

Universität Leipzig

Fakultät für Physik und Geowissenschaften

Diplomarbeit im Fach Meteorologie,
angefertigt am Forschungszentrum Karlsruhe

**Charakterisierung einer
Laserstreulichtapparatur zum Nachweis von
Eiskristallen unter simulierten atmosphärischen
Bedingungen**

vorgelegt von

Marlen Vragel

im Januar 2006

Gutachter:

Prof. Dr. Jost Heintzenberg

Leibniz-Institut für Troposphärenforschung e.V., Leipzig

Prof. Dr. Ulrich Schurath

Institut für Meteorologie und Klimaforschung,

Bereich Atmosphärische Aerosolforschung,

Forschungszentrum Karlsruhe in der Helmholtz-Gemeinschaft

Inhaltsverzeichnis

1	Aufgabenstellung	1
2	Motivation	5
2.1	Das atmosphärische Aerosol	5
2.2	Wolken	9
2.3	Direkter und indirekter Strahlungsantrieb durch das Aerosol . . .	11
2.4	Die AIDA-Aerosolkammer	13
2.5	Instrumentierung	15
3	Theoretische Grundlagen	19
3.1	Lichtstreuung an einem Einzelpartikel	20
3.2	Stokesvektoren und Müllermatrizen	21
3.3	Streumatrix	22
3.4	Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnis	24
3.5	Depolarisation	26
4	Aufbau der Streulichtapparatur	31
4.1	Sendeoptik	31
4.1.1	Laser	31
4.1.2	Polarisationsoptik	33
4.2	Empfangsoptik	36
4.2.1	Fernrohre und Glan-Laser-Prisma	37
4.2.2	Neutralfilter	39

INHALTSVERZEICHNIS

4.2.3	Minimierung von Fremdlichteinflüssen	40
5	Charakterisierung der Streulichtapparatur	41
5.1	Justage der Polarisationsoptik	41
5.2	Justage der Fernrohre	44
5.3	Justage des Glan-Laser-Prismas	45
5.4	Kalibrierung der Neutralfilter	46
5.5	Dunkelzählraten und Abgleich der PMTs	49
5.5.1	Dunkelzählraten der PMTs	49
5.5.2	Abgleich der Rückwärts-PMTs	49
5.5.3	Abgleich der Rückwärts-PMTs an die Vorwärtsrichtung . .	53
5.6	Detektionswinkel und Messvolumen	56
5.7	Hintergrundmessung und Datenauswertung	58
6	Ergebnisse und Modellrechnungen	63
6.1	Tröpfchenexperiment	63
6.2	Deliqueszenzexperiment	69
6.3	Experimente mit einem Eiskeimgenerator	74
7	Zusammenfassung und Ausblick	81
	Anhang	85
	Abkürzungen	89
	Formelzeichen und Symbole	91
	Abbildungs- und Tabellenverzeichnis	95
	Literaturverzeichnis	97
	Danke!	101
	Erklärung	103

Kapitel 1

Aufgabenstellung

In der großen bis -90 °C kühlbaren AIDA-Aerosolkammer des Forschungszentrums Karlsruhe (AIDA steht für **A**erosol **I**nteractions and **D**ynamics in the **A**tmosphere) lässt sich die Temperatur, ähnlich wie in einer adiabatisch aufsteigenden Luftmasse, durch kontinuierliches Pumpen erniedrigen. Dadurch steigt die relative Feuchte, so dass lösliche Aerosolpartikel Wasser aufnehmen und bei Überschreiten von 100 % relativer Feuchte zu Wolkentropfen aktiviert werden. Falls bei solchen Experimenten eine Temperatur von etwa -36 °C unterschritten wird, gefrieren unterkühlte Wolkentröpfchen bzw. Lösungströpfchen spontan zu Eis (homogene Nukleation). Wenn in der flüssigen Phase unlösliche Partikel eingeschlossen sind, kann der Gefrierprozess auch schon bei höheren Temperaturen ausgelöst werden (heterogene Nukleation). Auf bestimmten unlöslichen Aerosolpartikeln (Rußpartikel, Mineralstaub) kristallisiert Eis besonders bei tiefen Temperaturen auch direkt aus der Gasphase aus (Depositionsnukleation). Die genauen Bedingungen, unter denen in der Atmosphäre Eiskristallisation stattfindet, sind bisher noch unzureichend verstanden. Sie werden daher durch Simulationsexperimente in der AIDA-Kammer systematisch untersucht.

Um dabei den Phasenübergang von flüssigen (d.h. sphärischen) Partikeln zu Eiskristallen (d.h. nicht-sphärischen Partikeln) mit hoher zeitlicher Auflösung nachweisen zu können, wurde an der AIDA-Kammer schon vor einigen Jahren eine Laserstreulichtapparatur installiert, deren prinzipieller Aufbau aus Abbildung 1.1 hervorgeht. Sie bestand aus einem Argon-Ionenlaser ($\lambda = 488\text{ nm}$), dessen linear polarisierter Strahl quer durch die AIDA-Kammer in eine gegenüber angebrachte Strahlfalle gerichtet war. Unter Winkeln von 4 ° bzw. 176 ° wurde die Intensität des durch Luftmoleküle, Aerosolpartikel, Wolkentröpfchen oder Eiskri-

1 AUFGABENSTELLUNG

stalle im Zentrum der Kammer erzeugten Streulichtes von zwei Detektorsystemen gemessen. Insbesondere wurde in Rückwärtsrichtung das parallel und senkrecht zum Laserstrahl polarisierte Streulicht getrennt detektiert, da die Streulicht-Depolarisation ein empfindlicher Indikator für den Phasenübergang von flüssigen Aerosolpartikeln zu rasch wachsenden Eiskristallen ist. In ihrer Doktorarbeit hat

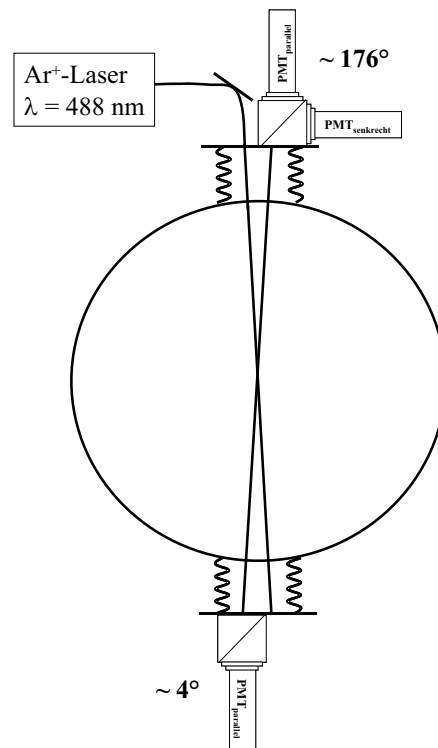


Abbildung 1.1: Schematischer Aufbau der ursprünglichen Streulichtapparatur.

Simone Büttner zeigt, dass die ursprüngliche Apparatur sowohl konzeptionelle als auch technische Schwächen aufwies und durch eine Reihe von Maßnahmen wesentlich verbessert werden sollte (BÜTTNER, 2004 [6]). Ziel der vorliegenden Arbeit war es nun, unter Berücksichtigung ihrer Verbesserungsvorschläge die alte Streulichtapparatur durch einen Neubau zu ersetzen und diesen zu charakterisieren. Entsprechend dieser Vorgabe gliedert sich die Diplomarbeit wie folgt:

Kapitel 2 gibt eine allgemeine Einführung über Aerosole und ihre Rolle im Klimasystem. Zudem wird die AIDA-Aerosolkammer nebst der für diese Arbeit wichtigsten Instrumentierung vorgestellt. Kapitel 3 behandelt theoretische Grundlagen

der Aerosloptik. Im vierten Kapitel wird der Aufbau der Streulichtapparatur vorgestellt, gefolgt von der ausführlichen Charakterisierung in Kapitel 5. Im Anschluss werden in Kapitel 6 drei AIDA-Experimente ausgewertet, abschließend gibt es in Kapitel 7 einen kurzen Ausblick.

Kapitel 2

Motivation

2.1 Das atmosphärische Aerosol

Allgemein bezeichnet der Begriff Aerosol eine Suspension schwebender fester und/oder flüssiger Partikel in einem Trägergas. Somit ist die Atmosphäre per Definition ein Aerosol. Zu Aerosolpartikeln zählen allerdings nur diejenigen Beimengungen, deren Aufenthaltsdauer in der Gasphase einige Stunden übersteigt. So besitzen Partikel mit einem Durchmesser von über $100 \mu\text{m}$ – z.B. Regentropfen – eine Fallgeschwindigkeit, die aufgrund der Gravitation zur baldigen Ausse dimentation führt. Nach unten ist der Größenbereich der Aerosolpartikel durch stabile Molekülcluster ab 1 nm Durchmesser limitiert.

Je nach ihrer geographischen Herkunft weisen Luftmassen verschieden hohe Partikelanzahlkonzentrationen auf. Nach WARNECK, 2000 [31] beinhaltet kontinentales Hintergrundaerosol bis zu 1000 Partikel pro Kubikzentimeter, ländliche Luft bis zu 15000 Partikel. In stark verschmutzter städtischer Luft können bis eine Million Partikel pro Kubikzentimeter nachgewiesen werden. Marines Aerosol ohne kontinentale Einflüsse beinhaltet generell weniger Partikel pro Volumeneinheit als kontinentales Aerosol. In den Polarregionen, in denen Partikelquellen weitgehend fehlen, beträgt die Partikelanzahlkonzentration im Sommer nur 25 pro Kubikzentimeter.

WHITBY, 1978 [34] entwickelte ein trimodales Aerosolmodell, dessen untere Grenze bei 20 nm liegt. Dank verbesserter Messtechnik unterscheidet man heute vier Moden der Anzahl-Größenverteilung (nach WIEDENSOHLER, 2000 [35]): Nukleationsmode ($D < 20 \text{ nm}$), Aitkenmode: ($20 \text{ nm} < D < 100 \text{ nm}$), Akkumu-

2.1 DAS ATMOSPHERISCHE AEROSOL

lationsmode ($100 \text{ nm} < D < 1 \text{ }\mu\text{m}$) und groben Mode ($1 \text{ }\mu\text{m} < D < 100 \text{ }\mu\text{m}$). Gemäß ihrer Größe lassen sich die Partikel in grobe ($D > 1 \text{ }\mu\text{m}$), feine ($D < 1 \text{ }\mu\text{m}$) und ultrafeine ($D < 20 \text{ nm}$) untergliedern.

Partikelquellen. Die Partikel des groben Mode werden durch BPC-Prozesse (**B**ulk-**t**o-**P**article-**C**onversion) in die Atmosphäre eingebracht. Darunter versteht man die Zerkleinerung festen oder flüssigen Ausgangsmaterials, z.B. der Erdkruste. Quellgebiete für den Eintrag mineralischer Partikel in die Atmosphäre sind ausgetrocknete Seen (sog. Hotspots, z.B. dust bowl in Oklahoma), Tagebaugelände und Desertifikationsgebiete. Seesalz gelangt aus dem Meerwasser durch platzen- de Luftbläschen in die Atmosphäre, die bei brechenden Wellen entstehen. Dabei bilden sich zwei Größenklassen von Seesalz-Tröpfchen, nach deren Abtrocknung das vorwiegend aus NaCl bestehende Seesalz-Aerosol zurückbleibt. Weitere durch BPC-Prozesse entstehende primäre Partikel sind Flugasche, Industriestäube und biogene Partikel.

Eine weitere primäre Partikelquelle sind Verbrennungsprozesse, bei denen v.a. Ruß entsteht. Der mittlere Rußpartikeldurchmesser liegt bei 60 nm. Bei der Verbrennung fossiler und biogener Brennstoffe bilden sich zudem Schwefelsäuretröpfchen und organische Partikel. Wegen seines hohen Absorptionsquerschnittes beeinflusst Ruß den Strahlungshaushalt. Rußpartikel in externer Mischung sind stark hydrophob, sie verbleiben meist als interstitielles Aerosol innerhalb einer Wolke. Der Großteil der Rußpartikel wird aber binnen kurzer Zeit intern gemischt – meist mit Schwefelsäure oder Ammoniumsulfat – und kann somit als Kondensationskeim dienen. Ruß wird durch Auswaschen aus der Atmosphäre entfernt. Durchlaufen Primärpartikel in der Atmosphäre Umwandlungsprozesse, die ihre chemischen und physikalischen Eigenschaften verändern oder werden gar aus Vorläufergasen neue Partikel gebildet, spricht man von Sekundärpartikeln.

Die zum Nukleations- und Aitkenmode gehörenden Aerosopartikel entstammen GPC-Prozessen (**G**as-**t**o-**P**article-**C**onversion): Übersättigte Dämpfe gehen von der Gasphase in die Partikelphase über und bilden sekundäres Aerosol. Dies geschieht durch (homogene) Nukleation, wenn keine Kondensationskeime vorhanden sind und Sekundärpartikel direkt aus der Gasphase entstehen. Sind genügend stabile Kondensationskeime vorhanden, kann die Partikelphase durch (heterogene) Kondensation weiter anwachsen. Hierfür sind geringere Übersättigungen der kondensierbaren Dämpfe notwendig.

Vulkanisches oder durch Verbrennungsprozesse entstandenes SO_2 oxidiert mit atmosphärischem OH zu gasförmiger Schwefelsäure H_2SO_4 , aus der Sulfate gebildet werden. Durch die Oxidation von DMS (**D**imethylsulfid), einem Stoffwechselprodukt des Phytoplankton, entsteht ebenfalls Schwefelsäure.

Transformation des Aerosols. Die Brown'sche Partikelbewegung ist neben der Partikelsedimentation die Hauptursache für die Transformation durch Koagulation. Dabei ist die polydisperse effektiver als die monodisperse Koagulation. Vor allem kleine Partikel ($< 50 \text{ nm}$) besitzen eine hohe Beweglichkeit und stoßen daher mit weniger mobilen größeren Partikeln ($> 100 \text{ nm}$) zusammen. Dieses Verhalten wird mathematisch mittels des Diffusionskoeffizienten beschrieben, der umgekehrt proportional zur Partikelgröße ist. Nach dem unelastischen Zusammenstoß bleiben die Partikel aneinander haften. Die Anzahl-Größenverteilung des Aerosols verändert sich insofern, als dass die Partikel des Aitkenmodes in den Akkumulationsmode hineinwachsen, der mittlere Partikeldurchmesser also zunimmt. Demnach stellt die Koagulation eine Senke für Aitkenmodepartikel dar. Zugleich verringert sich die Partikelanzahlkonzentration.

Essentiell wichtig für die Wolkenbildung ist die Kondensation bzw. die Verdampfung von Wolkentröpfchen. Voraussetzung ist das Vorhandensein von Wolkenkondensationskeimen (CCN, **C**loud **C**ondensation **N**uclei). Je nach relativer Feuchte entsteht ein Wasserdampf-Massenfluss von der Gasphase in die Partikelphase oder umgekehrt. Partikel, die mindestens die Größe des Aitken-Modus haben, können durch Kondensation von Wasserdampf zu Wolkentröpfchen anwachsen. Die Wasseraufnahme eines Kondensationskeimes unterhalb der Wasserdampfsättigung nennt man hygrokopisches Wachstum: Der Prozess der Lösungsbildung und des Wachstums eines zunächst festen, aber löslichen Salzpartikels kann anhand der Hystereseschleife in Abbildung 2.1 veranschaulicht werden. Ist eine bestimmte relative Feuchte erreicht, die man als Deliqueszenzfeuchte des Salzes bezeichnet, wandelt sich das feste Partikel plötzlich in ein gesättigtes Lösungströpfchen um. Bei weiterer Erhöhung der relativen Feuchte quillt es unter Aufnahme von Wasserdampf, so dass die Wasseraktivität der Lösung immer gerade der Umgebungsfeuchte entspricht. Bei Überschreitung von 100 % relativer Feuchte um wenige Zehntel Prozent wird das Lösungströpfchen aktiviert, d.h. es wächst unter unbeschränkter Aufnahme von Wasserdampf zu einem Wolkentröpfchen heran, bis die Wasserdampf-Übersättigung der Umgebungsluft vollständig abgebaut ist. Bei Erniedrigung der relativen Feuchte bis zum Deliqueszenzpunkt

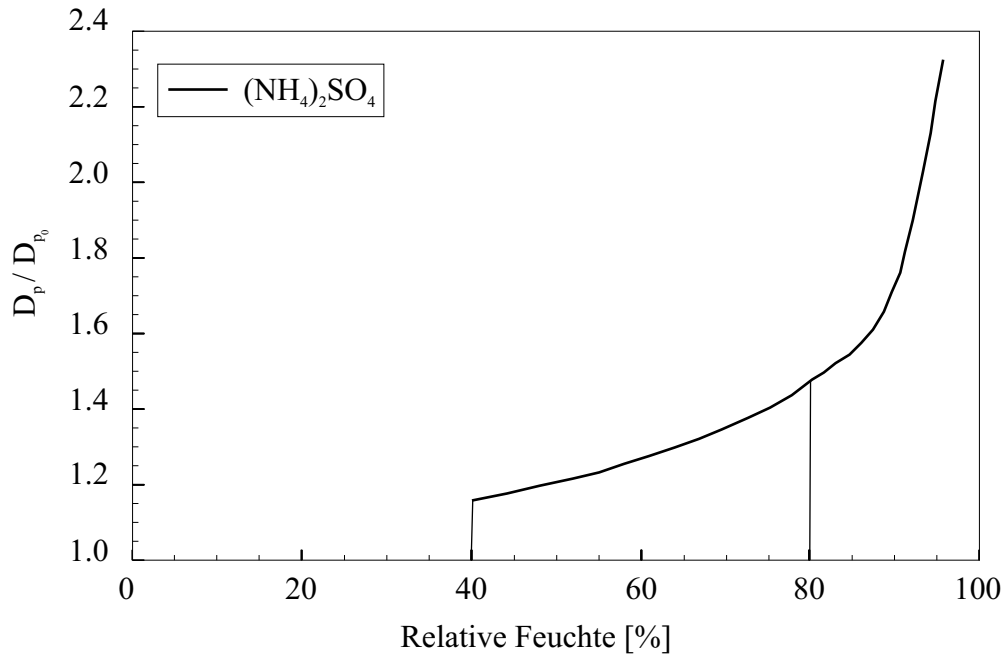


Abbildung 2.1: Wachstumsfaktor $\frac{D_p}{D_{p_0}}$ von Ammoniumsulfat als Funktion der relativen Feuchte. D_{p_0} ist der Partikeldurchmesser bei 0 % *RH*. Quelle: SEINFELD UND PANDIS, 1998 [26].

wandelt sich das durch Abtrocknung schrumpfende Lösungströpfchen nicht wieder in einen trockenen Salzkristall um, sondern bleibt trotz Wasserabgabe bis zum Erreichen des Effloreszenzpunktes metastabil-flüssig. Erst am Effloreszenzpunkt entsteht unter Abgabe des Restwassers wieder ein trockenes Salzpartikel.

Partikelsenken. Verschiedene Depositionsmechanismen schränken die Verweilzeit der Aerosolpartikel in der Atmosphäre ein, so dass im Schnitt Partikel in der atmosphärischen Grenzschicht bis zu zwei Tage, in der oberen Troposphäre bis zu zwei Wochen und in der oberen Stratosphäre sogar bis zu zwei Jahre verbleiben.

Die Partikel der groben Mode werden hauptsächlich durch trockene Deposition, speziell durch Sedimentation, aus der Atmosphäre entfernt. Ultrafeine Aerosolpartikel koagulieren durch Zusammenstöße mit größeren Partikeln. Durch diesen Diffusionsprozess wird zunächst jedoch keine Partikelmasse aus der Atmosphäre entfernt, sondern es verringert sich die Anzahlkonzentration.

Ebenso werden Partikel durch nasse Deposition entfernt. In Regentropfen ganz

oder teilweise gelöste hygroskopische Partikel und gelöste Gase werden ausgerechnet. Auf dem Weg zum Erdboden werden weitere Partikel ausgewaschen. Das Zusammenfließen von Regentropfen aufgrund verschiedener Fallgeschwindigkeiten nennt man Koaleszenz.

2.2 Wolken

Wie im Abschnitt 2.1 beschrieben, wird ein Teil des Aerosols in Wolkentröpfchen transformiert. Allgemein sind Wolken Suspensionen von Hydrometeoren, Aerosolpartikeln und Gasen. Im Mittel sind 60 % der Erdoberfläche von Wolken bedeckt.

