad (2.15)$$

$$\text{Vorwärtsrichtung: } \begin{pmatrix} F_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & F_{22} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -F_{22} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & F_{11} - 2F_{22} \end{pmatrix}. \quad (2.16)$$

Bei Kugeln vereinfacht sich die Streumatrix unabhängig vom betrachteten Streuwinkel zu vier unabhängigen Elementen:

$$\begin{pmatrix} F_{11} & F_{12} & 0 & 0 \\ F_{12} & F_{11} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & F_{33} & F_{34} \\ 0 & 0 & -F_{34} & F_{33} \end{pmatrix}. \quad (2.17)$$

Insbesondere sind hier jeweils zwei Matrixelemente auf der Diagonalen identisch, worauf in Kap. 3.4 im Zusammenhang mit der Berechnung der Depolarisation nochmals eingegangen wird.

Diese Matrizen gelten jeweils für einen Winkel θ , sodass für die vollständige Angabe der Streumatrix eines Partikelensembles in der Streuebene alle Matrixelemente mit ihrer Winkelabhängigkeit angegeben werden müssen.

In der vorliegenden Arbeit werden mit Hilfe zweier Aufbauten die Eigenschaften der Matrixelemente F_{11} , F_{12} und F_{22} sowie die daraus berechnete Größe der Depolarisation untersucht.

Kapitel 3

Streulichtaufbauten an AIDA und ASA

Zwei voneinander unabhängig betriebene Aufbauten gleicher Funktionsweise, die sich jeweils an einer Versuchskammer (AIDA bzw. ASA) befinden, werden für die Messung der Streulichteigenschaften von asphärischen Partikeln verwendet. Die Apparatur an der AIDA-Kammer ist für die Detektion des Eisbildungszeitpunktes bei der Durchführung von Eisnukleationsexperimenten aufgebaut worden. Mit ihrer Hilfe können die Streueigenschaften von Eiskristallen, die sich bei der Durchführung von Expansionsexperimenten bilden, charakterisiert werden. Der Aufbau an der ASA-Kammer dient der Untersuchung von Aerosolen, deren Streueigenschaften auch bei Raumtemperatur studiert werden können, hier der Untersuchung von Mineralstäuben.

3.1 Spezifikationen der Streulichtaufbauten

Ein zu 99 % polarisierter Argon-Ionen-Laser der Wellenlänge 488 nm (Melles Griot, OMI-543-150BS-R) durchläuft die Aerosolkammer horizontal und fällt gegenüber der Einkoppelstelle in eine Strahlfalle. Jeweils in einem kleinen Winkel in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung befindet sich eine Detektionseinheit zur Streulichtmessung mit Hilfe von Photomultipliern (Electron Tubes, QL 9924B). Diese Einheit besitzt eine 2:1 Fernrohroptik, die Licht eines parallelen Strahlenbündels auf die PMTs fokussiert. In Rückwärtsrichtung ist in den Strahlengang zusätzlich ein Glan-Taylor-Prisma eingebracht, das mit Hilfe von zwei PMTs eine polarisationsaufgelöste Messung ermöglicht. Der Überlappbereich zwischen Detektionsstrahl und Laserstrahl definiert das Messvolumen; befinden sich in diesem Bereich Partikel, wird ihr Streulicht detektiert.

Abb. 3.1 zeigt schematisch den Aufbau am Beispiel des ASA-Experimentes; die Unterschiede zwischen den beiden Aufbauten fasst Tab. 3.1 zusammen. Neben den Unterschieden in der Geometrie des Aufbaus, die auf die verschiedenen Kammerdurchmesser zurückzuführen sind, wurde beim ASA-Aufbau eine andere Lasereinkopplung gewählt. Der Laserstrahl wird hier nicht über eine Faser geleitet, sondern direkt in die Kammer eingespiegelt. Der Vorteil besteht in der geringeren resultierenden Strahldivergenz (vgl. Tab. 3.1), wodurch Reflexe an der hinteren Kammerwand verringert werden.

Zusätzlich ist beim ASA-Aufbau ein $\lambda/4$ -Plättchen im 45° -Winkel und ein drehbarer Dünnschichtpolarisator in den Strahlengang eingebaut, womit eine manuelle Drehung der Laserpolarisation um 90° möglich ist. Anschließend wird der Laserstrahl bei beiden Aufbauten zur Verringerung von Reflektionsverlusten bei der Einkopplung über ein Brewsterfenster in die Kammer geleitet.

In Anhang B sind die Unterschiede in der Geometrie der Streuvolumina der beiden Versuchsaufbauten zusammengestellt.

Tabelle 3.1: Spezifikationen der Streulichtaufbauten an AIDA und ASA.

	AIDA	ASA
gemessene Laserleistung	25 mW	25 mW
Lasereinkopplung	polarisationserhaltende Faser	Einspiegelung
optische Elementte (Einkopplung)	Brewsterfenster	$\lambda/4$ -Plättchen Dünnschichtpolarisator Brewsterfenster
Laserpolarisation	99 % vertikal	99 % vertikal od. horizontal (drehbar)
Beobachtungswinkel	$3.9^\circ/176.1^\circ$	$4.4^\circ/175.6^\circ$
Streuvolumen	7.0 cm^3	2.6 cm^3
Streuzentren	Eiskristalle	Mineralstaub

Wegen der deutlich unterschiedlichen Streuintensitäten bei verschiedenen Winkeln sind einige der Photomultiplier mit Neutralglasfiltern versehen. Tab. 3.2 fasst die verwendeten Abschwächerfilter an den beiden Aufbauten zusammen.

Der Hauptunterschied der beiden Versuchskammern, die beide eine zylindrische Grundform haben, besteht in der verschiedenen Dimensionierung: während die ASA-Kammer bei einem Durchmesser von 1.9 m ein Kammervolumen von etwa 4 m^3 aufweist, hat die AIDA 4 m Durchmesser und 84 m^3 Volumen. Daneben werden verschiedene Experimenttemperaturen benötigt: im Rahmen der hier

Tabelle 3.2: Transmission der verwendeten Neutralglasfilter vor den Photomultipliern an AIDA und ASA.

Photomultiplier	AIDA	ASA
4°	1 %	0.5 %
176° CH	25 %	25 %
176° CH _⊥	-	-

vorgestellten Eiskondensationsexperimente sind an der AIDA Temperaturen zwischen 185 K und 260 K eingestellt worden, während für die Untersuchung von Mineralstäuben im ASA-Behälter Experimente bei Raumtemperatur durchgeführt wurden.¹

3.2 Justage der Streugeometrie

Die Justage der Streulichtapparatur wird hier anhand des ASA-Aufbaus beschrieben. Der Aufbau ist so gestaltet, dass alle Elemente, die die Lage der Streuebene sowie den Beobachtungswinkel definieren, justierbar angebracht sind.

So sind die beiden 140er-Blockflansche, auf dem in Rückwärtsrichtung die Lasereinkopplung und die polarisationsauflösende Detektionseinheit, in Vorwärtsrichtung Detektionseinheit und Strahlfalle montiert sind, jeweils über einen Faltenbalg gegeneinander verstellbar. Die beiden Detektionseinheiten sind zusätzlich über 40er-Faltenbälge justierbar, die Position des Laserstrahls ist über die Spiegeljustage bestimmt.

Zunächst erfolgt der Abgleich von Beobachtungsstrahl und Laserstrahl zur Überschneidung im Streuvolumen. Dazu wird anstelle der Photomultiplier eine rote Laserleuchtdiode hinter die Detektionsoptik angebracht, die den Beobachtungsstrahl sichtbar macht. In die Mitte der Kammer wird in die Streuebene seitlich eine weiße Leuchtdiode durch ein Rohr der Länge des Kammerradiuses eingebracht, auf die (blauer) Laserstrahl und (rote) Laserdiode ausgerichtet werden.

Anschließend wird auch der Photomultiplier in Vorwärtsrichtung entfernt und der Flansch so justiert, dass der Leuchtdiodenstrahl durch die Beobachtungsoptik

¹Auch die ASA-Kammer kann im Temperaturbereich 260 - 320 K thermostatisiert werden, was für die Experimente der vorliegenden Arbeit jedoch nicht genutzt wurde.

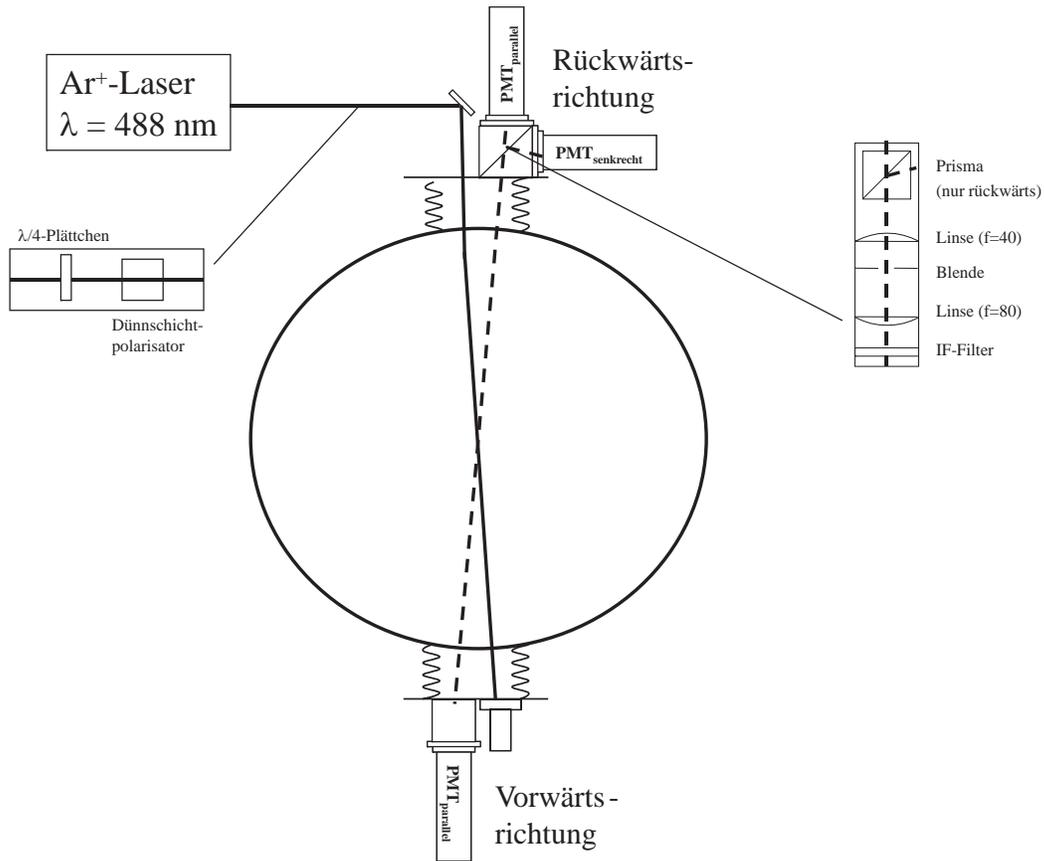


Abbildung 3.1: Schematischer Aufbau des Streulichtaufbaus, hier dargestellt für den ASA-Behälter.

tik abgebildet wird. Die abschließende Überprüfung der Einstellungen geschieht durch den Umbau der Leuchtdiode in Vorwärtsrichtung und Abbildung ihres Strahls mit der Optik in Rückwärtsrichtung.

3.3 Justage der optischen Elemente bei der Lasereinkopplung

Die Einkopplung des Laserstrahls über ein $\lambda/4$ -Plättchen und einen Dünnschichtpolarisator zur Erzeugung von vertikal oder horizontal polarisiertem Licht ist bereits in Kap. 2.2 unter der Annahme idealer optischer Elemente beschrieben worden. Unter Berücksichtigung der Fertigungstoleranzen ergeben sich Abweichungen von den theoretisch berechneten Polarisations-eigenschaften. Wie aus Tab. 3.3 ersichtlich, sind die Abweichungen allerdings so gering, dass signifikante Polarisationsänderungen nicht zu erwarten sind.

Tabelle 3.3: Eigenschaften der verwendeten optischen Elemente.

optisches Element	Eigenschaft	Genauigkeit	resultierender Polarisationsgrad
Laser	Löschungsverhältnis	1:250	99.6 % linear
$\lambda/4$ -Plättchen	Verzögerungstoleranz	$\lambda/300$	$\epsilon = 0.999$, $\gamma = 90.6$
	Drehgenauigkeit	$90^\circ \pm 0.38^\circ$	91.0 % zirkular
Dünnschichtpolarisator	Löschungsverhältnis	1:5000	99.98 % linear

Eine weitere Fehlerquelle stellt die Genauigkeit der Winkeleinstellung der optischen Elemente relativ zur geforderten Lage von 45° für das $\lambda/4$ -Plättchen und 0° bzw. 90° für den Dünnschichtpolarisator dar. Für ihre Einstellung wird die Kammer mit rundem Aerosol, hier Latex-Partikeln, gefüllt, da sich, wie in Kap. 3.4 gezeigt wird, runde Partikel durch eine Polarisationserhaltung auszeichnen.

Zunächst werden $\lambda/4$ -Plättchen und Dünnschichtpolarisator nach Augenmaß im Strahlengang des Lasers ausgerichtet. Die Positionen beider optischer Elemente werden anschließend so optimiert, dass bei einer Drehung des Dünnschichtpolarisators um 90° eine maximale Differenz in jedem der beiden Streukanäle der Rückwärtsrichtung erreicht wird.

Somit können bei der Justage folgende Ungenauigkeiten eintreten: das $\lambda/4$ -Plättchen befindet sich in einem vom 45° abweichenden Winkel, der Dünnschichtpolarisator ist in einem von 0° verschiedenen Winkel dazu eingestellt, und das Prisma der Detektionsoptik ist nicht genau zur Streuebene ausgerichtet. Zur Quantifizierung dieser systematischen Fehler werden die im Anhang A aufgeführten allgemeinen Matrizen für optische Elemente verwendet, wobei eine Partikelmischung aus Kugeln und Dimeren von Kugeln, wie im Referenzexperiment für den ASA-Aufbau vorhanden (vgl. Kap. 5.1), als Berechnungsgrundlage dient.

Der Anteil an Dimeren in diesem Experiment bewirkt, dass die Depolarisation bei einer Idealeinstellung der optischen Elemente einen von Null verschiedenen Wert annimmt.

Tab. 3.4 fasst die Ergebnisse dieser Betrachtung für verschiedene angenommene Verkippungswinkel der einzelnen optischen Elemente gegen ihre Idealposition zusammen. Depolarisationsänderungen, wie in Kap. 3.4 definiert, von deutlich über einem Prozentpunkt sind danach nur zu erwarten, wenn mindestens zwei der drei Elemente um 5° gegen ihre Idealposition verkippt sind.

Tabelle 3.4: Depolarisation im senkrechten und parallelen Kanal unter Annahme verschiedener Verkippungswinkel der optischen Elemente (Partikelgemisch aus Kugeln und Kugel-Dimeren wie im Referenzexperiment, vgl. Tab. 5.1; Angabe in Prozentpunkten relativ zur Idealposition $45^\circ/0^\circ/0^\circ$).

$\lambda/4$ - Plättchen	Dünnschicht- polarisator	Prisma	$\delta_{CH_{\parallel}}$	$\delta_{CH_{\perp}}$
45°	0°	0°	$2.4 \hat{=} 0$	$1.2 \hat{=} 0$
		5°	+0.7	± 0
	5°	0°	+0.7	+0.7
		5°	+2.8	+0.8
40°	0°	0°	+0.1	-0.1
		5°	+0.9	-0.1
	5°	0°	+1.1	+0.5
		5°	+3.4	+0.5

3.4 Bestimmung der Depolarisation

Die Depolarisation beschreibt die Eigenschaft eines Partikels oder Partikelensembles, polarisiertes Licht durch Streuung teilweise in Licht einer anderen Polarisation umzuwandeln. Die Berechnung der Depolarisation kann aus den Messwerten des senkrechten und parallelen Kanals des Streulichtaufbaus sowie – bei bekannter Streumatrix – aus den Matrixelementen erfolgen.

Experimentelle Bestimmung der Depolarisation

Wie in Kap. 3 beschrieben, wird die Streulichtapparatur an AIDA mit einer vertikalen Laserpolarisation betrieben, während am ASA-Aufbau eine Änderung der Polarisationsrichtung zwischen vertikaler und horizontaler Laserpolarisation möglich ist. Damit die Depolarisation δ unabhängig von der Laserpolarisation relativ zur Streuebene normiert ist, wird sie definiert als:

$$\delta_V = \frac{CH_{\perp}}{CH_{\perp} + CH_{\parallel}}. \quad (3.1)$$

Dabei sind CH_{\perp} und CH_{\parallel} die von den Photomultipliern gemessenen Intensitäten senkrecht und parallel zur Laserpolarisation. CH_{\perp} entspricht also bei parallel zur Streuebene polarisiertem Laserlicht dem vertikal montierten Photomul-

tiplier, bei senkrecht polarisiertem Laserlicht dagegen dem horizontal angebrachten PMT.

Bei Messungen mit polarisationsauflösenden LIDAR-Systemen, die für Feldmessungen eingesetzt werden und mit einem vertikal orientierten, gepulsten Laser und einem Teleskopspiegel Streulicht in der direkten Rückwärtsrichtung detektieren, ist folgende Depolarisationsdefinition gebräuchlich:

$$\delta_{LIDAR} = \frac{CH_{\perp}}{CH_{\parallel}}. \quad (3.2)$$

Die beiden Depolarisationsdefinitionen können wie folgt umgerechnet werden:

$$\delta_{LIDAR} = \frac{\delta_V}{1 - \delta_V} \quad (3.3)$$

Nach [CDDA⁺99] wird das Verhältnis δ_V Volumendepolarisation, bei alleiniger Betrachtung der Aerosolkomponente dagegen Depolarisationsverhältnis genannt. Für die Auswertungen der Streulichtmessungen der vorliegenden Arbeit wird die Definition δ_V nach Gl. 3.1 verwendet, da dieses Verhältnis auch bei einer Drehung der Laserpolarisation auf den Bereich $0 \leq \delta \leq 0.5$ normiert ist, und im Folgenden vereinfacht Depolarisation δ genannt.

Bei den Experimenten an der ASA-Kammer werden die Streueigenschaften jeden Aerosols bei senkrechter und paralleler Laserpolarisation gemessen. Dadurch kann die Depolarisation für CH_{\parallel} und CH_{\perp} als Verhältnis der Streuintensität bei den beiden Laserpolarisationen angegeben werden:

$$\delta_{CH_{\perp}} = \frac{I_{LASER \parallel}}{I_{LASER \parallel} + I_{LASER \perp}}, \quad (3.4)$$

$$\delta_{CH_{\parallel}} = \frac{I_{LASER \perp}}{I_{LASER \perp} + I_{LASER \parallel}}, \quad (3.5)$$

mit $I_{LASER \perp}$: Streuintensität bei vertikaler Laserpolarisation,
 $I_{LASER \parallel}$: Streuintensität bei horizontaler Laserpolarisation.

Diese Art der Messung hat zwei Vorteile: zum einen kann die Depolarisation ohne einen Abgleich der Photomultiplier in Rückwärtsrichtung angegeben werden, zum anderen stellt die Angabe beider Depolarisationen eine zusätzliche Information dar, die zur Berechnung von Matrixelementen (vgl. 3.4) genutzt werden kann.

Entsprechend zu Gl. 3.1 wird die Depolarisation an der AIDA-Kammer berechnet als:

$$\delta_{\text{AIDA}} = \frac{CH_{\parallel}}{CH_{\parallel} + CH_{\perp}}. \quad (3.6)$$

Die Depolarisationseigenschaften verschiedener Partikelformen werden in Kap. 4 nach der Herleitung der Depolarisation aus den Matrixelementen erläutert.

Berechnung der Depolarisation aus den Matrixelementen

Nach dem in Kap. 2.3 beschriebenen Verfahren werden die Streuintensitäten im parallelen und senkrechten Kanal bei bekannter Laserpolarisation berechnet. Dazu kann das Prisma als Dünnschichtpolarisator im 0°- bzw. 90°-Winkel betrachtet werden; die Streuintensität ist dann proportional zum I -Anteil des resultierenden Stokes-Vektors. Wenn gleichzeitig zufällige Partikelorientierung vorausgesetzt werden kann, gilt die unter Gl. 2.14 angegebene Matrix mit der Beziehung $F_{12} = F_{21}$.

Tabelle 3.5: Berechnung der Streuintensitäten im parallelen und senkrechten Kanal für horizontale und vertikale Laserpolarisation aus den Matrixelementen, jeweils für ein Partikelensemble mit zufälliger Partikelorientierung.

	Laser horizontal polarisiert	Laser vertikal polarisiert
176° CH _∥	$\frac{1}{4}(F_{11} + 2F_{12} + F_{22})$	$\frac{1}{4}(F_{11} - F_{22})$
176° CH _⊥	$\frac{1}{4}(F_{11} - F_{22})$	$\frac{1}{4}(F_{11} - 2F_{12} + F_{22})$
4° CH _∥ =CH _⊥	$\frac{1}{2}(F_{11} + F_{12})$	$\frac{1}{2}(F_{11} - F_{12})$

Die so berechneten Streuintensitäten sind in Tab. 3.5 für den parallelen und senkrechten Streukanal zusammengestellt, vgl. [BH98]. Daraus ergeben sich folgende Depolarisationsberechnungen für die Rückwärtsstreuung beim AIDA- und ASA-Aufbau:

$$\delta_{CH_{\parallel}} = \frac{1}{2} \frac{F_{11} - F_{22}}{F_{11} + F_{12}}, \quad (3.7)$$

$$\delta_{CH_{\perp}} = \frac{1}{2} \frac{F_{11} - F_{22}}{F_{11} - F_{12}}, \quad (3.8)$$

$$\delta_{AIDA} = \frac{1}{2} \frac{F_{11} - F_{22}}{F_{11} - F_{12}}. \quad (3.9)$$

Damit ist die Depolarisationsdefinition für den AIDA-Aufbau identisch mit derjenigen des ASA-Aufbaus im senkrechten Kanal unter Drehung der Laserpolarisation.

Wie in Gl. 2.17 dargestellt, weist die Streumatrix von Kugeln die Eigenschaft auf, dass $F_{11} = F_{22}$ ist. Somit ist aufgrund der gewählten Depolarisationsdefinitionen:

$$\begin{aligned} \delta &= 0 && \text{für Kugeln und} \\ 0 < \delta &\leq 0.5 && \text{für asphärische Partikel.} \end{aligned}$$

Außerdem ist die Depolarisation aufgrund der gewählten Definitionen stets unabhängig von der Partikelkonzentration.

Berechnung von Matrixelementen aus den Depolarisationsmessungen

Aufgrund der Depolarisationsmessung im parallelen und senkrechten Kanal bei den ASA-Experimenten ist eine Berechnung der Matrixelemente aus den Depolarisationsmessungen möglich. Aus der Kombination von Gl. 3.7 und Gl. 3.8 ergibt sich folgender Zusammenhang der Matrixelemente mit den gemessenen Depolarisationen:

$$F_{22} = \frac{\delta_{CH_{\perp}} + \delta_{CH_{\parallel}} - 4\delta_{CH_{\perp}}\delta_{CH_{\parallel}}}{\delta_{CH_{\perp}} + \delta_{CH_{\parallel}}} F_{11}, \quad (3.10)$$

$$F_{12} = -\frac{1}{2\delta_{CH_{\perp}}}(F_{11} - F_{22} - 2\delta_{CH_{\perp}}F_{11}). \quad (3.11)$$

3.5 Bestimmung des Vorwärtsstreuverhältnisses

Experimentelle Bestimmung des Vorwärtsstreuverhältnisses

Neben der Depolarisation, die experimentell aus der Auswertung der Rückwärtsrichtung bestimmt wird, kann eine zweite, ebenfalls konzentrationsunabhängige Größe mit Hilfe der Streulichtaufbauten bestimmt werden. Das Vorwärts-

Rückwärtsstreuverhältnis V/R , im Folgenden vereinfacht Vorwärtsstreuverhältnis² genannt, ist definiert als:

$$V/R = \frac{I_{4^\circ}}{I_{176^\circ}} \quad (3.12)$$

mit I_{4° : Streuintensität in Vorwärtsrichtung,
 I_{176° : Streuintensität in Rückwärtsrichtung.

Diese Größe charakterisiert den Faktor, um den die Vorwärtsstreuung die Streuung in Rückwärtsrichtung übersteigt. Bei sehr kleinen Partikeln, im Rayleigh-Bereich, ist dieses Verhältnis 1, bei großen Partikeln nimmt es jedoch wegen des Überwiegens der Vorwärtsstreuung große Werte an. Wegen des Ansteigens der Streuung in der Nähe der direkten Vorwärtsrichtung ist der Wert des Vorwärtsstreuverhältnisses stark von dem gewählten Winkelpaar abhängig.

Berechnung des Vorwärtsstreuverhältnisses aus den Matrixelementen

Mit Hilfe der Streuintensitäten der beiden Kanäle der Rückwärtsrichtung sowie in Vorwärtsrichtung (vgl. Tab. 3.5) kann das Vorwärtsstreuverhältnis aus den Matrixelementen berechnet werden:³

$$V/R_{LASER_{\parallel}} = \frac{F_{11}(4^\circ) + F_{12}(4^\circ)}{F_{11}(176^\circ) + F_{12}(176^\circ)}, \quad (3.13)$$

$$V/R_{LASER_{\perp}} = \frac{F_{11}(4^\circ) - F_{12}(4^\circ)}{F_{11}(176^\circ) - F_{12}(176^\circ)}, \quad (3.14)$$

$$V/R_{AIDA} = \frac{F_{11}(4^\circ) - F_{12}(4^\circ)}{F_{11}(176^\circ) - F_{12}(176^\circ)}. \quad (3.15)$$

Wenn der Wert des Matrixelementes F_{12} von 0 verschieden ist, wie es bei asphärischen Partikeln zu erwarten ist, wird bei Drehung der Laserpolarisation am ASA-Aufbau ein anderes Vorwärtsstreuverhältnis gemessen.

²Ein ähnliches Maß ist die Steilheit ("steepness"), bei der das Verhältnis des Maximal- und Minimalwertes der Phasenfunktion F_{11} gebildet wird, vgl. z. B. [VMR⁺01], Kap. 5.2.2.

³Zur Unterscheidung der beiden Richtungen sind die Matrixelemente mit dem zugehörigen Winkel indiziert.

Berechnung von Matrixelementen aus der Messung des Vorwärtsstreuverhältnisses

Vergleichbar zu den Depolarisationsmessungen und den daraus berechneten Verhältnissen F_{12}/F_{11} und F_{22}/F_{11} der Rückwärtsrichtung kann nach der Messung des Vorwärtsstreuverhältnisses ein weiteres Matrixelement berechnet werden. Aus der Drehung der Laserpolarisation ergibt sich aus der Kombination der Gl. 3.13 und Gl. 3.14 für den ASA-Aufbau:

$$F_{11}(4^\circ) = \frac{1}{2} \left(V/R_{\parallel} F_{11}(176^\circ) \left(1 + \frac{F_{12}(176^\circ)}{F_{11}(176^\circ)} \right) + V/R_{\perp} F_{11}(176^\circ) \left(1 - \frac{F_{12}(176^\circ)}{F_{11}(176^\circ)} \right) \right) \quad (3.16)$$

$$F_{12}(4^\circ) = V/R_{\parallel} F_{11}(176^\circ) + V/R_{\parallel} F_{12}(176^\circ) - F_{11}(4^\circ) \quad (3.17)$$

Damit kann, unter Berücksichtigung der relativen Empfindlichkeiten der Photomultiplier (Kap. 5.1.2), auch das Verhältnis F_{12}/F_{11} für die Vorwärtsrichtung angegeben werden.

Kapitel 4

Ergebnisse von T-Matrix-Rechnungen

Die T-Matrix-Methode von Mishchenko & Travis stellt eine Möglichkeit dar, Streueigenschaften von nicht-sphärischen Partikeln im Übergangsbereich zwischen Rayleigh-Streuung und geometrischer Optik zu berechnen. Dafür werden die Maxwell-Gleichungen für Partikel zufälliger Orientierung numerisch gelöst, wobei je nach Asphärizitätsgrad der Partikel Berechnungen bis zu einem Größenparameter von etwa 50 möglich sind. In [MTM96b] werden die Grundlagen der T-Matrix-Methode erläutert, während [MT98] eine Anleitung zur Programmhandhabung sowie Beispiele zu Rechenzeiten verschiedener Programmversionen bei unterschiedlichen Partikelparametern beinhaltet.

Ergebnisse von T-Matrix-Rechnungen sind für Sphäroide [Mis91], [MT98], Zylinder [MTM96a], Chebyshev-Partikel [Mis91] und Kugeldimere [MM96] vorhanden. In den angegebenen Literaturstellen werden jeweils vollständige Streumatrizen, also alle sechs unabhängigen Matrixelemente mit ihrer Winkelabhängigkeit, diskutiert.

Das Modell wird in der vorliegenden Arbeit genutzt, um die prinzipiellen Zusammenhänge zwischen Partikelform, -größe und den damit verbundenen Streueigenschaften, insbesondere der Depolarisation und des Vorwärtsstreuverhältnisses, aufzuzeigen. Dazu sind mit den frei verfügbaren Programmen¹ Rechnungen unter Verwendung der in Kap. 3 beschriebenen Streugeometrie durchgeführt worden, also für ein Vorwärtsstreuverhältnis von $4^\circ/176^\circ$ und einer Depolarisation bei 176° . Die Depolarisationsergebnisse dieser Rechnungen werden wie in Gl. 3.9 definiert für den AIDA-Aufbau angegeben. Alle Berechnungen beziehen sich außerdem auf die verwendete Wellenlänge von 488 nm.