Reine Wasserwolken kommen bei Temperaturen oberhalb 0 °C vor, deshalb heißen sie oft auch warme Wolken. Cumulus humilis (Cu hum) erfüllt diese Bedingung immer, Cumulus mediocris (Cu med) und Cumulus congestus (Cu con) nur im Bereich ihrer Basis. Während die Übersättigung in St und Sc nur gering um etwa 0,1 % liegt, beträgt sie in Cu und Cbs mehrere Prozent. Wasserwolken tropfen wachsen durch Kondensation und Koaleszenz. In Mischphasenwolken existieren unterkühlte Tropfen und Eispartikel parallel. Als Mindesttemperatur für die Existenz von Mischphasenwolken gibt man oft -12 bis -15 °C an. Bei dieser Temperatur ist der sogenannte Bergeron-Findeisen-Prozess besonders effektiv, da dort der Dampfdruckunterschied zwischen Wasser und Eis am größten ist. Der Sättigungsdampfdruck über Eis ist generell niedriger als der über Wasser. Herrscht nun im konkreten Fall Wasseruntersättigung, aber Eisübersättigung, so lagert sich der aus den verdunstenden Tropfen bereitgestellte Wasserdampf an bestehende Eiskristalle an. Diese wachsen auf Kosten der Tropfen. Hält dieser Prozess infolge von Aufwinden lange an, kann sich eine Mischphasenwolke in eine Eiswolke umformen.

Auch durch das Herabfallen von Eiskristallen aus höheren Wolken (Seeding) können Mischphasenwolken entstehen. Sie sind hauptverantwortlich für den Niederschlag über Kontinenten und damit für die Spurenstoffauswaschung aus der Troposphäre.

Eiswolken bedecken permanent ca. 40 % der Erdoberfläche (LIU, 1986 [15]). Wegen ihrer Klimawirksamkeit, die im folgenden Abschnitt näher betrachtet werden soll, sind sie Gegenstand aktueller Forschung. Nach TAVKER UND KUMAR [28] bewegt sich die Eispartikeldichte in Cirren zwischen $0,01$ und 1 cm^{-3} . Es gibt

experimentelle Hinweise, dass die Form der Eispartikel empfindlich vom Sättigungszustand und der Temperatur während ihrer Bildung und ihres Wachstums abhängt (BAILEY UND HALLETT [2]). Die Geometrie der Eiskristalle umfasst ein breites Spektrum von einfachen Formen wie Plättchen, Säulen und sogenannten Bullets (siehe Abbildung 2.2) bis hin zu komplexen und irregulären Formen, wie z.B. Rosetten. Je nach Ausgangsaerosol und Temperatur unterscheidet man ho-

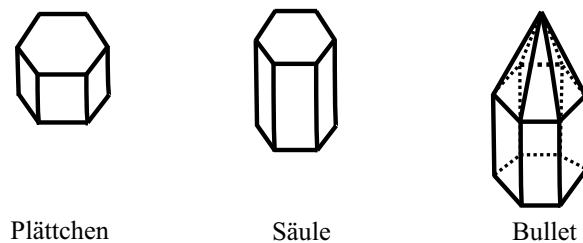


Abbildung 2.2: Einfache Kristallformen. Quelle: LIU ET AL., 1996 [16].

mogene und heterogene Eisnukleation. Das homogene Gefrieren ist der spontane Übergang unterkühlter Lösungströpfchen, z.B. aus Schwefelsäure, in die Eisphase. Dieser stochastische Prozess erfordert hohe Eisübersättigungen von bis zu 140 % und findet im Falle reiner Wassertröpfchen bei Temperaturen unterhalb -36 °C statt. Momentan gibt es einen Disput darüber, ob die Eisnukleation im Volumen oder bevorzugt an der Oberfläche unterkühlter Tröpfchen erfolgt. Im Experiment wird die Nukleationswahrscheinlichkeit in Abhängigkeit der Tropfengröße ermittelt. Ist die gemessene Nukleationswahrscheinlichkeit über einen weiten Größenbereich proportional zum Tropfenvolumen, so handelt es sich – wie bisher angenommen wurde – um volumeninduzierte homogene Eisnukleation. Ist die Nukleationswahrscheinlichkeit dagegen über einen weiten Größenbereich proportional zur Tropfenoberfläche, so kann man daraus schließen, dass Eiskeime bevorzugt an der Tropfenoberfläche entstehen. Tabazadeh (TABAZADEH ET AL., 2002 [27]) hat Argumente für die oberflächeninduzierte Nukleation publiziert. Wenn das stimmt, würde deutlich mehr Eis in der Atmosphäre entstehen als bisher in Wettervorhersagemodellen angenommen wird, da verstärkt kleine Lösungs- und Wolkenströpfchen vereisen würden. Wenn die Zahl der Wolkenkondensationskeime durch anthropogene Emissionen erhöht würde, hätte das erheblichen Einfluss auf den hydrologischen Kreislauf in Form einer Verringerung des weltweiten Niederschlages.

Heterogenes Gefrieren wird dagegen durch meist unlösliche Fremdpartikel wie

Ruß, Mineralstaub oder Schwermetalloxide verursacht (FEICHTER, LOHMANN, 2004 [9]). Wassertröpfchen gefrieren heterogen dann bereits ab $-5\text{ }^{\circ}\text{C}$. Eiskeime erniedrigen die kritische Eisübersättigung, weshalb heterogenes Gefrieren bei sehr viel geringeren Eisübersättigungen stattfindet als die homogene Eisnukleation. Heterogene Eisnukleation beinhaltet im Wesentlichen vier verschiedene Gefriermechanismen: Kondensiert Wasser bei Wasserübersättigung, aber für das homogene Gefrieren noch zu warmen Temperaturen auf einen unlöslichen Kondensationskeim, so kann das Kondensat zu Eis gefrieren, da der Kondensationskeim den Gefrierprozess initiiert. Man nennt dies *Kondensationsgefrieren*. Liegt der unlösliche Eiskeim dagegen bereits im Inneren des unterkühlten Lösungströpfchens vor und setzt dort bei sinkender Temperatur den Gefrierprozess in Gang, findet *Immersionsgefrieren* statt. *Depositionsnukleation* findet statt, wenn Wasserdampf bei ausreichend niedrigen Temperaturen an einen Eiskern, den IN (Ice Nucleus), diffundiert, wodurch an dessen fester Oberfläche ein Eiskristall wächst, ohne dass sich zunächst ein flüssiges Kondensat bildet. Unter *Kontaktgefrieren* versteht man das Gefrieren eines unterkühlten Tröpfchens, ausgelöst durch Kollision mit einem festen Partikel. Nach PRUPPACHER UND KLETT, 1997 [24] ist die Eisbildungseffizienz umso höher, je größer der Eiskeim ist. Danach müssen Eiskeime je nach Temperatur und Sättigung eine bestimmte kritische Größe überschreiten, mindestens $0,1\text{ }\mu\text{m}$. Sind Eiskristalle entstanden, können diese durch Kondensation und Anfrieren unterkühlter Tropfen (Graupelbildung) weiter anwachsen.

In der Natur führen hohe Auftriebsgeschwindigkeiten zu einer schnellen Abkühlung der betreffenden Luftmasse. Auf synoptischer Skala (z.B. Warmfronten) laufen Hebungsprozesse langsamer ab als auf regionaler Skala (z.B. Konvektion). Je höher die Abkühlungsrate, desto höhere Eisübersättigungen werden erreicht und desto höher liegt die Nukleationsrate. Durch adiabatisches Kühlen werden in der AIDA-Aerosolkammer Eisnukleationsexperimente mit unterschiedlichem Temperatur- und Feuchteprofil durchgeführt.

2.3 Direkter und indirekter Strahlungsantrieb durch das Aerosol

Spricht man vom Strahlungsantrieb des Aerosols, meint man die aerosolbedingte Änderung der kurz- und langwelligen Strahlungsflüsse am Oberrand der Atmosphäre oder an der Tropopause bei sonst gleichen meteorologischen Bedingungen

2.3 DIREKTER UND INDIREKTER STRAHLUNGSANTRIEB DURCH DAS AEROSOL

(PRUPPACHER UND KLETT, 1997 [24]). Treibhausgase wie Wasserdampf, Kohlendioxid, Methan, Distickstoffoxid und Ozon absorbieren terrestrische Strahlung ($> 3 \mu\text{m}$) und führen zu einer Erwärmung des Systems Erde-Atmosphäre. Mit dem natürlichen Treibhauseffekt ist die mittlere Erdoberflächentemperatur von 15°C zu erklären, die ohne diesen um ca. 30 K niedriger läge. Der Strahlungsantrieb des atmosphärischen Aerosols kann sowohl positiv als auch negativ sein. Man unterscheidet zwischen dem direkten und indirekten Strahlungsantrieb: Der direkte Strahlungsantrieb umfasst die Absorption und thermische Emission sowie die Streuung der solaren und terrestrischen Strahlung an Aerosolpartikeln. Ruß, z.B. von Dieselfahrzeugen emittiert, absorbiert wegen seines hohen Absorptionsquerschnittes kurzwellige solare Strahlung, was einen positiven Strahlungsantrieb an der Tropopause bedeutet. Sulfataerosole streuen sichtbares Licht ohne es zu absorbieren, sie wirken daher abkühlend auf die Atmosphäre. Selbiges gilt für Seesalz. Laut IPCC-BERICHT 2001 [13] (Intergovernmental Panel on Climate Change) führt der direkte Strahlungsantrieb zu einer insgesamt negativen Strahlungsbilanz an der Tropopause (siehe Abbildung 2.3). Unter dem indirekten Strahlungs-

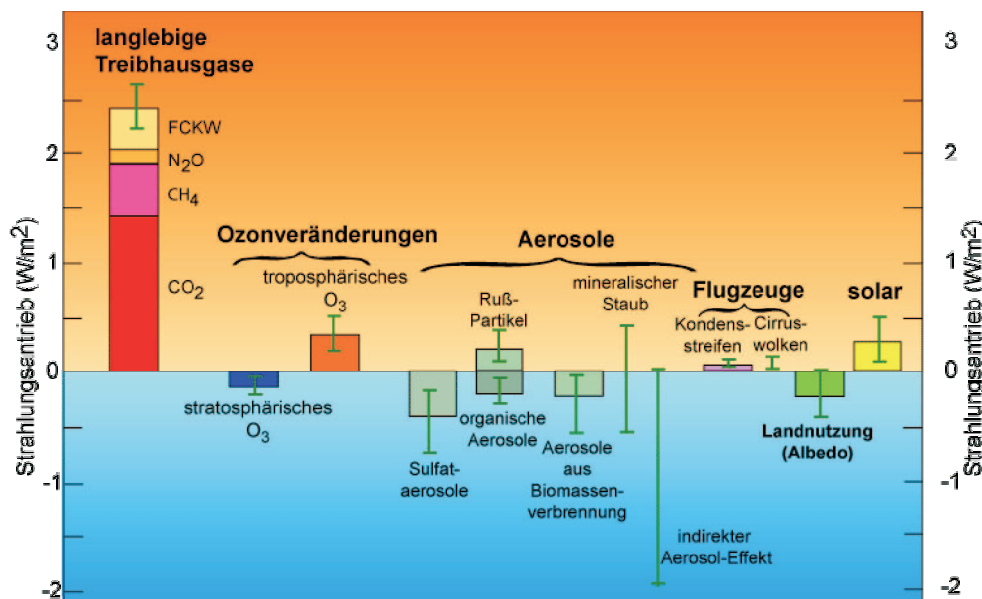


Abbildung 2.3: Strahlungseinflüsse nach dem IPCC-Report 2001. Quelle: IPCC-BERICHT 2001 [13]

antrieb versteht man die Veränderung der Strahlungsbilanz aufgrund der Modifizierung von mikrophysikalischen und optischen Wolkeneigenschaften durch Aerosolpartikel. Betrachtet man die zur Wolkenbildung zur Verfügung stehende

Wasserdampfmenge als konstant, so entstehen bei erhöhter CCN-Konzentration (Cloud Condensation Nuclei) Tropfen kleineren Durchmessers. An der nunmehr vergrößerten Tropfengesamtfläche wird verstärkt Solarstrahlung rückreflektiert, die Wolkenalbedo erhöht sich (Twomeyeffekt, nach TWOMEY, 1977 [29]). Die Albedo von sichtbaren Cirruswolken liegt bei 0,15 bis 0,3. Der Twomey- oder Albedoeffekt wurde z.B. von SCHRÖDER ET AL., 2000 [25] belegt, wonach die Querschnittsfläche von Eisteilchen in Kondensstreifen kleiner ist und damit die optische Dicke größer als in natürlichen Cirren. Speziell für Cirrus gilt, dass optisch dünner Cirrus einen positiven Strahlungsantrieb verursacht, da die Absorption der langwelligen terrestrischen Strahlung durch die Eispartikel stärker ist als die Reflexion der kurzwelligen Solarstrahlung (positiver Klimaantrieb). Optisch dicker Cirrus dagegen reflektiert kurzwellige Strahlung effektiver, weswegen er abkühlend wirkt. Laut IPCC-Bericht 2001 dominiert der erwärmende Effekt. Der zweite indirekte Strahlungseffekt ist der Lebensdauereffekt warmer Wolken: Kleinere Tropfendurchmesser gehen mit einer Verringerung der Niederschlagseffizienz einher, da die Sedimentationsgeschwindigkeit der Tröpfchen abnimmt, weil diese quadratisch vom Durchmesser abhängt. Da dies den Koaleszenzprozess verlangsamt, verzögert sich der Übergang von einer nicht regnenden zu einer regnenden Wolke. Die Lebensdauer der Wolke erhöht sich.

Die durch Aerosole hervorgerufene Nettoabkühlung der Atmosphäre scheint von der erwärmenden Wirkung der anthropogenen Treibhausgase überkompensiert zu werden. Allerdings sind die Modellrechnungen mit großen Unsicherheiten behaftet, da in heutigen Klimamodellen nur Aerosolmassen simuliert werden, deren Größenverteilung, räumliche und zeitliche Verteilung und chemische Komposition nur angenommen werden können. Zudem sind Rückkopplungsmechanismen zwischen Atmosphäre, Ozean und Landoberfläche zu berücksichtigen.

Während der natürliche und anthropogene Treibhauseffekt also einen positiven Energieeintrag darstellt, wirkt der Strahlungsantrieb des Aerosols tendenziell abkühlend.

2.4 Die AIDA-Aerosolkammer

Die dieser Arbeit zugrunde liegenden Experimente werden an der AIDA-Aerosolkammer durchgeführt, deren wesentliche Techniken hier beschrieben werden. Detaillierte Ausführungen finden sich in BENZ ET AL., 2005 [3], MÖHLER

2.4 DIE AIDA-AEROSOLKAMMER

ET AL., 2003 [17] und WAGNER ET AL., 2006 [30]. Abbildung 2.4 zeigt die instrumentelle Ausstattung. Die 4×7 m große Versuchskammer hat ein Volumen von $84,3 \text{ m}^3$ und besteht aus 2 cm dickem Aluminium mit einer hohen Wärmekapazität. Die in einem Isoliergehäuse befindliche Kammer wird zur Kühlung bzw. Heizung mit Luft umspült. Somit können Temperaturen zwischen 333 K und 183 K realisiert werden. Um Zieltemperaturen bis 235 K zu erreichen, genügt es, die Luft im Isoliergehäuse mittels starker Gebläse durch zwei Wärmetauscher zirkulieren zu lassen, die durch eine verdampfende Kühlflüssigkeit gekühlt werden. Die Wärmetauscher sind im Bereich des Kammerbodens angebracht. Für Temperaturen bis 183 K wird die im Isoliergehäuse umgewälzte Luft durch Flüssigstickstoff gekühlt, der in separaten Wärmetauschern verdampft und nach außen abgeleitet wird. Damit sind Kühlraten bis zu 6 K h^{-1} erzielbar. Die Tempe-

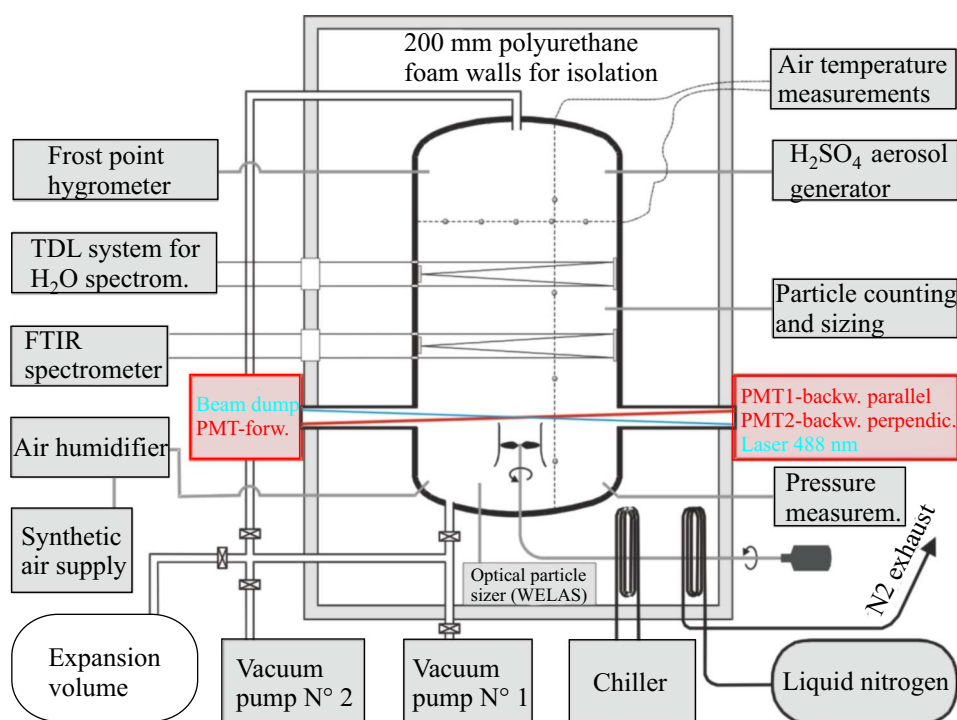


Abbildung 2.4: Schematischer Aufbau der AIDA-Aerosolkammer mit Instrumentierung.

raturmessung im Isoliergehäuse und an der Kammerwand geschieht mit jeweils fünf auf verschiedenen Höhenniveaus angebrachten Thermoelementen. Zur Messung der Gastemperatur in AIDA dienen fünf Thermoelemente, die in äquidi-

stanten Abständen an einem Draht fixiert sind. Der Draht ist einen Meter von der Kammerachse entfernt vertikal angebracht. Die Zeitkonstante der Temperatursensoren beträgt bei Atmosphärendruck 3 s, bei 180 hPa 10 s. Ein in der Kammermitte einen Meter über dem Boden platzierter Ventilator mit regelbarer Drehzahl dient der Homogenisierung der Gastemperatur. Bei konstantem Druck ist die Gastemperatur gegenüber der Wandtemperatur leicht erhöht, weil sich im Kammervolumen diverse Wärmequellen befinden, wie der Ventilator und beheizte Probenahmelanzen. Diese dienen z.B. der Bestimmung der Gesamtwasserkonzentration, bestehend aus Aerosol- und Gasphasenwasser. Zwei Vakuumpumpen, deren Pumpgeschwindigkeiten unabhängig voneinander reguliert werden können, ermöglichen ein Abpumpen des Kammervolumens auf bis zu 0,01 hPa. Wird in dieses weitgehend aerosolfreie Volumen partikelfreie synthetische Luft eingeleitet, liegt die Konzentration des Hintergrundaerosols unter 0,1 Partikel cm^{-3} . Die Vakuumpumpen dienen der Druck- und Temperaturniedrigung während der Aktivierungsphasen. Bei maximalen Pumpraten von bis zu 400 $\text{m}^3 \text{h}^{-1}$ beträgt aufgrund der internen Wärmequellen, verzögerten Ansprechzeiten der Thermoelemente und inhomogener Gasdurchmischung die Unsicherheit der Gastemperaturmessung $\pm 0,3 \text{ K}$.

2.5 Instrumentierung

Weißlicht-Aerosolspektrometer. In der vorliegenden Arbeit werden die mit einem WELAS (**Weißlicht-Aerosolspektrometer**, Palas GmbH) gemessenen Größenverteilungen für die experimentelle Bestimmung der Detektionswinkel der Streulichtapparatur genutzt. Abbildung 2.5 zeigt den schematischen Aufbau des WELAS-Gerätes. Beleuchtungs- und Empfangseinheit bilden einen 90° -Winkel. Als Beleuchtung dient eine Weißlichtquelle zur Minimierung von Lichtinterferenzen. In der Beleuchtungs- und Empfangsoptik befindet sich je eine T-Blende. Somit entsteht innerhalb der Messküvette ein dreidimensionales Messvolumen in Form eines T. Randzonen- und Koinzidenzfehler werden auf diese Weise in Verbindung mit einer zeitlichen Auswertung der Streulichtpulse minimiert. Die Partikelanzahlkonzentration ergibt sich aus der Streulichtpulsfrequenz. Gleichzeitig können über die Streuintensität Aussagen über die Partikelgröße getroffen werden. Die WELAS-Streuintensitäten wurden mit Latex-Partikeln kalibriert. Da der Brechungsindex von Wasser kleiner als der von Latex ist, werden bei gleicher Streuintensität Latexpartikel bei einem größeren Durchmesser als Wasserpartikel

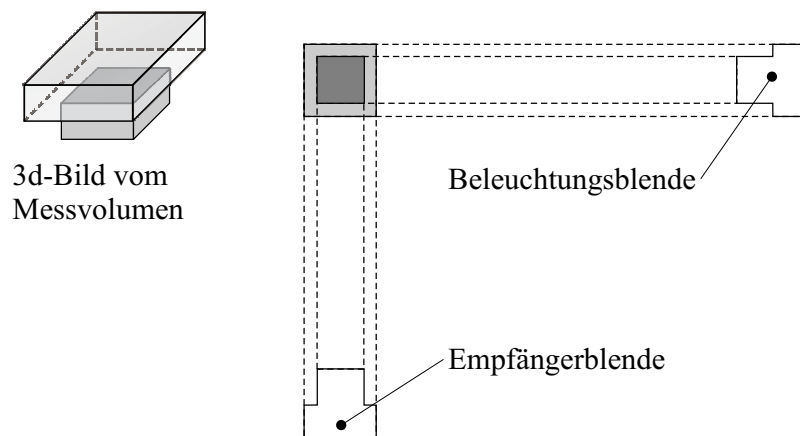


Abbildung 2.5: Schematischer Aufbau des WELAS.

angezeigt. Liegt die Partikelgröße nur knapp oberhalb der Latex-Sensitivitätsschwelle, kann keine statistisch signifikante Größenverteilung angefitet werden, da sich der untere Teil der Größenverteilung nicht im Sensitivitätsbereich befindet. Deshalb muss für die Ermittlung einer eindeutigen Größenverteilung der mittlere Partikeldurchmesser mindestens $\approx 2 \mu\text{m}$ betragen.

Cloud Particle Imager. Ein CPI (Cloud Particle Imager) der Universität Manchester dient der Gewinnung von Forminformationen über in AIDA gebildete Eiskristalle. Die folgenden Angaben sind aus BÜTTNER, 2004 [6] und [HTTP://CLOUDBASE.PHY.UMIST.AC.UK/FIELD/INSTRUMENTS/CPI.HTM](http://cloudbase.phy.umist.ac.uk/field/instruments/cpi.htm) [10] entnommen. Das vertikale Probenahmerohr ist unter der Versuchskammer angebracht und hat einen Innendurchmesser von 1,8 cm. Das Gerät wird mit einem Volumenfluss von 150 l min^{-1} betrieben. Abbildung 2.6 veranschaulicht das Funktionsprinzip des CPIs. Zwei cw-Laser (in der Abbildung: PDS, Particle Detection System) mit einer Emissionswellenlänge von $\lambda = 480 \text{ nm}$ und rechteckigem Strahlquerschnitt ($2,4 \times 0,5 \text{ mm}$) kreuzen sich und definieren das Messvolumen. Befindet sich darin ein Partikel, detektieren die PDS-Detektoren gleichzeitig einen Puls und der Imaging-Laser wird ausgelöst. Das Messvolumen wird mit monochromatischem Licht der Wellenlänge $\lambda = 850 \text{ nm}$ für ca. 30 ns beleuchtet. Eine CCD-Kamera detektiert ein über eine Mikroskopoptik vergrößertes Bild des Partikels, welches mit einer kommerziell erhältlichen Software ausgewertet wird. Die Bildauflösung beträgt $2,5 \mu\text{m}$. Die Pixelanzahl pro Partikel und Abbildungsfehler limitieren die untere Nachweisgrenze für statistisch verlässliche Größen- und

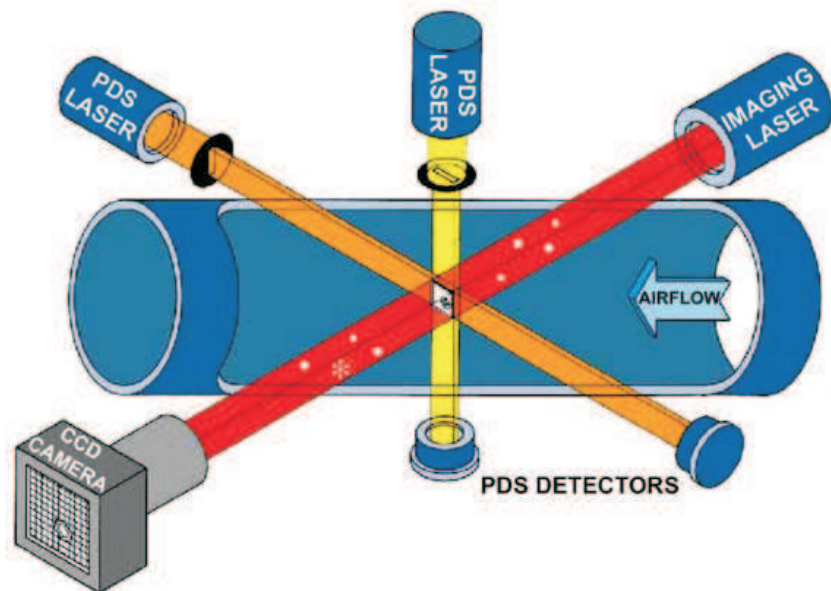


Abbildung 2.6: Aufbau und Funktion des Cloud Particle Imagers. Quelle: WWW.SPECINC.COM/CPIOPERATION.HTM [12].

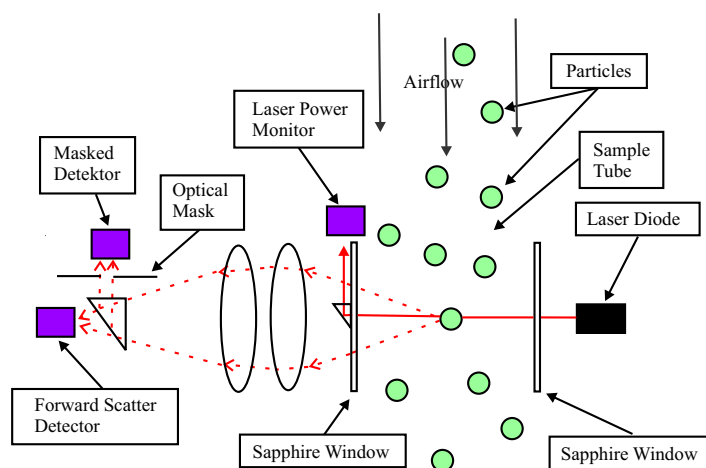


Abbildung 2.7: Aufbau und Funktion des Cloud Droplet Probe. Quelle: WWW.DROPLETMEASUREMENTS.COM [1].

Formangaben auf Partikeldurchmesser ab $30\ \mu\text{m}$. Die abgebildete Eiskristallform ist wesentlich von der Orientierung der Kristalle zur Projektionsfläche abhängig.

Cloud Droplet Probe. Das CDP (**C**loud **D**roplet **P**robe) ist ein kommerziell erhältliches Wolkenpartikelspektrometer. Abbildung 2.7 verdeutlicht das Messprinzip: Eine 50 mW-Laserdiode emittiert Licht der Wellenlänge 660 nm. Das Laserlicht wird an einem Prisma umgelenkt und zur Überwachung der Laserleistung genutzt. Durch ein Probenahmerohr werden Wolkenröpfchen angesaugt. Das Streulicht im Winkelbereich von 4° bis 12° wird mittels einer Optik kollimiert und trifft in den Detektor. Ein zweiter Detektor mit einer vorgeschalteten Blende misst gezielt die Streuintensität aus dem Winkelrandbereich. Das CDP wird mit einem Standardaerosol kalibriert. Über Vergleiche mit den gemessenen Intensitäten können mittlere Partikeldurchmesser von 1 bis $50\ \mu\text{m}$ und Partikelanzahlkonzentrationen bis zu $10000\ \text{cm}^{-3}$ bestimmt werden. Während des Betriebes an AIDA wurde das CDP mit einer Zeitauflösung von zehn Sekunden betrieben.

Kapitel 3

Theoretische Grundlagen

Partikel wechselwirken mit einfallender elektromagnetischer Strahlung über Absorption und Streuung. Die durch diese Wechselwirkungen auftretende Abschwächung eines parallel einfallenden Strahlenbündels wird als Extinktion bezeichnet. Streuung ist der Oberbegriff für Reflexion, Beugung und Brechung. Mit der Streulichtapparatur SIMONE (Streulichtintensitätsmessungen zum optischen Nachweis von Eiskristallen) wird Streustrahlung aus AIDA gemessen, die von Partikeln in einem definierten Messvolumen ausgeht. Als Lichtquelle dient ein Laser der Wellenlänge 488 nm, vgl. Abbildung 2.4, der polarisiertes Licht emittiert. Die Intensität der Streustrahlung wird unter einem Winkel von $1,8^\circ$ in der Vorwärtsrichtung gemessen, während die rückgestreute Intensität unter einem Winkel von $178,2^\circ$ polarisationsaufgelöst erfasst wird. Deshalb soll in diesem Kapitel die Physik der Lichtstreuung an Partikeln geschildert werden. Zunächst wird in Kapitel 3.1 das Prinzip des Streuvorganges veranschaulicht. In Abschnitt 3.2 wird eine vereinfachte Darstellung des Polarisationszustandes von Lichtwellen angegeben. Es folgt in Kapitel 3.3 eine mathematische Beschreibung, mit der die Streueigenschaften von Partikeln ausgedrückt werden können. Anschließend wird in Abschnitt 3.4 das Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnis und in Kapitel 3.5 die Depolarisation definiert. Beide Parameter spielen eine Schlüsselrolle bei der Interpretation der SIMONE-Streudaten.

Die in den Abschnitten 3.2 und 3.3 aufgeführten Gleichungen sind, soweit nicht anders angegeben, aus BOHREN UND HUFFMAN, 1998 [5] entnommen.

3.1 Lichtstreuung an einem Einzelpartikel

Zur Veranschaulichung der Lichtstreuung an einem isotropen Einzelpartikel kann dessen Oberfläche in infinitesimal kleine Flächenelemente zerlegt werden. Trifft eine parallele elektromagnetische Wellenfront auf das Partikel, dann wird in jedem Oberflächenelement ein Dipolmoment \vec{M} induziert. Es ist parallel zum elektrischen Feld \vec{E} der einfallenden Wellenfront ausgerichtet und führt mit gleicher Frequenz eine erzwungene Schwingung aus. Amplitude und Phase des induzierten Dipolfeldes hängen vom Partikelmaterial sowie von der Wellenlänge des einfallenden Lichtes ab. Es werden Kugelwellen in den Raum abgestrahlt, deren Superposition an einem Aufpunkt als sogenannte Sekundärstrahlung, als Streulicht, beobachtet wird. Die Phasenrelationen der aus verschiedenen Oberflächenelementen stammenden Teilwellen variieren mit dem Streuwinkel θ und hängen von Größe und Form des Partikels ab: Ist der Partikeldurchmesser sehr viel kleiner als die Wellenlänge, so ist der Feldvektor \vec{E} und die Phase der anregenden Welle über die Ausdehnung des Partikels quasi konstant und für einen beliebigen Punkt im Unendlichen schwingen alle Teilwellen in Phase. Das Partikel streut im Rayleigh-Regime und die winkelabhängige Streufunktion ist analog zu der eines Dipols. Rayleigh-Streuung findet in der Atmosphäre an Luftmolekülen statt. Die Streuintensität ist proportional der vierten Wellenzahlpotenz, was das Himmelsblau und die Rotfärbung bei Sonnenauf- und -untergang erklärt. Liegen Partikeldurchmesser und Wellenlänge in der gleichen Größenordnung, entstehen nach obigem Modell viele Sekundärwellen, deren Phasenbeziehung stark vom Streuwinkel θ abhängt.

Für sphärische Streuzentren lassen sich die Maxwell-Gleichungen analytisch lösen. Erstmals wurde dies 1905 von Gustav Mie durchgeführt, weshalb die Lösung i.A. als Mie-Theorie bezeichnet wird (MIE, 1908 [18]). Für asphärische Partikel mit einer sehr komplexen Geometrie ist dieses Randwertproblem nicht mehr analytisch lösbar. Hierzu bedarf es numerischer Methoden zur Annäherung der Streufunktion, z.B. der T-Matrix-Methode. Deren Details werden z.B. in BOHREN UND SINGHAM, 1991 [4], MISHCHENKO ET AL., 1996 [21] und MISHCHENKO UND SASSEN, 1998 [19] diskutiert. Zusammengefasst ist die Phasenbeziehung der Teilwellen und damit die Phasen- oder Streufunktion abhängig von θ , der Partikelgröße, der Partikelform, bei nicht runden Partikeln auch ihrer Orientierung, sowie dem komplexen Brechungsindex des Partikelmaterials und der Wellenlänge des einfallenden Lichtes.

3.2 Stokesvektoren und Müllermatrizen

Stokesvektoren. In der Schreibweise der Stokesvektoren lässt sich der Polarisationszustand von Lichtwellen leicht verdeutlichen. Die Stokesparameter I , Q , U und V sind anhand messbarer Intensitäten definiert. Die detaillierte Herleitung der Stokesvektoren ist in BOHREN UND HUFFMAN, 1998 [5] angegeben. Der Parameter I steht für die Intensität und ist auf 1 normiert. Q und U beschreiben die lineare Polarisation, wobei $Q > 0$ für horizontale, $Q < 0$ für vertikale Polarisation steht. Für $+45^\circ$ -polarisiertes Licht gilt $U > 0$, für -45° -polarisiertes Licht $U < 0$. Der Parameter V gibt die zirkuläre Polarisation an. Ist der Strahl rechtszirkular polarisiert, so ist $V > 0$; ist er linkszirkular polarisiert, gilt $V < 0$. In der Literatur ist die Blickrichtung (in oder entgegen der Strahlausbreitungsrichtung) nicht einheitlich definiert. In Tabelle 3.1 sind einige Polarisationszustände und deren zugehörige Stokesvektoren aufgeführt.

Polarisationszustand	Stokesvektor
unpolarisiert	(1, 0, 0, 0)
vertikal	(1, -1, 0, 0)
horizontal	(1, 1, 0, 0)

Tabelle 3.1: Polarisationszustand und zugehöriger Stokesvektor.

Für polarisiertes Licht gilt

$$I^2 = Q^2 + U^2 + V^2. \quad (3.1)$$

Daraus kann der Polarisationsgrad P berechnet werden:

$$P = \frac{Q^2 + U^2 + V^2}{I^2}. \quad (3.2)$$

Für $V = 0$ ergibt sich der lineare, für $Q = U = 0$ der zirkuläre Polarisationsgrad.

Müllermatrizen. Trifft ein Lichtstrahl auf ein optisches Element, z.B. einen Polarisator, wird der ursprüngliche Polarisationszustand verändert. Bei den folgenden Betrachtungen wird von idealen Polarisatoren ausgegangen: Es werden nur diejenigen \vec{E} -Feldkomponenten transmittiert oder reflektiert, die der jeweiligen Stellung der optischen Achse entsprechen. Jeder Polarisator lässt sich durch

3.3 STREUMATRIX

eine 4×4 -Müllermatrix beschreiben, die den einfallenden Stokesvektor in den transmittierten Stokesvektor überführt. Die allgemeine Müllermatrix eines linearen Polarisators lautet

$$\frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & \cos 2\phi & \sin 2\phi & 0 \\ \cos 2\phi & \cos^2 2\phi & \cos 2\phi \sin 2\phi & 0 \\ \sin 2\phi & \sin 2\phi \cos 2\phi & \sin^2 2\phi & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (3.3)$$

Darin entspricht ϕ dem Winkel, um den der Polarisator aus einer Basisebene im Laborsystem herausgedreht ist. In der vorliegenden Arbeit werden die Müllermatrizen eines $\lambda/4$ -Plättchens (LVP) und eines linearen Polarisators (DSP, **D**ünnschicht**p**olarisator) dazu genutzt, die Polarisationsrichtung einer linear polarisierten Laserstrahlung zu drehen. Zuerst wird das LVP, danach der DSP durchlaufen. Wie in Kapitel 4.1.2 erläutert wird, findet dabei eine Umwandlung von vertikal in horizontal polarisiertes Licht statt. Dieser Vorgang kann wie folgt ausgedrückt werden:

$$\frac{1}{2} \underbrace{\begin{pmatrix} 1 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}}_{\text{DSP auf } 0^\circ} \underbrace{\begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & (-)1 & 0 & 0 \end{pmatrix}}_{\text{LVP auf } 45^\circ} \underbrace{\begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}}_{\text{vertikal polarisiert}} = \frac{1}{2} \underbrace{\begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}}_{\text{horizontal polarisiert}}. \quad (3.4)$$

3.3 Streumatrix

Analog zu den Müllermatrizen optischer Elemente existiert auch für die Streuung an Aerosolpartikeln eine 4×4 -Matrix, die die Relation der einfallenden und gestreuten Stokesvektoren beschreibt. Das einfallende und gestreute elektrische Feld kann in parallel und senkrecht zur Streuebene gerichtete Komponenten aufgespalten werden:

$$\begin{aligned} \vec{E}_i &= E_{\parallel i} \hat{e}_{\parallel i} + E_{\perp i} \hat{e}_{\perp i}, \\ \vec{E}_s &= E_{\parallel s} \hat{e}_{\parallel s} + E_{\perp s} \hat{e}_{\perp s}. \end{aligned} \quad (3.5)$$

Darin steht i für einfallendes, s für gestreutes Licht. Einfallendes und gestreutes elektromagnetisches Feld sind über die Beziehung

$$\begin{pmatrix} E_{\parallel s} \\ E_{\perp s} \end{pmatrix} = \frac{\exp(jk(r-z))}{-jkr} \underbrace{\begin{pmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{pmatrix}}_{\text{Amplitudenstrematrix}} \begin{pmatrix} E_{\parallel i} \\ E_{\perp i} \end{pmatrix} \quad (3.6)$$

verknüpft. Die Amplitudenstrematrix beschreibt das Streuverhalten eines Einzelpartikels oder eines Partikelensembles vollständig. Da die Stokesparameter über die \vec{E} -Feldamplituden parallel und senkrecht zur Streuebene definiert sind, kann Gleichung (3.6) auch mit den Stokesvektoren des ein- und ausfallenden Strahls ausgedrückt werden. Dabei entsteht aus der 2×2 -Amplitudenstrematrix eine 4×4 -Strematrix, deren Elemente mit den Amplitudenstrematrixelementen in Verbindung stehen. Allgemein gilt:

$$\vec{I}_s = \frac{1}{k^2 r^2} \underbrace{\begin{pmatrix} S_{11} & S_{12} & S_{13} & S_{14} \\ S_{21} & S_{22} & S_{23} & S_{24} \\ S_{31} & S_{32} & S_{33} & S_{34} \\ S_{41} & S_{42} & S_{43} & S_{44} \end{pmatrix}}_{\text{Strematrix}} \vec{I}_i. \quad (3.7)$$

mit \vec{I}_s Stokesvektor des Streulichtes, k Wellenzahl, r Abstand Streuzentrum – Detektor, \vec{I}_i Stokesvektor des einfallenden Lichtes. Gelingt es, die Strematrix zu bestimmen, entspricht das der vollständigen Charakterisierung der Streueigenschaften der Partikel. Alle 16 Matrixelemente sind θ -abhängig. Wie aus Gleichung (3.7) entnommen werden kann, ergibt die erste Zeile der Strematrix multipliziert mit dem Stokesvektor des einfallenden Strahls die Intensität des Streulichtes. Fällt unpolarisiertes Licht auf das Partikel, beschreibt allein das Matrixelement S_{11} die Streulichtintensität. Ist das Einfallslight horizontal oder vertikal polarisiert, so ist $I_s = S_{11} \pm S_{12}$. Ähnliche Beziehungen gelten für diagonale und zirkulare Eingangspolarisation.