¹ http://www.giss.nasa.gov/~crmim/t_matrix.html 10.09.2003

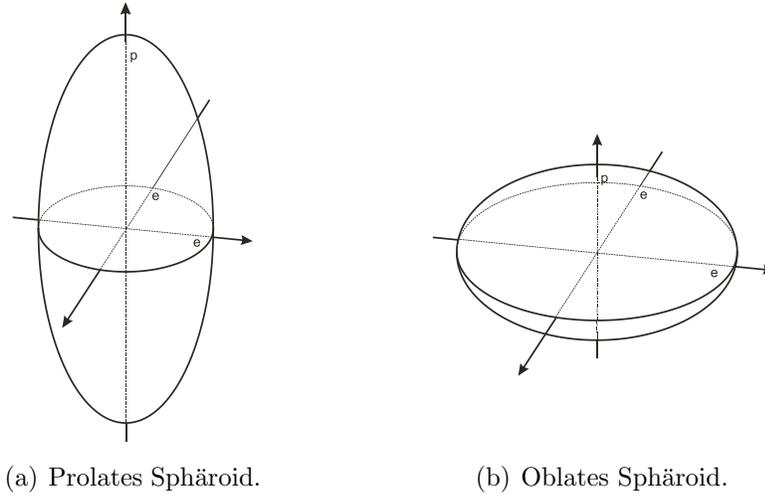


Abbildung 4.1: Darstellung von prolaten und oblaten Sphäroiden mit äquatorialen Halbachsen e und polarer Halbachse p .

4.1 Prolate und oblate Sphäroide

Sphäroide, also rotationssymmetrische Partikel mit einer ellipsenförmigen Projektionsfläche, stellen ein einfaches Modell für nicht-sphärische Partikel dar. Sie werden charakterisiert durch ihr Achsenverhältnis ϵ , das definiert ist als das Verhältnis von äquatorialer zu polarer Halbachse, wobei die beiden Halbachsen in der äquatorialen Ebene jeweils gleich lang sind. Demnach können zwei Arten von Sphäroiden unterschieden werden: Partikel mit $\epsilon < 1$ heißen prolat, während oblate Sphäroide ein $\epsilon > 1$ aufweisen (Abb. 4.1). Kugeln mit gleich langer polarer und äquatorialer Halbachse sind demnach ein Spezialfall der Sphäroide.

Für prolate und oblate Sphäroide mit Achsenverhältnissen zwischen 0.3 und 3.0 wurden für die verwendete Streugeometrie und Wellenlänge T-Matrix-Rechnungen [MT98] durchgeführt. Die verwendeten Parameter der Größenverteilung sind analog zu den in [MTM96b] verwendeten, also eine modifizierte Exponentialverteilung mit effektiver Varianz 0.1 sowie unterer Verteilungsgrenze $x_1 = 0.8903 d_p$ und oberer Grenze $x_2 = 1.5654 d_p$. Diese Verteilung zeichnet sich durch eine exponentielle Abnahme von dN/dd_p bei $x_1 < d_p < x_2$ aus. Bei den gewählten Verteilungsparametern treten wenig Interferenzstrukturen auf, sodass die Matrixelemente und damit auch die daraus berechnete Depolarisation und das Vorwärtstreuverhältnis auf ihre Form- und Größenabhängigkeit untersucht werden können. Der Brechungsindex wurde zu 1.31, entsprechend dem Brechungsindex von Wassereis bei der verwendeten Wellenlänge (vgl. [War84]), gewählt.

Die Berechnungen wurden in 2 nm-Schritten des Partikeldurchmessers für die

Achsenverhältnisse $1/3$, $1/2.75$, $1/2.5$, $1/2.25$, $1/2$, $1/1.75$, $1/1.5$, $1/1.25$, 1 , 1.25 , 1.5 , 1.75 , 2 , 2.25 , 2.5 , 2.75 und 3 durchgeführt, wobei generell der T-Matrix-Code mit Gaussquadratur-Lösung in der Version mit "double precision"-Variablen verwendet wurde. Für Partikel mit stärkeren Asphärizitäten (ab $\epsilon = 1/1.75$ bzw. 1.75) zeigt dieser Code bei größeren Partikeln keine Konvergenz mehr, sodass hierfür auf die Version mit LU-Faktorisierung (Version mit "extended precision"-Variablen) zurückgegriffen wurde.

Für Abb. 4.2 und Abb. 4.3 sind die Partikelgrößen jeweils als Durchmesser einer Kugel mit gleicher Oberfläche dargestellt.

4.1.1 Depolarisation

Die Ergebnisse der Depolarisation aus den T-Matrix-Rechnungen sind in Abb. 4.2 dargestellt. Danach haben Kugeln, wie bereits in Kap. 3.4 gezeigt, keine Depolarisationseigenschaften. Unabhängig von der betrachteten Grundform zeigen sehr kleine Partikel keine signifikante Depolarisation (< 0.025). Bei prolaten Sphäroiden sinkt diese Schwelle mit steigender Asphärizität von etwa $0.6 \mu\text{m}$ auf $0.15 \mu\text{m}$. Generell ist mit steigender Partikelgröße bei konstantem Achsenverhältnis in dem betrachteten Form- und Größenbereich ein Ansteigen der Depolarisation zu beobachten. Ein Maximum ist bei einem Achsenverhältnis von $1/1.5$ bei Partikeldurchmessern ab $1 \mu\text{m}$ vorhanden. Besonders bei Partikeln höherer Asphärizität ist eine Verringerung der Depolarisation mit weiter steigender Partikelgröße nach dem Erreichen eines Maximums sichtbar.

Auch bei den oblaten Sphäroiden ist eine Mindestgröße zum Erreichen einer signifikanten Depolarisation notwendig, die bei etwa $0.5 \mu\text{m}$ liegt, und weniger stark von der Partikelform abhängt als bei den prolaten Teilchen. Bei Partikeln größer als $1 \mu\text{m}$ weist das Verteilungsmuster der Depolarisation stärkere Schwankungen auf, die die generelle Tendenz einer steigenden Depolarisation mit der Partikelgröße teilweise überlagern. Der Bereich maximaler Depolarisation liegt hier bei großen Achsenverhältnissen und Durchmessern über $1.3 \mu\text{m}$.

4.1.2 Vorwärtsstreuverhältnis

Abb. 4.3 zeigt die Ergebnisse des Vorwärtsstreuverhältnisses für die gleichen Form-, Größen- und Verteilungsparameter wie in Kap. 4.1.1. Generell steigt das Verhältnis mit wachsender Partikelgröße an, wobei dieser Zusammenhang bei allen dargestellten Achsenverhältnissen bis zu einem Durchmesser von etwa $1 \mu\text{m}$ besonders ausgeprägt ist. Bei größeren Durchmessern wird dieses Verhalten teilweise durch Interferenzstrukturen überdeckt. Insbesondere zeigen beide Formfa-

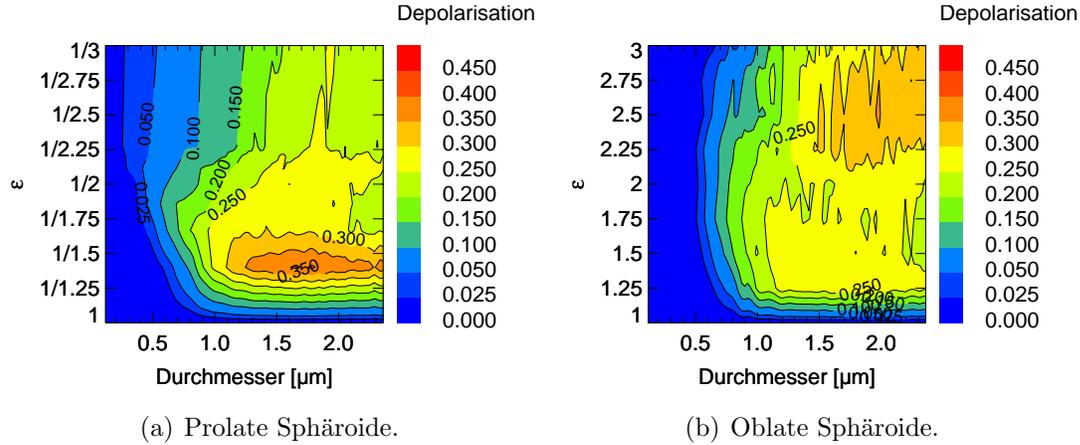


Abbildung 4.2: Depolarisation durch prolate und oblate Sphäroide mit Achsenverhältnis ϵ , berechnet für einen Winkel von 176° mit T-Matrix-Rechnungen [MT98] ($\lambda = 488 \text{ nm}$, $BI = 1.31$, modifizierte Exponential-Verteilung, Partikelgröße dargestellt als Durchmesser einer oberflächenäquivalenten Kugel).

milien bei nur wenig von der Kugelform abweichenden Achsenverhältnissen diese Eigenschaft, sowie prolate Sphäroide mit Achsenverhältnissen kleiner 0.4. Bei den oblaten Sphäroiden kann dagegen, wie schon bei der Depolarisation gesehen, für diese Achsenverhältnisse ein kleineskaliges Interferenzmuster beobachtet werden.

Somit kann das Vorwärtsstreuverhältnis als ein Maß für die Partikelgröße verwendet werden, insbesondere für submikrometergroße Partikel.

4.2 Partikel mit großen Achsenverhältnissen

Neben der Berechnung von nur wenig von der Kugelform abweichenden Sphäroiden sind mit der T-Matrix-Methode auch Berechnungen von stärker verformten Partikeln möglich. Teilchen mit großen Achsenverhältnissen stellen ein Modell dar für Nadeln und Plättchen, wie sie als Eiskristalle in der Atmosphäre beobachtet werden.

Die Streueigenschaften dieser deformierten Partikel sind in [ZM00] beschrieben. Für die Anwendung auf die verwendete Streugeometrie wurden T-Matrix-Rechnungen unter Verwendung des "extended precision" Codes mit LU-Faktorisierung durchgeführt, wobei die gleichen Parameter wie in [ZM00] verwendet wurden. Bei der Größenverteilung handelt es sich hier um eine Gamma-Verteilung, also einer der in Kap. 4.1 verwendeten Exponentialverteilung ähnlichen Funktion, die ebenfalls in den angegebenen Grenzen der Verteilung eine exponentielle

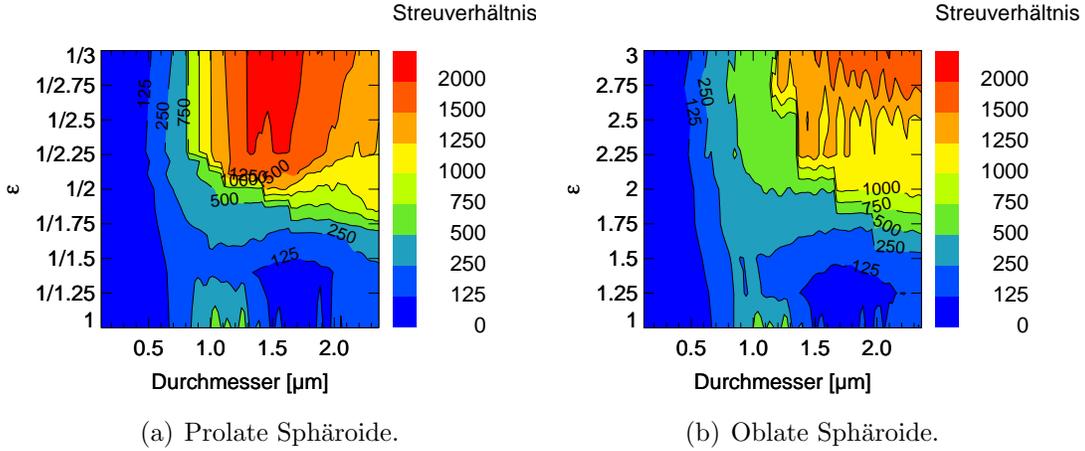


Abbildung 4.3: Vorwärtsstreuverhältnis durch prolate und oblate Sphäroide mit Achsenverhältnis ϵ , berechnet für die Winkelkombination von $4^\circ/176^\circ$ mit T-Matrix-Rechnungen [MT98] ($\lambda = 488 \text{ nm}$, $\text{BI} = 1.31$, modifizierte Exponential-Verteilung, Partikelgröße dargestellt als Durchmesser einer oberflächenäquivalenten Kugel).

Abnahme von dN/dd_p zeigt. Hier wurde eine effektive Varianz von 0.05 mit den gleichen Verteilungsgrenzen wie für die Darstellung in Kap. 4.1 verwendet (untere Grenze $x_1 = 0.8903 d_p$, obere Grenze $x_2 = 1.5654 d_p$). Für die Anwendung auf Eiskristalle ist ein Brechungsindex von 1.31 zugrunde gelegt.

Die Berechnungen sind für Achsenverhältnisse von 2, 5, 10, 12, 15 und 20 durchgeführt und in Abb. 4.4 dargestellt. Wie schon in Abb. 4.1 gesehen, steigt unabhängig von der gewählten Partikelform die Depolarisation mit zunehmender Partikelgröße an. Hier wird jedoch ein weiterer Aspekt sichtbar: bei gleicher Partikelgröße nimmt mit größerer Asphärizität der Wert der Depolarisation ab. Bei Achsenverhältnissen von 10 und größer tritt dabei keine signifikante Depolarisation mehr auf.

Eine Erklärung für dieses Verhalten wird in [ZM00] aus der Betrachtung der Matrixelemente abgeleitet: das Verhältnis F_{22}/F_{11} ist nahe 1, F_{33}/F_{11} und F_{44}/F_{11} weisen nahezu identische Werte auf, und $-F_{12}/F_{11}$ zeigt einen Verlauf mit Maximum bei 90° . Diese Eigenschaften der Matrixelemente sind charakteristisch für Partikel im Rayleigh-Bereich. Zakharova und Mishchenko ([ZM00]) schließen, dass die Depolarisation nicht von der Partikelgröße, sondern von der Größe der

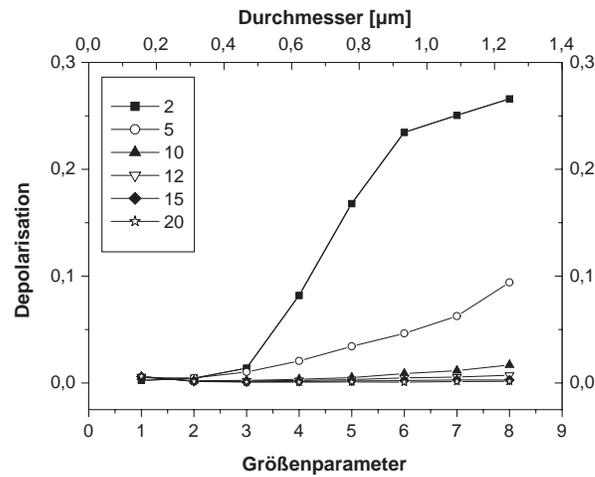


Abbildung 4.4: Depolarisation durch oblate Sphäroide unterschiedlicher Achsenverhältnisse, berechnet für einen Winkel von 176° mit T-Matrix-Rechnungen ([MT98], $BI=1.31$, Umrechnung Größenparameter – Durchmesser für $\lambda = 488$ nm, Gamma-Verteilung).

kleinen Halbachse bestimmt wird. Deren Länge liegt bei den berechneten Partikeln im Rayleigh-Bereich (Abb. 4.5).²

Somit gibt es zwei Arten von asphärischen Partikeln, bei denen nur sehr geringe Depolarisationen gemessen werden: zum einen Partikel mit sehr kleinen Größenparametern, zum anderen stark deformierte Partikel. Die Depolarisation ist somit kein eindeutiges Maß für die Asphärität eines Teilchens, da geringe Werte sowohl auf kleine Partikel, als auch auf große, jedoch stark asphärische Partikel hinweisen können.

4.3 Kugel-Dimere

Während Kugeln beliebiger Größe keine Depolarisation aufweisen (vgl. Kap. 3.4), zeigen Zusammensetzungen von Kugeln Depolarisationseigenschaften von asphärischen Partikeln. Auch für Dimere von Kugeln existiert ein T-Matrix-Code [MM96], der die Streueigenschaften von zwei Kugeln mit ggf. unterschiedlichen Durchmessern und Brechungsindices berechnet. Auch hier wird von zufällig orientierten Partikeln, hier also Dimeren ausgegangen. Die Berechnungen sind jeweils

²Außerdem wird in dem Artikel gezeigt, dass Asymmetrieparameter und Phasenfunktion mit der Größe einer Kugel gleicher projizierter Fläche skalieren.

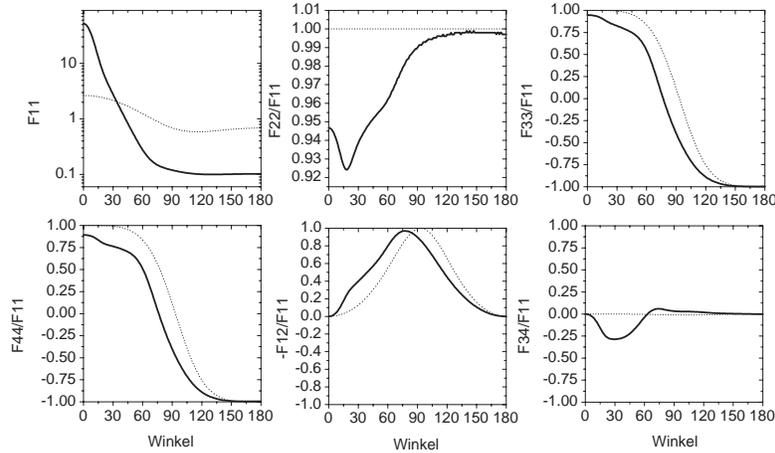


Abbildung 4.5: Matrixelemente eines oblaten Sphäroids (—) mit Achsenverhältnis 20, berechnet mit T-Matrix-Rechnungen ([MT98], BI=1.31, Größenparameter 8, Gamma-Verteilung) im Vergleich zu einer Kugel (·····) mit Größenparameter 1.

mit zwei sich berührenden Kugeln durchgeführt worden, wobei der Code auch einen variablen Abstand der Monomere zulässt. Dagegen sind mit diesem Code keine Berechnungen mit Größenverteilungen möglich.

In Abb. 4.6 ist die winkelabhängige Depolarisation von zwei sich berührenden Kugeln eines Durchmessers von 635 nm bei einem Brechungsindex von 1.46 dargestellt. Die Depolarisation ist dabei für den parallelen und senkrechten Kanal, wie in Gl. 3.7 und Gl. 3.8 für den ASA-Aufbau angegeben, berechnet. Dieses Beispiel wird im Zusammenhang mit dem Referenzexperiment für den ASA-Aufbau noch einmal aufgegriffen; der verwendete Brechungsindex von 1.46 entspricht Glas bei einer Wellenlänge von 488 nm [Pal85].

Die Depolarisation ist für den parallelen und senkrechten Kanal aufgrund der unterschiedlichen Kombination der Matrixelemente nicht identisch. Aus dem Vergleich der Depolarisation und F_{12}/F_{11} wird ersichtlich, dass die Differenz der beiden Depolarisationen als ein Maß für die Größe von F_{12}/F_{11} angesehen werden kann. In der direkten Rückwärtsrichtung verschwindet diese Differenz erwartungsgemäß, da das Matrixelement F_{12} bei Rückstreuung 0 wird (Gl. 2.15).

Die Darstellung verdeutlicht zudem, dass die Messung der Depolarisation nur in Rückwärtsrichtung sinnvoll ist, da bei Vorwärtsstreuung die beiden Matrixelemente F_{11} und F_{22} nahezu identisch sind, und daher keine Depolarisation auftritt.

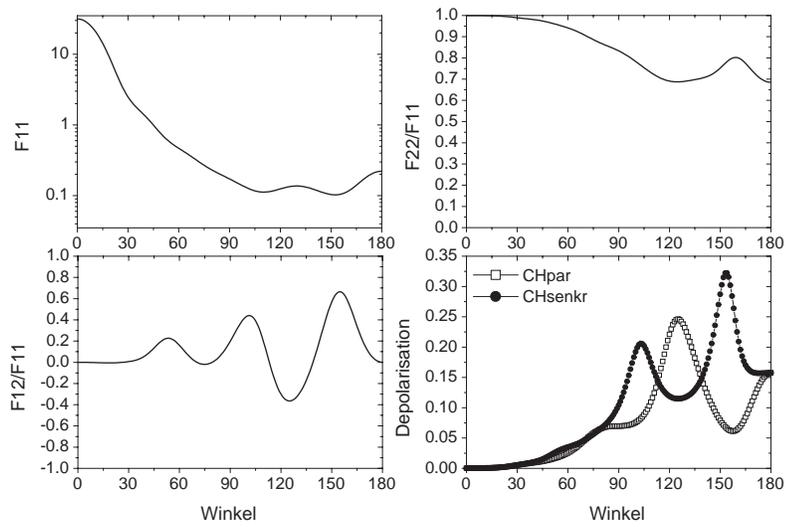


Abbildung 4.6: Winkelabhängigkeit der Depolarisation im parallelen und senkrechten Kanal für Bisphären von 2×635 nm ([MM96], $BI=1.46$, berührende Kugeln, $\lambda = 488$ nm).

Kapitel 5

Streulichtexperimente am ASA-Behälter

Der Streulichtaufbau am ASA-Behälter wird in der vorliegenden Arbeit verwendet, um mineralische Partikel auf Depolarisation und Vorwärtsstreuverhältnis zu untersuchen. Dabei handelt es sich um einen Nachbau der bereits bestehenden AIDA-Streulichtapparatur, der neben der Untersuchung von Aerosolen bei Raumtemperatur auch dazu dient, Erweiterungen zu testen.

So wurde die Justage der Streugeometrie (vgl. Kap. 3.2) anhand des ASA-Aufbaus erprobt und mit der Drehung der Laserpolarisation eine Erweiterung vorgenommen, mit der Bestimmungen von Matrixelementen möglich sind. In Kap. 5.3 werden Vorschläge zur Verbesserung des Aufbaus diskutiert.

5.1 Referenzexperiment mit kugelförmigen Partikeln

Für die Bewertung der Qualität der mit dem Streulichtaufbau erhaltenen Messergebnisse wird ein Referenzexperiment durchgeführt. Dabei werden die Streueigenschaften von sphärischen Aerosolpartikeln untersucht, die, wie in Kap. 3 gezeigt, keine Depolarisation aufweisen. Dieses Experiment wird außerdem dazu verwendet, das Vorwärtsstreuverhältnis mit einem Aerosol bekannter Streueigenschaften zu kalibrieren, und die Photomultiplier der Rückwärtsrichtung aufeinander abzustimmen. Anhand dieses Versuches wird im Folgenden das generelle Vorgehen bei den Streulichtmessungen am ASA-Behälter beschrieben.

Für das Experiment werden Glaskügelchen (Monospheres 800, Merck) mit einem Bürstengenerator (RBG 1000, Palas) in Kombination mit einer Dispergierdüse erzeugt und in den ASA-Behälter eingeleitet. Die Aerosolkonzentration

wird mit einem CPC 3025 (TSI), die Partikelgrößenverteilungen mit einem PCS 2000 (Palas, vgl. Kap. 6.2.2) beobachtet. Für dieses Experiment mit Glaskugeln erfolgt die Zuordnung der Kanalinformation zu Partikelgrößen unter der Annahme eines Brechungsindex von 1.45.

Den Verlauf der Anzahlkonzentration zeigt Abb. 5.1: Nach dem Aerosol-einleiten steigt die Konzentration auf etwa 1300 cm^{-3} an. Um Messungen bei verschiedenen Konzentrationen durchzuführen, wird nach der Streulichtmessung bei horizontal polarisiertem Laserlicht und anschließender Drehung auf vertikal polarisiertes Laserlicht durch Abpumpen und Wiederbefüllen mit partikelfreier Luft eine 10 %-ige Verdünnung vorgenommen. Anschließend erfolgt ein Druckausgleich auf Atmosphärendruck. Auf diese Weise werden nacheinander vier Streulichtmessungen mit abnehmender Anzahlkonzentration durchgeführt, wobei jeweils die Laserpolarisation um 90° gedreht wird.

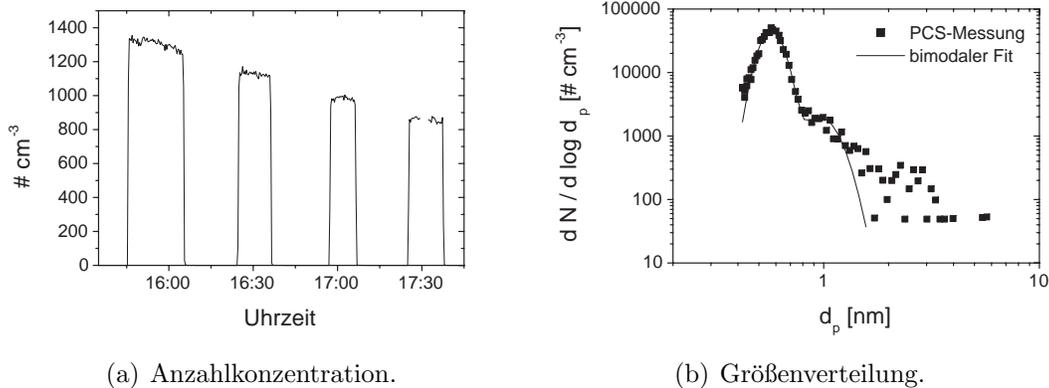
In Abb. 5.1 ist außerdem eine typische Größenverteilung, wie sie während des Experimentes mit dem PCS aufgenommen wurde, dargestellt. Die Verteilung zeigt eine Mode bei 580 nm, eine deutlich kleinere Mode bei etwa doppeltem Durchmesser sowie vereinzelt größere Partikel. Diese Verteilung deutet darauf hin, dass sich neben den Monosphären auch Kugeldimere und höhere Aggregate in der Versuchskammer befinden. Der Anteil der höheren Aggregate ist dabei deutlich geringer als der der Dimere.

An die gemessenen Verteilungen wird jeweils ein bimodaler, lognormaler Fit angebracht, mit dem die beiden Moden der Monomeren und Dimeren hinsichtlich Verteilungsbreite, Partikelanzahl und Median der Verteilung charakterisiert werden. Die Anzahl der höheren Aggregate ist nicht groß genug, um belastbare Fits an diese Moden anzubringen. Aus diesem Grund werden in Kap. 5.1.1 die Streueigenschaften nur für die Mono- und Dimermode berechnet.

Für jeden Kanal wird ein gesondertes Referenzexperiment mit vier Konzentrationsstufen durchgeführt; die beiden durchgeführten Experimente unterscheiden sich leicht in dem Anteil der gebildeten Kugeldimere (vgl. Tab. 5.1). Der Anteil der Partikel, der sich in den Moden mit Aggregaten befindet, ist dabei im Verlauf des jeweiligen Experimentes konstant. Das lässt darauf schließen, dass sich die Dimere bzw. höheren Aggregate bereits bei der Aerosolerzeugung bilden, und nicht sekundär durch Koagulation innerhalb des Behälters entstehen.

5.1.1 Depolarisation beim Glaskugelexperiment

Aus den durchgeführten Messungen werden mit Hilfe von Gl. 3.7 und Gl. 3.8 die Depolarisationen als gewichtete Mittelwerte für den senkrechten und parallelen Kanal berechnet. Dazu werden von den Ausgangszählraten eines Kanales jeweils



(a) Anzahlkonzentration.

(b) Größenverteilung.

Abbildung 5.1: Verlauf der Anzahlkonzentration während des Referenzexperimentes mit Glaskugeln sowie typische Größenverteilung mit zugehörigem bimodalen Fit (Referenzexperiment für den senkrechten Kanal, s. Text).

die zugehörige Zählrate vor dem Einleiten des Aerosols (also die Summe aus Hintergrundstreuung und Luftstreuung) bei gleicher Laserpolarisation subtrahiert.

Falls sich während des Experimentes ausschließlich kugelförmige, nicht-aggregierte Partikel in dem Behälter befinden würden, müsste die Depolarisation unabhängig von der eingestellten Laserpolarisation 0 betragen (vgl. Kap. 3.4). Die Ergebnisse der experimentell bestimmten Depolarisation sind in Tab. 5.1 zusammengestellt. Danach ist die Depolarisation sowohl bei Betrachtung des parallelen als auch des senkrechten Kanals größer als dieser erwartete Wert 0. Wie im Folgenden gezeigt wird, kann ein Großteil dieser Abweichung mit dem Vorkommen von Kugel-Dimeren erklärt werden, die, wie in Kap. 4.3 gezeigt, eine deutliche Depolarisation aufweisen.

Aus den bimodalen lognormal-Fits an die PCS-Größenverteilungen wird der Anteil an Dimeren berechnet; für das Experiment mit parallelem Streukanal betrug dieser 14.6 %, bei dem Versuch mit dem senkrechten Kanal 6.4 %. Durch die große Anzahl der Fitparameter, nämlich für jede Mode jeweils Verteilungsbreite, Median der Verteilung und Gesamtpartikelzahl, weisen die Fitergebnisse eine große Unsicherheit auf. Wird dies bei der Berechnung der Dimeranteile berücksichtigt, ergibt sich eine Unsicherheit von einem Faktor 2, was in Tab. 5.1 als Fehler angegeben ist.

Mit Hilfe von T-Matrix-Rechnungen werden die Streubeiträge von Kugeln und Dimeren berechnet und nach ihrem Anteil f im Partikelensemble gemischt. Anschließend wird daraus die erwartete Depolarisation berechnet:

$$\delta = \frac{SCA_{\perp}^{Kugel} + SCA_{\perp}^{Dimer}}{SCA_{\perp}^{Kugel} + SCA_{\perp}^{Dimer} + SCA_{\parallel}^{Kugel} + SCA_{\parallel}^{Dimer}} \quad (5.1)$$

mit $SCA = f C_{sca} F(176^{\circ})$

C_{sca} : Streuquerschnitt

$F(176^{\circ})$: Linearkombination der Matrixelemente,
vgl. Gl. 3.7 und Gl. 3.8.

Diese Berechnung ist empfindlich von der zugrunde gelegten Partikelgröße abhängig; die vom Hersteller spezifizierte Größe (750 nm) ist im Vergleich zu den PCS-Messungen, die einen Mediandurchmesser von 580 nm ergeben (vgl. Abb. 5.1), deutlich zu groß. Unabhängig von den Streulichtexperimenten wurde von der gleichen Monosphären-Probe ein Extinktionsspektrum aufgenommen ([Sch03]). Da die Interferenzstruktur im Extinktionsspektrum ein sehr empfindliches Maß der Partikelgröße ist, kann die Partikelgröße durch einen MIE-Fit an dieses Spektrum bestimmt werden ([Wag03]). Dafür wurden die optischen Konstanten aus [Pal85] verwendet. Auch hier ergibt sich ein kleinerer mittlerer Durchmesser von 632 nm bei einer Verteilungsbreite von etwa 1.03.

Tabelle 5.1: Vergleich der gemessenen Depolarisation des Referenzexperimentes mit Ergebnissen von T-Matrix-Rechnungen von Kugel-Bisphären-Gemischen (Kugeldurchmesser 635 nm, Dimere 2×635 nm).

	Anteil Dimere CH_{\parallel}	Anteil Dimere CH_{\perp}	δ CH_{\parallel}	δ CH_{\perp}
Messung	14.6 %	6.4 %	2.5 ± 0.1 %	2.5 ± 0.1 %
T-Matrix- Rechnung	(7.3...29.2 %)	(3.2...12.8 %)	2.4 % (1.2...4.7 %)	1.2 % (0.6...2.3 %)

Für die Berechnung des Streubeitrags durch Kugeln werden die Ergebnisse dieses MIE-Fits verwendet. Der Code für Bisphären lässt nur monodisperse Verteilungen zu, die Dimerengröße wird mit 2×635 nm angenommen. Die Ergebnisse dieser Berechnungen sind ebenfalls in Tab. 5.1 aufgeführt.

Danach kann die im Experiment gemessene, von 0 abweichende Depolarisation mit dem vorhandenen Anteil an Dimeren erklärt werden. Für den parallelen Kanal liegt der gemessene Depolarisationswert unter Berücksichtigung der Mess-

ungenauigkeiten bei der Bestimmung des Dimeranteils im Bereich der berechneten Depolarisation, für den senkrechten Kanal liegt die gemessene Depolarisation etwas über der berechneten.

Wie bereits erläutert, sind in der Versuchskammer jedoch nicht nur Mono- und Dimere, sondern auch ein geringer Anteil an höheren Aggregaten vorhanden. Die Depolarisation, die durch diese Partikel zusätzlich entsteht, ist in den Berechnungen nicht berücksichtigt. Zu den in Tab. 5.1 berechneten Depolarisationswerten kommt zudem der systematische Fehler in der Messung der Depolarisation, der durch die von der Idealeinstellung abweichende Justage der optischen Elemente entsteht. In Kap. 3.2 wurde dieser für die hier betrachteten Experimente auf maximal einen Prozentpunkt geschätzt.

Das durchgeführte Referenzexperiment mit Glaskugeln hat somit gezeigt, dass die Depolarisation unter Berücksichtigung der vorhandenen Messgenauigkeiten mit den berechneten Depolarisationswerten übereinstimmt. Dafür werden die gemessenen Streuintensitäten mit einer Untergrundkorrektur versehen, die sich aus der Luftstreuung und der Hintergrundstreuung an den Behälterwänden zusammensetzt; mit Hilfe der so korrigierten Werte werden aus jeweils einem Kanal unter Drehung der Laserpolarisation die Depolarisationen berechnet. Somit ist das verwendete Auswertungssystem zur quantitativen Bestimmung der Depolarisation geeignet.

5.1.2 Abgleich der Photomultiplier in Rückwärtsrichtung

Für die Auswertung der Depolarisation ist aufgrund der Berechnung aus jeweils einem Kanal kein Abgleich der Photomultiplier in Rückwärtsrichtung notwendig. Allerdings ist wegen der Definition des Vorwärtsstreuverhältnisses (vgl. Gl. 3.13 und Gl. 3.14) ein solcher Abgleich erforderlich; dieser wird ebenfalls anhand des Glaskugelexperimentes unter Ausnutzung der Laserpolarisationsdrehung durchgeführt.

Unter Vernachlässigung des Matrixelementes F_{12} sind die Streuintensitäten des parallelen Kanals bei paralleler Laserpolarisation sowie des senkrechten Kanals bei senkrechter Laserpolarisation identisch. Das Gleiche gilt für den parallelen Kanal bei senkrechter Polarisation und den senkrechten Kanal bei paralleler Polarisationsrichtung (vgl. Tab. 3.5). Der Fehler, der durch die fehlende Berücksichtigung von F_{12} entsteht, kann mit den durchgeführten Streulichtrechnungen für Kugel-Dimer-Gemische abgeschätzt werden und beträgt maximal 4.3% der Streuintensität.

Befänden sich ausschließlich kugelförmige Monomere in der Versuchskammer, würde der jeweils senkrecht zur Laserpolarisationsrichtung stehende Kanal kein

Partikelsignal zeigen. Wie jedoch in Kap. 5.1.1 gezeigt wurde, gibt es einen signifikanten Anteil an Dimeren und höheren Aggregaten, die eine Depolarisation aufgrund eines Partikelsignals im jeweils senkrechten Kanal verursachen. Somit stehen für den Abgleich der Photomultiplier Signale über einen weiten Messbereich zur Verfügung.

Für Abb. 5.2 sind in diese Zählraten der Photomultiplier wiederum die Filterabschwächung und die Untergrundwerte eingerechnet. Danach ergibt sich der Anpassungsfaktor, mit dem die Zählraten des parallelen Kanals multipliziert werden müssen, zu 0.365.

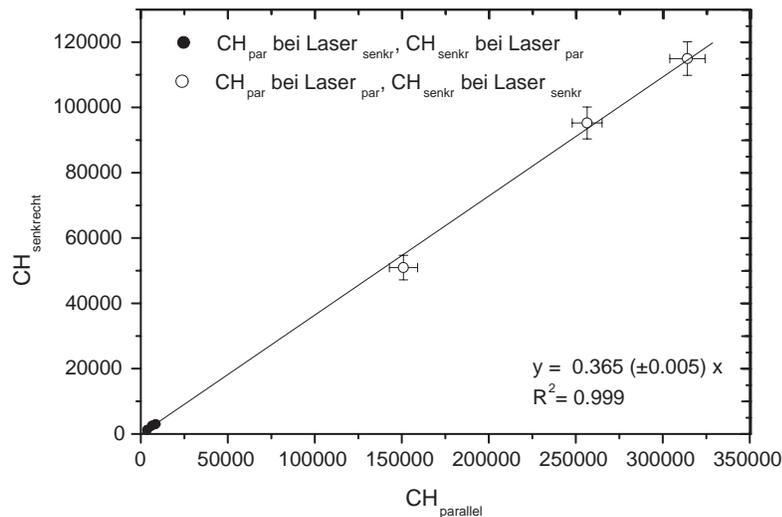


Abbildung 5.2: Ergebnis des Abgleichs der Photomultiplier in Rückwärtsrichtung.

5.1.3 Kalibration des Vorwärtsstreuverhältnisses

Für die quantitative Auswertung des Vorwärtsstreuverhältnisses muss eine Kalibration durchgeführt werden, bei der die beiden Detektionseinheiten aufeinander abgestimmt werden. Bei dem ASA-Aufbau wird diese Kalibration wiederum mit Hilfe des Glaskugelexperimentes durchgeführt. Dieser Abgleich beinhaltet sowohl die unterschiedlichen Eigenschaften der verwendeten Photomultiplier sowie deren Elektronik, als auch eventuelle Unterschiede im Aufbau der Fokussieroptik.

Tab. 5.2 zeigt die mit Hilfe von T-Matrix-Rechnungen berechneten Vorwärtsstreuverhältnisse für die gemessenen Dimer-Anteile des Referenzexperimentes.

Die Berechnung dieses Verhältnisses erfolgt dabei analog zu Gl. 5.1. Der Vergleich mit den gemessenen Verhältnissen V/R für die beiden Laserpolarisationen gibt die Kalibrationsfaktoren, die ebenfalls in Tab. 5.2 aufgeführt sind. Auch diese Berechnung beinhaltet die entsprechenden Filterfaktoren und die Untergrundstreuung; außerdem geht der in Kap. 5.1.2 bestimmte Faktor für den Abgleich der Rückwärtsrichtung ein.

Die Detektionseinheit in der Vorwärtsrichtung ist damit um etwa den Faktor 8 weniger empfindlich als die Rückwärtsrichtung. Diese große Differenz beruht, wie oben erwähnt, auf der Kombination von unterschiedlicher Photomultiplierempfindlichkeit und Unterschieden in der Einstellung der Fokussieroptik, was sich ebenfalls auf die Empfindlichkeit der Vorwärtsrichtung auswirkt.

Tabelle 5.2: Vorwärtsstreuverhältnisse für das Referenzexperiment aus Ergebnissen von T-Matrix-Rechnungen mit Kugel-Bisphären-Gemischen (Kugeldurchmesser 635 nm, Dimere 2×635 nm) sowie daraus bestimmte Kalibrationsfaktoren für das Vorwärtsstreuverhältnis.

	V/R T-Matrix-Rechnung	Kalibrations- faktor ^a
$Laser_{\parallel}$	89.4 (85.9 ... 96.5)	7.5 ± 1.6
$Laser_{\perp}$	95.2 (92.4 ... 100.5)	8.2 ± 1.8

^aFaktor, mit dem die um Dunkelstrom und Filtertransmission korrigierten Messwerte der Vorwärtsrichtung multipliziert werden.

5.2 Streulichtmessungen an Mineralstaub

Aufgrund des häufigen Vorkommens von Mineralstaub in der Atmosphäre und der Bedeutung für den Strahlungshaushalt (vgl. Kap. 1) wurden für die vorliegende Arbeit Streulicht- und Depolarisationsmessungen an verschiedenen Mineralstaubproben durchgeführt. Im Folgenden werden zunächst die untersuchten mineralischen Partikel charakterisiert, bevor die Ergebnisse der Streulichtmessungen dargestellt werden.

5.2.1 Eigenschaften der untersuchten Mineralstäube

Die Probenherkunft der mineralischen Partikel sowie ihre Gewinnung und Aufbereitung sind neben den Charakteristika der Größenverteilungen in Tab. 5.3 zusammengestellt.

Probenherkunft und -aufbereitung

Die Probe "Agadez" wurde von Lothar Schütz, Universität Mainz, Institut für Physik der Atmosphäre, in der Nähe von Agadez (Niger) als Bodenprobe genommen. Anschließend wurden die Partikel größenfraktioniert gesiebt; für die Untersuchung der Streueigenschaften wurde die Fraktion $20\ \mu\text{m} < d_p < 75\ \mu\text{m}$ dispergiert.

Die Zuleitung vom Aerosolgenerator in die Kammer ist mit einem Volumenfluss von etwa $15\ \text{l min}^{-1}$, einem Rohrrinnendurchmesser von 1.1 cm und einer Länge von 2.5 m so ausgelegt, dass Partikel ab $23\ \mu\text{m}$ Durchmesser aufgrund ihrer Sedimentationsgeschwindigkeit nicht mehr in den Behälter geleitet werden. Dafür enthält die Siebfraction, wie an der Größenverteilung (Abb. 5.3) erkennbar ist, einen signifikanten Anteil an deutlich kleineren Partikeln, die durch Redispersion freigesetzt werden, und aufgrund ihrer geringeren Sedimentationsgeschwindigkeit in die Kammer gelangen können. Somit stehen bei dieser Probe trotz der Verwendung einer großen Siebfraction Partikel im Größenbereich von etwa $1\ \mu\text{m}$ zur Verfügung.

Khaled I. Megahed hat die mit "Kairo I" und "Kairo II" benannten Proben in der Nähe der ägyptischen Hauptstadt genommen. Bei "Kairo I" handelt es sich um luftgetragenen Staub, der bei einem Sandsturm am 19.03.2003 in einem Wohngebiet 50 km nördlich von Kairo aussedimentierte. Dagegen ist "Kairo II" eine Bodenprobe, die aus der Wüste 50 km nordöstlich von Kairo stammt. Von beiden Proben wurde die kleinste Siebfraction ($<20\ \mu\text{m}$) dispergiert.

Bei dem mit "Arizona" bezeichneten Aerosol, das bei Powder Technology Inc. erhältlich ist, handelt es sich ebenfalls um eine Bodenprobe, die aus der Wüste von Arizona stammt. Die Partikel sind vermahlen; für die Experimente wird eine Fraktion $<3\ \mu\text{m}$ verwendet.

Größenverteilungen der Mineralstäube

Bei den Streulichtexperimenten am ASA-Behälter sind die Größenverteilungen der Mineralstäube mit Hilfe des PCS (vgl. Kap. 6.2.2) gemessen worden; für Abb. 5.3 erfolgte die Zuordnung der Kanäle zu Partikeldurchmessern unter der Annahme von sphärischen Partikeln sowie einem Brechungsindex von 1.45.

Tabelle 5.3: Eigenschaften der untersuchten mineralischen Partikel.

Aerosoltyp	Probenahme	Fraktion	d_{mean}	σ
Arizona	Bodenprobe, vermahlen	$< 3 \mu\text{m}$	$0.45 \mu\text{m}$	1.6
Agadez	Bodenprobe	$20 \dots 75 \mu\text{m}$	$0.58 \mu\text{m}^a$ $1.12 \mu\text{m}^b$	1.3
Kairo I	Sandsturm, sedimentiert	$< 20 \mu\text{m}$	$0.51 \mu\text{m}$	1.6
Kairo II	Bodenprobe	$< 20 \mu\text{m}$	$0.45 \mu\text{m}$	1.6

^a1. Mode^b2. Mode

Neben den Größenmessungen mit dem PCS wurden unabhängig von den hier dargestellten Experimenten Messungen mit einem SMPS (TSI) mit den gleichen und ebenfalls mit einem Bürstengenerator dispergierten Mineralstäuben durchgeführt ([Lin03]). Die Ergebnisse dieser Mobilitäts-Größenanalyse ergänzen die PCS-Messungen am unteren Rand der Verteilung (Abb. 5.3). Für diese Abbildung sind die SMPS-Messungen auf die bei den ASA-Experimenten gemessenen Anzahlkonzentrationen normiert. Die Mediandurchmesser der Partikelverteilung und ihre Standardabweichung (Tab. 5.3) stammen aus lognormal-Fits an diese Verteilungen.

Danach weisen die untersuchten Mineralpartikel ähnliche Verteilungsparameter mit Mediandurchmessern um $0.5 \mu\text{m}$ und Verteilungsbreiten von 1.6 auf. Nur der Agadez-Staub zeigt eine bimodale Verteilung, wobei diese Verteilung bei allen PCS-Messungen im Verlauf des Experimentes auftrat. Dies könnte ggfs. an der Redispersion von anhaftenden kleinen Partikeln aus der größeren Siebfraction liegen.

Partikelform der Mineralstäube

Wie die REM-Bilder von den vier Mineralstäuben zeigen (Abb. 5.4), handelt es sich bei allen Proben um deutlich asphärische, unregelmäßig geformte Partikel. Die Oberfläche ist durch eine geschichtete Struktur gekennzeichnet.

Die Probe aus Arizona zeigt frische Bruchkanten, die durch das Vermahlen der Partikel bei der Probenaufbereitung erklärt werden können. Die beiden Proben Agadez und Kairo I weisen etwa gleiche Partikelgrundformen und ebenfalls eine geschichtete Oberflächenstruktur auf. Die Partikelbegrenzungen sind jedoch etwas gerundeter, was auf prozessiertes Material hinweist. Die Probe Kairo II weist die größte Rundung an den Partikelgrenzen auf, wobei teilweise fast runde Partikel zu Aggregaten zusammengefasst sind.

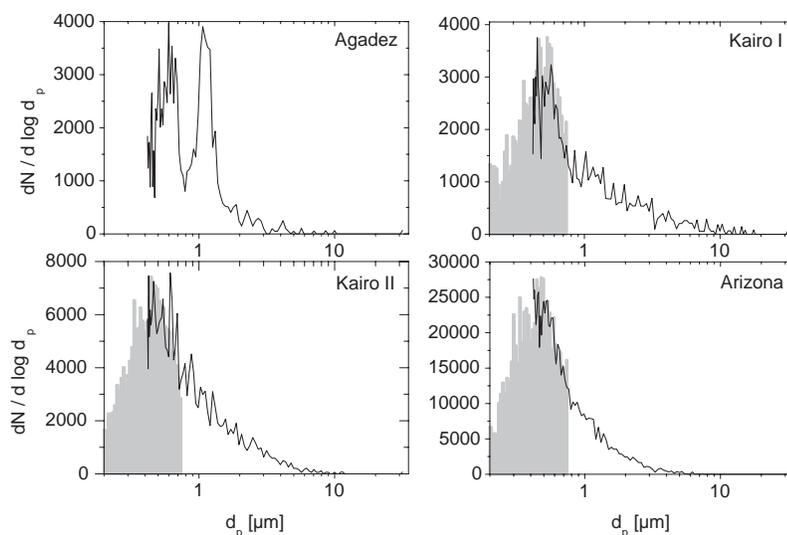


Abbildung 5.3: Größenverteilungen der untersuchten mineralischen Partikel, gemessen mit PCS (—) und SPMS (■).

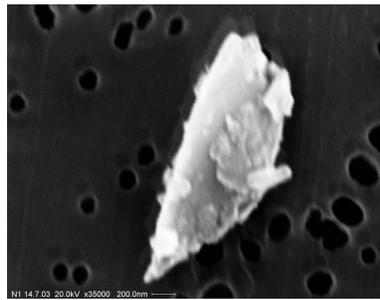
5.2.2 Ergebnisse der Streulichtmessungen

Die mineralischen Aerosole werden mit dem in Kap. 5.1 beschriebenen Verfahren bei verschiedenen Konzentrationsstufen und unter Verwendung von vertikal und horizontal polarisiertem Laserlicht untersucht. Für die Auswertung des Vorwärtsstreuverhältnisses werden dabei die in Kap. 5.1.2 und Kap. 5.1.3 bestimmten Kalibrationsfaktoren verwendet.

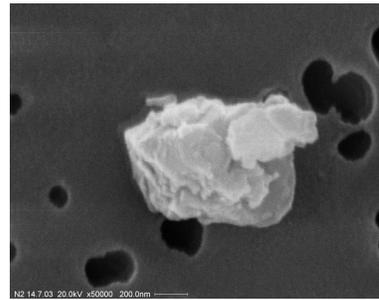
Depolarisation

Die Ergebnisse der Streulichtmessungen sind in Abb. 5.5 bzw. Tab. 5.4 dargestellt. Bei allen untersuchten Mineralstäuben konnte dabei eine signifikante Depolarisation festgestellt werden, wobei jeweils eine Differenz zwischen der Depolarisation im senkrechten und im parallelen Kanal vorhanden ist.

Die größte gemessene Depolarisation mit etwa 0.15 bei Messung im parallelen Kanal weist dabei die Probe "Kairo II" auf, die ebenfalls die größte (absolute) Differenz zwischen den beiden Kanälen zeigt. Bei drei der untersuchten Mineralpartikel ist die Depolarisation im parallelen Kanal höher als im senkrechten; nur bei der Probe "Arizona" ist das Verhältnis umgekehrt, wobei hier auch die geringste gemessene Depolarisation von etwa 3% im parallelen Kanal auftritt.

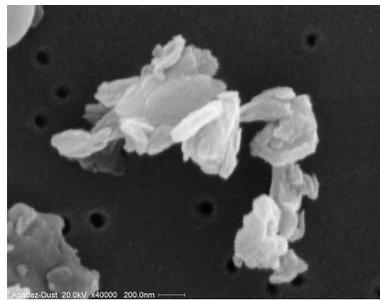


1 µm

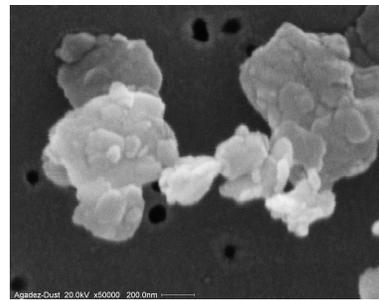


0.5 µm

(a) Arizona.

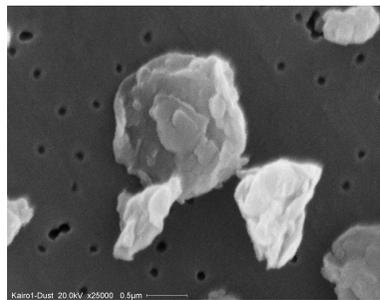


1 µm

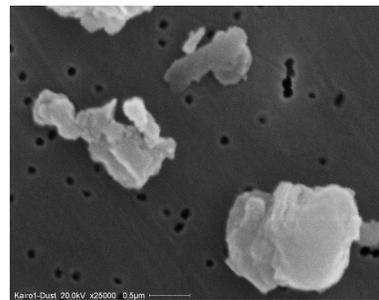


0.5 µm

(b) Agadez.

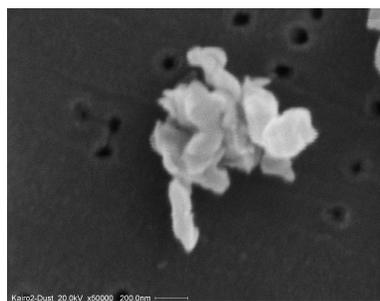


1 µm

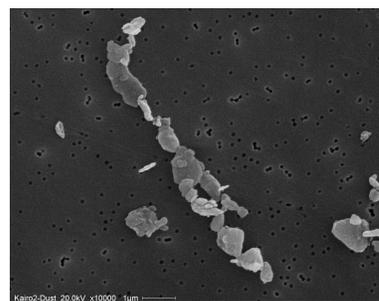


1 µm

(c) Kairo I.



0.5 µm



2.5 µm

(d) Kairo II.

Abbildung 5.4: REM-Bilder der untersuchten Mineralpartikel.

Die Unterschiede in den Depolarisationsmessungen können aufgrund der ähnlichen Partikelgrößen und Verteilungsbreiten der untersuchten Proben auf Unterschiede in der Partikelform zurückgeführt werden. Besonders "Kairo II" zeichnet sich im Vergleich zu den anderen Mineralstäuben durch gerundete, aber noch deutlich asphärische Partikelbegrenzungen auf. Somit könnte die höhere gemessene Depolarisation sowie die Differenz von $\delta_{CH_{\parallel}}$ und $\delta_{CH_{\perp}}$ auf diese – im Vergleich zu den anderen Proben – besondere Form zurückzuführen sein.

Die beiden Proben "Agadez" und "Kairo I" dagegen haben in den REM-Bildern vergleichbare Formen gezeigt, und die gemessene Depolarisation liegt unter Berücksichtigung der Messfehler für beide Kanäle etwa im gleichen Bereich. Der "Arizona"-Mineralstaub dagegen zeichnet sich durch sehr frische Bruchkanten aus und ist durch eine deutlich niedrigere Depolarisation sowie durch eine größere Depolarisation im senkrechten Kanal charakterisiert.

Somit haben die durchgeführten Messungen gezeigt, dass die Höhe der Depolarisation bei vergleichbarer Partikelgröße im Submikrometerbereich von der Partikelform beeinflusst wird: Frische Bruchkanten scheinen nur eine geringe Depolarisation zu bewirken, während die bei den Experimenten verwendeten Aggregate aus stärker gerundeten Partikeln eine höhere Depolarisation verursachen.

Bestimmung von Matrixelementen aus den Depolarisationsmessungen

Der bei den Proben Arizona und Kairo II signifikante Unterschied in der Depolarisation der beiden Kanäle weist darauf hin, dass das Matrixelement F_{12} für diese Partikel von 0 verschieden ist (vgl. Kap. 4.3). Das zeigen auch die Ergebnisse der Matrixelementberechnungen nach Gl. 3.10 und Gl. 3.11 (Tab. 5.5). Generell sind die Angaben der Matrixelemente jedoch mit einem großen Fehler behaftet, der dadurch zustande kommt, dass die Bestimmung der Matrixelemente aus den Messwerten nur durch mehrere Rechenschritte möglich ist: Die Depolarisationen sind ein Quotient aus den Messwerten, und gehen wiederum mehrfach in die Berechnung von F_{22}/F_{11} ein. Möglichkeiten zur Verringerung der Messfehler sowie zur genaueren Bestimmung der Matrixelemente werden in Kap. 5.3 aufgezeigt.

Vergleich der Depolarisationsergebnisse mit vorhandenen Messergebnissen

Depolarisationsmessungen an mineralischen Partikeln sind bereits in verschiedenen Untersuchungen sowohl in Laborversuchen als auch in der Atmosphäre durchgeführt worden, mit denen die in der vorliegenden Arbeit erzielten Ergebnissen verglichen werden.

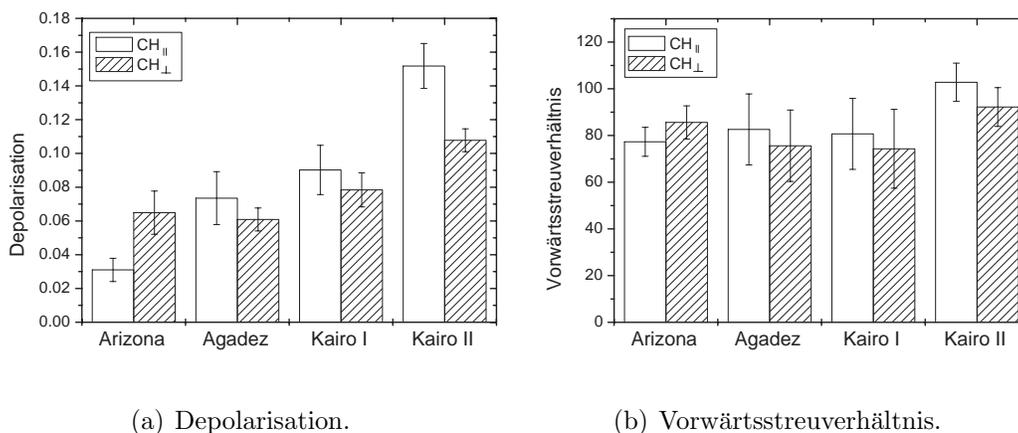


Abbildung 5.5: Ergebnisse der Depolarisation und des Vorwärtsstreuverhältnisses aus Streulichtmessungen an Mineralstaub.

Tabelle 5.4: Depolarisation im senkrechten und parallelen Kanal sowie Vorwärtsstreuverhältnis bei vertikaler und senkrechter Laserpolarisation, jeweils aus den Streulichtmessungen an Mineralstaub.

Aerosol	δCH_{\parallel}	δCH_{\perp}	$V/R_{LASER_{\parallel}}$	$V/R_{LASER_{\perp}}$
Arizona	$3.1 \pm 0.7 \%$	$6.5 \pm 1.3 \%$	77.3 ± 6.2	85.6 ± 7.1
Agadez	$7.4 \pm 1.5 \%$	$6.1 \pm 0.6 \%$	82.6 ± 15.2	75.6 ± 15.3
Kairo I	$9.0 \pm 1.4 \%$	$7.8 \pm 0.9 \%$	80.7 ± 15.2	74.3 ± 16.9
Kairo II	$15.2 \pm 1.3 \%$	$10.8 \pm 0.6 \%$	102.8 ± 8.2	92.2 ± 8.3

Matrizelemente an unterschiedlichen mineralischen Aerosolen wurden mit einem polaren Nephelometer bestimmt ([MVH⁺00], [MVH⁺01], [MVH⁺02] und [VMR⁺01]). Die Winkelauflösung beträgt dabei 5° über den Winkelbereich 5° ... 170° sowie 1° für die Winkel 170° ... 173°. Aus den über eine Datenbank¹ zugänglichen Messergebnissen können die in der vorliegenden Arbeit verwendeten Größen $\delta_{CH_{\parallel}}$ und $\delta_{CH_{\perp}}$ bestimmt werden. Tab. 5.6 zeigt das Ergebnis dieser Berechnungen für die Depolarisation bei 173° und 441.6 nm, während am ASA-Behälter in Rückwärtsrichtung bei 176° und 488 nm gemessen wird.

In den zitierten Artikeln werden Proben unterschiedlicher Herkunft und Aufbereitung untersucht: neben unbehandelten Bodenproben werden auch gemahlene Bodenproben, Minerale und Meteoritenmaterial sowie luftgetragene, sedimentier-

¹ http://www.amolf.nl/research/atmospheric_photo_physics/Volten/ 29.09.2003

Tabelle 5.5: Matrixelemente aus den Streulichtmessungen an Mineralstaub.

Aerosol	$-F_{12}/F_{11}(176^\circ)$	$F_{22}/F_{11}(176^\circ)$
Arizona	-0.35 ± 0.16	0.92 ± 0.21
Agadez	0.09 ± 0.13	0.87 ± 0.17
Kairo I	0.07 ± 0.11	0.83 ± 0.14
Kairo II	0.17 ± 0.06	0.75 ± 0.08

te Partikel untersucht. Somit finden sich sowohl Partikel mit frischen Bruchkanten als auch solche mit gerundeten Begrenzungen.

Bei allen untersuchten Proben liegen die Depolarisationen deutlich über den in der vorliegenden Arbeit gemessenen Werten. Nur die untersuchte Flugasche zeigt mit etwa 0.1 ähnliche Depolarisation wie die im ASA-Behälter gemessenen Stäube. Die in den zitierten Artikeln vermessenen Partikel weisen jedoch durchgängig größere Mediandurchmesser auf, sodass die Depolarisationsunterschiede zwischen den zitierten Artikeln und der vorliegenden Arbeit auf einen Größeneffekt zurückzuführen sein könnten.

In Tab. 5.6 fällt die Flugasche als Material mit im Vergleich zu den übrigen Proben geringer Depolarisation auf. Dieses Material zeigt eine fraktale Struktur aus gerundeten Einzelpartikeln und ähnelt damit der in der vorliegenden Arbeit untersuchten Probe Kairo II. Die von [MVH⁺01] verwendeten Partikel sind dabei größer als der Kairo II-Mineralstaub. Für diese Partikelform könnte demnach eine andere Abhängigkeit der Depolarisation von der Partikelgröße gelten als für weniger gerundete Partikel, wofür jedoch genauere Untersuchungen zu den Streueigenschaften dieser Formklasse gemacht werden müssten.

Tabelle 5.6: Ergebnisse der Streulichtmessungen an Mineralstaub (aus [MVH+00], [MVH+01], [MVH+02] und [VMR+01]): Depolarisation im senkrechten und parallelen Kanal für 173° sowie V/R für die Winkelkombination 5°/173°, verwendete Wellenlänge 441.6 nm.