Für rotationssymmetrische Partikel und Partikelensembles vereinfacht sich die Amplitudenstrematrix, z.B. gilt für sphärische Partikel

$$\begin{pmatrix} \vec{E}_{\parallel s} \\ \vec{E}_{\perp s} \end{pmatrix} = \frac{\exp(jk(r-z))}{-jkr} \underbrace{\begin{pmatrix} S_2 & 0 \\ 0 & S_1 \end{pmatrix}}_{\text{Amplitudenstrematrix}} \begin{pmatrix} \vec{E}_{\parallel i} \\ \vec{E}_{\perp i} \end{pmatrix}. \quad (3.8)$$

Daher vereinfacht sich auch die Streumatrix zu

$$\begin{pmatrix} S_{11} & S_{12} & 0 & 0 \\ S_{21} & S_{11} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & S_{33} & S_{34} \\ 0 & 0 & -S_{43} & S_{33} \end{pmatrix}. \quad (3.9)$$

Für das Streumatrixelement S_{11} besteht die Verbindung zur Amplitudenstreumatrix in

$$S_{11} = \frac{(S_1)^2 + (S_2)^2}{2}. \quad (3.10)$$

S_1 repräsentiert den senkrechten, S_2 den parallelen Anteil an S_{11} . Ist das einfallende Licht unpolarisiert, werden beide Anteile gemittelt. Für parallel bzw. senkrecht zur Streuebene polarisiertes Einfallslight vereinfacht sich die Gleichung entsprechend. Division der Gleichung (3.10) durch das Quadrat der Wellenzahl k liefert den differentiellen Streuquerschnitt

$$\frac{dC(\theta)}{d\Omega} = \frac{S_{11}}{k^2} = \frac{(S_1)^2 + (S_2)^2}{2 k^2}. \quad (3.11)$$

Der Streuquerschnitt gibt das Verhältnis der eingestrahnten Leistung zur gestreuten Intensität an und ist analog dem Partikelquerschnitt. Division der Gleichung (3.11) durch C führt zur Phasenfunktion p :

$$p = \frac{1}{C} \frac{dC(\Theta)}{d\Omega}. \quad (3.12)$$

Die Phasenfunktion ist dimensionslos und beschreibt die Verteilung der Streuintensität im Raum um den im Intervall $d\Omega$ zentrisch liegenden Winkel. Die Integration über alle Raumwinkel ergibt 1.

3.4 Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnis

Im vorliegenden Abschnitt wird ein Maß für die Partikelgröße, das Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnis, eingeführt. Mit dessen Hilfe wird eine Strategie für den Abgleich der Detektionseinheiten in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung erarbeitet sowie eine Methode zur Bestimmung der Detektionswinkel.

Zunächst werden für die Wellenlänge $\lambda = 488$ nm und Partikeldurchmesser von 5 bis 5500 nm Mie-Rechnungen ausgeführt. Das geschieht mit der IDL-Routine `bh-miecoatingpol`, die in Abhängigkeit der Wellenlänge und des Brechungsindex in hoher Winkelauflösung das Matrixelement S_{11} der Streumatrix berechnet. Dabei liegt jeweils ein polydisperses Aerosol mit einer Verteilungsbreite $\sigma = 1,3$ zugrunde. Als Brechungsindex für Wassertröpfchen wird $n = 1,33$ angesetzt. Es wird die Laserwellenlänge $\lambda = 488$ nm verwendet. In erster Näherung erfolgen die Mie-Rechnungen für unpolarisiertes Einfallslcht und mit einer Winkelauflösung von $0,5^\circ$. Für jede Partikelgröße ergibt sich so eine winkelabhängige Verteilung der Streuintensitäten, die Phasenfunktion.

Die Auswertung der Mie-Rechung beschränkt sich auf zwei Detektionswinkelpaare: $0^\circ/180^\circ$, die exakte Vorwärts-Rückwärts-Richtung, und $4^\circ/176^\circ$, die Detektionswinkel der Streulichtapparatur im früheren Aufbau. Ungeachtet der Detektoraperturen wird aus den Streuintensitäten für beide Winkelpaare das Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnis (kurz: V/R-Verhältnis)

$$\frac{V}{R} = \frac{\text{Phasenfunktion in Vorwärtsrichtung}}{\text{Phasenfunktion in Rückwärtsrichtung}} = \frac{(S_{11} + S_{12})_V}{(S_{11} + S_{12})_R} \quad (3.13)$$

berechnet. Das Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnis gibt das Verhältnis der Streuintensitäten für ein definiertes Winkelpaar an und ist somit ein Maß für die Partikelgröße. Für Streuzentren im Rayleigh-Regime gilt $V/R = 1$, für Mie-Partikel gilt $V/R > 1$.

Abbildung 3.1 zeigt für die Winkelpaare $0^\circ/180^\circ$ und $4^\circ/176^\circ$ die Abhängigkeit des V/R-Verhältnisses von der Partikelgröße. Aus der Abbildung ist ein genereller Anstieg des V/R-Verhältnisses mit zunehmender Partikelgröße (oder allgemeiner: mit zunehmendem Größenparameter) ersichtlich. Dies erklärt sich damit, dass sich für wachsende Partikel die Phasenfunktion und mit ihr die Streuintensität in Vorwärtsrichtung signifikanter erhöht als in Rückwärtsrichtung. Für das Winkelpaar $0^\circ/180^\circ$ ist dieser Effekt besonders gut nachvollziehbar. Es wird weiterhin deutlich, dass das V/R-Verhältnis für Partikel $< 1 \mu\text{m}$ unabhängig vom Detektionswinkelpaar quadratisch mit dem Partikeldurchmesser ansteigt. Diese Tatsache wird für die Bestimmung des Vorwärts-Rückwärts-Kalibrierfaktors ausgenutzt, mit dem die rückwärtigen Detektoren an den Vorwärts-Detektor angeglichen werden. Zudem verengt sich mit zunehmender Partikelgröße zusehends der Winkelbereich, in den das Vorwärtsstreulicht fällt. Die SIMONE-Detektionswinkel liegen ab einem Partikeldurchmesser von $2,5 \mu\text{m}$ jedoch außerhalb des Winkelkorridores

3.5 DEPOLARISATION

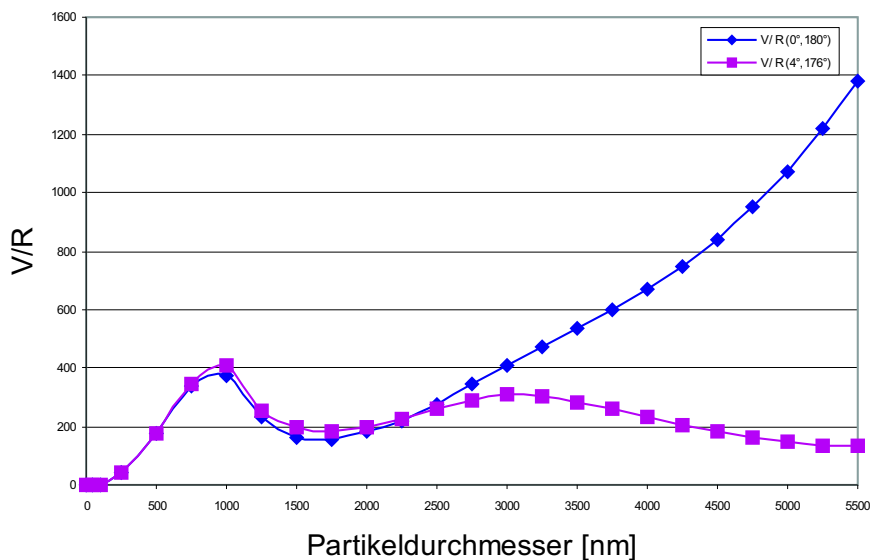


Abbildung 3.1: Abhängigkeit des Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnisses vom Partikeldurchmesser. Erläuterungen im Text.

der signifikanten Streuintensitäten, weswegen der V/R -Anstieg geringer ausfällt. Somit erhöht sich mit wachsender Partikelgröße die Abweichung des V/R -Verhältnisses für $4^\circ/176^\circ$ gegenüber $0^\circ/180^\circ$. Deshalb können anhand von Partikeln größer $2,5 \mu\text{m}$ die Detektionswinkel des aktuellen Streulichtapparaturaufbaus experimentell durch einen Vergleich zwischen gemessenen und berechneten V/R -Verhältnissen bestimmt werden.

3.5 Depolarisation

Erfolgt Streuung an Einzelpartikeln, an einem Ensemble aus identischen Partikeln oder an Kugeln, bleibt der θ -abhängige Polarisationsgrad erhalten, obwohl sich die Polarisationsart durchaus verändern kann (BOHREN UND HUFFMAN, 1998 [5]). Streupartikel sind identisch, wenn sie in Größe, Form, chemischer Zusammensetzung und Orientierung bzgl. des Einfallstrahles übereinstimmen. Besteht das Streuensemble aus nichtidentischen Partikeln, findet Depolarisation des Streulichts statt, d.h. der ursprüngliche Polarisationsgrad wird ganz oder teilweise zerstört.

Die Depolarisation D durch ein Aerosol setzt sich aus zwei Komponenten zusam-

men: Der Depolarisation an Luftmolekülen ($D_{Moleküle}$) und an Partikeln $D_{Partikel}$. Letztere kann aufgespalten werden in Beiträge von runden, meist flüssigen, sowie nicht runden, insbesondere kristallinen Partikeln wie zum Beispiel Eiskristallen. Zusammen mit der Depolarisation durch Streuung an der AIDA-Kammerwand (D_{Wand}) gilt also (z.B. GOBBI, 1998 [11]):

$$D = D_{Moleküle} + D_{Partikel} + D_{Wand}. \quad (3.14)$$

Die molekülbedingte Depolarisation liefert nach WEBER ET AL., 1967 [32] nur einen geringen Beitrag von typischerweise rund 1,4 % zur Gesamtdepolarisation. Zur mathematischen Herleitung der Depolarisation betrachtet man die Anordnung Polarisator, Streumedium und Analysator. Multipliziert man die Müllermatrizen von Polarisator und Analysator, sowie die allgemeine Streumatrix in der richtigen Reihenfolge miteinander, lassen sich die hinter dem Analysator detektierten Streuintensitäten als Kombination von Streumatrixelementen ausdrücken. Im allgemeinen Fall geht man von unpolarisiertem Einfallslight aus. Für die vorliegende Arbeit genügt es, sich auf horizontal und vertikal polarisiertes Laserlicht (hinter dem Polarisator und bzgl. der Streuebene) zu beschränken. Tabelle 3.2. stellt die Ergebnisse für horizontal und vertikal zur Laserpolarisation stehende Analysatoren dar. Die Analysatoren entsprechen dem parallelen (CH_{\parallel}) und senkrechten (CH_{\perp}) Detektionskanal in Rückwärtsrichtung, sowie dem Vorwärtskanal, der das *gesamte* Streulicht ohne Berücksichtigung der Polarisations Ebene detektiert.

	Laser horizontal polarisiert	Laser vertikal polarisiert
Rückwärts CH_{\perp}	$\frac{1}{4}(S_{11} - S_{22})$	$\frac{1}{4}(S_{11} - S_{22})$
Rückwärts CH_{\parallel}	$\frac{1}{4}(S_{11} + 2S_{12} + S_{22})$	$\frac{1}{4}(S_{11} - 2S_{12} + S_{22})$
Vorwärts CH	$\frac{1}{2}(S_{11} + S_{12})$	$\frac{1}{2}(S_{11} - S_{12})$

Tabelle 3.2: Streulichtintensitäten in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung, ausgedrückt durch Streumatrixelemente.

In der bodengebundenen LIDAR-Fernerkundung (**L**ight **D**etection and **R**anging) wird linear polarisiertes, gepulstes Laserlicht in die Atmosphäre gestrahlt. An Aerosolpartikeln, Wolkentröpfchen und Wolkeneis werden Photonen in alle Richtungen gestreut. Nur wenige werden in 180° zurückgestreut, diese werden mit einem Teleskop gesammelt und polarisationsaufgelöst detektiert. Aus der Laufzeit des

3.5 DEPOLARISATION

Signals ergibt sich die Entfernung des Streuzentrums, z.B. die Wolkenhöhe. Es lassen sich Aussagen über die Extinktion der durchquerten Luftschichten, und über die Wolkenart (Wasser-, Eis-, Mischphasenwolke, siehe Kapitel 2.2) treffen. Die Depolarisation ist dabei das Maß für die Aspherizität der Partikelphase. Mit dem LIDAR-Verfahren wird die Extinktion in exakter Rückwärtsrichtung bestimmt. Die Depolarisation ist definiert durch (PAL UND CARSWELL, 1977 [23])

$$D = \frac{CH_{\perp}}{CH_{\parallel}}. \quad (3.15)$$

Einsetzen der Streuintensitäten aus Tabelle 3.2 ergibt für horizontale Laserpolarisation

$$D = \frac{\frac{1}{4}(S_{11} - S_{22})}{\frac{1}{4}(S_{11} + 2S_{12} + S_{22})}. \quad (3.16)$$

Das Mischelement S_{12} kennzeichnet die lineare Polarisation. Wie aus Abbildung 3.2 hervorgeht, nimmt es für $\theta = 180^\circ$ den Wert Null an, entfällt also für das LIDAR-Verfahren. Es bleibt demnach übrig:

$$D_{LIDAR} = \frac{S_{11} - S_{22}}{S_{11} + S_{22}}. \quad (3.17)$$

Wird vollständig linear polarisiertes Einfallslight, z.B. an Eiskristallen maximal depolarisiert, liegt unpolarisiertes Licht vor und die detektierten Streuintensitäten im parallelen und senkrechten Kanal sind identisch. Daraus folgt $0 < D < 1$. Das die Depolarisation beschreibende Matrixelement S_{22} ist auf S_{11} normiert in Abbildung 3.2 für verschiedene Partikelexzentrizitäten angegeben. Nur für sphärische Partikel gilt $\frac{S_{22}}{S_{11}} = 1$.

Aus Abbildung 3.2 geht weiterhin hervor, dass in Vorwärtsrichtung für Partikel beliebiger Exzentrizität immer $\frac{S_{22}}{S_{11}} = 1$ gilt. In Vorwärtsrichtung kann demnach keine Depolarisation gemessen werden.

Für die SIMONE-Streulichtapparatur ist die Depolarisation wie folgt definiert:

$$D_{AIDA} = \frac{CH_{\perp}}{CH_{\parallel} + CH_{\perp}} = \frac{CH_{depol}}{CH_{undepol} + CH_{depol}}. \quad (3.18)$$

CH_{\perp} und CH_{\parallel} beziehen sich auf die Laserpolarisationsrichtung. Damit bezeichnet CH_{\perp} den Kanal, der das depolarisierte Streulicht detektiert und CH_{\parallel} den das

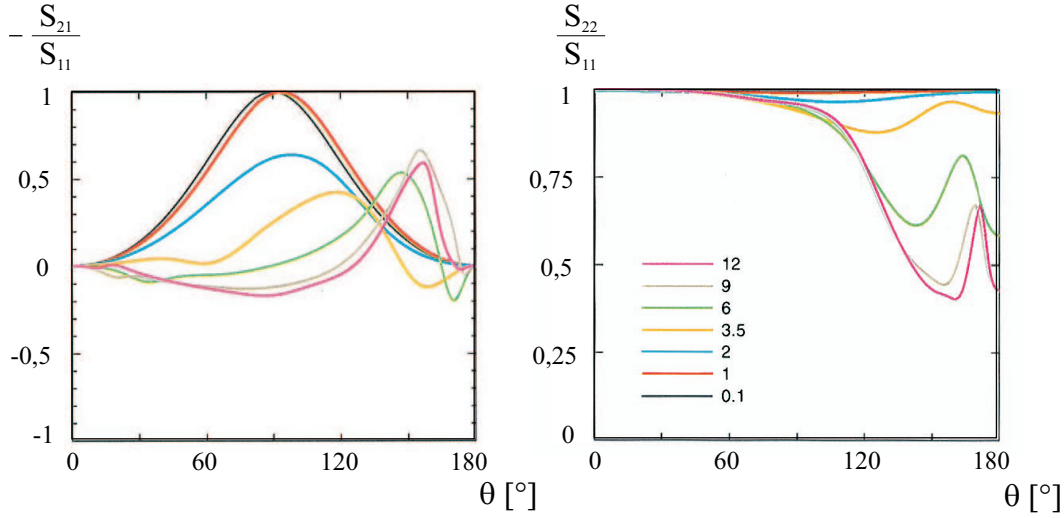


Abbildung 3.2: Die bzgl. S_{11} normierten Matrixelemente $-S_{21}$ und S_{22} in Abhängigkeit des Streuwinkels. Die Farben kennzeichnen verschiedene Partikelkonzentrationen. Quelle: ZAKHAROVA UND MISHCHENKO, 2000 [36].

undepolarisierte Streulicht detektierenden Kanal. Wird beim Streuvorgang, z.B. an Eispartikeln, der Einfallspolarisationsgrad vollständig zerstört, ist $D_{AIDA} = \frac{1}{2}$. Also gilt $0 < D_{AIDA} < \frac{1}{2}$. Im Folgenden ist, soweit nicht anders angegeben, ausschließlich von D_{AIDA} die Rede, der Index wird deshalb von nun an weggelassen. Soll die Depolarisation in Matrixelementen dargestellt werden, muss berücksichtigt werden, dass diese bzgl. der Streuebene definiert sind. Damit ergibt sich für die parallel und senkrecht zur Streuebene stehende Laserpolarisation die Depolarisation D_{\parallel} bzw. D_{\perp} zu

$$\begin{aligned} D_{\parallel} &= \frac{1}{2} \frac{S_{11} - S_{22}}{S_{11} + S_{12}}, \\ D_{\perp} &= \frac{1}{2} \frac{S_{11} - S_{22}}{S_{11} - S_{12}}. \end{aligned} \quad (3.19)$$

In der SIMONE-Streulichtapparatur ist jedoch aus verschiedenen Gründen keine Detektion in exakter Vorwärts- und Rückwärtsrichtung möglich. Abbildung 3.2 zeigt, dass das Mischelement S_{12} in diesem Fall nicht aus Gleichung (3.19) entfällt. Im strengen Sinn wird also mit SIMONE neben einem Depolarisationseffekt auch ein geringer Polarisationsgrad gemessen. Der Polarisationsgrad P ist quantifiziert durch

$$P = \frac{CH_{\perp} - CH_{\parallel}}{CH_{\perp} + CH_{\parallel}}. \quad (3.20)$$

Deshalb kann unter Umständen auch $D > \frac{1}{2}$ sein. Im Weiteren wird nicht zwischen beiden Einflüssen unterschieden und die Messgröße weiterhin „Depolarisation“ genannt. Während also in der LIDAR-Fernerkundung S_{22} direkt aus der Depolarisationsmessung bestimmt werden kann, verhindert in SIMONE das Mischelement S_{12} den direkten Zugriff auf S_{22} .

Die konzentrationsunabhängige Größe Depolarisation wird von den mikroskopischen Eigenschaften des Streumaterials bestimmt (OKAMOTO ET AL, 1995 [22], MISHCHENKO AND TRAVIS, 1994 [20]). Die Abhängigkeit vom Partikeldurchmesser ist nicht eindeutig, die Abhängigkeit von der Partikelform wird in SIMONE zur Bestimmung der Partikelphase genutzt: Zeigen sphärische Partikel keine Depolarisation, führt einsetzende Eisnukleation zu asphärischen Partikeln und damit zu einem scharfen und rapiden Anstieg des Depolarisationssignals. Stark asphärische Partikel, z.B. stark oblate Plättchen und stark prolate Nadeln, zeigen allerdings ein relativ geringes Depolarisationssignal, genau wie kleine Partikel. Nach BÜTTNER, 2004 [6] ist demnach anhand der Depolarisation keine eindeutige Aussage über die Partikelform möglich.

Kapitel 4

Aufbau der Streulichtapparatur

In diesem Kapitel wird der technische Aufbau der SIMONE-Streulichtapparatur beschrieben. Er gliedert sich in Sende- und Empfangsoptik. Auf Erläuterungen zur Justage der optischen Elemente sowie deren Charakterisierung wird separat in Kapitel 5 eingegangen.