Aerosoltyp	Probenaufbereitung	d_{eq}	σ_{eff}^a	$\delta_{CH_{\parallel}}$	$\delta_{CH_{\perp}}$	V/R_{\parallel}^b	V/R_{\perp}^c	
Feldspat	Bodenprobe, gemahlen	2.0 μ m	1.0	0.239 \pm 0.025	0.253 \pm 0.026	253 \pm 1.4	268 \pm 1.5	[VMR+01]
Rotton	Bodenprobe	3.0 μ m	1.3	0.231 \pm 0.115	0.233 \pm 0.117	378 \pm 7.6	381 \pm 7.7	[VMR+01], [MVH+01]
Grünton	Bodenprobe	3.2 μ m	1.2	0.280 \pm 0.060	0.288 \pm 0.062	350 \pm 7.6	362 \pm 7.9	[MVH+01]
Quartz	Bodenprobe, gemahlen	4.6 μ m	1.5	0.285 \pm 0.016	0.295 \pm 0.017	186 \pm 1.6	194 \pm 1.6	[VMR+01]
Löss	Bodenprobe	7.8 μ m	1.6	0.281 \pm 0.053	0.290 \pm 0.054	159 \pm 1.0	164 \pm 1.0	[VMR+01]
Sahara	Bodenprobe	16.4 μ m	2.0	0.384 \pm 0.151	0.378 \pm 0.149	45 \pm 0.7	44 \pm 0.7	[VMR+01]
Flugasche	Kohle-Verbrennungsprodukt	7.4 μ m	3.3	0.102 \pm 0.019	0.098 \pm 0.018	86 \pm 2.3	84 \pm 2.3	[MVH+01]
Pinatubo	Luftgetragene, sedimentiert	6.0 μ m	3.5	0.265 \pm 0.096	0.279 \pm 0.101	201 \pm 0.7	211 \pm 0.7	[VMR+01], [MVH+02]
Lokon	Luftgetragene, sedimentiert	14.2 μ m	1.6	0.267 \pm 0.187	0.272 \pm 0.191	102 \pm 1.4	105 \pm 1.4	[VMR+01], [MVH+02]
Allende	gemahlen	1.6 μ m	1.8	0.257 \pm 0.032	0.261 \pm 0.033	196 \pm 1.4	200 \pm 1.4	[MVH+00]
Olivin S	gemahlen, $d \leq 20 \mu$ m	2.6 μ m	1.3	0.306 \pm 0.019	0.316 \pm 0.020	142 \pm 1.9	148 \pm 2.0	[MVH+00]
Olivin M	gemahlen, $d \leq 65 \mu$ m	5.2 μ m	2.2	0.307 \pm 0.062	0.313 \pm 0.063	109 \pm 0.5	112 \pm 0.5	[MVH+00]
Olivin L	gemahlen, $20 \leq d \leq 65 \mu$ m	7.6 μ m	1.9	0.344 \pm 0.149	0.349 \pm 0.151	96 \pm 0.3	98 \pm 0.3	[MVH+00]
Olivin XL	gemahlen, $65 \leq d \leq 125 \mu$ m	12.6 μ m	2.6	0.331 \pm 0.496	0.333 \pm 0.500	103 \pm 4.6	105 \pm 4.7	[MVH+00]

^aStandardabweichung der Verteilung

^b V/R_{\parallel} $LASER_{\parallel}$

^c V/R_{\perp} $LASER_{\perp}$

Auch bei Feldmessungen sind Depolarisationsmessungen an Mineralstäuben vorgenommen worden, wobei sich diese Untersuchungen auf LIDAR-Messungen von Luftmassen mit mineralischem Aerosol beziehen. Wegen der unterschiedlichen Depolarisationsdefinition sind die Werte aus Tab. 5.4 nicht direkt mit der Depolarisation von LIDAR-Messungen vergleichbar; Tab. 5.7 zeigt die mit Gl. 3.3 umgerechneten Ergebnisse der Streulichtmessungen am ASA-Behälter.

LIDAR-Messungen finden in der direkten Rückwärtsrichtung statt; so sind die Feld-Messergebnisse nur eine Linearkombination der Matrixelemente F_{11} und F_{22} , während sich wie o. a. in der Differenz zwischen $\delta_{LIDAR}CH_{\parallel}$ und $\delta_{LIDAR}CH_{\perp}$ zeigt, dass für den betrachteten Winkel von 176° das Element F_{12} von 0 verschieden ist. Außerdem wird bei LIDAR-Geräten häufig eine andere Wellenlänge verwendet (meist 532 nm).

Tabelle 5.7: Depolarisation im senkrechten und parallelen Kanal, berechnet als Depolarisationsverhältnis aus den Streulichtmessungen an Mineralstaub.

Aerosol	$\delta_{LIDAR} CH_{\parallel}$	$\delta_{LIDAR} CH_{\perp}$
Arizona	0.032 ± 0.010	0.069 ± 0.019
Agadez	0.079 ± 0.024	0.065 ± 0.010
Kairo I	0.099 ± 0.023	0.085 ± 0.015
Kairo II	0.179 ± 0.022	0.121 ± 0.011

Einen Literaturüberblick über die in der Atmosphäre gemessenen Depolarisationen an Mineralstaub gibt Tab. 5.8. Danach weisen die Depolarisationsverhältnisse durch Mineralstaub Werte zwischen 0.08 und 0.25 auf.

Die in der vorliegenden Arbeit beobachteten Depolarisationen stimmen gut mit den bei den Feldexperimenten gemessenen Werten überein. Nur die Depolarisation der Arizona-Probe liegt unter den Ergebnissen der Feldmessungen. Wie die REM-Bilder dieses Materials gezeigt haben, zeichnet sich dieses Material durch frische Bruchkanten aufgrund des Vermahlens bei der Probenaufbereitung aus. Luftgetragene Partikel dagegen, wie beispielsweise bei Probe Kairo I, sind in der Regel prozessiert und weisen damit gerundete Partikelbegrenzungen auf.

Vorwärtsstreuverhältnis

Die in der vorliegenden Arbeit gemessenen Vorwärtsstreuverhältnisse zeigen geringere Unterschiede zwischen den jeweiligen Proben als bei der Depolarisation. Generell liegt das Vorwärtsstreuverhältnis sowohl für $V/R_{LASER_{\parallel}}$ als auch für

Tabelle 5.8: Depolarisation an Mineralstaub während verschiedener Feldmessungen (aus [IS03], [SDPP03], [MMW+03], [SSH+03], [SSI+02], [MSU+01]).

Messstandort	Herkunft des Mineralstaubes	δ_{LIDAR}	Literatur
atlantischer Ozean	Sahara	0.1 ^a	[IS03]
		0.08 ^b	
Florida	Sahara	0.1 ... 0.15	[SDPP03]
Leipzig	West-Sahara	0.1 ... 0.25	[MMW+03]
Nagoya	Westmongolei	0.14...0.18	[SSH+03]
Nagoya, Tsukuba	Wüste Gobi	0.25...0.33	[SSI+02]
Nagoya, Tokyo, Tsukuba	Wüste Gobi	0.1 ... 0.15	[MSU+01]

^a355 nm
^b532 nm

$V/R_{\text{LASER}\perp}$ zwischen 75 und 85. Einen höheren Wert weist nur "Kairo II" mit $V/R_{\text{LASER}\parallel}=103$ bzw. $V/R_{\text{LASER}\perp}=92$ auf.

Da die drei Proben Arizona, Agadez und Kairo I eine ähnliche Partikelgröße aufweisen, bestätigt sich bei diesen Proben der in Kap. 4.1.2 für Sphäroide gezeigte Zusammenhang: Im Submikrometerbereich ist das Vorwärtsstreuverhältnis ein Maß für die Partikelgröße.

Der höhere Wert von Kairo II dagegen kann nicht auf unterschiedliche Partikelgrößen zurückgeführt werden, da sich auch die Probe Kairo II nicht durch einen größeren Mediandurchmesser oder eine breitere Verteilung auszeichnet. Möglicherweise erklärt sich das höhere Vorwärtsstreuverhältnis von Kairo II durch die im Vergleich zu den anderen Proben runderen Partikelbegrenzungen, sodass die Ergebnisse darauf hindeuten, dass diese Partikelform nicht nur höhere Depolarisationen, sondern auch größere Vorwärtsstreuverhältnisse hervorbringt.

Vergleich des Vorwärtsstreuverhältnisses mit vorhandenen Messungen

In Tab. 5.6 sind für die Ergebnisse von [MVH+00], [MVH+01], [MVH+02] und [VMR+01] ebenfalls die Vorwärtstreuverhältnisse bei einer Winkelkombination von $5^\circ/173^\circ$ angegeben. Diese Winkel weichen jeweils um 1° bzw. 3° von den am ASA-Behälter verwendeten ab.

Hier gibt es keinen Zusammenhang von steigendem Vorwärtstreuverhältnis mit zunehmender Partikelgröße. In [VMR+01] erklären die Autoren dieses Ver-

halten an dem ähnlichen Maß "steepness" (vgl. Kap. 3.5) mit dem möglichen Einfluss des Imaginärteils des Brechungsindex. Die Proben Olivin S, M, L und XL stammen dagegen aus dem gleichen Ausgangsmaterial und haben daher ähnliche Brechungsindices, zeigen aber ebenfalls keine Abhängigkeit, wie sie bei den Sphäroiden kleinerer Radii gefunden wurde.

Wie bereits erläutert, befinden sich die Partikel aus den in Tab. 5.6 zusammengestellten Untersuchungen in einem anderen Größenbereich als die im ASA-Behälter gemessenen Mineralstäube. Beide Studien weisen jedoch darauf hin, dass neben der Partikelgröße auch die Partikelform einen Einfluss auf die Höhe des Vorwärtsstreuverhältnisses hat.

5.3 Vorschläge zur Verbesserung des Streulichtaufbaus

Die Streulichtapparatur am ASA-Behälter ist für die vorliegende Arbeit zur Messung von Depolarisations- und Vorwärtsstreuverhältnissen an asphärischen Partikeln aufgebaut worden. Durch die Einführung der Laserpolarisationsdrehung konnte die ursprüngliche Aufgabe der Depolarisationsmessung ohne einen Abgleich der beiden Photomultiplier in Rückwärtsrichtung gelöst werden, indem die Streusignale eines Kanals bei vertikaler und horizontaler Laserpolarisation zur Berechnung der Depolarisation verwendet werden. Die Unsicherheit in der Depolarisationsangabe ist somit um den Fehler beim Abgleich der Photomultiplier verringert.

Soll die Genauigkeit der Depolarisationsangabe weiter verbessert werden, könnten folgende Veränderungen am Aufbau und bei der Versuchsdurchführung vorgenommen werden: Wie in Kap. 3.2 erläutert, ist die Justage der optischen Elemente der Lasereinkopplung eine Quelle systematischer Fehler bei der gemessenen Depolarisation. Durch einen Einbau der optischen Elemente (Dünnschichtpolarisator und $\lambda/4$ -Plättchen) in einen Drehtisch mit Feinjustage kann ihre jeweilige Winkelausrichtung mit dem beschriebenen Verfahren optimiert und der Messfehler verringert werden.

Das in die Detektionseinheiten eingebaute Glan-Taylor-Prisma sollte von außen zugänglich gemacht werden, und ebenfalls mit einer Möglichkeit zur Feinjustage ausgestattet werden. Die Ausrichtung des Prismas kann dann durch folgendes Verfahren optimiert werden: Sind ausschließlich kugelförmige Partikel in der Kammer vorhanden, zeigt der senkrecht zur Laserpolarisationsrichtung stehende Kanal kein Partikelsignal. Unter Variation der Partikelkonzentration (Verdünnung von festen Partikeln durch Abpumpen) oder der Partikelgröße (Quel-

len von flüssigen Partikeln beim Abpumpen) kann die optimale Prismaposition durch Minimierung des Signals im senkrechten Kanal eingestellt werden.

Der zufällige Fehler kann durch die Streulichtmessung bei zusätzlichen Konzentrationsstufen verringert werden, wobei in der vorliegenden Arbeit bei den mineralischen Partikeln jeweils fünf Messungen durchgeführt wurden. Auch die Wahl von geringeren Filterabschwächungen und höheren Partikelkonzentrationen erhöht die Genauigkeit des Ergebnisses.

Durch die Einführung der Laserpolarisationsdrehung konnten neben dem eigentlichen Messwert der Depolarisation zusätzlich die Matrixelemente F_{22}/F_{11} und F_{12}/F_{11} angegeben werden. Wie in Kap. 5.2.2 gezeigt, weisen diese berechneten Verhältnisse nur eine wenig zufriedenstellende Genauigkeit auf. Der Grund hierfür liegt in der bereits erläuterten Berechnungsweise der Matrixelemente aus den gemessenen Depolarisationen, wobei diese Messwerte jeweils ein Quotient aus den gemessenen Zählraten sind und mehrfach in die Berechnung eingehen. Die Zählraten selbst werden dabei jeweils mit einer Untergrundkorrektur zur Berücksichtigung der Luftstreuung versehen.

Sollen mit dem Streulichtaufbau nicht nur Depolarisationen, sondern auch Matrixelemente mit guter Genauigkeit angegeben werden, müssen die Messungen so gestaltet werden, dass die Matrixelemente aus möglichst wenigen Umformungen berechnet werden. Eine Messung von Matrixelementen ist prinzipiell nur dann möglich, wenn verschiedene Polarisatoren (bei der Lasereinkopplung) und Analysatoren (vor dem Detektor) eingefügt werden. Tab. 5.9 zeigt einen Vorschlag, wie nicht nur die beiden o. a. Verhältnisse, sondern die komplette Streumatrix für zufällig orientierte Partikel bestimmt werden kann (vgl. auch [BH98], dortige Tab. 13.1). Für diese Messungen wird pro Winkel nur noch ein Photomultiplier in horizontaler Montierung benötigt.

Die Lasereinkoppelseite müsste demnach modular aufgebaut werden: Das $\lambda/4$ -Plättchen in 45° -Stellung und der folgende Dünnschichtpolarisator sollten optional in den Strahlengang einzufügen sein, wobei der Polarisator zusätzlich in -45° -, 90° - und 0° -Stellung reproduzierbar einzustellen sein muss. Auch die Detektorseite müsste entsprechend mit austausch- und drehbarem Dünnschichtpolarisator und $\lambda/4$ -Plättchen versehen werden.

Die auf F_{11} normierten Matrixelemente berechnen sich bei diesem Aufbau immer noch aus drei unabhängigen Messungen (F_{12}/F_{11} : zwei Messungen). Das Matrixelement $F_{12}/F_{11}(4^\circ)$ in Tab. 5.5 ist wie in der hier zusammengestellten Tab. 5.9 berechnet worden, wobei sich gerade bei der Berechnung dieses kleinen Wertes ein großer Messfehler aufgrund der Berechnung aus großen Ursprungsmesswerten mit entsprechendem Fehler ergibt. Für eine genauere Angabe der Matrixelemente

müssen also die oben erläuterten Möglichkeiten zur Verringerung der Messfehler angewandt werden.

Tabelle 5.9: Mögliche Konfiguration mit Polarisatoren (P) und Analysatoren (A) zur Messung der Matrixelemente eines zufällig orientieren Partikelensembles.

optische Elemente	Streuintensität proportional zu	Matrixelementberechnungen
P_{\perp}	$\frac{1}{2}(F_{11} - F_{12})$	$F_{11} \sim I_{P_{\perp}} + I_{P_{\parallel}}$
P_{\parallel}	$\frac{1}{2}(F_{11} + F_{12})$	$\frac{F_{12}}{F_{11}} = -\frac{2I_{P_{\perp}}}{I_{P_{\perp}} + I_{P_{\parallel}}}$
$P_{\parallel} \quad A_{\perp}$	$\frac{1}{4}(F_{11} - F_{22})$	$\frac{F_{22}}{F_{11}} = -\frac{4I_{P_{\parallel}A_{\perp}}}{I_{P_{\perp}} + I_{P_{\parallel}}}$
$P_{-45^{\circ}} \quad A_{-45^{\circ}}$	$\frac{1}{4}(F_{11} + F_{33})$	$\frac{F_{33}}{F_{11}} = -\frac{4I_{P_{-45^{\circ}}A_{-45^{\circ}}}}{I_{P_{\perp}} + I_{P_{\parallel}}}$
$P_L \quad A_{-45^{\circ}}$	$\frac{1}{4}(F_{11} + F_{34})$	$\frac{F_{34}}{F_{11}} = -\frac{4I_{P_L A_{-45^{\circ}}}}{I_{P_{\perp}} + I_{P_{\parallel}}}$
$P_L \quad A_L$	$\frac{1}{4}(F_{11} + F_{44})$	$\frac{F_{44}}{F_{11}} = -\frac{4I_{P_L A_L}}{I_{P_{\perp}} + I_{P_{\parallel}}}$

P_{\perp}, P_{\parallel} : senkrechte, parallele Laserpolarisation, $P_{-45^{\circ}}$: Laserpolarisation in -45° -Winkel zur Streuebene, A_{\perp} : senkrechter Analysator, $A_{-45^{\circ}}$: Analysator in -45° -Winkel zur Streuebene, A_L : links zirkularer Analysator.

Wenn die Streulichtapparatur von der Depolarisations- auf die systematische Matrixelementmessung umgestellt werden soll, ist zu empfehlen, ein für diese Zwecke besser geeignetes, häufig eingesetztes System mit polarisationsmoduliertem Polarisator zu verwenden (vgl. [BH98], [VMR⁺01]). Der Hauptunterschied zu dem oben erläuterten System besteht in einem auf dem Pockels-Effekt beruhenden Polarisator: ein Einkristall wird durch modulierte Spannung in ein doppelbrechendes Material verwandelt. Je nach Phasenlage weist der Kristall demnach unterschiedliche Polarisationsseigenschaften auf.

Die gemessene Streuintensität ist proportional zu den normierten Matrixelementen. Unter Verwendung horizontal polarisierten Laserlichtes, dem Modulator in 45° -Stellung ohne weitere optische Elemente (Polarisatoren und Analysatoren) ist die gemessene Streuintensität I ([BH98]):

$$I = \frac{1}{2}CF_{11} \left(1 + \frac{F_{12}}{F_{11}}2J_2(A)\cos 2\omega t + \frac{F_{14}}{F_{11}}2J_1(A)\sin \omega t + \dots \right) \quad (5.2)$$

- mit C : detektorspezifischer Faktor,
 J_1, J_2 : amplitudenabhängige Konstanten,
 ω : Frequenz des elektrischen Feldes des Modulators.

Durch die Verwendung verschiedener Kombinationen von Polarisatoren und Analysatoren können wiederum alle Elemente der Streumatrix bestimmt werden (vgl. z. B. [VMR⁺01]). Die Signalaufnahme erfolgt dann mit phasensensitiver (ω bzw. 2ω) lock-in-Detektion.

Kapitel 6

Eisnukleationsexperimente an der AIDA-Kammer

Die in der vorliegenden Arbeit gezeigten Experimente sind während einer Messkampagne an der AIDA-Kammer im Juli 2002 (IN02) unter Beteiligung verschiedener Gruppen durchgeführt worden. In die vorliegende Arbeit sind Messergebnisse vom Forschungszentrum Jülich (ICG-1, FISH-Hygrometer) und der Universität Manchester (Physics Department, Cloud Particle Imager) eingegangen. Das Ziel der Messkampagne war die Untersuchung der eisbildenden Eigenschaften von Ruß und Mineralstaub.

Im Folgenden wird gezeigt, dass mit Hilfe des Streulichtaufbaus neben der Bestimmung des Eisbildungszeitpunktes auch eine Charakterisierung der Streueigenschaften der während der Eisnukleationsexperimente gebildeten Eispartikel möglich ist.

6.1 Kalibration der Streulichtapparatur

Der Streulichtaufbau an der AIDA-Aerosolkammer muss, wie auch der Aufbau an der ASA-Kammer, für die Auswertung der Depolarisation der Rückstreuung und des Vorwärtsstreuverhältnisses kalibriert werden. Der Abgleich der Photomultiplier CH_{\perp} und CH_{\parallel} in Rückwärtsrichtung erfolgt mittels unpolarisiertem Licht.

Da für den AIDA-Aufbau zum Zeitpunkt der IN02-Messkampagne keine Drehung der Laserpolarisation mittels $\lambda/4$ -Plättchen und Dünnschichtpolarisator vorgesehen war, muss der Abgleich der Photomultiplier in Rückwärtsrichtung anders als beim ASA-Aufbau (Kap. 5.1.2) erfolgen. Hier werden stattdessen die bekannten Polarisationsseigenschaften von natürlichem Licht ausgenutzt: In der

AIDA-Kammer befindet sich eine Halogen-Weißlichtquelle, deren Intensität über die Verwendung verschiedener Betriebsspannungen variiert werden kann. Das von ihr erzeugte Licht zeichnet sich dadurch aus, dass es keine bevorzugte Polarisationsrichtung besitzt.

Durch die Verwendung des Glan-Taylor-Prismas wird dieses Licht im Verhältnis 1:1 auf die beiden Polarisationsrichtungen aufgeteilt; die nach Gl. 3.6 und Gl. 3.9 definierte Depolarisation beträgt also 0.5. Unter Variation der Lichtintensität werden die Streuintensitäten in parallel und senkrecht zur Streuebene stehender Polarisationsrichtung gemessen.¹ Unter Berücksichtigung der verwendeten Abschwächerfilter und des jeweils gemessenen Dunkelstroms wird die experimentell vorhandene Depolarisation berechnet. Durch den Vergleich mit der erwarteten Depolarisation von 0.5 ergibt sich ein Faktor von 1.81 ± 0.1 , mit dem die Messwerte des parallelen Kanals multipliziert werden müssen. Bei dem AIDA-Aufbau weist somit der parallele Streukanal eine um diesen Faktor geringere Empfindlichkeit auf als der senkrechte Kanal.

6.2 Instrumentierung während der Messkampagne

Neben dem bereits beschriebenen Streulichtaufbau kommen verschiedene weitere Messgeräte zum Einsatz. Dies sind ein Cloud Particle Imager (CPI) sowie ein optischer Particle Counter Sizer (PCS), die im Folgenden kurz beschrieben werden.

Einen Überblick über die Anordnung dieser Instrumente an der Versuchskammer gibt Abb. 6.1.

6.2.1 Cloud Particle Imager

Unter der Versuchskammer wurde während der Messkampagne ein Cloud Particle Imager (CPI, Spec. Inc.) der Universität Manchester über eine vertikale Probenahmeleitung eines Durchmessers von 1.8 cm mit einem Volumenfluss von 501 min^{-1} betrieben.

Die Emissionen zweier cw-Laserdioden ($\lambda=780 \text{ nm}$) werden durch entsprechende Optiken auf ein rechteckiges Strahlprofil gebracht ($2.5 \times 0.5 \text{ mm}$) und kreuzen sich im aerosoldurchströmten Teil des Gerätes, wodurch sich ein quaderförmiges Messvolumen ergibt. Passiert ein Partikel dieses Messvolumen, wird

¹Die Angaben "parallel" und "senkrecht" sind in diesem Kapitel immer bezüglich der Laserpolarisation zu lesen. Wegen der vertikal zur Streuebene stehenden Laserpolarisation entspricht der als "parallel" bezeichnete Kanal dem senkrecht montierten Photomultiplier und umgekehrt.

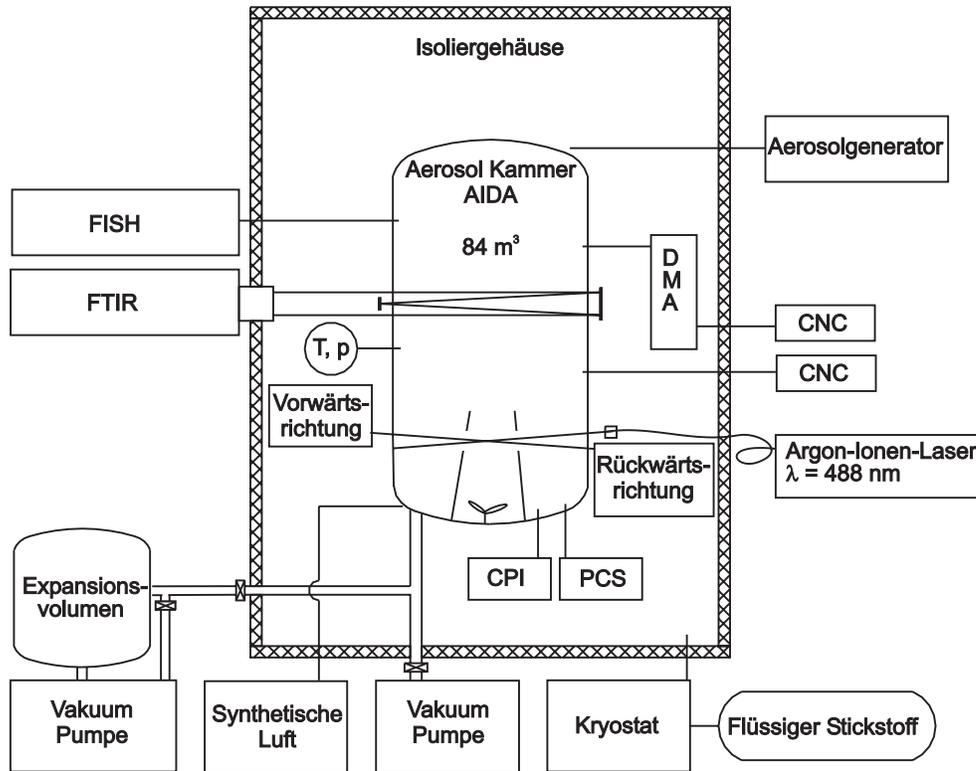


Abbildung 6.1: Schematische Anordnung der Messinstrumente an der AIDA-Kammer (nach [MSS⁺03]).

eine dritte, gepulste Laserdiode ($\lambda = 850 \text{ nm}$) getriggert, die das Messvolumen kurzzeitig (ca. 30 ns) beleuchtet. Über eine Mikroskopoptik (Abbildungsmaßstab 5:1) wird ein stehendes, vergrößertes Schattenbild des Partikels auf dem Chip einer CCD-Kamera erzeugt. Diese Kamera besitzt 1024x1024 Pixel einer Größe von $12 \mu\text{m} \times 12 \mu\text{m}$, wodurch sich eine Auflösung von $2.3 \mu\text{m}$ bezüglich der Objektebene ergibt, was die minimale detektierte Größe bestimmt. Verlässliche Größen- und Forminformationen sind aufgrund der Abbildungsfehler (s. u.) und der Anzahl der Pixel pro Partikel ab etwa $30 \mu\text{m}$ zu erwarten.

Eine kommerzielle Software wertet die Eigenschaften der abgebildeten Partikel hinsichtlich Partikellänge, -breite, -umfang und -projektionsfläche aus. Dabei sind Länge und Breite die maximale Ausdehnung des abgebildeten Partikels bzw. die Abmessung senkrecht dazu; die Projektionsfläche ergibt sich aus Anzahl und Größe der abbildenden Pixel (s. Abb. 6.3).

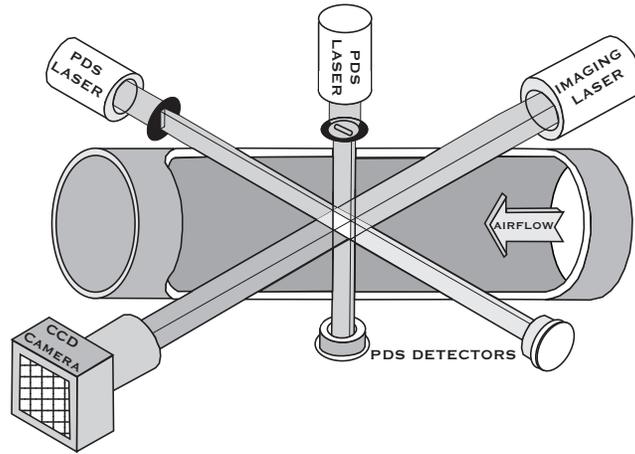


Abbildung 6.2: Funktionsprinzip des Cloud Particle Imagers
[http:// www.specinc.com/cpi_operation.htm](http://www.specinc.com/cpi_operation.htm).

Größenbestimmung der Eiskristalle mit dem CPI

Weisen die während einer Aktivierung gebildeten Eiskristalle eine genügende Größe auf (Partikellänge über $30\ \mu\text{m}$), werden die vom CPI aufgezeichneten Abbildungen für die Bestimmung der Partikelgröße verwendet.

Aus den Bildinformationen wird dabei ein Maß für die Partikelgröße gesucht, das den Streueigenschaften der abgebildeten Partikel am besten entspricht. Dafür wird im Folgenden der äquivalente Durchmesser d_{eq} eines sphärischen Partikels mit gleicher Projektionsfläche verwendet, der berechnet wird als:

$$d_{eq} = 2\sqrt{\frac{Area}{\pi}}, \quad (6.1)$$

mit $Area$ Projektionsfläche des Partikels.

Diese Größe wurde gewählt, da die Streueigenschaften eines nicht-absorbierenden Partikels, das groß im Verhältnis zur Wellenlänge ist (geometrische Optik), durch seine Projektionsfläche bestimmt wird, wobei gilt ([BH98]):

$$C_{sca} = 2Area \quad \text{für} \quad d \gg \lambda, \quad (6.2)$$

mit C_{sca} Streuquerschnitt,
 d Partikeldurchmesser,

λ Wellenlänge.

An die Verteilungen $dN/d \log d_{\text{eq}}$ aus jeweils dem Zeitraum einer Eisexpansion werden lognormal-Verteilungen angefitet und deren Eigenschaften Mediandurchmesser (x_c) und Verteilungsbreite (σ) bestimmt.

Die mit dem PCS bestimmten Streuquerschnitte für deutlich kleinere Eiskristalle (Kap. 6.2.2) werden mittels Kalibration unter der Annahme sphärischer Partikel ebenfalls einer Partikelgröße zugeordnet. Damit beruhen beide Messungen auf einer optischen Bestimmung der Partikelgröße.