4.1 Sendeoptik

Die Sendeoptik besteht aus einem Laser und einer Polarisationsoptik. Letztere umfasst ein Lambda-Viertel-Plättchen (LVP) und einen Dünnschichtpolarisator (DSP).

4.1.1 Laser

Im früheren Streulichtaufbau wurde ein Argon-Ionen-Laser (Melles Griot, OMI-543-150BS-R) der Wellenlänge 488 nm verwendet. Der Laser befand sich außerhalb des Isoliergehäuses der AIDA-Kammer, die Einkopplung des Strahls in die Kammer erfolgte über eine polarisationserhaltende Faser. Die Detektionseinheiten waren innerhalb des Isoliergehäuses starr an die Kammerwand montiert. Nachteilig an diesem Aufbau war zum einen die räumliche Unzugänglichkeit zur Streulichtapparatur während des Messbetriebes. Zum anderen bestand beim langsamen Abkühlen der Kammer auf die Zieltemperatur die Gefahr, dass sich die Optik durch auftretende Spannungen dejustiert. Außerdem wurden in den Detektionssignalen harmonische gegenläufige Schwingungen mit Periodendauern von

einigen 10 Minuten beobachtet. Deren Ursache konnte nicht abschließend geklärt werden. Sie wurde in der Faseroptik, der Temperaturempfindlichkeit des Glan-Laser-Primas und der Detektionselektronik vermutet. Um diese Schwierigkeiten zu umgehen, wurde die Streulichtapparatur (bestehend aus dem Laser mit der Polarisationsoptik und den Detektionsoptiken für das rückgestreute Licht auf der einen Seite des AIDA-Isoliergehäuses, sowie der Strahlfalle und der Detektionsoptik für das vorwärts gestreute Licht auf der anderen Seite) in lichtdichten Kästen außerhalb des AIDA-Isoliergehäuses untergebracht. Dadurch vergrößerte sich der Abstand zum Kammerzentrum gegenüber der früheren Streulichtapparatur um etwa einen Meter. Die lichtdichten Kästen sind über Edelstahlrohre (Durchmesser 230 mm) starr mit der AIDA-Versuchskammer verbunden und haben keinen Bodenkontakt. Dadurch wird vermieden, dass sich Schwingungen der begehbaren Messplattformen auf die Streulichtapparatur übertragen. Um einen möglichst kompakten Aufbau zu erzielen, wurde zudem der Argon-Ionen-Laser durch einen kleineren Halbleiterlaser gleicher Wellenlänge ersetzt. Laser- und Detektionseinheit fanden nun gemeinsam auf einer optischen Grundplatte Platz. Der zunächst gelieferte Laser besaß eine zu hohe Strahldivergenz, was einen zu hohen Streulichtbeitrag durch die gegenüberliegende Kammerwand verursachte. Er musste daher durch einen Laser mit ausreichend geringer Strahldivergenz ausgetauscht werden.

Als Lichtquelle für die Streuexperimente dient nun ein optisch gepumpter Halbleiterlaser (COHERENT, SAPPHIRETM488 – 20) mit einer guten Strahlcharakteristik und einer Emissionswellenlänge von $\lambda = 488 (\pm 2)$ nm. Die Ausgangsleistung liegt bei maximal 20 mW und lässt sich zwischen 2 und 20 mW variieren. Letztere Einstellung führt allerdings zu Pointinginstabilitäten, d.h. der Strahl oszilliert am Austritt um einen fixen Punkt. Aus diesem Grund und wegen erwarteter hoher Streuintensitäten wurde während des Messbetriebes mit einer Leistung von 10 mW gearbeitet. Der Laser ist vertikal zur Basisplatte polarisiert. Das Polarisationsverhältnis liegt bei über 100 : 1. Demnach weist weniger als 1 % des Lichtes keine Vorzugsrichtung des \vec{E} -Vektors auf. Eigene Messungen ergaben ein Polarisationsverhältnis von 195 : 1. Somit sind 99,5 % des Laserlichtes vertikal polarisiert. Laut Herstellerangabe beträgt die Strahldivergenz weniger als 1,2 mrad. Mit einem Laserstrahlanalysator wurde die Strahldivergenz auf 0,9 mrad (parallele Laserpolarisation) und 0,8 mrad (vertikale Laserpolarisation) bestimmt. Auf der Strahleinkopplungsseite hat der Laserstrahl hinter der Polarisationsoptik dabei einen Durchmesser von rund 0,7 mm. Maßgeblich ist hier derjenige

Strahldurchmesser, der 86,6 % der Strahlintensität beinhaltet. Die Verteilung der Gesamtintensität des Laserstrahls ergibt ein Gaußprofil. Auf der vorwärtigen Detektorseite vor der Strahlfalle beträgt der Durchmesser 6,6 mm (parallele Laserpolarisation) bzw. 5,5 mm (vertikale Laserpolarisation). Der Grund für diese Differenz liegt am Dünnschichtpolarisator, siehe Kapitel 5.1.

4.1.2 Polarisationsoptik

Der Laserstrahl durchläuft nach seinem Austritt zunächst eine Polarisationsoptik. Die vertikale Polarisationsrichtung wird im LVP in eine zirkuläre Polarisation umgewandelt. Anschließend selektiert der DSP je nach Winkelstellung unter Halbierung der Eingangsintensität *eine* lineare Polarisationsrichtung heraus.

Lambda-Viertel-Plättchen. Das Lambda-Viertel-Plättchen (LVP) besteht aus einem optisch anisotropen Kristall mit richtungsabhängigem Brechungsindex. Die Umwandlung von linearem in zirkular polarisiertes Licht mit Hilfe eines Lambda-Viertel-Plättchens beruht auf diesem Prinzip der Doppelbrechung.

Der Kristall besitzt eine optische Vorzugsrichtung, seine optische Achse. Der linear polarisierte Einfallsvektor spaltet in orthogonale Basisvektoren bezüglich des Strahlhauptschnittes auf. Der parallel zum Hauptschnitt schwingende \vec{E} -Vektor kennzeichnet den sogenannten außerordentlichen Strahl. Der senkrecht zum Hauptschnitt schwingende beschreibt den ordentlichen Strahl. Die Bezeichnungen rühren daher, dass der ordentliche Strahl („o-Strahl“) im Gegensatz zum außerordentlichen („ao-Strahl“) dem Snellius'schen Brechungsgesetz gehorcht.

Für das in der Streulichtapparatur verwendete LVP aus Quarz genügen die Brechzahlen n_{ao} und n_o der beiden Teilstrahlen der Relation

$$n_{ao} > n_o. \quad (4.1)$$

Die Dicke des LVP ist je nach Einfallswellenlänge so gewählt, dass Relation (4.1) zu einer Phasenverschiebung von $\varphi = 90^\circ$, also $\lambda/4$, führt. Der Polarisationszustand des transmittierten Lichtes hängt vom Verkippungswinkel χ ab, den Kristallhauptschnitt und Laserpolarisationsrichtung miteinander einschließen. Im Falle einer Verkippung des LVP gegenüber dem vertikal orientierten \vec{E} -Vektor des Laserstrahles um $\chi \neq 45^\circ$ unterscheiden sich die Amplituden der Teilstrahlen, wodurch elliptisch polarisiertes Licht entsteht. Dagegen führt eine Verkippung um

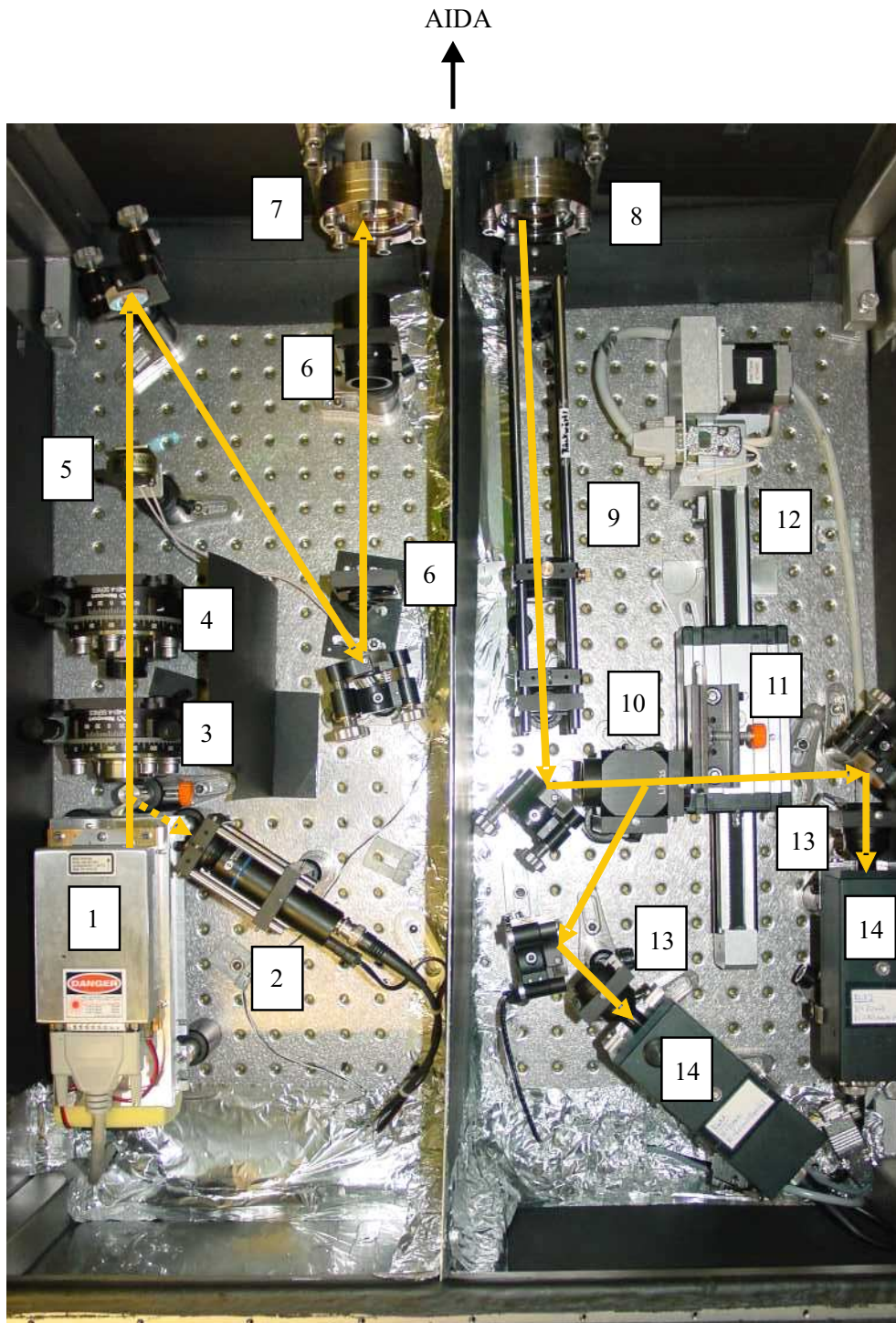


Abbildung 4.1: Rückwärtiger Aufbau der Streulichtapparatur SIMONE mit der Sendeoptik auf der linken und der rückwärtigen Empfangsoptik auf der rechten Seite. Der Strahlverlauf ist gelb markiert. 1: Laser; 2: Fotodiode; 3: Lambda-Viertel-Plättchen; 4: Dünnschichtpolarisator; 5: Shutter; 6: Blende; 7: Lasereinkopplungsfenster; 8: Streulichtauskopplungsfenster; 9: Fernrohr; 10: Glan-Laser-Prisma; 11: Neutralfilter; 12: Führungsschiene; 13: Interferenzfilter; 14: Fotomultiplier. Erläuterungen im Text.

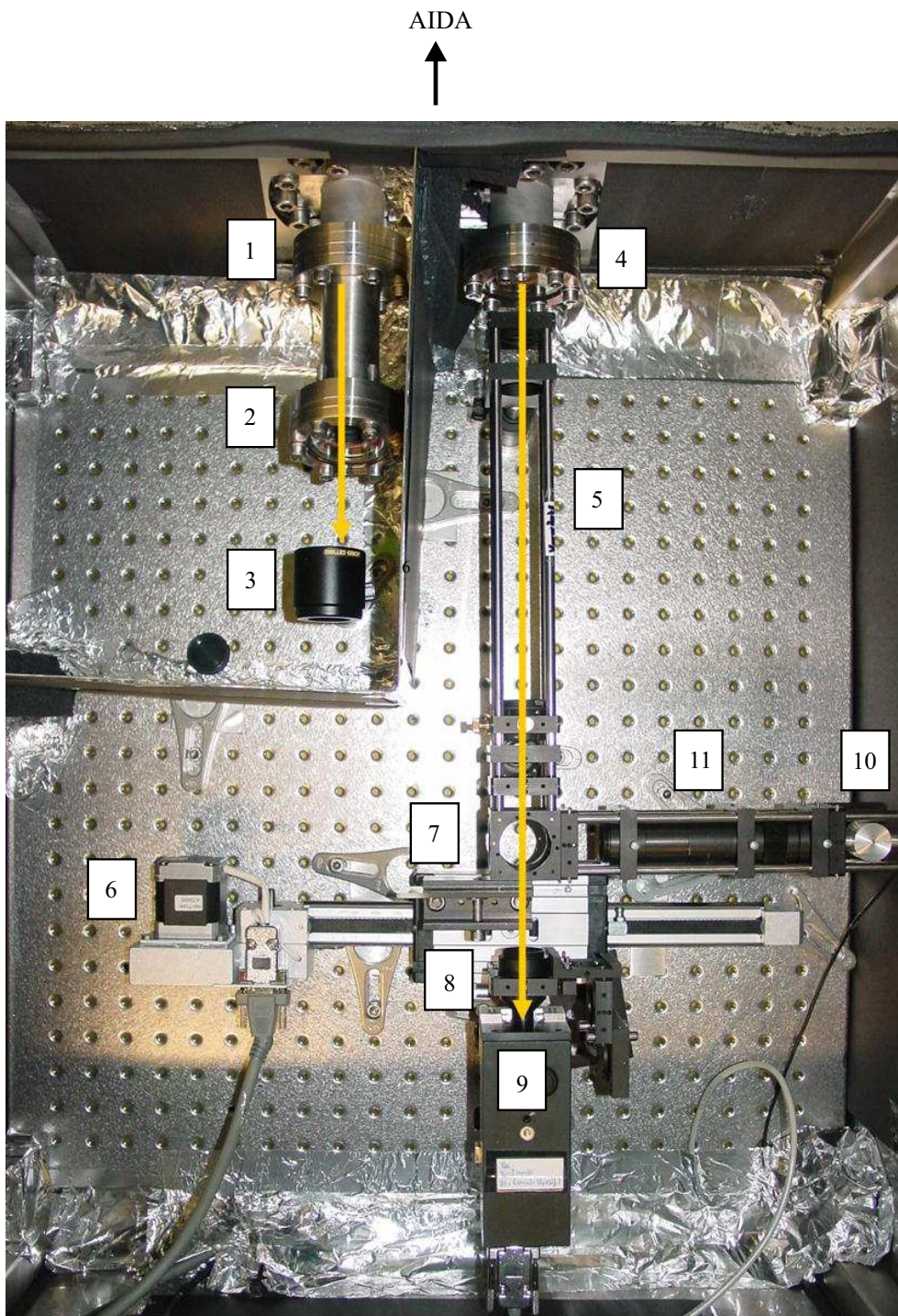


Abbildung 4.2: Vorwärtiger Aufbau der Streulichtapparatur SIMONE. Der Strahlverlauf ist gelb markiert. 1: Laserausakopplungsfenster; 2: T-Stück; 3: Strahlfalle; 4: Streulichtauskopplungsfenster; 5: Fernrohr; 6: Führungsschiene; 7: Neutralfilter; 8: Interferenzfilter; 9: Fotomultiplier; 10: Laserdiode; 11: Aufweitungsoptik. Erläuterungen im Text.

$\chi = 45^\circ$ zu gleich großen Amplituden. Die Ellipse entartet, es entsteht ein Kreis. Der Laserstrahl ist zirkular polarisiert. Ob links- oder rechtszirkular, hängt von der Relation (4.1) ab, spielt für unsere Zwecke aber keine Rolle. Beim Durchgang durch das LVP bleibt die Einfallsintensität des Laserlichtes erhalten.

Das in der Apparatur verwendete LVP aus Quarz ist für einen Wellenlängenbereich 180 – 2700 nm ausgelegt und hat eine Verzögerungstoleranz von $\lambda/300$.

Dünnschichtpolarisator. Der DSP verdankt seinen Namen einer dünnen, zwischen den zwei Prismakomponenten aufgedampften Schicht. Die auftreffende zirkular polarisierte Welle wird nach dem Prinzip der Doppelbrechung in zwei lineare Teilwellen zerlegt. Steht die optische Achse des DSP senkrecht auf der Streuebene (Verkipfung 90°), so geht der vertikal zur Streuebene polarisierte Teilstrahl unter Halbierung der Einfallsintensität hindurch. Der außerordentliche Strahl wird totalreflektiert, verlässt das Prisma und wird nicht in die Versuchskammer eingekoppelt. Liegt die optische Achse in der Streuebene (Verkipfung 0°), wird parallel zur Streuebene polarisiertes Licht selektiert.

In der Schreibweise mit Stokesvektoren und Müllermatrizen kann die Umwandlung von vertikal in parallel polarisiertes Licht wie in Kapitel 3.2 angegeben ausgedrückt werden.

Über ein Spiegelsystem wird die gewünschte Polarisationsrichtung in die AIDA-Versuchskammer eingekoppelt. Während des Messbetriebes wurde meist mit parallel zur Streuebene polarisiertem Licht gearbeitet. Unter bestimmten Voraussetzungen wurde die Polarisationssebene gedreht und senkrecht polarisiertes Licht in die Kammer geleitet.

4.2 Empfangsoptik

Die beiden Empfangsoptiken zusammen bestehen aus zwei Fernrohren, einem Glan-Laser-Prisma, zwei Neutralfiltern und drei Fotomultipliern. Die Optiken für das vorwärts und rückwärts gestreute Licht unterscheiden sich etwas voneinander. Ihr technischer Aufbau wird in diesem Abschnitt diskutiert. Außerdem gibt es in SIMONE mehrere Vorrichtungen, mit denen Fremdlichteinflüsse auf die Detektoren weitgehend eliminiert werden. Diese Maßnahmen werden am Schluss des Kapitels genannt.

Die Streulichtintensität wird von insgesamt drei Fotomultipliern detektiert. Ein PMT befindet sich in Vorwärtsrichtung (PMT-V), zwei in Rückwärtsrichtung (PMT-R1 und PMT-R2).

4.2.1 Fernrohre und Glan-Laser-Prisma

Wie in den Abbildungen 4.1 und 4.2 erkennbar, durchläuft das Streulicht nach der Auskopplung aus der AIDA-Versuchskammer je eine Fernrohroptik. Sie fokussiert das parallele Strahlenbündel aus dem Messvolumen (siehe Kapitel 5.6) auf die Detektionsfläche der PMTs. Genau gesagt handelt es sich um eine umgekehrte Fernrohroptik, da der Querschnitt des einfallenden Strahlenbündels um den Faktor 4 verringert wird, was einer 4-fachen Vergrößerung des PMT-Gesichtsfeldes gleichkommt. Ermöglicht wird dies durch eine Okularbrennweite von $f_{Okular} = 50$ mm und einer Objektivbrennweite von $f_{Objektiv} = 200$ mm (in Rückwärtsrichtung) und 230 mm (in Vorwärtsrichtung). Der Durchmesser der gefassten Plankonvexlinsen beträgt 11,5 mm bzw. 24 mm. Der Unterschied zwischen der vor- und rückwärtigen Objektivbrennweite ist nicht beabsichtigt und muss bei der Bestimmung der Detektionswinkel berücksichtigt werden. Am Ort des Zwischenbildes befindet sich eine Lochblende mit Radius $R_{Blende} = 0,3$ mm. Diese verhältnismäßig große Öffnung erleichtert die Justage, siehe Kapitel 5.2. Zwei Verstellerschrauben ermöglichen eine horizontale und vertikale Feineinstellung. Die Lochblende markiert die Brennebene, in der sich auch alle zueinander parallelen Strahlen, die jedoch einen Winkel mit der optischen Achse einschließen, vereinigen. Deshalb wird das Gesichtsfeld der Fernrohroptik von der Objektivlinsenbrennweite und vom Blendenradius definiert, der den Divergenzwinkel α in Abbildung 4.3 bestimmt.

Diesen gilt es durch die Wahl einer genügend hohen Objektivbrennweite ausreichend klein zu halten: Je kleiner α , desto geringer ist die Divergenz des Detektionsstrahles und umso genauer ist das Messvolumen definiert. Außerdem verringert sich die Gefahr, Reflexe an der gegenüberliegenden Kammerwand zu detektieren (das gilt wegen Laserreflexen v.a. für die Rückwärtsrichtung). Mit

$$\alpha = \arctan\left(\frac{R_{Blende}}{f_{Objektiv}}\right) \quad (4.2)$$

nehmen die Divergenzwinkel in Rückwärts- und Vorwärtsrichtung folgende Werte an:

$$\begin{aligned} \alpha_R &= 0,0859^\circ, \\ \alpha_V &= 0,0747^\circ. \end{aligned} \quad (4.3)$$

4.2 EMPFANGSOPTIK

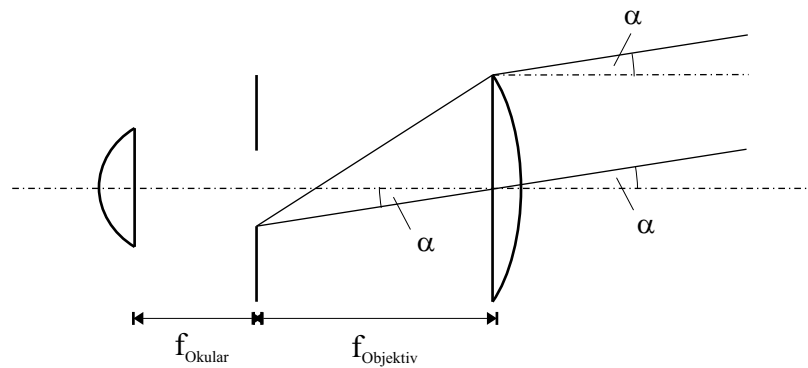


Abbildung 4.3: Der Divergenzwinkel α definiert zusammen mit der Objektivlinse**n**brennweite die Apertur des Fernrohres.

Hinter den Fernrohren ist jeweils ein 45° -Spiegel aufgesteckt. Er dient in Vorwärtsrichtung der Fernrohrjustage und wird für den Messbetrieb entfernt, in Rückwärtsrichtung zusätzlich dem Umlenken des Streulichts zum Glan-Laser-Prisma.

In Vorwärtsrichtung trifft das Streulicht nach Passieren des Fernrohres auf einen Neutralfilter und anschließend auf PMT-V. Auf der rückwärtigen Detektorseite durchläuft es nach dem Fernrohr ein Glan-Laser-Prisma. Dieses trennt nach dem Prinzip der Doppelbrechung die Streulichtpolarisation in zwei zueinander senkrechte Polarisationsrichtungen. Für die Justage muss beachtet werden, dass die Einfallfläche des Prismas senkrecht zur optischen Achse des Fernrohres steht. Nur dann trifft das Streulicht im Brewsterwinkel auf die interne Grenzfläche und die Polarisationsrichtungen werden exakt getrennt. Anders als bei den meisten polarisationsauflösenden Strahlteilerprismen werden beim verwendeten Glan-Laser-Prisma beide Teilstrahlen transmittiert: PMT-R1 detektiert die zur Streuebene vertikal stehende Komponente, PMT-R2 die horizontal zur Streuebene liegende Komponente. Die Streuebene ist definiert durch den Laserstrahl und einen durch die Fernrohroptik laufenden Detektionsstrahl. Die optische Achse des Glan-Laser-Prismas kann nur nach Augenmaß parallel bezüglich der optischen Achse des Fernrohres justiert werden. Wäre das Prisma durch eine Stellschraube von außen zugänglich, könnte die verbleibende Verkipfung mit Hilfe sphärischer Partikel in AIDA durch Minimierung des Streusignales im senkrechten Kanal verringert werden.

4.2.2 Neutralfilter

Um eine Übersteuerung der Fotomultiplier zu verhindern, kann die Intensität des Streulichtes an zwei der drei Fotomultiplier mittels zweier Neutralfilter variabel abgeschwächt werden. Dies betrifft PMT-V und PMT-R2. Der Grund für diese Maßnahme ist die erwartete hohe Streuintensität der im Mie-Regime streuenden Partikel. Der Effekt der Zunahme des V/R-Verhältnisses wird speziell in Vorwärtsrichtung beobachtet werden. Dagegen ist der Depolarisationseffekt, so er auftritt, weniger stark ausgeprägt. Deshalb ist eine Intensitätsabschwächung des depolarisierten Kanals PMT-R1 nicht notwendig. Als Neutralfilter werden zwei

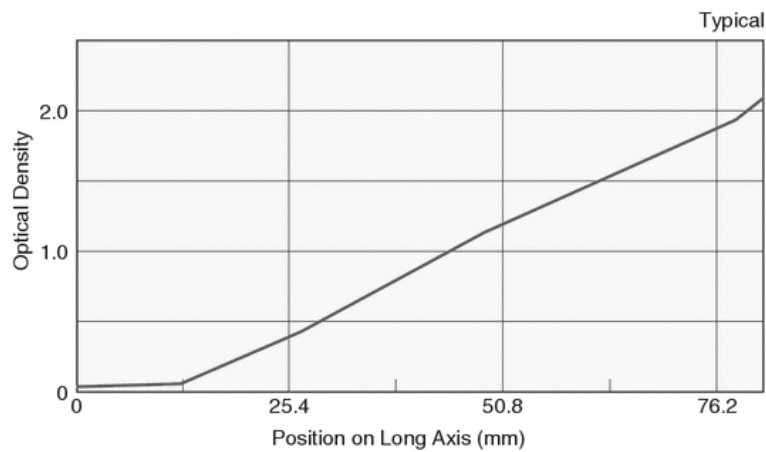


Abbildung 4.4: Verlauf der optischen Dicke am Neutralfilter entlang dessen Längsachse.

Glasplättchen (Newport) mit einer keilförmig aufgedampften Aluminiumschicht verwendet. Die Intensitätsabschwächung basiert auf dem Prinzip der partiellen Strahlreflexion an der Metallschicht. Die optische Dicke τ der Neutralfilter nimmt entlang des Plättchens von 0,08 bis 2,0 ($\lambda = 632,8$ nm) linear zu, wodurch eine kontinuierliche Abschwächung ermöglicht wird, siehe Abbildung 4.4. In vertikaler Richtung ist τ mit einer Unsicherheit von 5 % behaftet. In Abhängigkeit der optischen Dicke ist die Transmission T gegeben durch das Bouguer-Beer-Lambert'sche Gesetz:

$$T = \frac{I}{I_0} = \exp(-\tau). \quad (4.4)$$

Bezeichnet x eine beliebige Position auf dem Filterplättchen, ergibt sich dessen

Kalibrierkurve allgemein zu

$$T = \exp(-ax + b). \quad (4.5)$$

Jeder Neutralfilter ist auf dem Schlitten einer motorgetriebenen Schiene fixiert, die von außen ansteuerbar ist. Die Position des Plättchens im Strahlengang und mit ihr die Intensitätsabschwächung sind somit nach Bedarf regelbar.

4.2.3 Minimierung von Fremdlichteinflüssen

Um sicherzustellen, dass die PMTs ausschließlich das von den Partikeln im Messvolumen gestreute Licht detektieren, müssen alle Fremdeinflüsse auf ein Minimum reduziert werden. Dies gelingt durch folgende Maßnahmen:

- Der Streulichtaufbau befindet sich in zwei verschließbaren Kästen, die nach außen optisch isoliert sind.
- In der rückwärtigen Anordnung trennt eine Metallplatte Laser- und Detektorseite. Im vorwärtigen Aufbau schirmt eine zweite Platte die Empfangsoptik von der Laserstrahlfalle ab.
- Die vier Ein- und Austrittsfenster sind für die Laserwellenlänge entspiegelt. Trotzdem verbleibt ein Restreflex von 0,5 %. Um auf der Laseraustrittsseite eine Rückeinkopplung des Restreflexes zu unterbinden, ist vor der Strahlfalle ein T-Stück montiert. Dessen entspiegeltes Fenster ist um 30 ° nach unten geneigt, wodurch der 1 %ige Reflex totalreflektiert wird und in eine zylindrische Säule trifft.
- Die Innenwände beider Kästen sind mit schwarzem Papier ausgekleidet, um Reflexionen zu vermeiden.
- Direkt vor jedem PMT sind Interferenzfilter befestigt, deren enge spektrale Breite nur die Transmission der Laserwellenlänge erlaubt.
- Jeder Interferenzfilter ist in einem trichterförmigen Kunststoffgehäuse fixiert, das auf die PMT-Detektorfläche geklemmt ist und seinerseits Fremdlichteinflüsse verhindert.

Kapitel 5

Charakterisierung der Streulichtapparatur

5.1 Justage der Polarisationsoptik

Wie im Abschnitt 4.1.2 beschrieben, kann zirkular polarisiertes Licht nur unter 45° -Stellung des LVP erzeugt werden. LVP und DSP sind in je einem winkelverstellbaren Rotationstisch angebracht. Deren Skalen sind zunächst jedoch nicht auf die optischen Achsen der optischen Elemente ausgerichtet. Um die Optik dementsprechend zu justieren, wird das Verzögerungsplättchen zunächst aus dem Strahlengang entfernt. Der Dünnschichtpolarisator fungiert in dieser Anordnung als Analysator für die Laserpolarisation. Ein hinter dem DSP angebrachtes Powermeter dient der Leistungsmessung der transmittierten Strahlung.

Nach folgender Methode werden die maximale und minimale Durchlassrichtung des DSP ermittelt: Bei $P = 20$ mW Laserausgangsleistung wird unter Drehung des DSP diejenige DSP-Winkelposition $\delta_{DSP}^{minSkala}$ gesucht, für die am Powermeter eine minimale Leistung I_{min} nachgewiesen werden kann. Bei der so gefundenen Stellung liegt die optische Achse des DSP parallel zur Basisplatte des Lasers. Um 90° dazu versetzt wird bei $\delta_{DSP}^{maxSkala}$ die maximale Intensität I_{max} erwartet.

Im zweiten Schritt wird das LVP vor den DSP montiert. Durch Drehung des LVP wird nun diejenige LVP-Stellung gesucht, bei der die Intensitäten I_{min} und I_{max} bei entsprechendem $\delta_{DSP}^{minSkala}$ bzw. $\delta_{DSP}^{maxSkala}$ bestmöglich reproduziert werden können. Dies ist beim LVP-Skalenwinkel $\delta_{LVP}^{Skala} = 96^\circ$ der Fall. Die optische Achse des LVP steht nun vertikal in Bezug auf die Basisplatte des La-

5.1 JUSTAGE DER POLARISATIONSOPTIK

ders und ist der Laserpolarisationsrichtung gleichgerichtet: Es entsteht keine \vec{E} -Vektorkomponente parallel zur Streuebene. Damit erzeugt das LVP eine Ellipse unendlicher Exzentrizität, die vertikale Laserpolarisation wird beibehalten.

Wird unter $\delta_{LVP}^{Skala} = 96^\circ$ die vertikale Polarisationsrichtung hindurchgelassen, so erzeugt das LVP unter $96^\circ - 45^\circ = 51^\circ = \delta_{LVP}^{Skala}$ zirkular polarisiertes Licht der halben Ausgangsintensität, siehe Gleichung (3.4).

Die Differenz zwischen I_{min} und I_{max} gibt Auskunft darüber, ob das unter $\delta_{LVP}^{Skala} = 51^\circ$ transmittierte Licht tatsächlich zirkuläre Polarisation aufweist. Ideale optische Elemente und eine präzise Justage vorausgesetzt, sollte sich eine Differenz von Null ergeben. Tatsächlich wird aber eine Differenz ungleich Null nachgewiesen. Demnach liegt die optische Achse des LVP noch nicht genau im 45° -Winkel zur einfallenden vertikalen Laserpolarisation. Dahingegen führen die Winkel $\delta_{LVP}^{Skala} = 49^\circ$ und $\delta_{LVP}^{Skala} = 50^\circ$ zu einer geringeren Differenz. Die beschriebenen Abweichungen können auf diverse Ursachen zurückgeführt werden, auf die weiter unten näher eingegangen wird.

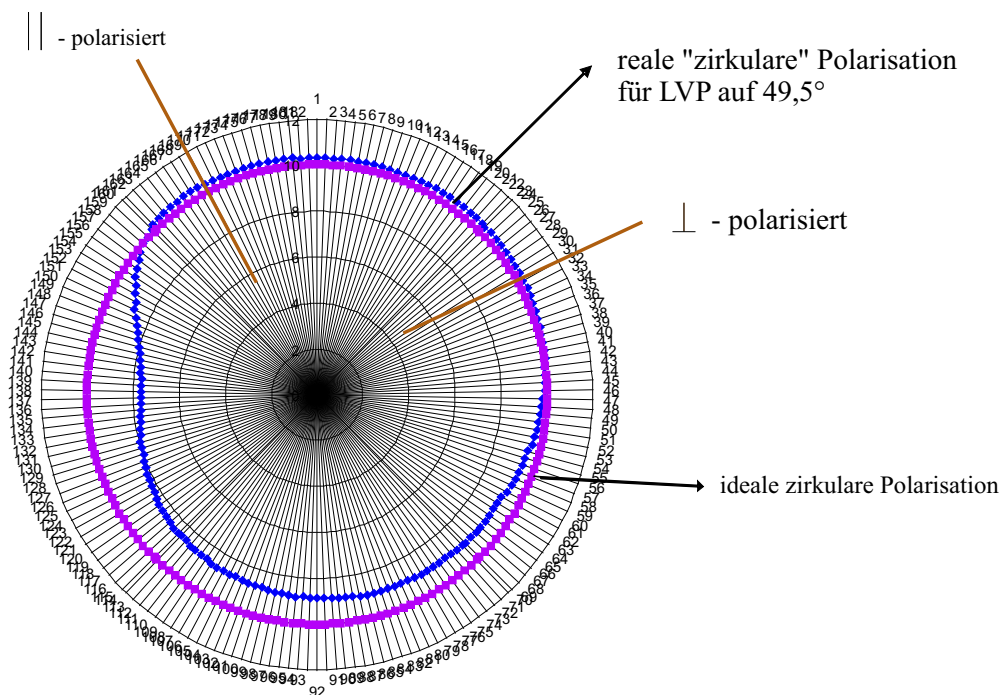


Abbildung 5.1: Vergleich zwischen idealer (violett) und mit der Polarisationsoptik erzeugter realer (blau) zirkularer Polarisation. Erläuterungen im Text.

Das Polardiagramm in Abbildung 5.1 zeigt winkelabhängig die hinter dem DSP

aufgezeichnete Leistung, wenn der DSP-Skalenwinkel vollständig um 360° mit einer Winkelauflösung von 1° gedreht wird. Das LVP war dabei in $\delta_{LVP}^{Skala} = 49,5^\circ$ -Stellung. Im Falle einer zirkularen Polarisation nach dem LVP muss der Graph die Form eines Kreises (in der Abbildung violett) annehmen. Ideale optische Elemente und eine präzise Justage vorausgesetzt, sollte die gemessene Leistung die halbe Laserausgangsleistung betragen. Tatsächlich weicht der Kurvenverlauf von der idealen Kreisform ab, siehe blauer Graph in Abbildung 5.1. Bei $\delta_{DSP}^{minSkala} = 330^\circ$ bzw. $\delta_{DSP}^{minSkala} = 150^\circ$ liegt die Polarisationssebene parallel, bei $\delta_{DSP}^{minSkala} = 60^\circ$ bzw. $\delta_{DSP}^{minSkala} = 240^\circ$ senkrecht zur Basisplatte des Lasers. Es gilt nun, aus diesen vier Winkeln jeweils einen für die horizontale und vertikale Strahleinkopplung auszuwählen. Weil die Abweichung der gemessenen Leistungen vom Mittelwert im Winkelbereich zwischen $\delta_{DSP}^{minSkala} = 330^\circ$ und $\delta_{DSP}^{minSkala} = 60^\circ$ weitestgehend gleich ist, werden diese Winkel gewählt. In der Messkampagne trat jedoch ein geringfügiger Anstieg des Depolarisationssignals während eines Flüssigphasenexperiments auf. Das bedeutet, dass die (in diesem Fall) parallele Polarisation des Laserstrahls zwar im Rahmen der Genauigkeit in der von Laser- und Detektionsstrahl definierten Streuebene liegt. Aber das Glan-Laser-Prisma ist nicht exakt senkrecht zur optischen Achse des Fernrohres ausgerichtet. Überlegungen zur Physik des Glan-Laser-Prismas bestätigen die experimentelle Beobachtung, dass ein Teil des nicht depolarisierten Streulichts von PMT-R1 statt von PMT-R2 detektiert und so fälschlicherweise das berechnete Depolarisationssignal erhöht. Eine Nachjustierung des Prismas ist nicht möglich, da dieses unzugänglich im Strahlengang liegt. Deshalb wurde die eingekoppelte Laserpolarisation leicht aus der Streuebene herausgekippt: Von $\delta_{DSP}^{minSkala} = 330^\circ$ und $\delta_{DSP}^{minSkala} = 60^\circ$ auf $\delta_{DSP}^{minSkala} = 336^\circ$ und $\delta_{DSP}^{minSkala} = 66^\circ$. Das Tröpfchenexperiment IN06.07 (IN steht für Ice Nucleation-Campaign, 06 für die sechste Messkampagne dieser Art, 07 ist die Experimentnummer) wurde mit der alten Konstellation durchgeführt.

Die Verzögerungstoleranz des LVP beträgt $\lambda/300$. Dies führt zu einer möglichen Intensitätsabweichung von 4 % zur halben Laserausgangsintensität (LVP und DSP im Strahlengang). Tatsächlich wird an den ausgewählten DSP-Winkeln eine Abweichung um bis zu 4,1 % festgestellt. Der Restfehler gründet auf einer Kippung der optischen Elemente im Strahlengang, d.h. dass sich der Laserstrahl und sein Reflex an LVP und DSP nicht exakt überlagern. Somit ist der Einfallswinkel des Strahls in LVP und DSP trotz bestmöglicher Justage nicht exakt 90° . Für eine extreme Verkippung ergibt sich ein Fehler von 0,4 %. Die Güte des DSP liegt bei $> 10000 : 1$ und ist als Fehlerquelle vernachlässigbar.

Untersuchungen mit dem vor der Strahlfalle fixierten Laseranalysator haben einen parallelen Versatz des Laserstrahls bei Drehung der Polarisationssebene ergeben. Die auf die PMTs treffende Lichtmenge bleibt davon unberührt, da sich das Messvolumen in verhältnismäßig großer Entfernung zur Strahlfalle befindet. Die Ursache des Strahlversatzes liegt darin begründet, dass neben dem LVP auch der DSP eine Verkippung gegenüber der optischen Achse der Sendeoptik aufweist. Somit passiert der Laserstrahl bei Drehung des DSPs einen Bereich mit veränderter optischer Dicke.

5.2 Justage der Fernrohre

Die Fernrohrkomponenten sind auf Führungsschienen befestigt. Die Fokussierung der Linsen wird auf einer optischen Bank mit einem Diodenlaser durchgeführt. Erwartungsgemäß verwischen die Brennpunkte der 200er bzw. 230er Linsen über einen Bereich von mehreren Zentimetern. Aus diesem Grund wird für die Fernrohrjustage eine Aufweitungsoptik benutzt, die den Querschnitt des Diodenstrahls um den Faktor 10 vergrößert. Das Aufweitungssystem besteht aus einer plankonkaven Zerstreuungslinse mit $f_{Okular} = -10$ mm und einer plankonvexen Sammellinse mit $f_{Objektiv} = 100$ mm. Der Linsenabstand ist variabel. Bei richtiger Justage entsteht das Diodenzwischenbild nahe dem Brennpunkt der 100er-Linse, wodurch das austretende Strahlenbündel parallel zur optischen Achse liegt, aber einen größeren Durchmesser besitzt als die Strahlquelle.