Charakterisierung der Asphärizität von Eiskristallen mit dem CPI

Aus den Bildeigenschaften können zudem sekundäre Größen berechnet werden, die ein Maß für die Asphärizität der abgebildeten Partikel sind, wie Formfaktor (aspect ratio, α) und Rundheit (roundness, β). Diese sind definiert als (vgl. [KI03]):

$$\alpha = \frac{D_w}{D_{max}}, \quad (6.3)$$

$$\beta = \frac{4S_{meas}}{\pi D_{max}^2}, \quad (6.4)$$

mit

D_{max}	maximale Partikelausdehnung,
D_w	Länge senkrecht zu D_{max} ,
S_{meas}	Projektionsfläche des Partikels.

Beide Maße sind für kugelförmige Partikel 1 und nehmen mit zunehmender Asphärizität ab; für die einfache asphärische Form des Sphäroids gilt dabei: $\alpha = \beta$. Dabei ist die Rundheit ein Maß für den Flächenausfüllungsgrad eines Kreises mit dem Durchmesser D_{max} .

Die Genauigkeit der CPI-Datenauswertung wird in [KI03] diskutiert. Demnach gibt es verschiedene Faktoren, die zu Fehlern bei der Bestimmung von Rundheit bzw. Formfaktor führen können: dazu gehören die Abbildung von Partikelteilen statt des vollständigen Partikels, optische Aberrationen, Fresnel-Beugung durch die Verwendung von kohärentem Laserlicht sowie Ungenauigkeiten durch ein zu kleines Verhältnis von Partikelgröße und Pixelgröße.

Werden sphärische Partikel (Wassertröpfchen) mit Hilfe von Formfaktor und Rundheit charakterisiert, zeigt sich aufgrund der Anzahl der Pixel pro Partikel ein deutlicher Zusammenhang zwischen Partikelgröße und Mittelwert des betrachteten Maßes (vgl. [KI03]): je größer die Tröpfchen, desto geringer die Abweichung

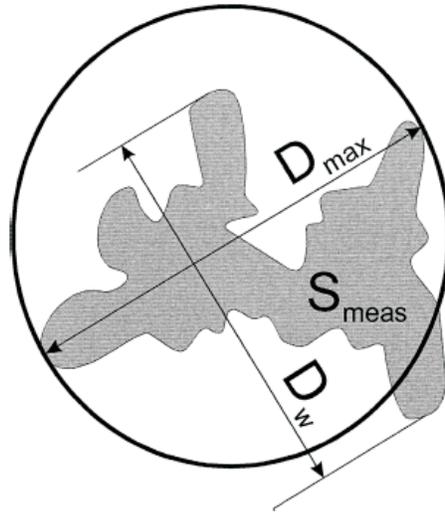


Abbildung 6.3: Bestimmung von Länge und Breite der vom CPI abgebildeten Partikel (aus [KI03]).

vom theoretischen Wert 1. Dabei ist die Empfindlichkeit des Formfaktors auf solche Verzerrungseffekte deutlich größer als die der Rundheit. Bei der Berechnung von Formfaktor und Rundheit von Tröpfchen zwischen $20\ \mu\text{m}$ und $30\ \mu\text{m}$ zeigt sich ([KI03]), dass 90 % eine Rundheit größer als 0.9, jedoch nur 60 % einen Formfaktor größer als 0.9 aufweisen. Um zu vermeiden, dass kugelförmige Teilchen als asphärische Partikel interpretiert werden, wird für die weitere Auswertung das Maß der Rundheit verwendet.

Generell gilt für die Interpretation der Rundheit: Die Werte werden, wie oben erläutert, aus der Analyse von Bilddaten gewonnen, die jeweils eine Projektion eines beliebig orientierten Partikels darstellen. Damit können vor allem stark asphärische Partikel in ihrer Rundheit überschätzt werden, da beispielsweise eine annähernd kreisförmige Projektionsfläche sowohl von einem fast sphärischen Partikel als auch von einem nadelförmigen Eiskristall, der in Richtung seiner Achse abgebildet wurde, stammen kann. Partikelensembles mit einem signifikanten Anteil stark asphärischer Partikel zeichnen sich jedoch zusätzlich aufgrund der verschiedenen Orientierungsmöglichkeiten durch eine hohe Streuung der Rundheit aus.

6.2.2 Particle Counter Sizer

Ebenfalls unter der Versuchskammer ist ein Streulichtspektrometer (PCS 2000, Palas) angebracht, das mit einem Volumenfluss von 5 l min^{-1} versorgt wird. In dem Gerät befindet sich eine Weißlichtquelle, die für eine Beleuchtung des Partikelstroms sorgt. Zwei Photomultiplier, die sich jeweils unter einem mittleren Winkel von 90° zur Lichtquelle befinden, sind mit einer Öffnungsblende im Strahlengang ausgestattet. Die Aperturen dieser beiden Blenden definieren das Messvolumen und sind so ausgelegt, dass sich zwei verschachtelte Messvolumina ausbilden.

Durch den Vergleich der Signalintensität eines einzelnen Partikels in beiden Messsystemen können Partikel, die sich vollständig im Innern der beiden Volumina befinden, identifiziert und so Randzonenfehler eliminiert werden. Als Kriterium für die Randzonenkorrektur wird eine Differenz der Spannungsimpulshöhen um mehr als 33 % verwendet. Im Folgenden werden die von dem Photomultiplier mit der größeren Öffnungsblende gemessenen Partikel mit System 1 (Sys1), die randzonen-korrigierten Messwerte mit System 2 (Sys2) benannt.

Anhand einer Kalibration werden die gemessenen Spannungsimpulse einer von 128 Größenklassen zugeordnet, wobei unter der Annahme sphärischer Partikel und eines Brechungsindex von 1.33 ein Größenbereich zwischen $0.6\ \mu\text{m}$ und $42\ \mu\text{m}$ erfasst wird.

Einen typischen Verlauf der mit dem PCS gemessenen Größenverteilungen während eines Eisnukleationsexperimentes (vgl. Kap. 6.3.1) zeigt Abb. 6.4 anhand von Experiment 148². Dargestellt sind die Verteilungen $dN/d\log d_p$, aus den Zählraten eines jeweils zweiminütigen Zeitraums, wobei sich die Zeitangaben auf den Beginn der Expansion beziehen. Die Anzahl der gemessenen Partikel ist bei der Betrachtung von System 2 geringer, weil Teilchen, die sich im Randbereich des Messvolumens befinden, hier nicht betrachtet werden (s. o.).

Bereits vor dem Beginn der Eisnukleation im Zeitintervall $-100 \dots 20\text{ s}$ ist im unteren Messbereich der Rand einer Verteilung zu erkennen. Dies tritt bei der Verwendung von gut streuenden, genügend großen Ausgangsaerosolen, wie z. B. Lösungströpfchen oder mineralischen Partikeln auf und stellt somit den oberen Rand der Verteilung des Ausgangsaerosols dar.

Aus dieser Mode entwickelt sich nach Einsatz der Nukleation, die bei Überschreiten der kritischen Eisübersättigung infolge der sinkenden Gastemperatur erfolgt (s. Kap. 6.3.1), eine zweite Mode, die die gebildeten Eiskristalle enthält. Für die Charakterisierung dieser Eiskristallmode wird für jede berechnete Verteilung eine Schwelle gesetzt; in Abb. 6.4 ist diese Schwelle für den Zeitraum

²Die Experimentnummern beziehen sich auf die intern zugängliche AIDA-Datenbank.

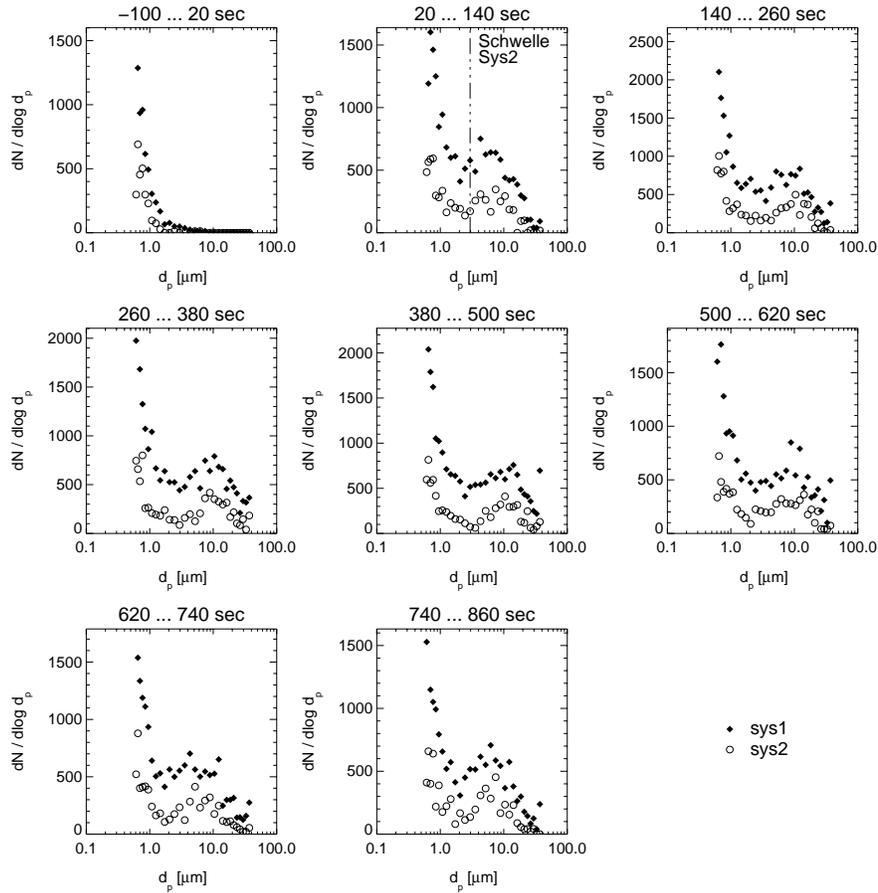
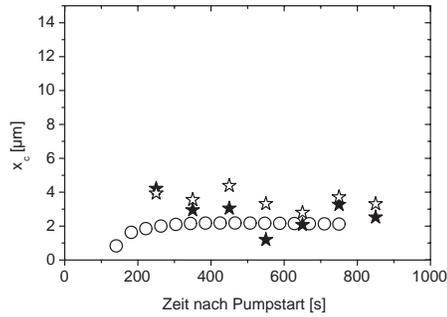


Abbildung 6.4: Entwicklung der PCS-Größenverteilungen im Verlauf von Eisaktivierung 148, Ausgangsaerosol: Mineralstaub (Arizona).

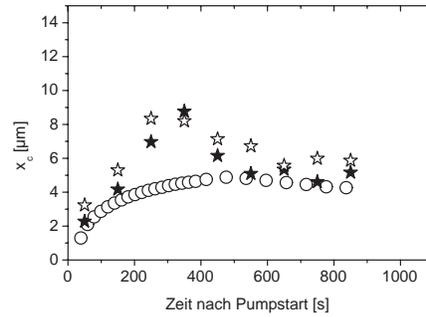
20 ... 140 s für System 2 eingezeichnet. An diese Mode mit Eiskristallen wird eine lognormal-Verteilung angefügt, woraus sich die Verteilungsmomente geometrische Breite (σ_g), Gesamtanzahlkonzentration (N) sowie der im Folgenden dargestellten Mediandurchmesser (x_c) ergeben.

Für die Bewertung der Qualität dieser Fitergebnisse aus der Eiskristallmode der PCS-Verteilungen soll ein Vergleich mit den Ergebnissen von MIE-Fits an FTIR-Extinktionsmessungen ([Wag03]) dienen. Die Ergebnisse hinsichtlich des Mediandurchmessers x_c dieser unter der Annahme sphärischer Partikel durchgeführten Fits ([WMM⁺03]) werden im Folgenden dargestellt. Für die optischen Konstanten werden die Datensätze aus [RGC⁺01] und [CMW95] verwendet.

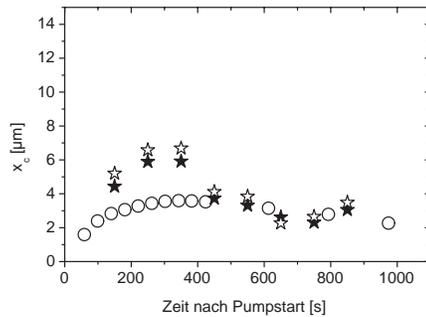
Das Ergebnis dieses Vergleichs zeigt Abb. 6.5. Danach weisen die Mediandurchmesser der FTIR-Fitergebnisse einen deutlich glatteren Verlauf auf als die Ergebnisse der PCS-Messungen. Besonders in der Wachstumsphase der Eispar-



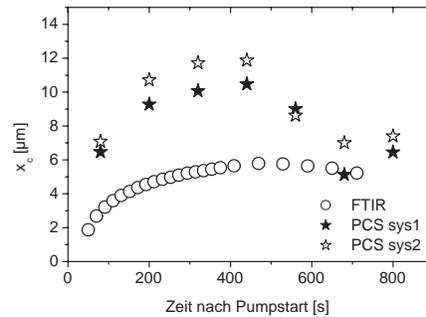
(a) Akt. 34, 195 K, Schwefelsäure.



(b) Akt. 147, 223 K, Mineralstaub.



(c) Akt. 30, 210 K, Schwefelsäure/Ammoniumsulfat.



(d) Akt. 148, 223 K, Mineralstaub.

Abbildung 6.5: Vergleich des Mediandurchmessers von Eispartikeln aus FTIR-Fitgergebnissen und lognormal-Fits an Größenverteilungen der PCS-Messungen während der Aktivierungen 30, 34, 147 und 148.

tikel liefern die mit dem PCS gemessenen Größenverteilungen deutlich höhere Mediandurchmesser, während gegen Ende der Aktivierungen die Übereinstimmung beider Methoden besser ist.

Die Entwicklung der Größenverteilungen, wie sie sich aus den Ergebnissen der FTIR-Fits darstellen, kann wie folgt nachvollzogen werden: Nach dem Einsetzen der Nukleation wachsen die Partikel aufgrund des steigenden Wassermischungsverhältnisses durch Nachlieferung von Wasserdampf von der eisbedeckten isothermen Wand weiter an (vgl. [HKS⁺03]). Mit der Beendigung der Drucker-niedrigung sinkt wegen der dann steigenden Gastemperatur die Übersättigung wieder, wodurch ein langsames Verdampfen der Eispartikel einsetzt. Die Größe der Partikel und damit auch der Mediandurchmesser der Verteilung nimmt somit wieder ab.

Neben den in Abb. 6.5 gezeigten Mediandurchmessern zeigen auch die Verteilungsbreiten der beiden Fitmethoden Unterschiede: die mit dem FTIR-Retrieval gefundenen Verteilungsbreiten sind mit $\sigma \approx 1.25$ deutlich schmäler als die mit dem PCS gemessenen ($\sigma \approx 2 \dots 3$).

Dies kann darauf zurückgeführt werden, dass bei der Messung nicht-sphärischer Partikel, wie z. B. Eiskristallen, verschiedene Orientierungen im Messvolumen möglich sind, die mit unterschiedlichen Streuintensitäten in die von der Detektorgeometrie festgelegte Raumrichtung verbunden sind. Damit zeigen die aus den Streuintensitäten berechneten Größenverteilungen eine breitere Verteilung auf, als es bei der Messung von sphärischen Partikeln der Fall wäre. Die deutlich erhöhten Mediandurchmesser der PCS-Fits im Vergleich zu den FTIR-Ergebnissen während der Wachstumsphase könnten ebenfalls auf diesen Effekt zurückzuführen sein.

Die Ergebnisse der FTIR-Messungen, die auf Absorptionsmessung beruhen, sind empfindlich auf das gebildete Eisvolumen. Aufgrund der Annahme sphärischer Partikel besteht hier eine Unsicherheit bezüglich der Partikelgröße und damit der Partikelzahl, die demnach unterschätzt wird. Dagegen sind die PCS-Messungen, wie oben gezeigt, empfindlich auf die vorhandene Partikelform.

Ein weiterer Unterschied beider Verfahren besteht darin, dass die FTIR-Messungen *in situ* durchgeführt werden, während für die PCS-Messungen eine Probenahme (s. o.) erfolgt. Somit können die Ergebnisse des PCS durch Probenahmeartefakte, wie Abscheidung größerer Partikel, beeinflusst werden.

Die Ergebnisse der randzonen-korrigierten PCS-Messungen (System 2) werden im Folgenden zur Charakterisierung der Eispartikelgröße verwendet, wenn die gebildeten Eiskristalle sehr klein (typischerweise $< 10 \mu\text{m}$) sind, und die gesamte Verteilung im Messbereich des PCS liegt. Dabei ist zu beachten, dass die Zuordnung der Partikelgröße unter der Annahme sphärischer Partikel erfolgt, was, wie oben erläutert, Einfluss sowohl auf Verteilungsbreite als auch auf Mediandurchmesser hat. Die Unsicherheit der Größenangabe auf der Grundlage der PCS-Messungen kann aus den dargestellten Vergleichen mit den FTIR-Fits mit einem Faktor 2 geschätzt werden.

Für die durchgeführten Auswertungen ist diese Genauigkeit insofern ausreichend, als die Ergebnisse der PCS-Messungen als Indikator für Eisnukleationsexperimente mit kleinen Eispartikeln verwendet werden und Aktivierungen mit deutlich größeren Kristallen ($30 \dots 70 \mu\text{m}$) gegenübergestellt werden (vgl. Abb. 6.8 und Abb. 6.9). Für die Darstellung der Entwicklung einer Größenverteilung im Verlauf eines Experimentes und den Vergleich mit den Streulichtmessungen wird zusätzlich die maximale detektierte Partikelgröße betrachtet (Abb. 6.10).

6.3 Charakterisierung und Verlauf der Eisexpansionsexperimente

6.3.1 Experimentverlauf

Zur Untersuchung der heterogenen Eisnukleation auf mineralischen Partikeln wird die bereits bei der Untersuchung der homogenen Eisnukleation verwendete Methode der adiabatischen Kühlung der AIDA-Kammer eingesetzt ([MSS⁺03], [HKS⁺03]): In die Kammer wird synthetische Luft bis zu einem Druck von 1 atm bei Temperaturen zwischen -20°C und -85°C gefüllt.

Da die Kammerwand innen vor dem Experiment mit einer dünnen Eisschicht überzogen ist, herrschte nahezu Eissättigung, entsprechend Wasserdampf-Partialdrücken von 1.04 hPa bei -20°C und 0.02 Pa bei -85°C.

Das Mineralstaubaerosol, bei dem es sich um das gleiche Material wie das in Kap. 5.2.1 beschriebene handelt, stammt aus der Wüste von Arizona (Powder Technology Inc.) und wird ebenfalls mit einem Bürstengenerator (RBG, Palas) extern erzeugt und anschließend in die Kammer geleitet. Ruß (Exp. 165, s. Tab. 6.1) wird extern mit einem Funkengenerator (GfG, Palas) erzeugt, und ebenfalls in die Kammer geleitet. Die Ausgangsgrößenverteilung im Behälter (Abb. 6.6) wird mit Hilfe eines modifizierten DMA zum Einsatz bei tiefen Temperaturen und reduziertem Druck gemessen.

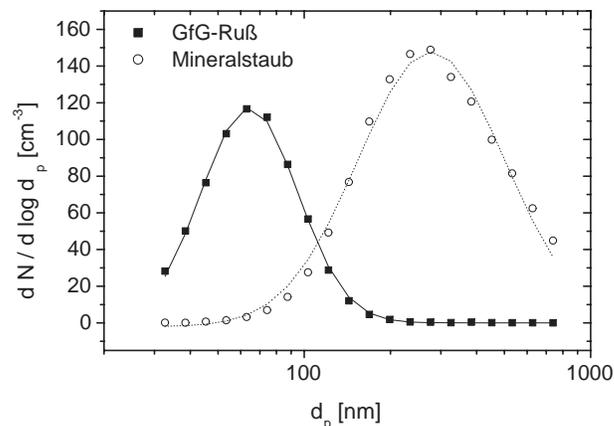


Abbildung 6.6: Typische Ausgangsgrößenverteilungen von GfG-Ruß und Mineralstaub bei den Expansionsexperimenten.

Eine Druckerniedrigung durch kontrolliertes Pumpen verursacht eine Absenkung der Gastemperatur (Abb. 6.7); dagegen bleibt die Wandtemperatur wegen

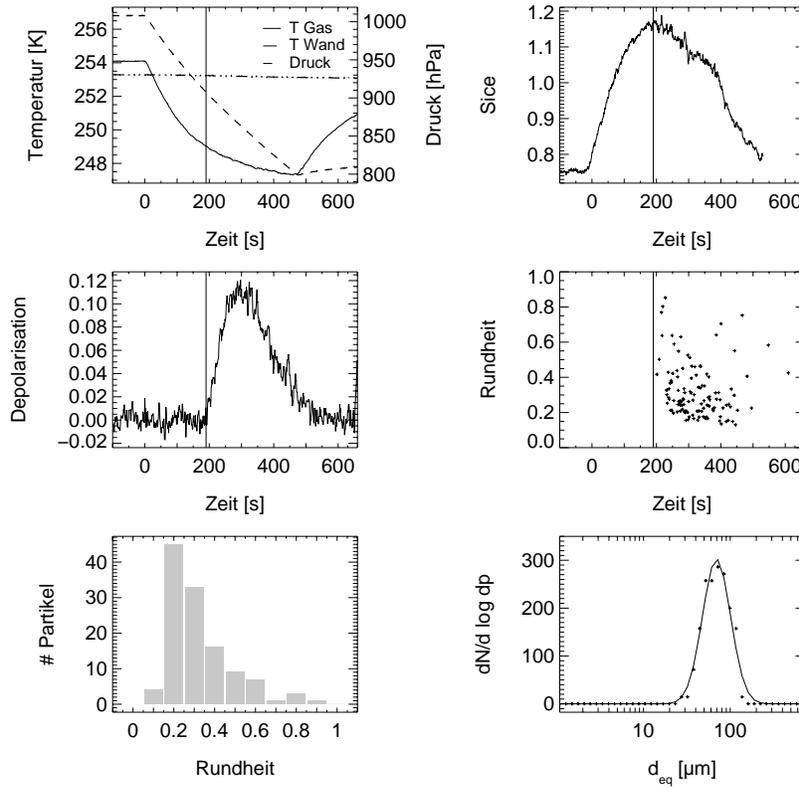


Abbildung 6.7: Verlauf von Druck, Gas- und Wandtemperatur, Eisübersättigung, Depolarisation und Rundheit während einer Eisaktivierung sowie Häufigkeitsverteilung der Rundheit und Größenverteilung der Eispartikel während der gesamten Expansion (Exp. 80, t_0 : Pumpstart, vertikale Linie: mit Depolarisation bestimmter Eisbildungszeitpunkt, für den Depolarisationsverlauf ist die Hintergrunddepolarisation vor dem Eisbildungszeitpunkt subtrahiert).

der hohen Wärmekapazität der Behälterwand aus 2 cm dickem Aluminium konstant (quasi-adiabatische Expansion). Während die Druckabsenkung eine Verringerung des Wasserpartialdruckes bewirkt, nimmt durch die gleichzeitige Temperaturabnahme der Sättigungspartialdruck ab. Die Temperaturabnahme ist dabei nur zu Beginn der Expansion adiabatisch ([MSS⁺03]). Durch die Wärmenachlieferung von der Wand nimmt die Temperaturabsenkungsrate mit der Dauer des Pumpens ab. Mit diesem Wärmefluss ist außerdem ein Wasserfluss von der eisbedeckten Wand verbunden. Dieser wirkt der Wasserdampfentnahme durch Abpumpen entgegen und erhält im Behälter einen Wasserdampfpartialdruck nahe Eissättigung bei der Wandtemperatur aufrecht.

Somit verursacht das Pumpen eine Eisübersättigung; erreicht diese einen kritischen Wert, wird die Nukleation von Eis induziert, die, wie im Folgenden gezeigt, mit verschiedenen Messinstrumenten verfolgt werden kann.

Depolarisation

Durch die Aktivierung von Mineralpartikeln zu Eiskristallen findet eine Formveränderung der Partikel mit gleichzeitiger Größenzunahme statt (Kap. 4.1.1). Damit ist eine Zunahme der Depolarisation verbunden, sodass der Verlauf der Depolarisation sensitiv auf die Bildung von Eiskristallen ist.

Dieses Verhalten wird in Abb. 6.7 deutlich: 200 s nach dem Start der Expansion steigt die Depolarisation steil an und erreicht mit dem Partikelwachstum ein Maximum; nach dem vollständigen Verdampfen der Partikel wird wieder die Ausgangsdepolarisation erreicht. Der aus dem Depolarisationsanstieg bestimmte Zeitpunkt der Eisnukleation ist in den Diagrammen durch eine vertikale Linie gekennzeichnet.

Für Abb. 6.7 ist die Hintergrunddepolarisation durch Streuung an der Behälterwand sowie durch die mineralischen Partikel vor dem Expansionsbeginn subtrahiert, sodass in dieser Abbildung der relative Verlauf der Depolarisation wiedergegeben wird.

Die Auswertung der Streueigenschaften der gebildeten Eiskristalle wird folgendermaßen durchgeführt: Die Depolarisation wird aus den Streuintensitäten des parallelen und senkrechten Kanals unter Berücksichtigung der Hintergrundstreuung (I^{UG}) im jeweiligen Kanal berechnet:

$$\delta_{AIDA} = \frac{I_{\perp} - I_{\perp}^{UG}}{I_{\perp} - I_{\perp}^{UG} + I_{\parallel} - I_{\parallel}^{UG}} \quad (6.5)$$

Zusätzlich wird der Faktor für den Abgleich der relativen Empfindlichkeiten der Photomultiplier in Rückwärtsrichtung (Kap. 6.1) eingerechnet. Bei dieser Berechnungsweise werden nur die Streuintensitäten der sich bildenden Eiskristalle einbezogen, sodass die nach Gl. 6.5 berechnete Größe nur die Depolarisation durch Eiskristalle widerspiegelt.

Während aller in der vorliegenden Arbeit gezeigten Eisexpansionen ist die Versuchskammer mit einem Ventilator durchmischst worden. Dieser ist zentriert am Kammerboden angebracht; ein sich nach oben verjüngender Blechzylinder sorgt für eine gleichmäßige Durchmischung eines Großteils des Behältervolumens bis in die zweite Ebene der Kammer (Abb. 6.1). Das Streuvolumen der Depolarisationsapparatur befindet sich im oberen Drittel dieses Blechzylinders, wobei

sowohl der Beobachtungs- als auch der Laserstrahl durch beiderseitige Aussparungen geführt werden.

In 0.5 m Höhe über dem Kammerboden bewirkt der Ventilator eine vertikale Windgeschwindigkeit von etwa 0.5 m s^{-1} , sodass von einer turbulenten Durchmischung im Streuvolumen ausgegangen werden kann. Die von dem Streulichtaufbau detektierten Partikel zeichnen sich somit durch eine zufällige Orientierung aus.

CPI

Für die optische Abbildung eines Partikels mit dem CPI muss eine kritische Größe von ca. $30 \mu\text{m}$ überschritten werden (vgl. Kap. 6.2.1), die im Experiment erst nach einer Phase des Eiskristallwachstums erreicht wird. So liegt der Zeitpunkt des ersten vom CPI gemessenen Eispartikels nach dem von der Streulichtapparatur angezeigten Eisbildungszeitpunkt (Abb. 6.7); dieser Größeneffekt zeigt sich ebenfalls beim Verdampfen der Partikel.

Aus den Rohdaten werden, wie in Kap. 6.2.1 beschrieben, die Rundheit und die (projizierte) Größe der Eispartikel bestimmt. Die Darstellung der Rundheit für individuelle Partikel im Experimentverlauf zeigt, dass die während der Aktivierung entstandenen Eiskristalle zunehmend asphärisch werden. Dieser Trend der Formentwicklung ist bei den verschiedenen Aktivierungen unterschiedlich stark ausgeprägt.

In der Histogrammdarstellung, die alle während der Expansion detektierten Eispartikel zeigt, wird deutlich, dass das Maß der Rundheit zur Beschreibung der Partikelasphärizität geeignet ist. Die Verteilung zeigt ein Maximum deutlich unter 1 (hier in der Klasse $0.15 \dots 0.25$). Bei einer nur durch Abbildungsfehler verursachten, vorgetäuschten Asphärizität von ausschließlich runden Partikeln dagegen würde sich eine Häufigkeitsverteilung mit Maximum bei 1 ausbilden. Für die weitere Auswertung wird der Mittelwert aller während der Expansion abgebildeten Partikel gebildet; die im Folgenden angegebene Charakterisierung der Eiskristalle mit Hilfe der Rundheit stellt somit immer eine Mittelung über ein Partikelensemble dar.

Ebenfalls in Abb. 6.7 dargestellt ist die Größenverteilung der während der gesamten Expansion abgebildeten Partikel sowie die daran lognormal angefitzte Verteilung; Beispiele der abgebildeten Eispartikel finden sich in Abb. 6.11 sowie in Anhang C.

6.3.2 Charakterisierung der durchgeführten Experimente

Mit dem in Kap. 6.3.1 erläuterten Expansionsverfahren ist während der IN02-Kampagne ein Satz von Experimenten durchgeführt worden, von denen in der vorliegenden Arbeit Ergebnisse mit Mineralstaub als Ausgangsaerosol dargestellt werden. Für die Wiedergabe der Eiskondensation bei sehr tiefen Temperaturen (188 K) wird auf ein Experiment mit Rußpartikeln als Ausgangsaerosol zurückgegriffen.

Bei den Expansionen sind unterschiedliche Temperaturen, Ausgangspartikelkonzentrationen und Pumpraten verwendet worden; Tab. 6.1 fasst diese Parameter sowie einige Charakteristika der gebildeten Eiskristalle zusammen.

Die hier vorgestellten Experimente mit Mineralstaub sind bei Temperaturen zwischen 238 K und 262 K durchgeführt worden, wobei die Partikelstartkonzentration zwischen 115 cm^{-3} und 750 cm^{-3} liegt. Die Kühlrate zum Zeitpunkt der Eisbildung liegt zwischen 0.5 K min^{-1} und 2.4 K min^{-1} (vgl. Kap. 6.7).

Im Folgenden werden die Streueigenschaften der Eispartikel, die sich bei diesen Aktivierungen gebildet haben, im Zusammenhang mit Partikelgröße und Rundheit diskutiert.