Diese Aufweitungsvorrichtung – bestehend aus Laserdiode und Aufweitungsoptik – wird nacheinander hinter die Fernrohrachsen auf die Führungsschienen gesteckt. Die Lage des Brennpunktes markiert die Position der Lochblende. Nach mehreren Linsenverschiebungen befindet sich zum Schluss die Lochblende am Ort der Brennpunkte beider Linsen. Im nächsten Schritt werden beide Fernrohre in die Streulichtapparatur eingebaut. Zur Justage der Fernrohre untereinander werden beide Aufweitungssysteme wie in Abbildung 4.2 für die Vorwärtsrichtung erkennbar, hinter den Fernrohren fixiert. Je ein 45 °-Spiegel dient der Strahlumleitung. Die so von hinten beleuchteten Fernrohre erzeugen je einen Beobachtungs- oder Detektionsstrahl. Diese parallelen Strahlenbündel visualisieren die Gesichtsfelder der PMTs. Laserstrahl und Detektionsstrahl spannen die Streuebene auf. Das Ziel ist, beide Beobachtungsstrahlen zur Deckung zu bringen. Das Drehen der Verstellerschrauben an den Lochblenden führt zu keinem Ergebnis. Grund ist die

unvollständige Blendenausleuchtung: Bereits eine geringe Kippung führt zur Ausblendung des Diodenstrahls. Deshalb wird die Blende vorläufig um einige Millimeter nach hinten Richtung Okularlinse versetzt. Weil sie sich damit innerhalb des Lichtkegels der Okularlinse befindet, ergibt sich ein Schwenkspielraum für den Beobachtungsstrahl. Damit kann aber nur eine geringe Strahlverschiebung von wenigen Zentimetern an der gegenüberliegenden Kammerwand erzielt werden. Die Austrittsflansche werden nicht getroffen, weil der begrenzte Durchmesser der Objektivlinse des Fernrohres den Diodenstrahl abschneidet. Aus diesem Grund werden die Okularlinsen beider Fernrohre vorübergehend aus dem Strahlengang entfernt. Somit fehlen ihre Fokussierungskegel und beide Lochblenden werden vollständig vom parallelen Strahlenbündel der Aufweitungsoptik ausgeleuchtet. Durch das Betätigen der Stellschrauben können beide Detektionsstrahlen in das jeweils gegenüberliegende Fernrohr eingefädelt werden. Nachdem die Feinjustage abgeschlossen ist, werden die entfernten Linsen wieder eingesetzt und die Blenden an ihre ursprüngliche Position gesetzt.

5.3 Justage des Glan-Laser-Prismas

Das vertikal zur Streuebene polarisierte Streulicht wird an der internen Grenzfläche des Glan-Laser-Prismas totalreflektiert. Das horizontal zur Streuebene polarisierte Streulicht wird *nur dann* vollständig in PMT-R2 transmittiert, wenn das Streulicht genau im Brewsterwinkel bzgl. der internen Grenzfläche ins Prisma einfällt, d.h. wenn die Eintrittsfläche des Prismas genau senkrecht zur optischen Achse des Fernrohres orientiert ist. Nur in diesem Fall ist die Reflektivität an der internen Grenzfläche Null. Bei einer leichten Verkippung des Prismas aus dieser Stellung wird ein Teil des horizontal polarisierten Streulichtes an der internen Grenzfläche reflektiert und bildet zusätzlich zum senkrecht polarisierten einen zweiten, parallel polarisierten Strahl. Zur Justage wird über das Fernrohr in Vorwärtsrichtung unpolarisiertes Licht einer Laserdiode in die Kammer eingekoppelt. Das Prisma wird nun manuell derart justiert, dass der parallel polarisierte und im Prisma reflektierte Zusatzstrahl eliminiert ist. Da die Justage ohne Feineinstellungsmöglichkeit erfolgt, kann das Verbleiben einer Restintensität des parallel polarisierten Strahls nicht ausgeschlossen werden. Die deshalb vorhandene geringe Fehljustage des Prismas führt dazu, dass ein geringer Teil des parallel polarisierten Streulichtes statt im Kanal PMT-R2 im Kanal PMT-R1 detektiert wird. Dies trägt zum beobachteten Depolarisationsuntergrund von 0,02 bei (siehe

Abschnitt 5.5.2).

5.4 Kalibrierung der Neutralfilter

Dieser Abschnitt widmet sich der Charakterisierung der Abschwächerplättchen. Zunächst wird das Kalibrierverfahren geschildert. Die Eliminierung einer systematischen Fehlerquelle machte eine minimale Dejustage der Verlaufsfilter notwendig. Aus diesem Grund werden im letzten Teil des Abschnittes erneut Kalibrierfunktionen angegeben.

Die auf einer motorgetriebenen Schiene vor den Fotomultipliern PMT-R2 und PMT-V angebrachten Neutralfilter dienen der kontinuierlichen Abschwächung der Streustrahlung. Bei der Kalibrierung der Verlaufsfilter wird folgendermaßen vorgegangen: Die Streusignale dürfen nur gering hintergrundbeeinflusst sein. Deshalb wird die AIDA-Versuchskammer entweder von innen elektrisch beleuchtet oder mit Schwefelsäuretröpfchen gefüllt. Deren Größe und Konzentration sind über einen längeren Zeitraum stabil, weil bei Konzentrationen um 4200 cm^{-3} die Koagulationswahrscheinlichkeit gering ist. Bei Kalibrierzeiträumen von etwa einer Stunde vermindern sich die Streusignale nur um bis zu 4 %. Ein Einfluss, der vernachlässigt werden kann. Zu Beginn befindet sich das Abschwächerplättchen des zu kalibrierenden Neutralfilters in Referenzstellung. Das bedeutet, der Schrittmotorschlitten steht auf Position Null und der Filter befindet sich nicht im Strahlengang. Nun wird der Schlitten in Zweiminutenabständen um eine definierte Wegstrecke weitergefahren. Der zugehörige PMT detektiert die jeweils transmittierte Intensität. Auf diese Weise kann jeder Plättchenposition eine auf die Referenzstellung normierte Abschwächung zugeordnet werden.

Wie in Kapitel 4.2.2 dargelegt, gehorcht die transmittierte Streuintensität einer Exponentialfunktion des Grundtyps nach Gleichung (4.5). Allerdings zeigt sich in den Kalibrierkurven sowohl der Vorwärts- als auch der Rückwärtsrichtung eine Abweichung vom erwarteten linearen Transmissionsverlauf. Abbildung 5.2 zeigt hierzu eine Kalibrierkurve der Rückwärtsrichtung, die dieses Verhalten besonders deutlich widerspiegelt. Die Ursache des Phänomens liegt in der nicht exakt keilförmig aufgedampften Metallschicht, weshalb die optische Dicke entlang des Neutralfilters nicht linear verläuft. Dies geht auch aus Abbildung 4.4 hervor. Tatsächlich ist ein Transmissionsunterschied von bis zu 10 % im Vergleich zum linearen Verlauf nachweisbar. Angesichts der Nichtlinearität der optischen Dicke er-

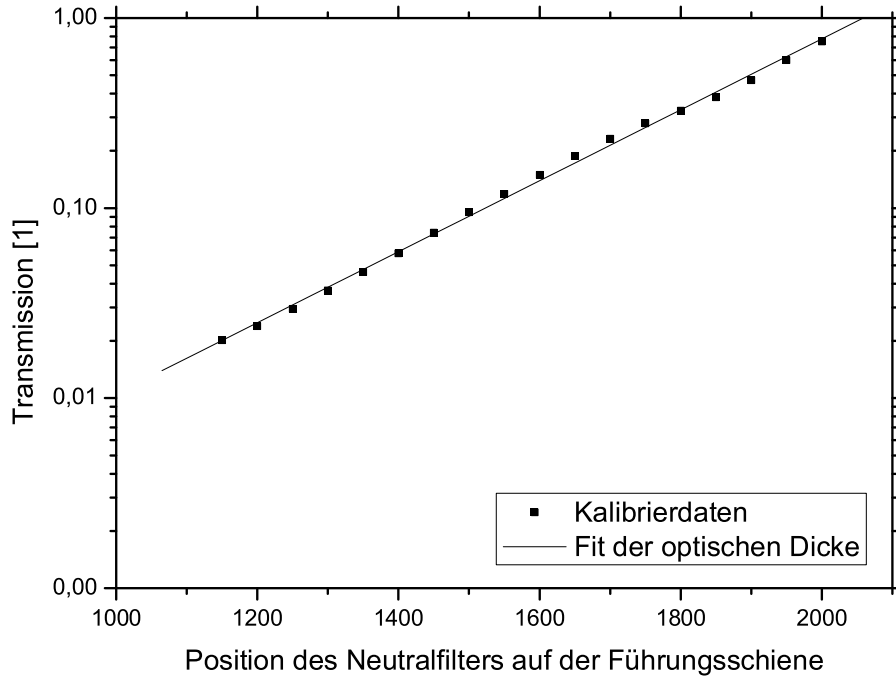


Abbildung 5.2: Transmissionsverlauf am Neutralfilter der Rückwärtsrichtung in Abhängigkeit seiner Position auf der Führungsschiene.

scheint eine Exponentialfunktion zur Charakterisierung der Filterplättchen nicht angemessen. Sinnvoll ist dagegen eine Polynomialfunktion. Die Kalibrierfunktionen für die ungekippte Plättchenstellung (Näheres siehe unten) ergeben sich zu

$$T_V = 1,63 \cdot 10^{-12}x^4 - 6,74184 \cdot 10^{-9}x^3 + 1,09441 \cdot 10^{-5}x^2 - 7,76255 \cdot 10^{-3}x + 2,02439 \quad (5.1)$$

$$T_{R2} = 6,46 \cdot 10^{-12}x^4 - 3,61435 \cdot 10^{-8}x^3 + 7,60539 \cdot 10^{-5}x^2 - 7,08080 \cdot 10^{-2}x + 24,54480 \quad (5.2)$$

Wie im Kapitel 4.2.2 bereits angesprochen, basiert die Intensitätsabschwächung auf dem Prinzip der partiellen Strahlreflexion an der aufgedampften Metallschicht. Aus diesem Grund ist es wichtig, dass die Filter nicht senkrecht zum

Einfallsstrahl positioniert sind. Infolge einer perfekten Justage der Empfangsoptik, bestehend aus Fernrohren, einem Glan-Laser-Prisma und zweier Neutralfilter, trat folgender Effekt ein: Es kam zu einer Rückreflexion des nicht transmittierten Streulichtanteils durch die Lochblenden der Fernrohre zurück in die AIDA-Aerosolkammer und auf den Neutralfilter der gegenüberliegenden Richtung. Je nach dessen Position wurde ein erneuter unerwünschter Rückreflex in AIDA hervorgerufen usw.

Stehen die Neutralfilter senkrecht im Strahlengang, würden sie sich wechselseitig beeinflussen. Die Folge sind unkorrigierbare Signalsprünge, wenn eine Filterposition verändert wird. Denn der Anteil des auf diese Weise entstehenden unerwünschten Rückreflexes in die Kammer steigt mit zunehmendem Streusignal. Derartige Signalsprünge sind nicht allein mit Kenntnis der Abschwächercharakterisierung zu bereinigen, sondern erfordern eine manuelle Nachkorrektur. Um solche Konsequenzen gänzlich zu vermeiden, wurden beide Neutralfilter leicht zur Seite gedreht. Die reflektierten Teilstrahlen erreichen so nicht mehr die Fernrohroptik, verfehlen aber spätestens die Lochblenden und werden nicht in die Aerosolkammer rückeingekoppelt. Mit der Kippung der Verlaufsfilter vergrößert sich der vom Streulicht auf dem Filter ausgeleuchtete Querschnitt und die Abschwächercharakteristik muss erneut bestimmt werden.

Für die Kalibrierfunktion der Rückwärtsrichtung bei gekipptem Neutralfilter ergibt sich

$$\begin{aligned}
 T_{R2} = & - 8,05831 \cdot 10^{-22}x^6 + 7,76076 \cdot 10^{-18}x^5 + 3,61845 \cdot 10^{-12}x^4 \\
 & - 2,11868 \cdot 10^8x^3 + 4,67331 \cdot 10^{-5}x^2 - 4,57510 \cdot 10^{-2}x + 1,67165.
 \end{aligned}
 \tag{5.3}$$

Es wird eine Polynomialfunktion der Ordnung sechs gewählt, da die Fitgenauigkeit für eine Funktion vierter Ordnung unbefriedigend war. Um eine Aussage über die Reproduzierbarkeit der Kalibrierkurven zu treffen, wird das gekippte Abschwächerplättchen der Vorwärtsrichtung zweimal vermessen. Die Kalibrierfunktion der Vorwärtsrichtung für die gekippte Plättchenstellung lautet

$$\begin{aligned}
 T_V = & 3,9875 \cdot 10^{-12}x^4 - 1,62352 \cdot 10^{-8}x^3 + 2,50098 \cdot 10^{-5}x^2 \\
 & - 0,01689x + 4,21793
 \end{aligned}
 \tag{5.4}$$

und ist ein Mittel beider Einzelfunktionen.

5.5 Dunkelzählraten und Abgleich der PMTs

Der vorliegende Abschnitt widmet sich der Charakterisierung der Detektionseinheiten: Die in SIMONE verwendeten Fotomultiplier sind zwar baugleich, aber nicht identisch. Sie unterscheiden sich hinsichtlich ihrer Dunkelzählrate, Empfindlichkeit und Verstärkung. Während dem Dunkelstrom über die Hintergrundmessung Rechnung getragen wird, werden Verstärkungsunterschiede durch einen Fotomultiplierabgleich behoben. Darüber hinaus enthält der PMT-Abgleich auch Justageunterschiede der Detektionsoptik. Das betrifft speziell die Gesichtsfeldunterschiede der Fernrohre.

5.5.1 Dunkelzählraten der PMTs

Auf die Photokathode auftreffende Photonen lösen Photoelektronen aus, die an den nachfolgenden Dynoden Sekundärelektronen auslösen und so zu einer Elektronenlawine vervielfacht und auf der Anode gesammelt werden. Somit ist der Elektronenstrom ein Maß für die Einstrahlintensität. Aber auch wenn keine Photonen einfallen, treten vereinzelt Elektronen aus der Photokathode aus, werden an den Dynoden verstärkt und an der Anode detektiert. Die stark temperaturabhängige Austrittswahrscheinlichkeit ist ungleich Null und geht als Dunkelzählrate oder Dunkelstrom in jede Messung ein. Abbildung 5.3 zeigt die Langzeitstabilität der Dunkelzählraten in allen Kanälen. Die drei PMTs weisen Dunkelzählraten von 1,2 (PMT-R1), 2,3 (PMT-R2) und 1,1 counts pro Sekunde (PMT-V) auf. Sie liegen damit deutlich unter den in den Spezifikationen angegebenen 30 counts. Im Vergleich zu den detektierten Zählraten im Messbetrieb wiegt der Dunkelstrom jedoch äußerst gering. Im Zuge der Hintergrundbereinigung der Messdaten werden auch die Dunkelzählraten aus den Zählraten eliminiert.

5.5.2 Abgleich der Rückwärts-PMTs

Der Abgleich aller drei Fotomultiplier ist notwendig, weil sie sich hinsichtlich ihrer Verstärkungscharakteristik unterscheiden. PMT-V dient als Referenzdetektor, auf den beide PMTs der Rückwärtsrichtung mit einem Faktor f_{R-V} angeglichen werden. Dazu ist zunächst ein Abgleich der rückwärtigen PMTs untereinander erforderlich. Hierzu wird PMT-R1 mit einem Kalibrierfaktor f_{R1-R2} an PMT-R2 angepasst.

5.5 DUNKELZÄHLRATEN UND ABGLEICH DER PMTS

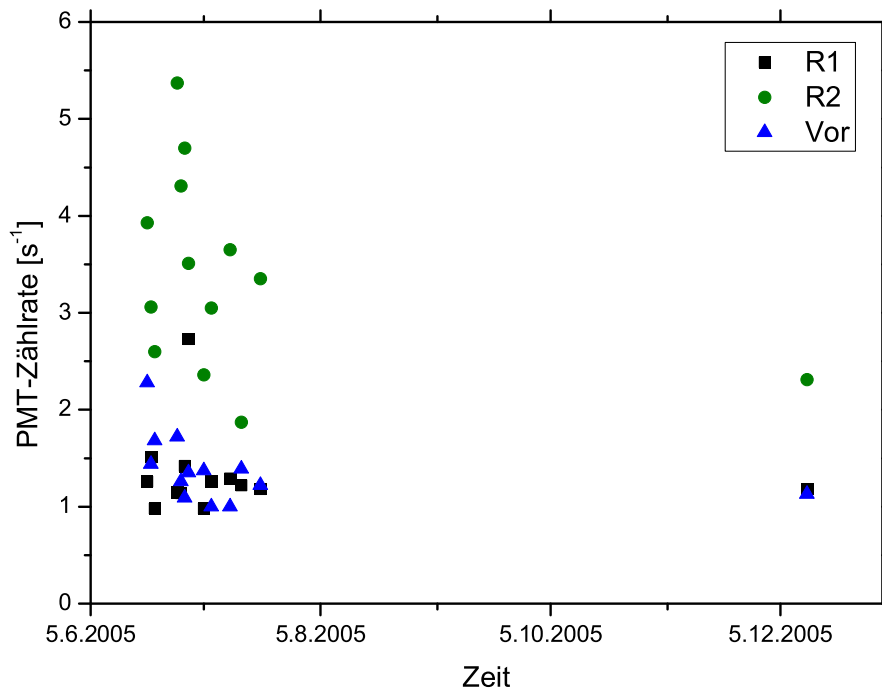


Abbildung 5.3: Langzeitstabilität der Dunkelzählraten.

Zum Abgleich der rückwärtigen PMTs dienen die mehrfachen Drehungen der Polarisationssebene während eines geeigneten Experiments. Zwei physikalische Eigenschaften des Aerosols sind dafür maßgeblich, von denen mindestens eine erfüllt sein muss:

- Sphärische Partikel zeigen keine Depolarisation und
- Partikel $< 1 \mu\text{m}$ weisen keine signifikante Polarisation auf.

In Experiment 58 der IN06-Kampagne sind beide Punkte erfüllt. Das in diesem Experiment benutzte Schwefelsäureaerosol wird wie folgt erzeugt: Außerhalb der Versuchskammer wird gefilterte synthetische Luft in einen auf $140 \text{ }^\circ\text{C}$ geheizten H_2SO_4 -Generator eingeleitet. Dieser enthält einen Schwefelsäurefilm. Die mit Schwefelsäure gesättigte Luft wird anschließend langsam abgekühlt, bei einer kritischen Übersättigung kommt es zur Nukleation von Schwefelsäuretröpfchen. Liegen sie im gewünschten Größenbereich, wird das Aerosol in AIDA eingeleitet.

Abbildung 5.4 verdeutlicht die Vorgehensweise beim PMT-Abgleich. Bei paralleler Laserpolarisation stellt das obere Niveau von R2 ($R2_{par}$, Zählrate ≈ 130000 counts, rot) den undepolarisierten Kanal dar, das untere Niveau von R1 ($R1_{par}$, Zählrate ≈ 1000 counts, schwarz) den depolarisierten Kanal. Die Drehung der Polarisations Ebene bewirkt die Umkehrung der Kanäle: $R1_{senk}$ mit einer Zählrate von ≈ 80000 counts ist nun der undepolarisierte Kanal, $R2_{senk}$ mit Zählraten bei ≈ 2500 counts der depolarisierte. Der Abgleichfaktor f_{R1-R2} muss $R1_{senk}$ an $R2_{par}$ angleichen, sowie $R1_{par}$ an $R2_{senk}$.