6.4 Streueigenschaften von Eiskristallen

Für die in Tab. 6.1 aufgeführten Expansionen mit mineralischem Ausgangsaerosol sind, wie in den vorangegangenen Kapiteln erläutert, jeweils über den Verlauf einer Aktivierung gemittelte Rundheiten als Maß für die Asphärizität der Eiskristalle und Partikeldepolarisationen berechnet worden. Die Ergebnisse sind in Abb. 6.8 dargestellt.

Die Größe der gebildeten Eispartikel als Median der lognormal-Fits wurde dabei für Experimente mit kleinen Kristallen ($<10 \mu\text{m}$) mit dem PCS, für große Kristalle ($>30 \mu\text{m}$) mit dem CPI bestimmt. Für den dazwischen liegenden Größenbereich sind mit beiden Geräten nur sehr unsichere Größenangaben möglich, sodass Aktivierungen, deren Eiskristalle sich in diesem Größenbereich befinden, nicht in die weitere Auswertung aufgenommen wurden.

Die Größenverteilungen der gebildeten Eiskristalle haben Medianwerte zwischen $6 \mu\text{m}$ und $70 \mu\text{m}$ und entsprechen damit etwa der Größe atmosphärischer Eiskristalle, die bei ähnlichen Temperaturen gebildet wurden (s. Kap. 6.7).

Die Experimente können deutlich in zwei Gruppen gegliedert werden: bei der Mehrzahl der Aktivierungen weicht die Form der gebildeten Eiskristalle nur wenig von der Kugelform ab, was sich durch Rundheiten zwischen 0.7 und 0.95

Tabelle 6.1: Zusammenstellung der Experimentbedingungen, Eiskristallcharakteristika sowie Depolarisation der Eispartikel während der Expansionen.

Nr.	Aerosol	Temp. ^a	$\frac{dT}{dt}$ ^b	CPC ^c	x_c ^d	w ^e	l ^f	b ^g	Rundheit ^h	depol ⁱ
67	Mineral	237.9	-2.4	378	30	0.08	33	27	0.87±0.11	0.46±0.18
68	Mineral	236.4	-1.6	254	42	0.11	47	39	0.82±0.10	0.48±0.12
69	Mineral	237.1	-1.6	184	51	0.14	59	49	0.78±0.11	0.51±0.16
70	Mineral	235.0	-0.6	134	57	0.10	69	54	0.74±0.12	0.55±0.09
72	Mineral	241.2	-1.3	152	61	0.09	70	56	0.76±0.09	0.60±0.14
73	Mineral	240.9	-0.8	115	63	0.10	74	58	0.73±0.09	0.54±0.18
80	Mineral	249.1	-0.9	345	70	0.16	136	33	0.32±0.16	0.31±0.07
81	Mineral	249.1	-0.5	271	60	0.16	103	32	0.37±0.18	0.28±0.09
84	Mineral	257.5	-1.1	423	6.9	0.08	-	-	0.93±0.13	0.18±0.02
85	Mineral	257.7	-1.1	302	8.3	0.07	-	-	0.95±0.10	0.32±0.03
86	Mineral	258.4	-1.2	742	6.1	0.10	-	-	0.91±0.16	0.32±0.03
165	GfG-Ruß	185.6	-1.1	1756	0.8	0.15	-	-	- ^j	0.32±0.06 ^k

^aTemperatur zum Zeitpunkt der Eisbildung [K]

^bKühlrate zum Zeitpunkt der Eisbildung [K min⁻¹]

^cPartikelkonzentration vor Beginn der Expansion [cm⁻³]

^dMedian der Größenverteilung der vom CPI bzw. PCS gemessenen Eispartikel [µm]

^eVerteilungsbreite dieser Größenverteilung

^fmittlere Partikellänge als Median der vom CPI gemessenen Eispartikel [µm]

^gmittlere Partikelbreite als Median der vom CPI gemessenen Eispartikel [µm]

^hMittelwert der Rundheit aller Eispartikel

ⁱDepolarisation durch Eispartikel, berechnet mit Gl. 6.5

^jkeine CPI-Daten verfügbar

^kMittelwert nach Beendigung der Wachstumsumphase, s. Kap. 6.4.1

zeigt. Bei zwei Experimenten dagegen werden Eispartikel mit sehr asphärischen Projektionsflächen gebildet (Rundheit ca. 0.35).

Für die drei Experimente 84-86 mit sehr kleinen Eispartikeln ist die Angabe der Rundheit zusätzlich zu dem in Abb. 6.8 eingezeichneten statistischen Fehler mit einem großen systematischen Fehler versehen, da hier die analysierten Bilder nur wenige Pixel umfassen. Die Originalbilder zeigen jedoch, dass es sich hier nicht um ausgeprägt elongierte Eiskristalle handelt, wie z. B. in den Experimenten 80-81.

Die Ergebnisse der beiden Gruppen werden im Folgenden vergleichend dargestellt: Zum einen Experimente mit ähnlicher, nur wenig von der Kugelform abweichender Form mit einer Variation der Partikelgröße unter Verwendung der Experimente 67-73 und 84-86 in Kap. 6.4.1. Zum anderen die beiden Experimente 80-81 mit deutlich elongierteren Partikeln im Vergleich zu Eiskristallen ähnlicher Größe der Experimente 70-73 in Kap. 6.4.2.

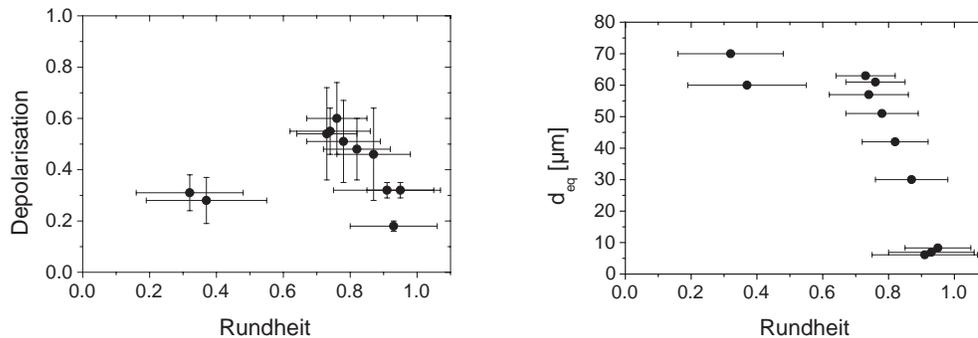


Abbildung 6.8: Depolarisation und Partikelgröße in Abhängigkeit von der Rundheit bei Eisknucleationsexperimenten mit Mineralstaub.

6.4.1 Abhängigkeit der Depolarisation von der Eiskristallgröße

Die in Abb. 6.8 dargestellten Ergebnisse der Experimente mit hohen Rundheiten sind in Abb. 6.9 als Zusammenhang zwischen Depolarisation und Partikelgröße aufgetragen. Danach gibt es bei nur wenig asphärischen Eiskristallen in dem untersuchten Größenbereich eine deutliche Abhängigkeit der Depolarisation von der Partikelgröße: mit steigender Größe nimmt die Depolarisation zu. Die dargestellten Werte der Depolarisation sind dabei jeweils mit Gl. 6.5 berechnet.

Das in Abb. 6.9 dargestellte Verhalten beruht, wie in Kap. 6.4 erläutert, auf der Auswertung unterschiedlicher Eisaktivierungen, wobei sich jeweils vergleichbare Eisformen bei unterschiedlicher Partikelgröße gebildet haben.

Die Bildung und das Wachstum von Eiskristallen geschieht bei dem hier gezeigten Datensatz aufgrund der verhältnismäßig hohen Temperaturen relativ schnell, wie z. B. in Abb. 6.7 anhand des steilen Depolarisationsanstieges nachzuvollziehen ist. Betrachtet man dagegen Experimente mit geringerer Temperatur, ist aufgrund der geringeren Wasserverfügbarkeit ein langsames Wachstum zu erwarten, und der oben beschriebene Effekt der Größenabhängigkeit der Depolarisation kann dynamisch im Verlauf eines Experimentes nachvollzogen werden.

Ein solches Eisexperiment auf GfG-Ruß bei einer Temperatur von 185.6 K ist in Abb. 6.10 dargestellt. Die hier wiedergegebenen Partikelgrößen sind wiederum Medianwerte von lognormal-Fits an PCS-Größenverteilungen. Da das Ausgangsaerosol bei diesem Experiment Ruß ist, der aufgrund seiner hohen Absorption

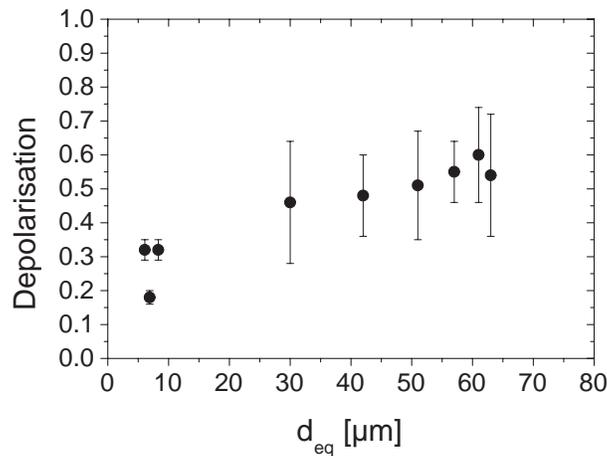


Abbildung 6.9: Abhängigkeit der Depolarisation von der Partikelgröße bei Eiskristallen hoher Rundheit.

nicht mit dem Streulichtspektrometer detektiert werden kann, ist die gemessene Größenverteilung nach Pumpbeginn die reine Eiskristallmode.

Im Gegensatz zu den Aktivierungen bei höherer Temperatur setzt die Depolarisation sehr langsam ein und zeigt einen Anstieg über einen Zeitbereich von fast fünf Minuten. Gleichzeitig nimmt der Mediandurchmesser der gebildeten Eiskristallmode kontinuierlich von zunächst $0.7\ \mu\text{m}$ auf $0.85\ \mu\text{m}$ zu. Dieser Anstieg entspricht etwa acht Kanälen in den Ausgangsdaten des PCS. Wegen der Fehler in der Partikelgrößenbestimmung mit dem PCS (vgl. Kap. 6.2.2) ist neben den Mediandurchmessern auch der maximale Partikeldurchmesser in Abb. 6.10 dargestellt. Dafür ist in jedem Messintervall von einer Sekunde Dauer der jeweils größte Kanal mit Partikelsignal in eine Teilchengröße umgerechnet. Diese kurze Messdauer bedingt die starken Fluktuationen im Signal. In dem Zeitraum, in dem das Depolarisationssignal ansteigt, nimmt auch die maximale Partikelgröße zu, was ebenfalls auf ein Partikelwachstum hinweist.

Der quantitative Zusammenhang zwischen Partikelgröße und Depolarisation wurde in Kap. 4.1.1 erläutert und in Abb. 4.2 am Beispiel der prolaten und oblaten Sphäroide für die an der AIDA verwendete Streugeometrie und den Brechungsindex von Wassereis dargestellt. Anhand dieser Berechnungen wird deutlich, dass für die Messung einer signifikanten Depolarisation die asphärischen Partikel eine Mindestgröße erreichen müssen. Somit kann der Anstieg der Depolarisation bei dem in Abb. 6.10 gezeigten Experiment auf das langsame Partikelwachstum aufgrund des temperaturbedingten niedrigen Wasserdampfpartialdrucks zurückgeführt werden.

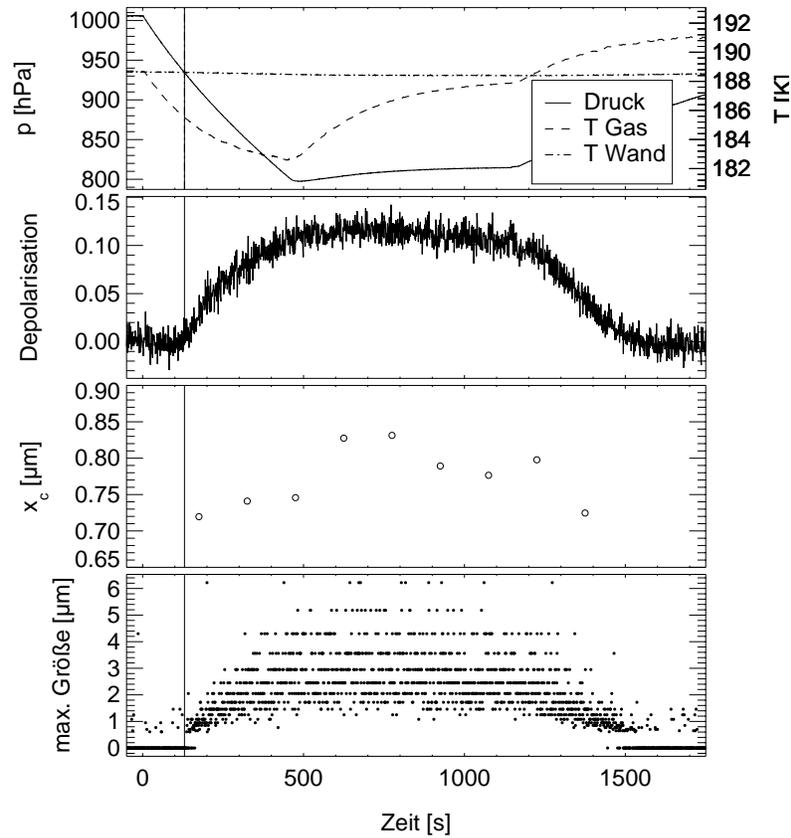


Abbildung 6.10: Verlauf von Druck, Wand- und Gastemperatur, Depolarisation sowie Partikelgröße bei Aktivierung 165 (GfG-Ruß, 185.6 K).

Unter der Annahme, dass die gebildeten Eispartikel eine sphäroidale Grundform besitzen, können die gemessenen Depolarisationen mit den mit den T-Matrix-Rechnungen berechneten verglichen werden. Danach besitzen die Eispartikel maximaler Größe (500...1000s) etwa ein Achsenverhältnis von 1:1.5 bzw. 1.5:1, jeweils unter der Annahme prolater bzw. oblater Sphäroide.

Somit zeigt sich auch bei der dynamischen Betrachtung der Eiskristallbildung eine deutliche Abhängigkeit der Depolarisation von der Partikelgröße. Eine Information über die gebildete Kristallform liegt hier nicht vor, da zu diesem Zeitpunkt kein Gerät zur Verfügung stand, das in diesem Größenbereich über die Partikelgeometrie Auskunft gibt.

6.4.2 Abhängigkeit der Depolarisation von der Eiskristallform

Wie in Abb. 6.8 deutlich wird, gibt es zwei Experimente, bei denen im Gegensatz zu den übrigen Aktivierungen eine deutliche Asphärizität der Eiskristalle zu beobachten ist. Zur Veranschaulichung dieser Unterschiede sind in Abb. 6.11 CPI-Bilder aus zwei Expansionen mit hohen (Exp. 73) und geringen (Exp. 80) Werten der Rundheit bei vergleichbarer Partikelgröße dargestellt. Diese Abbildungen stellen jeweils einen Ausschnitt der während der Aktivierungen abgebildeten Eiskristalle dar. Anhang C zeigt für diese beiden Experimente alle Eiskristallbilder.

Die Abbildungen zeigen, dass es sich bei den gebildeten Eiskristallen gleichzeitig um eine Größen- und Formmischung handelt. Bei den wenig asphärischen Eispartikeln handelt es sich um kurze Säulen und Rosetten mit relativ kleinen Einzelkristallen, wobei die Zahl der Arme zwischen zwei und fünf schwankt. Die Kristalle niedrigerer Rundheit nehmen die Form von Nadeln, sowie weniger zwei- bis fünfarmigen Rosetten mit langen Einzelkristallen oder Säulenbündeln an.

Der Hauptunterschied zwischen den beiden Gruppen von Aktivierungen liegt damit in der Größe der Einzelkristalle, die zu den größeren Aggregaten zusammengefasst sind, bzw. im Formverhältnis der gebildeten Nadeln.

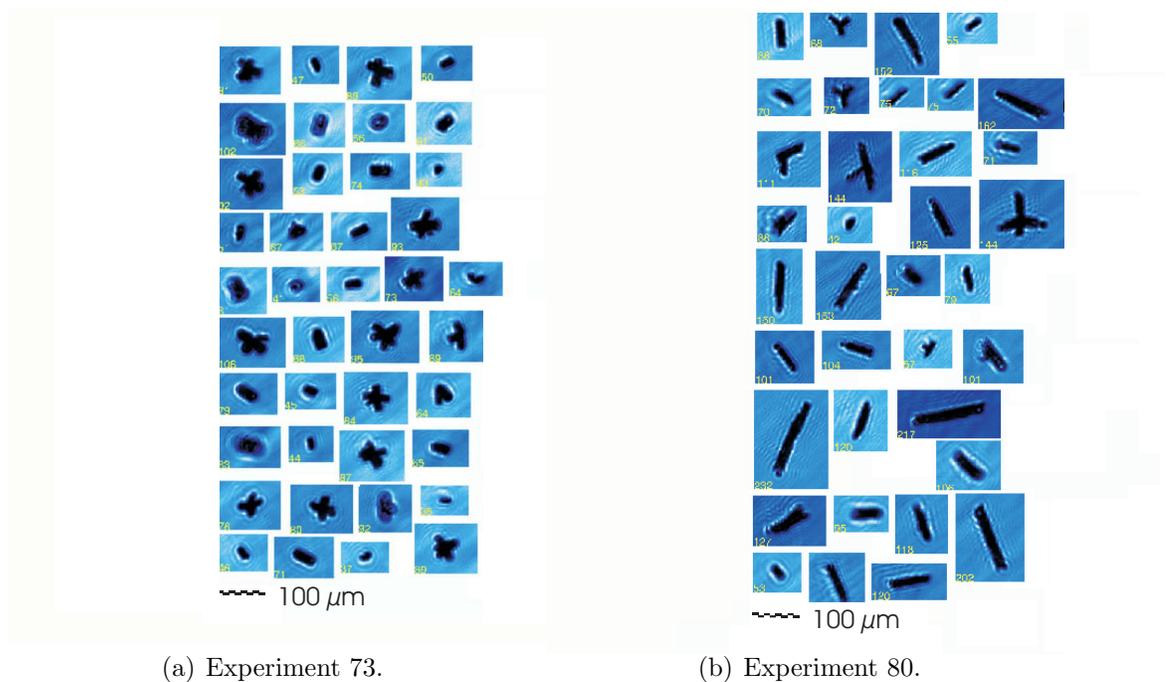


Abbildung 6.11: Beispiel der vom CPI abgebildeten Eiskristalle hoher (Experiment 73) und niedriger Rundheit (Experiment 80).

Der Einfluss der Form auf die Depolarisation ist in Abb. 6.8 zu erkennen: obwohl die für die Streueigenschaften relevante Größe des projektionsflächen-äquivalenten Durchmessers bei den betrachteten Experimenten in einem vergleichbaren Größenbereich wie die größten Partikel bei den Experimenten hoher Rundheit liegt, gibt es einen deutlichen Unterschied in der gemessenen Depolarisation. Bei den Experimenten geringer Rundheit liegt diese zwischen 0.2 ... 0.3; so niedrige Werte werden bei weniger asphärischen Partikeln nur bei weit kleineren Durchmessern erreicht.

Somit konnte aus den betrachteten Experimenten sowohl eine Form- als auch eine Größenabhängigkeit der Depolarisation abgeleitet werden: Bei Eiskristallen hoher Rundheit steigt mit zunehmender Partikelgröße die Depolarisation an. Dagegen ist bei sehr asphärischen Partikeln die Depolarisation im Vergleich mit Eiskristallen ähnlicher Größe, aber höherer Rundheit deutlich verringert.

6.5 Vergleich der Messergebnisse mit Modellrechnungen

Im Folgenden werden die experimentellen Ergebnisse der Streulichtmessungen an der AIDA-Kammer mit Modellrechnungen verglichen. Die Angabe der Depolarisation sowohl für die durchgeführten Messungen als auch für die Berechnungen bezieht sich dabei auf die Definition nach Gl. 3.1.

6.5.1 T-Matrix-Rechnungen zur Depolarisation

Formeffekt

Die Streueigenschaften von stark asphärischen Partikeln sind in [ZM00] anhand von T-Matrix-Rechnungen für prolata und oblate Sphäroide mit großen Achsenverhältnissen dargestellt. Abb. 4.4 zeigt den in diesem Artikel beschriebenen Effekt: stark elongierte Partikel haben bei gleicher Größe eine geringere Depolarisation als weniger deformierte Teilchen.

Der Partikelgrößenbereich, in dem die T-Matrix-Rechnungen durchgeführt werden können, ist mit den der in AIDA gemessenen Eispartikeln nicht identisch: die Rechnungen liefern für die betrachtete Wellenlänge von 488 nm nur bis zum unteren μm -Bereich Ergebnisse. Auch die sphäroidale Form, die in den T-Matrix-Rechnungen zugrunde gelegt wird, kann zwar als Näherung für nadelartige Eiskristalle, nicht aber für Rosetten angesehen werden.

So sind die Ergebnisse dieser Rechnungen nicht direkt mit den durchgeführten Streulichtmessungen vergleichbar. Sie zeigen aber qualitativ, wie in den Experimenten festgestellt, den Unterschied zwischen nur wenig von der Kugelform abweichenden Kristallformen und sehr asphärischen Partikeln.

Diese Beobachtungen lassen sich damit erklären ([ZM00], s. auch Kap. 4.2), dass die Streueigenschaften stark elongierter Partikel nicht von der Partikelgröße, sondern von der Größe der kleinen Halbachse bestimmt werden. Deren Länge entspricht bei den berechneten Partikeln dem Rayleigh-Bereich, in dem sich Teilchen durch eine geringe Depolarisation auszeichnen.

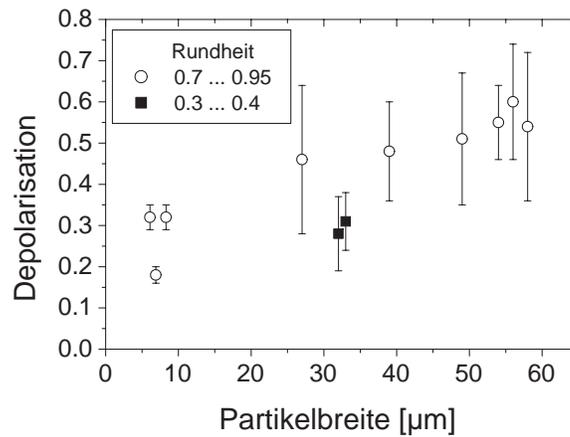


Abbildung 6.12: Abhängigkeit der Depolarisation von der Partikelgröße und -rundheit.

Tab. 6.1 zeigt für die dargestellten Eisaktivierungen neben dem Durchmesser eines projektions-äquivalenten Kreises auch Partikellänge und -breite. Diese sind wiederum mit Hilfe der CPI-Daten bestimmt, wobei jeweils der Median einer lognormalen Verteilung der Länge bzw. Breite berechnet wurde. Für die Experimente mit Eiskristallen hoher Rundheiten differieren die Werte der Partikellänge und -breite erwartungsgemäß nur wenig, während bei den beiden Experimenten mit sehr asphärischen Partikelformen eine große Differenz beobachtet werden kann.

Der Wert der Partikelbreite kann dabei als Maß für die Partikelausdehnung angesehen werden, analog zur kleinen Halbachse bei Sphäroiden. Bei den hier untersuchten Experimenten befindet sich die Partikelbreite im Gegensatz zu den oben erläuterten T-Matrix-Rechnungen bereits im Bereich der Gültigkeit der geo-

metrischen Optik. Abb. 6.12 zeigt die bereits in Abb. 6.9 dargestellten Depolarisationswerte, diesmal jedoch in Abhängigkeit der Partikelbreite. Für die Eiskristalle mit Größen unter $10\ \mu\text{m}$ ist die mit dem PCS bestimmte Größe beibehalten.

Bei der Betrachtung der Partikelbreite ist zu beachten, dass aufgrund der Definition (Gl. 6.3) diese Größe die Ausdehnung senkrecht zur maximalen Erstreckung des Partikels angibt. Je nach betrachteter Partikelform bzw. -orientierung überschätzt diese Größe z. B. die Breite eines Einzelkristalls innerhalb einer Rosette (vgl. 2. Bild in Abb. 6.11 (b)).

Die experimentell bestimmte Depolarisation für die beiden Experimente mit niedrigen Rundheiten liegt auch bei der Betrachtung der Abhängigkeit von der Partikelbreite noch unter den Werten der runderen Eiskristalle. Diese Abbildung veranschaulicht jedoch, dass auch bei großen Partikeln, bei denen sich beide Achsen im Bereich der geometrischen Optik befinden, die Dimension der kleinen Achse die Depolarisation bestimmt. Dabei können auch Werte unter denen für rundere Partikel in der Größe der kleinen Achse erreicht werden.

Größeneffekt

Der Zusammenhang zwischen Depolarisation und Partikelgröße ist auch in Abb. 4.4 erkennbar: mit steigendem Durchmesser nimmt die Depolarisation zu. Dieses Verhalten ist unabhängig von der vorhandenen Partikelform; nur der absolute Wert der Depolarisation wird von der Form beeinflusst.

Bei den mit den T-Matrix-Rechnungen berechneten einfachen Partikelgrundformen in den betrachteten Größenbereichen bestimmt somit die Größe der Partikel den Anteil des Lichtes, der depolarisiert wird. Die Ergebnisse der vorgestellten Experimente zeigen, dass bei den Eiskristallen hoher Rundheiten dieser Zusammenhang qualitativ ebenfalls gültig ist, obwohl es sich hier um deutlich größere Partikel und andere Formen handelt.

6.5.2 Rechnungen mit geometrischer Optik zur Depolarisation

Wegen der Einschränkungen, die sich aufgrund der maximal berechenbaren Partikelgröße und der vorgegebenen Partikelformen mit den T-Matrix-Rechnungen ergeben, ist es wünschenswert, die Ergebnisse der Streulichtmessungen an Eiskristallen mit einem Modell, das die Interaktion von Licht auch für größere Partikel berechnet, zu vergleichen.

Ein solches Modell wird derzeit an der University of Hertfordshire von Evelyn Hesse entwickelt; es beruht auf geometrischer Optik unter Berücksichtigung von

Beugung an Kristallflächen ([HU03]). Die im Folgenden gezeigten Berechnungen sind von ihr mit Hilfe dieses neuen Modells durchgeführt worden, und stellen, da die Modellentwicklung noch nicht vollständig abgeschlossen ist, vorläufige Ergebnisse dar.

Das Modell berechnet winkelaufgelöst Matrixelemente unter der Annahme zufälliger Partikelorientierungen für verschiedene Formen (hexagonale Säulen und Plättchen, Säulen mit pyramidalen Enden, Bullets, vgl. Abb. 6.13), aus denen nach Gl. 3.9 die Depolarisation für einen Winkel von 176° berechnet wird.

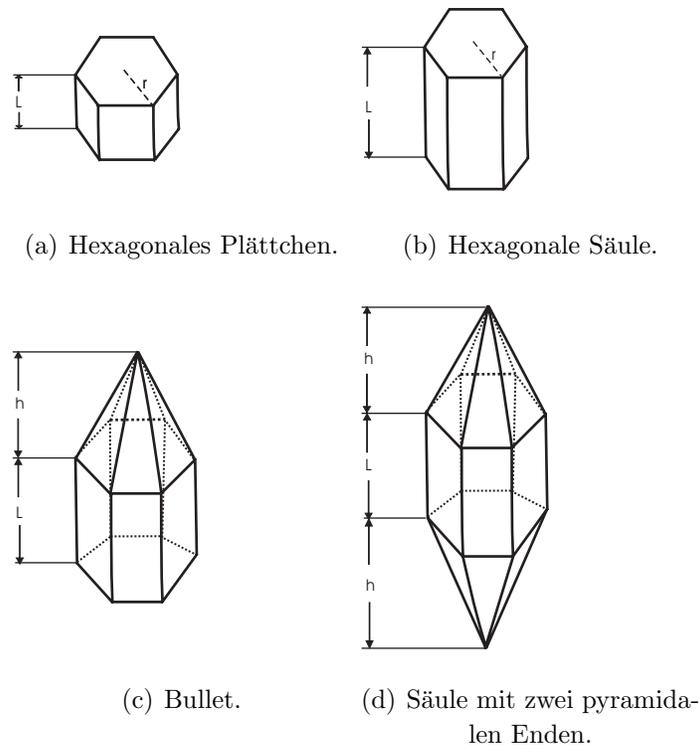


Abbildung 6.13: Kristallformen der berechneten Eispartikel (nach [LJS96]).

Größeneffekt

Für den Größenbereich $5 \dots 70 \mu\text{m}$ liegen Modellergebnisse für die oben genannten Eiskristallformen vor. Tab. 6.2 fasst die dazu verwendeten Partikelgeometrien zusammen; die Berechnungen stützen sich unabhängig von der untersuchten Grundform auf ein Achsenverhältnis von 0.83 (bzw. $1/0.83$ für Plättchen, s. Berechnung in Tab. 6.2).

Abb. 6.14 zeigt die (vorläufigen) Ergebnisse der Depolarisation aus den durchgeführten Rechnungen. Danach gibt es für die beiden Partikelgrundformen Plättchen und Säulen eine Abhängigkeit der Depolarisation von der Partikelgröße: mit steigender Partikelgröße nimmt auch die Depolarisation zu.

Dagegen ist dieser Zusammenhang bei den beiden anderen untersuchten Partikelformen nicht vorhanden. Sowohl hexagonale Säulen mit pyramidalen Enden als auch Bullets zeigen ab einer Größe von $30\ \mu\text{m}$ keine signifikante Depolarisationsänderung, wobei der absolute Wert bei beiden Grundformen in ähnlicher Höhe ist. Für kleinere Kristalle gibt es eine leichte Abnahme der Depolarisation nur für die Bullets, bei beidseitigen pyramidalen Endstücken dagegen eine geringe Zunahme.

Die Berechnungen zeigen damit, dass die betrachtete Eispartikelform nicht nur die absolute Höhe der Depolarisation, sondern auch deren relativen Verlauf als Funktion der Partikelgröße maßgeblich beeinflusst. Die für Abb. 6.14 berechneten Kristallformen stellen dabei nur eine Teilmenge der in den Eisnukleationsexperimenten beobachteten Partikelformen dar. Insbesondere die in den AIDA-Experimenten häufige Form der Rosette – jeweils mit unterschiedlicher Anzahl an konstituierenden Einzelkristallen – sowie Säulenbündel sind hier nicht berücksichtigt.

Tabelle 6.2: Partikelgeometrien der berechneten Eiskristalle ([Hes03]).

	Achsenverhältnis		Partikelgröße	
hexagonales Plättchen	$2r/L$	$1/0.83$	$(L+2r)/2$	$5 \dots 70\ \mu\text{m}$
hexagonale Säule	$2r/L$	0.35	$(L+2r)/2$	$5 \dots 80\ \mu\text{m}$
Bullet	$2r/(h+L)$	0.83	$(L+2r+h)/2$	$5 \dots 70\ \mu\text{m}$
Säule mit zwei pyramidalen Enden	$2r/(2h+L)$	0.83	$(L+2r+2h)/2$	$5 \dots 70\ \mu\text{m}$

r: Partikelradius

L: Partikellänge

h: Länge des pyramidalen Endstückes

Bei den in Kap. 6.4.1 - 6.4.2 dargestellten Ergebnissen der Depolarisation während der Eisnukleationsexperimente handelt es sich, wie dort bereits erläutert, jeweils um eine Formmischung aus verschiedenen Kristallgeometrien, also um ein Ensemble aus verschiedenen Partikelgrundformen. Um den Einfluss der unterschiedlichen Formen auf den relativen Verlauf der Depolarisation zu demonstrieren

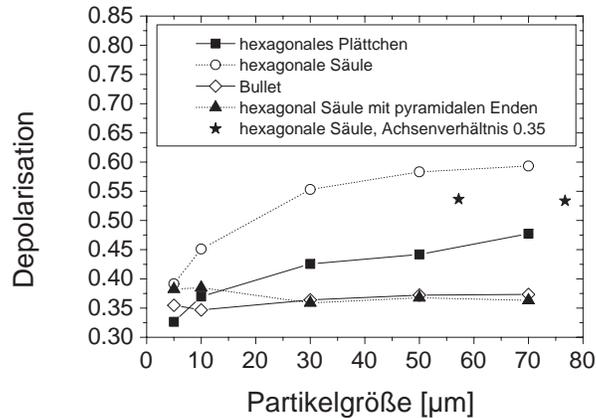


Abbildung 6.14: Depolarisation an verschiedenen Formen von Eiskristallen in Abhängigkeit von der Partikelgröße, berechnet anhand eines Modells mit geometrischer Optik und Beugung ([Hes03]).

ren, sind in Abb. 6.15 verschiedene, fiktive Formmischungen aus den berechneten Kristallen angegeben und die resultierende Depolarisation des Formgemisches berechnet.

Abb. 6.15 zeigt, dass die absolute Höhe der Depolarisation stark von der zugrunde gelegten Formmischung sowie den gewählten Mischungsanteilen abhängt. Der Anteil des Formgemisches mit der höheren Partikeldepolarisation scheint jedoch in hohem Maße den relativen Verlauf in Abhängigkeit der Partikelgröße zu bestimmen.

Um dies zu verdeutlichen, sind in Abb. 6.15 mehrere Mischungen gezeigt, bei denen die bei größeren Partikeldurchmessern stark depolarisierenden Formen (Plättchen, Säulen) prozentual nur einen geringen Anteil ausmachen. Bei den hier dargestellten Mischungen tritt erst bei einem Anteil von 10% an Säulen bzw. Plättchen der relative Depolarisationsverlauf der Bullets und Säulen mit pyramidalen Enden zu Tage.

Diese Formmischungen entsprechen, wie bereits erläutert, nicht den in den Eisnukleationsexperimenten beobachteten Eiskristallgemischen. Sie verdeutlichen jedoch, dass das Vorkommen stark depolarisierender Partikel den Verlauf der Depolarisation auch dann beeinflusst, wenn diese nur in geringen Anteilen vorhanden sind. Die Berechnungen zeigen zudem, dass es Kristallformen gibt, die mit steigender Partikelgröße in dem Größenbereich wie in den AIDA-Experimenten eine Zunahme der Depolarisation aufweisen.

Eine exakte Nachrechnung des vorhandenen Formgemisches ist auch mit der Möglichkeit, die Streueigenschaften von Rosetten zu berechnen, nur schwer praktikierbar. Insbesondere die große Vielfalt an vorhandenen Formen sowie die jeweilige Gestaltung (Anzahl der Einzelkristalle, Anordnung, Länge) und ihre Größenverteilung erschweren den Vergleich mit einem Modell.

Für solche Untersuchungen mit dem vorhandenen Streulichtaufbau bietet es sich daher eher an, unter Variation der Experimentbedingungen (Temperatur, Kühlrate, Ausgangsaerosolkonzentration) weniger heterogene Gemische von Formen auf ihre Streueigenschaften zu untersuchen.

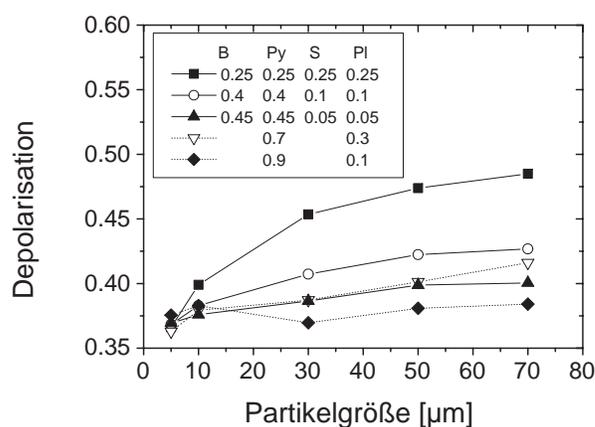


Abbildung 6.15: Depolarisation für verschiedene fiktive Formmischungen mit unterschiedlichen Anteilen an Bullets (B), Säulen mit zwei pyramidalen Enden (Py), Säulen (S) sowie Plättchen (Pl).

Formeffekt

Ebenfalls mit dem Modell mit geometrischer Optik unter Berücksichtigung von Beugung sind Rechnungen für Eiskristalle mit größeren Asphäritäten durchgeführt worden ([Hes03]). Dafür wurden die Streueigenschaften von hexagonalen Säulen analog zu den beobachteten Partikelformen in den Experimenten 80 und 81 mit Achsenverhältnissen von 0.35 berechnet; die Ergebnisse sind ebenfalls in Abb. 6.14 dargestellt.

Danach ist die Depolarisation bei gleicher Partikelgröße für kleinere Achsenverhältnisse geringer als bei weniger elongierten Kristallen. Diese Berechnungen zeigen damit, dass auch für Partikel im Bereich der geometrischen Optik das in

[ZM00] beschriebene Verhalten auftritt: Stärker elongierte Kristalle haben bei gleicher Partikelgröße eine verringerte Depolarisation.

Für die absolute Höhe der Depolarisation gilt das bereits beim Größeneffekt Gesagte: Die hier dargestellten Berechnungsergebnisse weisen ähnliche Größenparameter wie die in den Eisknukleationsexperimenten auf ihre Streueigenschaften untersuchten Eiskristalle auf. Wegen der in den Experimenten vorhandenen Formmischung ist die absolute Höhe der Depolarisation – hier berechnet für hexagonale Säulen – nicht direkt auf die experimentell beobachteten Werte übertragbar.

6.6 Vergleich der Depolarisationsergebnisse mit Feldmessungen

Bei Feldmessungen werden häufig LIDAR-Messungen eingesetzt, um Wolken hinsichtlich ihrer Partikelphase (feste oder flüssige Wolkenpartikel) zu charakterisieren. Neben der Depolarisation steht hier zusätzlich das Rückstreuverhältnis zur Verfügung. Die Kombination beider Messwerte wird beispielsweise für die Typisierung von polaren stratosphärischen Wolken (PSCs) verwendet ([BBI⁺90]). Im Folgenden werden einige ausgewählte Beispiele für Depolarisationsmessungen an Eiswolken diskutiert.

LIDAR-Messungen bei einer Wellenlänge von 532 nm an Flugzeugkondensstreifen sind in [Fre00] und [FHJ96] auf der Grundlage eines schwenkbaren Rückstrelidars beschrieben. Aufgrund der bekannten Bildungsmechanismen und -zeiten sind hier systematische Untersuchungen zur Abhängigkeit der Depolarisation von verschiedenen Parametern möglich.

Danach nimmt die Depolarisation mit zunehmendem Alter des Kondensstreifens zu. Gleichzeitig ist eine deutliche Temperaturabhängigkeit vorhanden: Im Vortexregime (Einbindung der Abgase in die Wirbelschleppe des Flugzeuges) steigt mit zunehmender Temperatur auch die Geschwindigkeit des Depolarisationsanstieges. Dagegen ist im voll entwickelten Kondensstreifen die gemessene Depolarisation unabhängig von der Umgebungstemperatur und beträgt 0.47 ± 0.05 .

Dieses Verhalten wird damit erklärt, dass das Eiskristallwachstum von der Temperatur abhängig ist, und somit bei niedrigeren Temperaturen die Entwicklung der endgültigen Kristallgröße langsamer verläuft. Vergleiche mit T-Matrix-Rechnungen ([MS98]) für die gemessenen Depolarisations- und Rückstreuverhältnisse deuten darauf hin, dass mit zunehmendem Alter der Kondensstreifen die effektiven Radien der Eispartikelverteilung von $0.2 \mu\text{m}$ auf $0.6 \mu\text{m}$ anwachsen.

Somit sind diese Rückstreuungsmessungen an Kondensstreifen ein Beispiel für einen Depolarisationsanstieg mit der Partikelgröße für Eiskristalle im Sub-Mikrometerbereich, wie es in der vorliegenden Arbeit für eine Eisaktivierung bei niedrigen Temperaturen beobachtet wurde (Abb. 6.10).

Eine Zirrus-Klimatologie über einen Zeitraum von sechs Jahren wird in [SB01] auf der Grundlage eines polarisationsauflösenden Rubin-LIDARs ($\lambda=694$ nm) für dessen Standort in Utah dargestellt. Die durchschnittliche Depolarisation beträgt hier 0.33 ± 0.11 , wobei eine Zunahme der Depolarisation mit abnehmender Temperatur zwischen -15°C und -70°C beobachtet wird. Mit dieser Studie wird der generelle Trend anderer Messungen sowohl in mittleren Breiten als auch aus äquatorialen Regionen (z. B. [PYM⁺98]) bestätigt.

Über die Gründe wird in [SB01] vermutet, dass sich die Form der Eispartikel mit zunehmender Höhe ändern könnte, also z. B. weniger hohle und damit gering depolarisierende Kristalle in größerer Höhe anzutreffen sind.

Die in Tab. 6.1 aufgeführten Volumendepolarisationen (berechnet mit Gl. 6.5) können mit Hilfe von Gl. 3.3 in Depolarisationsverhältnisse umgerechnet werden und so mit den Ergebnissen der LIDAR-Messungen verglichen werden. Dabei erhält man für die in der vorliegenden Arbeit gemessenen Eiskristalle deutlich höhere Depolarisationen als die in den Zirrus-Studien gemessenen. Da bei den LIDAR-Messungen jedoch keine Informationen über Partikelformen vorliegen, können diese Unterschiede auf evtl. andere Eiskristallformen zurückzuführen sein.

Einen generellen Überblick über die Methode des polarisationsaufgelösten LIDARs gibt [Sas91]. Danach treten Depolarisationen < 0.05 nicht nur für sphärische Partikel, sondern auch bei horizontal ausgerichteten Plättchen auf. Eine Methode zur eindeutigen Unterscheidung dieser ausgerichteten Partikel von Tröpfchen besteht in der Kippung des LIDARs um wenige Grad aus seiner Zenit-Position. Bei dem Vorhandensein horizontal ausgerichteter Plättchen steigt die Depolarisation dann stark an, während die Rückstreuung gleichzeitig abnimmt. Besteht die Partikelschicht aus Tröpfchen, nimmt die Depolarisation dagegen nicht zu.

Beispiele von LIDAR-Messungen für derartig horizontal ausgerichtete Plättchen finden sich z. B. in [ABB⁺93] und [SAS⁺03]. Die Fähigkeit zur Partikelausrichtung ist dabei von der Größe der Eiskristalle abhängig: Sind die Kristalle kleiner als $100\ \mu\text{m}$, richten sie sich nicht in der beschriebenen Weise aus.

In der AIDA-Kammer wird die Interpretation der Depolarisation nicht durch die Ausrichtung der Eiskristalle erschwert, da durch den Mischventilator (Kap. 6.3.1) eine turbulente Durchmischung des Streuvolumens und damit eine zufällige Orientierung der Partikel sichergestellt ist.

6.7 Übertragung auf atmosphärische Bedingungen

Bevor die Ergebnisse der Streulichtexperimente auf atmosphärische Bedingungen übertragen werden, werden die in AIDA simulierten Bedingungen mit typisch atmosphärischen Verhältnissen verglichen.

Die Temperaturen der Eisexpansionen mit mineralischen Ausgangspartikeln (vgl. Tab. 6.1) liegen zwischen 260 K und 235 K; dies entspricht dem Temperaturbereich der mittleren und oberen Troposphäre. In diesen Atmosphärenschichten sind Partikelkonzentrationen von einigen 10 bis 100 cm⁻³ typisch, sodass bei den AIDA-Experimenten (Tab. 6.1) im Vergleich zur Atmosphäre für die jeweiligen Temperaturen zu hohe Partikelkonzentrationen vorhanden sind.

Das in Abb. 6.10 dargestellte Rußexperiment entspricht hinsichtlich der Temperatur von 185 K atmosphärischen Bedingungen in der polaren Stratosphäre.

Kühlrate und Eisübersättigung

Die in Tab. 6.1 angegebenen Kühlraten können unter der Annahme feucht-adiabatischer Bedingungen in vertikale Windgeschwindigkeiten umgerechnet werden, um sie mit atmosphärischen Bedingungen zu vergleichen. Danach entsprechen die in den vorgestellten AIDA-Experimenten vorhandenen Kühlraten vertikalen Windgeschwindigkeiten von 50...250 cm s⁻¹. Dieser Bereich wird in der Atmosphäre bei Vorhandensein von Schwerewellen (einige 10 cm s⁻¹) und bei Konvektion (bis zu einigen 100 cm s⁻¹) erreicht ([KS03]). Damit entsprechen die beobachteten Kühlraten schnelleren Hebungsprozessen in der Atmosphäre.

Im Gegensatz zu atmosphärischen Bedingungen ist die Abkühlung in der AIDA-Kammer mit einem Wärmefluss von der Wand verbunden, der zu einer geringeren Temperaturabnahme als unter adiabatischen Bedingungen und gleichzeitig zu einem Wassertransport von der eisbedeckten Wand in die Gasphase führt ([MSS⁺03]). In der Kammer können zum Zeitpunkt des Eiseinsatzes in Abhängigkeit der Temperatur und des betrachteten Aerosolsystems Eisübersättigungen bis 1.8 erreicht werden. Solche Übersättigungen existieren auch in der oberen Troposphäre, wobei Eisübersättigungen mit einer Häufigkeit von 20...45% auftreten ([JTV⁺01]).

Eispartikelkonzentration

Wegen der Schwierigkeit, genaue Eispartikelkonzentrationen aus den CPI-Messungen abzuleiten, soll hier eine Abschätzung mit Hilfe von CPC-Konzentrationen

erfolgen. Ein CPC 3010 (TSI) nimmt über eine horizontal montierte Lanze mit 4 mm Innendurchmesser und 2 m Länge einen Probenfluss von 11 min^{-1} . Die Sammeleffizienz dieser Probenahmeleitung ist von der Partikelgröße abhängig: mit zunehmender Partikelgröße nimmt die gravitationsbedingte Sedimentation zu. Für die genannten Probenahmebedingungen ergibt sich z. B. ein 50-%iger Sammelverlust für Partikeldurchmesser von etwa $6.5 \mu\text{m}$.

Bei einigen der Expansionsexperimente ist die Abnahme der Sammeleffizienz aufgrund großer Partikeldurchmesser sichtbar; dies zeigt sich in einer scheinbar geringeren Partikelkonzentration während der Druckabnahme als nach Beendigung des Pumpphase (vgl. Abb. 6.16).

Aus diesen Messungen kann eine Untergrenze der Eispartikelkonzentration abgeschätzt werden: Mit Hilfe der bekannten Druckabnahme wird die Abnahme der Partikelkonzentration durch die Verdünnung berechnet und so dem realen Verlauf angenähert. Die Differenz von berechnetem und gemessenem Verlauf der Anzahlkonzentration ist der Anteil der zu Eiskristallen aktivierten Mineralstaubpartikel, die den CPC nicht erreichen. Dieser Wert stellt eine untere Grenze dar, da es auch Eispartikel geringerer Größe, die mit einer besseren Effizienz gesammelt werden, geben kann. Das hier dargestellte Experiment 84 hat eine Eisfraktion von etwa 30 %, was einer Mindest-Eispartikelkonzentration von 95 cm^{-3} entspricht. Bei den Experimenten mit derartigen CPC-Sammelartefakten liegt der Bereich der Eispartikelkonzentrationen zwischen 10 und 220 cm^{-3} .

Die obere Grenze der Eispartikelzahl kann aus Tab. 6.1 entnommen werden: bei einer Aktivierung sämtlicher Ausgangspartikel ist die Eispartikelzahl unter Vernachlässigung der Pumpverdünnung mit der vom CPC gemessenen Partikelkonzentration vor Beginn der Expansion identisch.

Die natürlichen Verhältnisse in Zirren sind aus verschiedenen Feldmesskampagnen bekannt (vgl. Zusammenstellung in [HM02]). Danach liegen typische Eispartikelkonzentrationen in einem Bereich von 0.1 bis 10 l^{-1} . Diese Angabe bezieht sich auf Ergebnisse mit optischer Partikelabbildung (two-dimensional imaging cloud probe, 2D-C), und damit auf Eispartikel $> 100 \mu\text{m}$. Aktuelle Ergebnisse ([KS03]) zeigen, dass in der oberen Troposphäre, also bei vergleichbaren Temperaturen wie in den vorgetellten AIDA-Messungen, variable Eispartikelkonzentrationen vorkommen können. Diese wurden mit einem CVI (Counterflow Virtual Impactor) gemessen und beziehen sich damit auf Partikel größer als $5 \mu\text{m}$. Die so gemessenen Konzentrationen betragen $0.1 \dots 10 \text{ cm}^{-3}$, wobei höhere vertikale Windgeschwindigkeiten größere Eispartikelkonzentrationen verursachen. Bei dem Vorhandensein starker Konvektion kann die Eispartikelkonzentration bis zu 100 cm^{-3} betragen.

Bei den vorgestellten AIDA-Experimenten liegt somit die Zahl der gebildeten Eiskristalle im Bereich der bzw. bei einigen Experimenten über den in der Atmosphäre typischen Bedingungen.

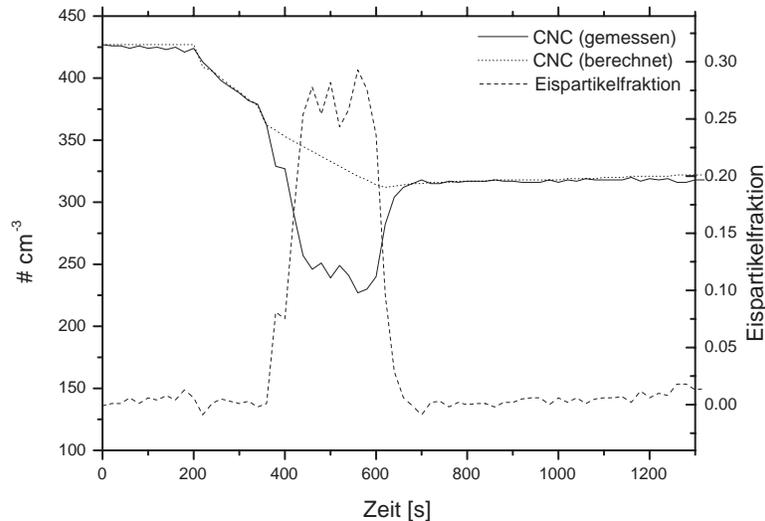


Abbildung 6.16: Verlauf von gemessener und berechneter Partikelkonzentration sowie Eispartikelfraktion bei Exp. 84.

Eispartikelgröße

Die Eiskristallgröße ist in der Atmosphäre eine Funktion der Temperatur: mit steigender Temperatur nimmt wegen des höheren Wasserpartialdruckes auch die Größe der Eispartikel zu. Bei Temperaturen über -40°C sind maximale Partikellängen über 1 mm möglich; unter einer Temperatur von ca. -60°C beträgt die typische Größe von Eiskristallen etwa 10 bis 100 μm ([HM02]).

Da niedrige Temperaturen in höheren atmosphärischen Schichten anzutreffen sind, sorgt als zusätzlicher Prozess die Sedimentation dafür, dass große Kristalle in eine wärmere Umgebung gelangen: Durch die höhere Sedimentationsgeschwindigkeit der größeren Partikel fallen diese in tiefere und damit wärmere Luftschichten. Somit kann sich die Größenverteilung auch durch Sedimentation zu größeren Durchmessern verschieben, wenn in der tieferen Luftschicht die Eissättigung nicht unterschritten wird.

Die aus den CPI-Messungen bestimmten Eispartikelgrößen als Durchmesser einer projektionsflächen-äquivalenten Kugel liegen zwischen 6 und 70 μm für Eiskristalle auf mineralischen Partikeln und etwa 0.8 μm für das gezeigte Ruß-Experiment mit Eisnukleation bei 185 K.

In neueren Messungen in der Atmosphäre ([GGB⁺03]) wurden Eispartikelgrößen in Zirruswolken (Ambossen) über Florida bestimmt. Für den Temperaturbereich von -75°C bis ca. -5°C wurden dabei Eispartikelgrößen zwischen 5 μm und 30 μm bei steigender Partikelgröße mit zunehmender Temperatur gemessen. Die in den AIDA-Experimenten vorhandenen Eispartikelgrößen können somit bei ähnlicher Temperatur auch in der Atmosphäre vorkommen.

Somit besteht der Hauptunterschied zwischen den AIDA-Experimenten und den natürlichen Bedingungen in der Atmosphäre in der Konzentration des Ausgangsaerosols, auf dem die Eisnukleation erfolgt. Bei aktuellen Messungen an der Aerosolkammer (IN03-Kampagne) wurde diese Ausgangskonzentration deutlich verringert.

Schlussfolgerungen für atmosphärische Streulichtmessungen

Die bei den Streulichtexperimenten festgestellte Abhängigkeit der Depolarisation sowohl von der Partikelform, also auch von der Partikelgröße hat Auswirkungen auf die Interpretation von Messdaten, wie sie z. B. von LIDAR-Geräten aufgezeichnet werden.

Die Messung niedriger Depolarisationen kann nach den in der vorliegenden Arbeit dargestellten Ergebnissen auf Eiskristalle hoher Asphärizitäten hinweisen. In Kombination mit dem in Kap. 6.6 dargestellten Wissensstand kann damit eine geringe Depolarisation auf dreierlei Weisen interpretiert werden: als sphärische Partikel, als horizontal ausgerichtete Plättchen oder als Partikel hoher Asphärizitäten. Mit dem Kippen des LIDARs aus seiner Zenitposition wurde eine Möglichkeit für die Unterscheidung der beiden erstgenannten Partikeltypen geschaffen. Häufig wurden jedoch auch niedrige Depolarisationsmessungen ohne die Möglichkeit des Nachweises horizontaler Plättchen als solche interpretiert (z. B. [ABB⁺93]).

Für die Interpretation von Messungen niedriger Depolarisationen ohne unabhängige Forminformation, wie sie in den hier präsentierten Experimenten vorlagen, ist somit ein Berechnung der Streueigenschaften stark asphärischer Partikel für nicht-zenitale LIDAR-Positionen notwendig.

Kapitel 7

Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit sind Messungen zur Untersuchung der Streueigenschaften aphaerischer Partikel an zwei Aerosolkammern durchgefuehrt worden. Dazu durchlueuft polarisiertes Laserlicht der Wellenlaenge 488 nm die Kammer horizontal, und zwei mit Photomultipliern ausgestattete Detektionseinheiten messen das vom Aerosol erzeugte Streulicht. Die Messungen sind jeweils in Rückwärts- und Vorwärtsrichtung unter Winkeln von 176° bzw. 4° durchgefuehrt worden, wobei die Rückstreuung polarisationsaufgelöst mit Hilfe eines Glan-Taylor-Prismas erfolgte. Damit konnten Angaben von Rückstreu-Depolarisation und Vorwärts-Rückstreuverhältnis gemacht werden.

In den Versuchsbehältern sind unterschiedliche Partikeltypen untersucht worden: In der kühlbaren AIDA-Kammer wurde mittels adiabatischer Expansion heterogene Eisnukleation auf Mineral- und Rußpartikeln induziert, sodass hier die Untersuchung von Eisparkeln im Temperaturbereich von 185 K bis 262 K vorgenommen werden konnte. Dagegen wurden in der ASA-Kammer bei Raumtemperatur reine Mineralstaubpartikel aus unterschiedlichen Regionen untersucht, wobei aufgrund der Herkunft der Partikel unterschiedliche Partikelformen berücksichtigt wurden.

Die optischen Aufbauten an beiden Kammern sind prinzipiell baugleich; der Aufbau an der ASA-Kammer wurde zudem zur Einführung verschiedener Verbesserungen genutzt. Alle Elemente, die das Beobachtungsvolumen definieren, sind hier justierbar angebracht, und konnten durch die Verwendung einer zusätzlichen Laserdiode in ihrer Position optimiert werden.

Auch die Lasereinkopplung wurde umgestaltet, sodass die Polarisationsrichtung variabel, nämlich linear polarisiert senkrecht und parallel zur Streuebene, eingestellt werden kann. Auf diese Weise kann die Depolarisation unter Drehung der Laserpolarisation (senkrecht bis parallel zur Streuebene) mit Hilfe nur ei-

nes Photomultipliers bestimmt werden. Dadurch entfiel nicht nur der Abgleich der Detektorempfindlichkeiten für die beiden Polarisationsrichtungen, die Kombination voneinander unabhängiger Depolarisationsmessungen in zwei Kanälen ermöglichte auch die Bestimmung einiger Elemente der Streumatrix ($-F_{12}/F_{11}$, F_{22}/F_{11}). Für einen möglichen Umbau der Streulichapparatur zur systematischen Bestimmung von Matrixelementen wurden Vorschläge zur Verringerung der systematischen und statistischen Fehler gemacht.

Mit dem Aufbau an der ASA-Kammer sind Streulichmessungen an vier verschiedenen Mineralstaubproben durchgeführt worden. Die Ergebnisse der Depolarisationsmessungen zeigten dabei Werte von 0.03...0.15. Aufgrund der drehbaren Laserpolarisation, der damit verbundenen Depolarisationsbestimmung mit jeweils einem Photomultiplier und der Messung in einem von der direkten Rückwärtsrichtung abweichenden Winkel (176°) können für jedes untersuchte Aerosol zwei Depolarisationswerte ($\delta_{CH_{\parallel}}$ und $\delta_{CH_{\perp}}$) angegeben werden. Die beobachtete Differenz dieser beiden Werte konnte darauf zurückgeführt werden, dass das Element $-F_{12}/F_{11}$ der Streumatrix einen von 0 verschiedenen Wert besitzt.

Die Depolarisationsunterschiede zwischen den einzelnen Proben wurden darauf zurückgeführt, dass verschiedene Formen auftraten, wobei insbesondere unterschiedliche Rundungen der Partikelbegrenzungen vorhanden waren. Die vergleichbaren Partikelgrößen bewirkten ähnliche Vorwärtsstreuverhältnisse.

An der AIDA-Kammer konnten systematische Zusammenhänge der Streueigenschaften von Eiskristallen durch die gleichzeitige Messung von Form- und Größencharakteristika des gleichen Partikelensembles aufgezeigt werden. Für große Eiskristalle ($> 30 \mu\text{m}$) wurden dafür die mit dem Cloud Particle Imager der Universität Manchester gemessene Partikelform und -größe verwendet, während bei kleinen Partikeln ($< 10 \mu\text{m}$) die Teilchengröße mit Hilfe des Particle Counter Sizer bestimmt wurde.

Dabei konnte festgestellt werden, dass die Depolarisation in dem Größenbereich 6...70 μm in charakteristischer Weise sowohl von der Partikelgröße als auch der Partikelform abhängt. Bei der Betrachtung von Eiskristallen hoher Rundheiten gibt es in den betrachteten Experimenten eine deutliche Zunahme der Depolarisation mit der Partikelgröße.

Diese Abhängigkeit der Depolarisation von der Partikelgröße wurde auch bei Partikeln im Submikrometerbereich beobachtet. Bei extrem niedrigen Temperaturen (185 K) ist das Partikelwachstum nach Einsatz der Eisnukleation so langsam, dass ein Anstieg der Partikelgröße über einen Zeitbereich von einigen Minuten beobachtet werden konnte; mit dem Partikelwachstum wurde ebenfalls eine Zunahme der Depolarisation verzeichnet.

Bei der Betrachtung von Eiskristallen vergleichbarer Größe, aber unterschiedlicher Asphärität zeigte sich ein Formeffekt der Depolarisation: Bei ausgeprägt nicht-runden Kristallen war die Depolarisation im Vergleich zu ähnlich großen Kristallen höherer Rundheit deutlich verringert.

Aktuelle Ergebnisse eines Modells mit geometrischer Optik unter Berücksichtigung von Beugung (vgl. [Hes03], [HU03]) wurden vor dem Hintergrund einer Abhängigkeit der Depolarisation von der Partikelgröße und -form diskutiert. Danach zeigte sich wie bei den durchgeführten Experimenten sowohl ein Größen- als auch ein Formeffekt in der Depolarisation für die betrachteten Partikelgeometrien. Ein quantitativer Vergleich ist aufgrund der komplexen Größen- und Formverteilung an Eiskristallen in den bisher durchgeführten Experimenten nicht möglich.

Somit haben die durchgeführten Experimente Streueigenschaften asphärischer Partikel unterschiedlicher Form- und Größenbereiche beschrieben. Die Kombination der dargestellten Messungen zeigt, dass insbesondere geringe Depolarisationen durch sehr unterschiedliche Partikel verursacht werden können: Zum einen durch relativ kleine Partikel im Submikrometerbereich (kleine Eis- und Mineralpartikel), zum anderen durch große, stark asphärische Partikel (Eiskristalle niedriger Rundheiten). Dieses Ergebnis muss bei der Interpretation von Depolarisationswerten, bei denen keine unabhängigen Form- und Größeninformationen zur Verfügung stehen, wie z. B. bei Feldmessungen mit LIDAR-Geräten, berücksichtigt werden.

Anhang A

Müllermatrizen der verwendeten optischen Elemente

A.1 Lineare Polarisatoren

Lineare Polarisatoren sind i. d. R. Dünnschichtpolarisatoren, die um einen Winkel ϕ gedreht sind. Doch auch Prismen, wie das in der vorliegenden Arbeit verwendete Glan-Taylor-Prisma, können als lineare Polarisatoren behandelt werden. Bei Ausrichtung in der Streuebene entspricht der außerordentliche Strahl der Transmission durch einen linearen Polarisator im Winkel 0° ; für den ordentlichen Strahl entsprechend im Winkel von 90° .

Winkel	Müllermatrix
0°	$\frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$
90°	$\frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & -1 & 0 & 0 \\ -1 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$
ϕ	$\frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & \cos(2\phi) & \sin(2\phi) & 0 \\ \cos(2\phi) & \cos^2(2\phi) & \cos(2\phi)\sin(2\phi) & 0 \\ \sin(2\phi) & \cos(2\phi)\sin(2\phi) & \sin^2(2\phi) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$

A.2 $\lambda/4$ -Plättchen

Winkel	Müllermatrix
45°	$\begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \end{pmatrix}$
θ	$\begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos^2(2\theta) & \cos(2\theta)\sin(2\theta) & -\sin(2\theta) \\ 0 & \cos(2\theta)\sin(2\theta) & \sin^2(2\theta) & \cos(2\theta) \\ 0 & \sin(2\theta) & -\cos(2\theta) & 0 \end{pmatrix}$

Anhang B

Geometrie des Streuvolumens

Tabelle B.1: Eigenschaften des Streuvolumens beim AIDA- und ASA-Aufbau.

	AIDA	ASA
Strahldivergenz	1.1 mrad	1.1 mrad
Abstand Detektoroptik – Streuvolumen	2200 mm	1330 mm
Laserdurchmesser Austritt	0.63 mm	0.63 mm
Laserdurchmesser Streuvolumen	5.5 mm	3.6 mm
Abstand Lasereinkopplung – Detektor	150 mm	103 mm
α	3.9°	4.4°
a	80 mm	46 mm
Apertur Detektoroptik	20.4 mm	20.4 mm
b	299 mm	265 mm
V_1	0.9 cm^3	0.2 cm^3
V_2	5.2 cm^3	2.2 cm^3
V	7.0 cm^3	2.6 cm^3

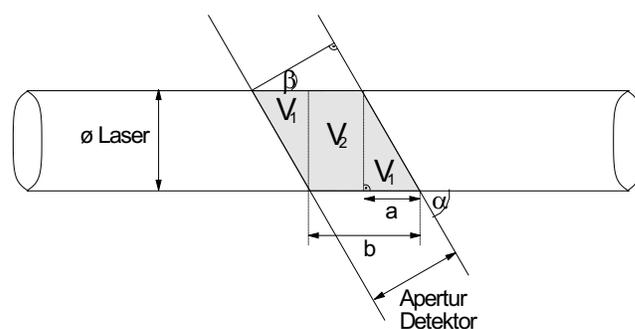


Abbildung B.1: Schematische Darstellung der Geometrie des Streuvolumens.

Anhang C

Bilder der vom CPI abgebildeten Eiskristalle

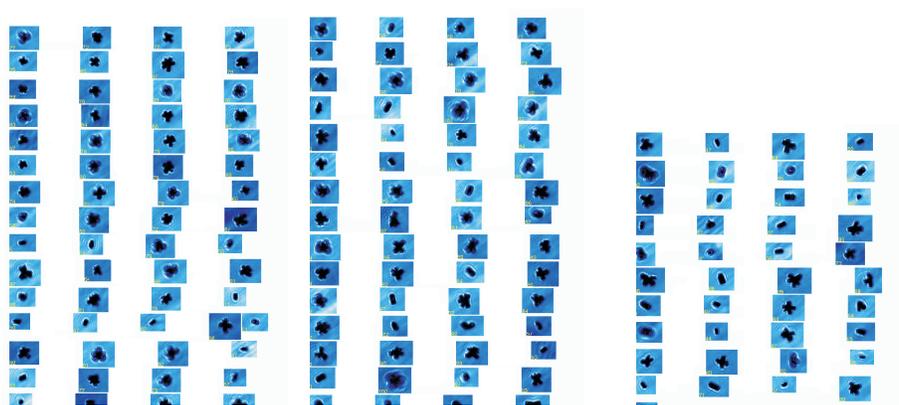


Abbildung C.1: Bilder der vom CPI abgebildeten Eiskristalle bei Experiment 73.

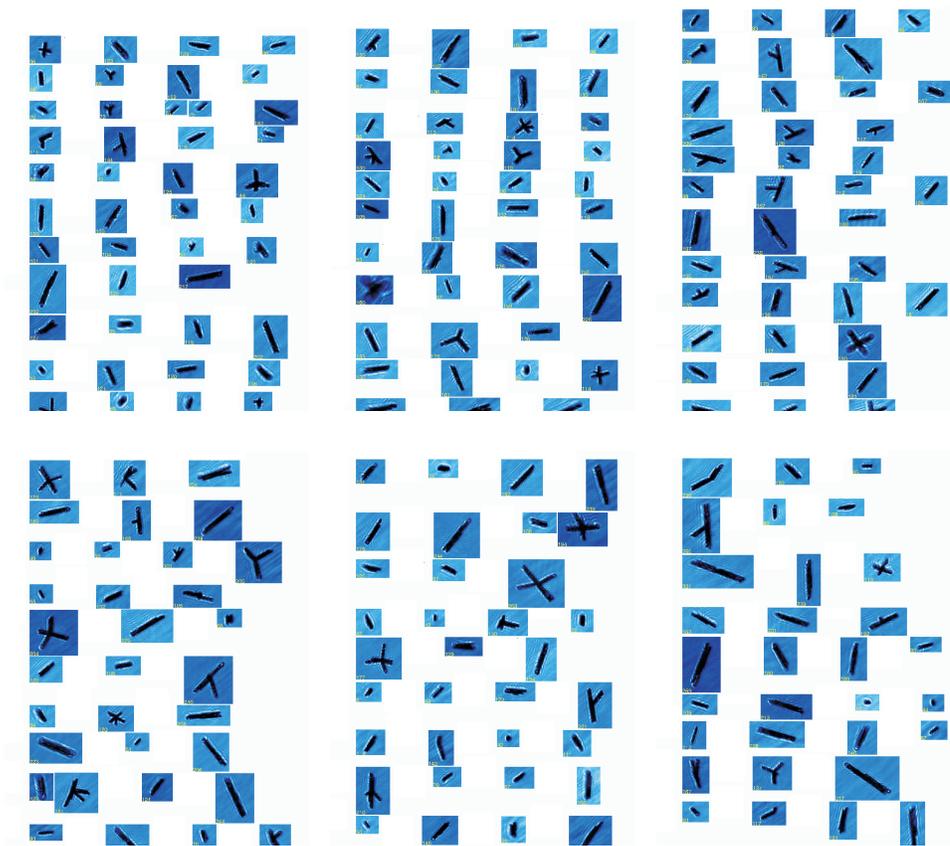


Abbildung C.2: Bilder der vom CPI abgebildeten Eiskristalle bei Experiment 80.

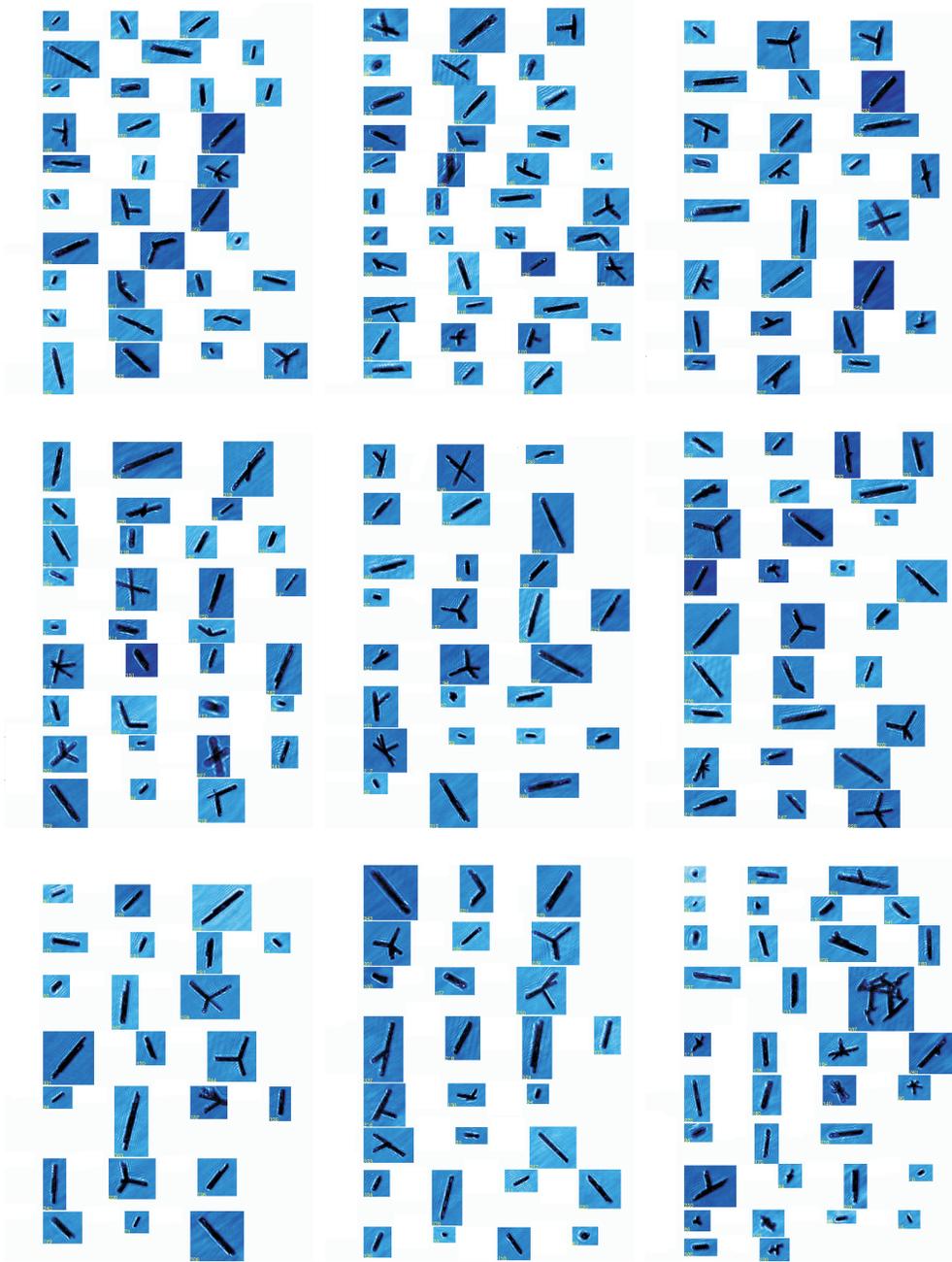


Abbildung C2: Bilder der vom CPI abgebildeten Eiskristalle bei Experiment 80 (Fortsetzung).

Literaturverzeichnis

- [ABB⁺93] A. Ansmann, J. Bosenberg, G. Brogniez, S. Elouragini, P. H. Flamant, K. Klapheck, H. Linn, L. Menenger, W. Michaelis, M. Riebesell, C. Senfe, P. Y. Thro, U. Wandinger, and C. Weitkamp. LIDAR network observations of cirrus morphological and scattering properties during the international cirrus experiment 1989 - the 18 october 1989 case-study and statistical-analysis. *Journal of Applied Meteorology*, 32(10):1608–1622, 1993.
- [BBI⁺90] E. V. Browell, C. F. Butler, S. Ismail, P. A. Robinette, A. F. Carter, N. S. Higdon, O. B. Toon, M. R. Schoeberl, and A. F. Tuck. Airborne LIDAR observations in the wintertime arctic stratosphere - polar stratospheric clouds. *Geophysical Research Letters*, 17(4):385–388, 1990.
- [BH98] C. F. Bohren and D. R. Huffman. *Absorption and scattering of light by small particles*. Wiley, New York, 1998.
- [CDDA⁺99] F. Cairo, G. Di Donfrancesco, A. Adriani, L. Pulvirenti, and F. Fierli. Comparison of various linear depolarization parameters measured by LIDAR. *Applied Optics*, 38(21):4425–4432, 1999.
- [CMW95] M. L. Clapp, R. E. Miller, and D. R. Worsnop. Frequency-dependent optical-constants of water ice obtained directly from aerosol extinction spectra. *Journal of Physical Chemistry*, 99(17):6317–6326, 1995.
- [EC92] E. E. Ebert and J. A. Curry. A parameterization of ice-cloud optical-properties for climate models. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 97(D4):3831–3836, 1992.
- [FHJ96] V. Freudenthaler, F. Homburg, and H. Jäger. Optical properties of contrails from LIDAR measurements: linear depolarization. *Geophysical Research Letters*, 23(25):3715–3718, 1996.

- [FL93] Q. Fu and K. N. Liou. Parametrization of the radiative properties of cirrus clouds. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 50(13):2008–2025, 1993.
- [Fre00] V. Freudenthaler. *Lidarmessungen der räumlichen Ausbreitung sowie mikrophysikalischer und optischer Parameter von Flugzeugkondensstreifen*. PhD thesis, Hohenheim, 2000.
- [GGB⁺03] T. J. Garrett, H. Gerber, D. G. Baumgardner, C. H. Twohy, and E. M. Weinstock. Small, highly reflective ice crystals in low-latitude cirrus. *Geophysical Research Letters*, 30(21):2132, 2003.
- [Hes03] E. Hesse. Persönliche Mitteilung, 2003.
- [HKS⁺03] W. Haag, B. Kärcher, S. Schaeffers, O. Stetzer, O. Möhler, U. Schurath, M. Krämer, and C. Schiller. Numerical simulations of homogeneous freezing processes in the aerosol chamber AIDA. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3:195–210, 2003.
- [HM02] A. J. Heymsfield and G. M. McFarquhar. Mid-latitude and tropical cirrus. In D. K. Lynch, K. Sassen, D. O. Starr, and G. Stephens, editors, *Cirrus*, pages 78–101. University Press, Oxford, 2002.
- [HU03] E. Hesse and Z. Ulanowski. Scattering from long prisms computed using ray tracing combined with diffraction on facets. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 79-80:721–732, 2003.
- [IPC01] Intergovernmental Panel on Climate Change IPCC. *Climate Change 2001, The Scientific Basis*. Cambridge University Press, New York, 2001.
- [IS03] F. Immler and O. Schrems. Vertical profiles, optical and microphysical properties of Saharan dust layers determined by a ship-borne LIDAR. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 3:2707–2737, 2003.
- [JKT94] E. J. Jensen, S. Kinne, and O. B. Toon. Tropical cirrus cloud radiative forcing - sensitivity studies. *Geophysical Research Letters*, 21(18):2023–2026, 1994.
- [JTV⁺01] E. J. Jensen, O. B. Toon, S. A. Vay, J. Ovarlez, R. May, T. P. Bui, C. H. Twohy, B. W. Gandrud, R. F. Pueschel, and U. Schumann.

- Prevalence of ice-supersaturated regions in the upper troposphere: Implications for optically thin ice cloud formation. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 106(D15):17253–17266, 2001.
- [KI03] A. Korolev and G. Isaac. Roundness and aspect ratio of particles in ice clouds. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 60(15):1795–1808, 2003.
- [KS03] B. Kärcher and J. Ström. The roles of dynamical variability and aerosols in cirrus cloud formation. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3:823–838, 2003.
- [Lin03] C. Linke. Persönliche Mitteilung, 2003.
- [LJS96] C. Liu, P. R. Jonas, and C. P. R. Saunders. Pyramidal ice crystal scattering phase functions and concentric halos. *Annales Geophysicae-Atmospheres Hydrospheres and Space Sciences*, 14(11):1192–1197, 1996.
- [Mis91] M. I. Mishchenko. Light-scattering by randomly oriented axially symmetrical particles. *Journal of the Optical Society of America a-Optics Image Science and Vision*, 8(6):871–882, 1991.
- [MLCT95] M. I. Mishchenko, A. A. Lacis, B. E. Carlson, and L. D. Travis. Nonsphericity of dust-like tropospheric aerosols - implications for aerosol remote-sensing and climate modeling. *Geophysical Research Letters*, 22(9):1077–1080, 1995.
- [MM96] M. I. Mishchenko and D. W. Mackowski. Electromagnetic scattering by randomly oriented bispheres: Comparison of theory and experiment and benchmark calculations. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 55(5):683–694, 1996.
- [MMW⁺03] D. Müller, I. Mattis, U. Wandinger, A. Ansmann, D. Althausen, O. Dubovik, S. Eckhardt, and A. Stohl. Saharan dust over a central european EARLINET-AERONET site: Combined observations with Raman LIDAR and sun photometer. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 108(D12), 2003.
- [MS98] M. I. Mishchenko and K. Sassen. Depolarization of LIDAR returns by small ice crystals: An application to contrails. *Geophysical Research Letters*, 25(3):309–312, 1998.

- [MSD⁺99] R. Meerkötter, U. Schumann, D. R. Doelling, P. Minnis, T. Nakajima, and Y. Tsushima. Radiative forcing by contrails. *Annales Geophysicae-Atmospheres Hydrospheres and Space Sciences*, 17:1080–1094, 1999.
- [MSS⁺03] O. Möhler, O. Stetzer, S. Schaefers, C. Linke, M. Schnaiter, R. Tiede, H. Saathoff, M. Krämer, A. Mangold, P. Budz, P. Zink, J. Schreiner, K. Mauersberger, W. Haag, B. Kärcher, and U. Schurath. Experimental investigation of homogeneous freezing of sulphuric acid particles in the aerosol chamber AIDA. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3:211–223, 2003.
- [MSU⁺01] T. Murayama, N. Sugimoto, I. Uno, K. Kinoshita, K. Aoki, N. Hagiwara, Z. Y. Liu, I. Matsui, T. Sakai, T. Shibata, K. Arao, B. J. Sohn, J. G. Won, S. C. Yoon, T. Li, J. Zhou, H. L. Hu, M. Abo, K. Iokibe, R. Koga, and Y. Iwasaka. Ground-based network observation of Asian dust events of april 1998 in east Asia. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 106(D16):18345–18359, 2001.
- [MT98] M. I. Mishchenko and L. D. Travis. Capabilities and limitations of a current FORTRAN implementation of the T-matrix method for randomly oriented, rotationally symmetric scatterers. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 60(3):309–324, 1998.
- [MTL02] M. Mishchenko, L. D. Travis, and A. A. Lacis. *Scattering, Absorption and Emission of Light by Small Particles*. University Press, Cambridge, 2002.
- [MTM96a] M. I. Mishchenko, L. D. Travis, and A. Macke. Scattering of light by polydisperse, randomly oriented, finite circular cylinders. *Applied Optics*, 35(24):4927–4940, 1996.
- [MTM96b] M. I. Mishchenko, L. D. Travis, and D. W. Mackowski. T-matrix computations of light scattering by nonspherical particles: A review. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 55(5):535–575, 1996.
- [MVH⁺00] O. Munoz, H. Volten, J. F. Haan, W. Vassen, and J. W. Hovenier. Experimental determination of scattering matrices of olivine and allende meteorite particles. *Astronomy and Astrophysics*, 360:777–788, 2000.

- [MVH⁺01] O. Munoz, H. Volten, J. F. Haan, W. Vassen, and J. W. Hovenier. Experimental determination of scattering matrices of randomly oriented fly ash and clay particles at 442 and 633 nm. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 106(D19):22833–22844, 2001.
- [MVH⁺02] O. Munoz, H. Volten, J. F. Haan, W. Vassen, and J. W. Hovenier. Experimental determination of the phase function and degree of linear polarization of el chichn and pinatubo volcanic ashes. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 107(D13):101029, 2002.
- [Pal85] E. D. Palik, editor. *Handbook of optical constants of solids*. Academic Press, Orlando, 1985.
- [PYM⁺98] C. M. R. Platt, S. A. Young, P. J. Manson, G. R. Patterson, S. C. Marsden, R. T. Austin, and J. H. Churnside. The optical properties of equatorial cirrus from observations in the ARM pilot radiation observation experiment. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 55(11):1977–1996, 1998.
- [RGC⁺01] B. Rajaram, D. L. Glandorf, D. B. Curtis, M. A. Tolbert, O. B. Toon, and N. Ockman. Temperature-dependent optical constants of water ice in the near infrared: new results and critical review of the available measurements. *Applied Optics*, 40(25):4449–4462, 2001.
- [Sas91] K. Sassen. The polarization LIDAR technique for cloud research: A review and current assessment. *Bulletin American Meteorological Society*, 72(12):1848–1866, 1991.
- [SAS⁺03] K. Sassen, W. P. Arnott, D. O. Starr, G. G. Mace, Z. Wang, and M. R. Poellot. Midlatitude cirrus clouds derived from hurricane nora: A case study with implications for ice crystal nucleation and shape. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 60(7):873–891, 2003.
- [SB01] K. Sassen and S. Benson. A midlatitude cirrus cloud climatology from the facility for atmospheric remote sensing. Part II: Microphysical properties derived from LIDAR depolarization. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 58(15):2103–2112, 2001.
- [Sch03] M. Schnaiter. Persönliche Mitteilung, 2003.
- [SDPP03] K. Sassen, P. J. DeMott, J. M. Prospero, and M. R. Poellot. Saharan dust storms and indirect aerosol effects on clouds: CRYSTAL-FACE results. *Geophysical Research Letters*, 30(12), 2003.

- [Shu62] W. A. Shurcliff. *Polarized Light – Production and Use*. Harvard University Press, Cambridge, Massachusetts, 1962.
- [SSH⁺03] T. Sakai, T. Shibata, K. Hara, M. Kido, K. Osada, M. Hayashi, K. Matsunaga, and Y. Iwasaka. Raman LIDAR and aircraft measurements of tropospheric aerosol particles during the Asian dust event over central Japan: Case study on 23 april 1996. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 108(D12), 2003.
- [SSI⁺02] T. Sakai, T. Shibata, Y. Iwasaka, T. Nagai, M. Nakazato, T. Matsumura, A. Ichiki, Y. S. Kim, K. Tamura, D. Troshkin, and S. Hamdi. Case study of Raman LIDAR measurements of Asian dust events in 2000 and 2001 at Nagoya and Tsukuba, Japan. *Atmospheric Environment*, 36(35):5479–5489, 2002.
- [TLF96] I. Tegen, A. A. Lacis, and I. Fung. The influence on climate forcing of mineral aerosols from disturbed soils. *Nature*, 380(6573):419–422, 1996.
- [vHHP97] W. von Hoyningen-Huene and P. Posse. Nonsphericity of aerosol particles and their contribution to radiative forcing. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 57(5):651–668, 1997.
- [VMR⁺01] H. Volten, O. Munoz, E. Rol, J. F. de Haan, W. Vassen, J. W. Hovenier, K. Muinonen, and T. Nousiainen. Scattering matrices of mineral aerosol particles at 441.6 nm and 632.8 nm. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 106(D15):17375–17401, 2001.
- [Wag03] R. Wagner. Persönliche Mitteilung, 2003.
- [War84] S. G. Warren. Optical constants of ice from the ultraviolet to the microwave. *Applied Optics*, 23(8):1206–, 1984.
- [WMM⁺03] R. Wagner, A. Mangold, O. Möhler, H. Saathoff, M. Schnaiter, and U. Schurath. A quantitative test of infrared optical constants for supercooled sulphuric and nitric acid droplet aerosols. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3:1147–1164, 2003.
- [ZM00] N. T. Zakharova and M. I. Mishchenko. Scattering properties of needlelike and platelike ice spheroids with moderate size parameters. *Applied Optics*, 39(27):5052–5057, 2000.

Abbildungsverzeichnis

2.1	Darstellung der elliptischen Polarisierung.	5
2.2	Elliptische, lineare und zirkulare Polarisierung mit den zugehörigen Stokes-Parametern (aus [MTL02]).	7
3.1	Schematischer Aufbau des Streulichtaufbaus, hier dargestellt für den ASA-Behälter.	14
4.1	Darstellung von prolaten und oblaten Sphäroiden.	23
4.2	Depolarisation durch prolata und oblate Sphäroide mit Achsenverhältnis ϵ , berechnet für einen Winkel von 176° mit T-Matrix-Rechnungen [MT98] ($\lambda = 488$ nm, BI = 1.31, modifizierte Exponential-Verteilung).	25
4.3	Vorwärtsstreuverhältnis durch prolata und oblate Sphäroide mit Achsenverhältnis ϵ , berechnet für die Winkelkombination von $4^\circ/176^\circ$ mit T-Matrix-Rechnungen [MT98] ($\lambda = 488$ nm, BI = 1.31, modifizierte Exponential-Verteilung).	26
4.4	Depolarisation durch oblate Sphäroide unterschiedlicher Achsenverhältnisse, berechnet mit T-Matrix-Rechnungen.	27
4.5	Matrixelemente eines oblaten Sphäroids mit Achsenverhältnis 20, berechnet mit T-Matrix-Rechnungen ([MT98], BI=1.31, Größenparameter 8, Gamma-Verteilung) im Vergleich zu einer Kugel mit Größenparameter 1.	28
4.6	Winkelabhängigkeit der Depolarisation im parallelen und senkrechten Kanal für Bispähren von 2×635 nm ([MM96], BI=1.46, berührende Kugeln, $\lambda = 488$ nm).	29
5.1	Verlauf der Anzahlkonzentration während des Referenzexperimentes mit Glaskugeln sowie typische Größenverteilung mit zugehörigem bimodalen Fit.	32
5.2	Ergebnis des Abgleichs der Photomultiplier in Rückwärtsrichtung.	35

5.3	Größenverteilungen der untersuchten mineralischen Partikel, gemessen mit PCS und SPMS.	39
5.4	REM-Bilder der untersuchten Mineralpartikel.	40
5.5	Ergebnisse der Depolarisation und des Vorwärtsstreuverhältnisses aus Streulichtmessungen an Mineralstaub.	42
6.1	Schematische Anordnung der Messinstrumente an der AIDA.	53
6.2	Funktionsprinzip des Cloud Particle Imagers.	54
6.3	Bestimmung von Länge und Breite der vom CPI abgebildeten Partikel.	56
6.4	Entwicklung der PCS-Größenverteilungen im Verlauf von Eisaktivierung 148.	58
6.5	Vergleich des Mediandurchmessers von Eispartikeln aus FTIR-Fit-ergebnissen und lognormal-Fits an Größenverteilungen der PCS-Messungen während der Aktivierungen 30, 34, 147 und 148.	59
6.6	Ausgangsgrößenverteilungen von GfG-Ruß und Mineralstaub bei den Expansionsexperimenten	61
6.7	Verlauf der wichtigsten Messgrößen während einer Eisaktivierung.	62
6.8	Depolarisation und Partikelgröße in Abhängigkeit von der Rundheit bei Eisnukleationsexperimenten mit Mineralstaub.	67
6.9	Abhängigkeit der Depolarisation von der Partikelgröße bei Eiskristallen hoher Rundheit.	68
6.10	Verlauf von Druck, Wand- und Gastemperatur, Depolarisation sowie Partikelgröße bei Aktivierung 165 (GfG-Ruß, 185.6 K).	69
6.11	Beispiel der vom CPI abgebildeten Eiskristalle hoher (Experiment 73) und niedriger Rundheit (Experiment 80).	70
6.12	Abhängigkeit der Depolarisation von Partikelgröße und -rundheit.	72
6.13	Kristallformen der berechneten Eispartikel (nach [LJS96]).	74
6.14	Depolarisation an verschiedenen Formen von Eiskristallen in Abhängigkeit von der Partikelgröße, berechnet anhand eines Modells mit geometrischer Optik und Beugung ([Hes03]).	76
6.15	Depolarisation für verschiedene fiktive Formmischungen mit unterschiedlichen Anteilen an Bullets, Säulen mit zwei pyramidalen Enden, Säulen sowie Plättchen.	77
6.16	Verlauf von gemessener und berechneter Partikelkonzentration sowie Eispartikelfraktion bei Exp. 84.	82
B.1	Schematische Darstellung der Geometrie des Streuvolumens.	89
C.1	Bilder der vom CPI abgebildeten Eiskristalle bei Experiment 73.	90
C.2	Bilder der vom CPI abgebildeten Eiskristalle bei Experiment 80.	91

Abkürzungsverzeichnis

2D-C	2 Dimensional Imaging C loud P robe
AIDA	A ersol I nteraction and D ynamics in the A tmosphere
CCD	C harge C oupled D evice
CPC	C ondensation P article C ounter
CPI	C loud P article I mager
CVI	C ounterflow V irtual I mpactor
cw	continous w ave
FISH	F ast <i>in situ</i> S tratospheric H ygrometer
FTIR	F ourier- T ransformations- I nfrarot- S pektroskopie
GfG-Ruß	G raphitfunken- G enerator- R uß
IN	I ce N ucleation
IN02, IN03	AIDA-Eisnukleations-Kampagnen
LASER	L ight A mplification by S timulated E mission R adiation
LIDAR	L ight D etection and R anging
PCS	P article C ounter S izer
PSC	P olar S tratospheric C louds
PMT	P hot m ultiplier T ube
REM	R asterelektronen m ikroskop
RBG	R otierender B ürsten G enerator
SMPS	S canning M obility P article S izer