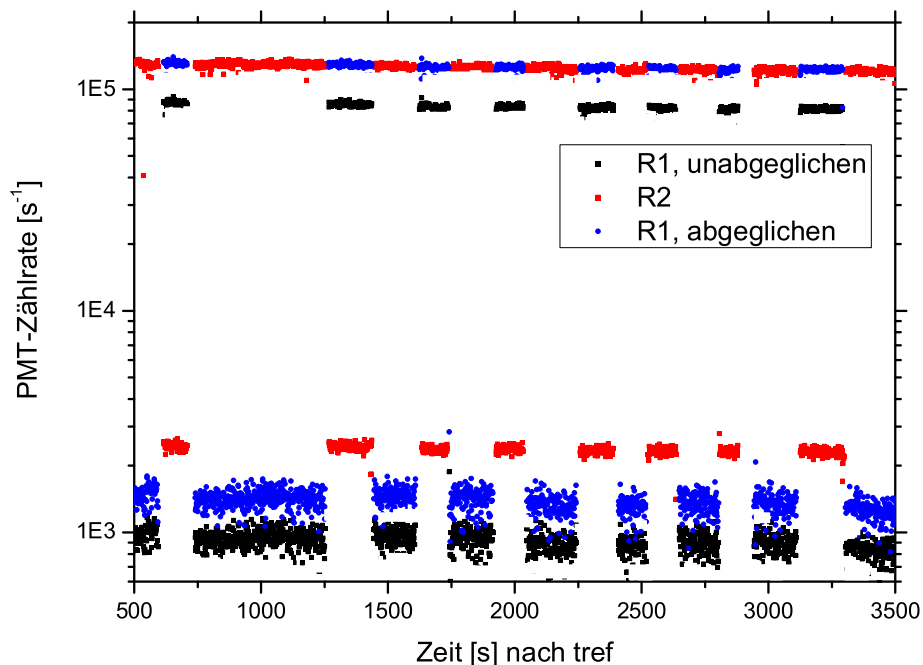


Abbildung 5.4: Fotomultiplierabgleich in Rückwärtsrichtung. Erläuterungen im Text.

Sphärische Partikel können bei geringer Abweichung von den Streuwinkeln 0° und 180° polarisierend wirken, weshalb bei sonst idealer Justage eine Drehung der Polarisationsrichtung zu unterschiedlichen Streuintensitäten am Detektor führt. Die Polarisation für Partikel $< 1 \mu\text{m}$ wurde mit Hilfe des Streuprogramms MIE-PLOT [14] für $\theta = 176^\circ$ zu $< 1\%$ ermittelt. Damit ist sie vernachlässigbar klein. Folglich kann der PMT-Abgleich in Rückwärtsrichtung anhand der jeweils un-

5.5 DUNKELZÄHLRATEN UND ABGLEICH DER PMTS

depolarisierten Kanäle während einer Polarisations Ebenendrehung vorgenommen werden. Mit

$$f_{R1-R2} = \frac{R2_{senk}}{R1_{par}} \quad (5.5)$$

ergibt sich der Rückwärtskalibrierfaktor zu $f_{R1-R2} = 1,51094 \pm 0,01029$. Abbildung 5.4 zeigt im oberen Niveau den Abgleicheffekt für die undepolarisierten Kanäle: Der unabgeglichene Kanal $R1_{senk}$ (schwarz) wurde auf ein höheres Niveau (blau) gehoben, das mit $R2_{par}$ (rot) übereinstimmt. Der gleiche Korrekturfaktor wurde für die depolarisierten Kanäle angewandt und ist in Abbildung 5.4 im unteren Niveau dargestellt: $R1_{par}$ (blau) deckt sich nicht mit $R2_{senk}$ (rot), die Verläufe unterscheiden sich um den Faktor 1,7. Es ist zu beachten, dass die Zählraten der depolarisierten Kanäle im Bereich des Untergrundes lagen: Die Kanäle PMT-R1 und PMT-R2 waren mit 56 % und 20 % hintergrundbeeinflusst, d.h. die Aerosolkonzentration in der Kammer war etwas zu niedrig.

Zu einem späteren Zeitpunkt zeigte sich, dass sich das Gesichtsfeld des PMT der R1-Richtung deutlich verkleinert hatte. Es ist anzunehmen, dass diese Dejustage im Laufe der IN06-Kampagne eintrat. Ergo ist der ermittelte Abgleichfaktor aus Experiment IN06_58 zu hoch und kann nur auf die dejustierte, nicht aber auf die justierte Apparatur angewendet werden. Wohl kann er jedoch zur Auswertung des Eisgeneratorexperiments benutzt werden, was mit dessen zeitlicher Nähe zu Experiment IN06_58 zu rechtfertigen ist.

Für die justierte Apparatur wird der Rückwärtsabgleichfaktor stattdessen anhand des SOA-Experimentes IN08_06a (**S**ecundary **O**rganic **A**erosol) ermittelt. Zu diesem Zweck werden im NAUA-Behälter (NAUA steht für **N**ach-**U**nfall-**A**tmosphäre) sehr hohe Anzahlkonzentrationen SOA-Partikel einer mittleren Größe von 330 nm durch homogene Nukleation erzeugt, von denen anschließend ein Teil in AIDA eingeleitet wird, bis eine CNC-Partikelkonzentration von 4000 cm^{-3} vorliegt. Die SOA-Anzahlkonzentration ist sehr stabil, da die Koagulationsrate bei dieser Anzahlkonzentration im Bereich von Stunden liegt. Der Beitrag des Zähl-Untergrundes zu den depolarisierten Streusignalen beträgt je nach Laserpolarisation und Rückwärtskanal 26 und 36 %. Aus dem Mittel über vier Polarisations Ebenendrehungen resultiert für die justierte Streulichtapparatur ein Rückwärtsabgleichfaktor von $f_{R1-R2} = 1,28466 \pm 0,00477$. Dieser Faktor wird zur Auswertung des Tröpfchen- und des Deliqueszenzexperimentes der IN06-Kampagne verwendet. Aus dem arithmetischen Mittel der Depolarisationen bei

paralleler und senkrechter Lasereinkopplung ergibt sich als Nachweisgrenze der Depolarisation für die justierte und dejustierte Apparatur 0,02. Angesichts der Signalstreuungen ist dieser Wert gerundet. Fehlerquellen sind Laserpolarisations-, Polarisationsoptikunsicherheiten und Justagefehler.

5.5.3 Abgleich der Rückwärts-PMTs an die Vorwärtsrichtung

Nachdem die Kalibrierung der rückwärtigen PMTs untereinander abgeschlossen ist, wird nun ihre Empfindlichkeit an die der Vorwärtsrichtung angeglichen. Wie im vorigen Abschnitt bereits erläutert, war PMT-R1 einige Zeit nur zur Hälfte ausgeleuchtet. Deshalb existieren auch für den Vorwärts-Rückwärts-Abgleich der Fotomultiplier zwei Faktoren: ein Kalibrierfaktor für die justierte und einer für die dejustierte Streulichtapparatur. Im Kapitel 3.4 ist dargelegt, dass das Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnis für Partikel $< 1 \mu\text{m}$ unabhängig des Detektionswinkelpaares quadratisch mit dem Partikeldurchmesser ansteigt. Auf diese Tatsache stützt sich die Berechnung des Vorwärts-Rückwärts-Kalibrierfaktors. Im Folgenden wird die Methodik zur Ermittlung von f_{R-V} anhand der justierten Apparatur geschildert.

Das im Abschnitt 5.5.2 beschriebene SOA-Experiment IN08.06a wird auch für den Vorwärts-Rückwärts-Abgleich verwendet. Die Grundlage bilden zwei mit einem LTP-DMA aufgenommene Anzahl-Größenverteilungen. Ein LTP-DMA (**L**ow-**T**emperature-**P**ressure **D**ifferential **M**obility **A**nalyzer) ist ein modifizierter DMA, welcher für den Betrieb bei tiefen Temperaturen und geringen Drücken ausgelegt ist. Es werden nacheinander zwei Anzahl-Größenverteilungen aufgenommen. Eine Messreihe dauert 15 Minuten. Während dieser Zeit und darüber hinaus ist die Partikelanzahlverteilung aus oben genannten Gründen stabil. Das Anwenden einer log-normal-Fitfunktion führt zu folgenden Mediandurchmessern und Verteilungsbreiten:

$$\begin{aligned}cmd &= 350,94 (\pm 3) \text{ nm}, \sigma = 1,228 (\pm 0,01) \text{ und} \\cmd &= 349,55 (\pm 2,88) \text{ nm}, \sigma = 1,229 (\pm 0,01).\end{aligned}$$

Die LTP-DMA-Anzahlkonzentrationen liegen bei etwa $2600 \text{ Partikeln cm}^{-3}$. Damit liegen sie um den Faktor 1,5 unter den direkt mit einem CNC gemessenen Anzahlkonzentrationen. Dafür verantwortlich sind zum einen diffusionsbedingte Partikelverluste im LTP-DMA, zum anderen wird vermutet, dass die Effizienz

5.5 DUNKELZÄHLRATEN UND ABGLEICH DER PMTS

der an beiden Instrumenten eingesetzten Krypton-85 Charger unterschiedlich sein könnte. Nur aufgeladene Partikel können jedoch durch Variation der angelegten Spannung nach ihrer elektrischen Mobilität selektiert werden. Unter Verwendung einer Ladungsverteilungsfunktion wird ausgehend vom Anteil geladener Partikel auf die Gesamtanzahl geschlossen, was zu einer Abweichung von der realen Anzahlkonzentration führt, falls die Effizienz der Krypton-85 Charger ungleich ist. Dies hat allerdings keinen Einfluss auf die hier beschriebene Auswertung, da hier nur Streusignal*verhältnisse* betrachtet werden. Für beide Größenverteilungen werden nun mit der IDL-Routine `bhmiecoatingpol` Mie-Streulichtberechnungen durchgeführt. Da im Regelfall die parallele Laserpolarisation benutzt wird und sehr kleine runde Partikel keine Depolarisation zeigen, gilt das Interesse speziell dem Term S_2 aus Gleichung (3.10). Mit

$$I = 2I_0 \int_{\beta_0-\alpha}^{\beta_0+\alpha} \frac{dC(\beta)}{d\Omega} \arctan \left(\sqrt{\tan^2(\alpha) - \tan^2(\beta - \beta_0)} \right) d\beta. \quad (5.6)$$

(Herleitung siehe Anhang) wird für die ganzzahligen Detektionswinkel β_0 in den Intervallen 0° bis 4° und 176° bis 180° das Integral in Gleichung (5.6) berechnet. Dies geschieht für einen Integrationsradius von $\alpha = 0,0859^\circ$ in Rückwärtsrichtung und $\alpha = 0,0747^\circ$ in Vorwärtsrichtung. Die für die Winkelpaare $0^\circ/180^\circ$, $1^\circ/179^\circ$, $2^\circ/178^\circ$, $3^\circ/177^\circ$ und $4^\circ/176^\circ$ ermittelten Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnisse weisen wie erwartet nur eine sehr geringe Winkelabhängigkeit auf. Trotzdem wurde eine leichte Zunahme beobachtet, je näher das Winkelpaar an die exakte Vorwärts-Rückwärtsrichtung rückt. Tatsächlich zeigt sich ein leichtes Maximum im Winkelpaar $1^\circ/179^\circ$. Abbildung 5.5 klärt das Phänomen auf: Der parallele Anteil des Matrixelementes S_{11} (S_2) verläuft in naher Vorwärtsrichtung fast flach, wohingegen in naher Rückwärtsrichtung ein leichter Anstieg zu erkennen ist. Die Mittelung der Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnisse für alle Winkelpaare definiert das modellierte Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnis $(V/R)_{mod}$. Das Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnis, welches anhand der SIMONE-Streulichtdaten für den Zeitraum der jeweiligen DMA-Messung errechnet wird, definiert $(V/R)_{mess}$. Das Verhältnis beider Größen

$$\frac{(V/R)_{mod}}{(V/R)_{mess}} \quad (5.7)$$

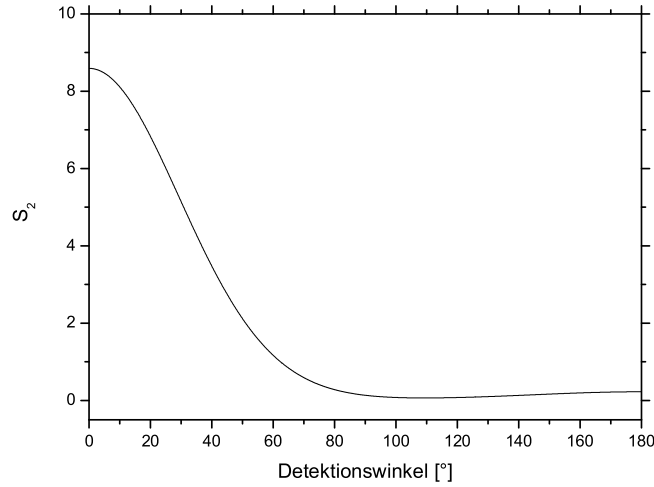


Abbildung 5.5: Der parallele Anteil des Matrixelementes S_{11} (S_2) in Abhängigkeit des Detektionswinkels.

und Mittelung über beide Größenverteilungen führt zum Vorwärts-Rückwärts-Abgleichfaktor $f_{R-V} = 0,3172 \pm (0,00219)$.

Für die dejustierte Apparatur wird anhand dreier Größenverteilungen analog vorgegangen. Der mittlere Partikeldurchmesser beträgt hier 240 nm. Der Abgleichfaktor nimmt den Wert $f_{R-V} = 0,33744 \pm (0,00587)$ an. Er liegt um rund 6% höher als der Vorwärts-Rückwärts-Kalibrierfaktor für die justierte Apparatur, da die im depolarisierten Kanal PMT-R1 fehlende Streuintensität ausgeglichen werden muss. Zwar hatte sich das Gesichtsfeld von PMT-R1 um mindestens 20 % eingeschränkt, aber die Depolarisation durch die verwendeten 240 nm-Partikel ist sehr gering. Somit war die im undepolarisierten Kanal PMT-R2 detektierte Streuintensität signifikant größer. Genau aus diesem Grund wurden ursprünglich gleiche Vorwärts-Rückwärts-Abgleichfaktoren erwartet, was sich jedoch nicht bewahrheitete.

Wie eingangs erwähnt, beinhaltet der Abgleich der PMTs auch eine Information über Justageunterschiede der Detektionsoptik, speziell der Fernrohre. PMT-V ist der Referenzdetektor, er besitzt somit den Kalibrierfaktor 1. Sind beide Fernrohre gut aufeinander abgestimmt, muss f_{R-V} einen Wert nahe 1 annehmen. Sie unterscheiden sich hingegen um rund den Faktor 3. Also ist die Detektionseinheit in Rückwärtsrichtung mehr als dreimal so empfindlich wie die der Vorwärtsrichtung.

5.6 Detektionswinkel und Messvolumen

Die optischen Achsen beider Fernrohre sind deckungsgleich. Die vor- und rückwärtige Detektionseinheit stehen sich exakt gegenüber. Somit müssen die Detektionswinkel β beider Streulichtaufbauten um denselben Betrag aus der exakten Vorwärts- Rückwärtsrichtung abweichen. Dieser Umstand ist bei der Berechnung der Detektionswinkel von Bedeutung.

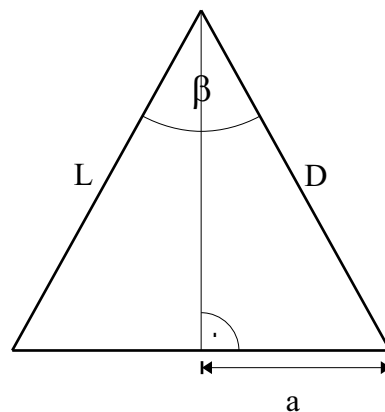


Abbildung 5.6: Strahleinkopplungsgeometrie an AIDA. Die Geometrie gilt gleichermaßen für den Vorwärts- und Rückwärtsaufbau. Erläuterungen im Text.

In der vorliegenden Arbeit werden die Detektionswinkel mit Hilfe zweier Strategien bestimmt: trigonometrisch und experimentell. Letztere wird in Kapitel 6.1 erklärt. Abbildung 5.6 zeigt die Geometrie der Strahleinkopplung an AIDA. Die Basislänge des gleichschenkligen Dreiecks repräsentiert den Abstand der Ein- und Auskopplungsflansche. Für die halbe Strecke gilt: $a = 5$ cm. L und D stehen für die Länge des Laser- und Detektionsstrahls bis zu deren Schnittpunkt. Es gilt mit folgenden Abständen und Wegstrecken:

AIDA-Radius	R_{AIDA}	=	200 cm
AIDA-Wanddicke	L_W^{AIDA}	=	2 cm
Wegstrecke im Isoliergehäuse	L_{Iso}	=	78 cm
Wanddicke des Isoliergehäuses	L_W^{Iso}	=	12 cm
Rohrstück Flansch – Isoliergehäuse	L_{Rohr}	=	30 cm

$$L = D = R_{AIDA} + L_W^{AIDA} + L_{Iso} + L_W^{Iso} + L_{Rohr} = 322 \text{ cm.} \quad (5.8)$$

Damit ergibt sich für β mit

$$\beta = 2 \arcsin \left(\frac{a}{D} \right) = 1,78^\circ. \quad (5.9)$$

Im Vorgriff auf Kapitel 6.1 sei gesagt, dass die trigonometrische Detektionswinkelbestimmung vertrauenswürdiger als die experimentelle ist. Somit betragen die Detektionswinkel $1,8^\circ$ in Vorwärtsrichtung und $178,2^\circ$ in Rückwärtsrichtung.

Das in Abbildung 5.7 grau dargestellte Messvolumen ist durch den Überlappbereich von Laser- und Detektionsstrahl gekennzeichnet. Es befindet sich ungefähr eine Handbreit über dem zylinderförmigen Leitblech des Mischventilators (vgl. Abb. 2.4) und erstreckt sich über eine Länge von $b = 700$ mm. Die Apertur des Beobachtungsstrahls beträgt $Ap = 22,4$ mm. Der Durchmesser des Laserstrahls beträgt im Zentrum der AIDA-Kammer $d = 3,6$ mm. Dieser Wert basiert auf mit dem Laserstrahlanalysator gemessenen Strahldurchmessern und der daraus ermittelten Divergenz des Laserstrahls. Anhand der Streugeometrie berechnet sich der Detektionswinkel β zu

$$\beta = \arctan \left(\frac{Ap}{b} \right) = 1,83^\circ. \quad (5.10)$$

Im Rahmen der Messgenauigkeit kann dieses Ergebnis als fast identisch mit (5.9) gesehen werden. Länge c berechnet sich zu

$$c = \sqrt{Ap^2 + b^2} = 700,3 \text{ mm}. \quad (5.11)$$

Daraus ergibt sich für das als zylindrisch angenommene Detektionsvolumen

$$V = \frac{\pi}{4} d^2 c = 7,1 \text{ cm}^3. \quad (5.12)$$

Die mit den PMTs gemessenen Zählraten sind Integrale über das Gesamtmessvolumen. Da die Intensitätsverteilung des Laserstrahls ein Gaußprofil darstellt, bedarf es für die Durchmesserermittlung einschränkender Vorgaben. So wird mit dem Strahlanalysator diejenige Strahlausdehnung gemessen, die 86,5 % der Intensität beinhaltet. Folglich kann für die Größe des Messvolumens keine scharfe Grenze angegeben werden. Da der Laserstrahlanalysator mit einer sehr hohen räumlichen Auflösung misst, ist die Unsicherheit des Messvolumens sehr gering.

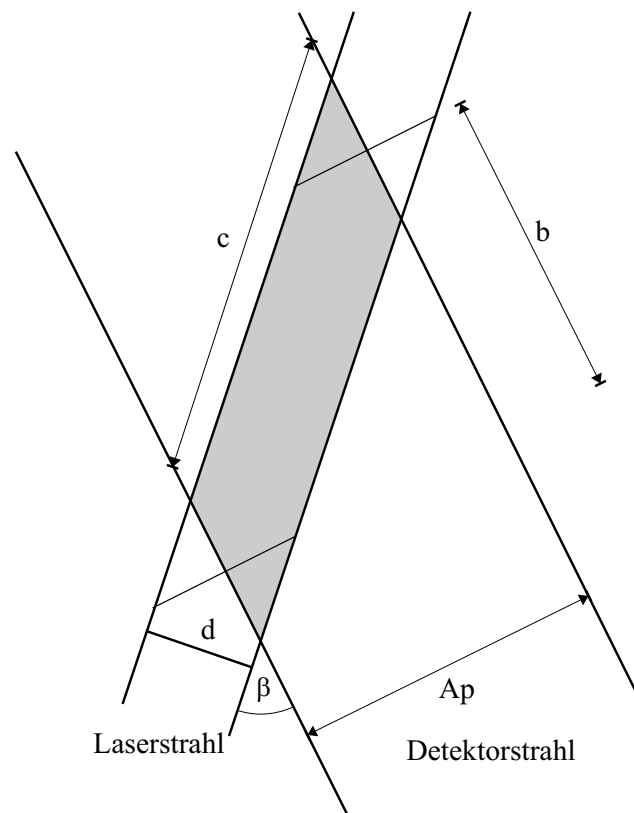


Abbildung 5.7: Streugeometrie. Die grau unterlegte Fläche markiert das Messvolumen.

5.7 Hintergrundmessung und Datenauswertung

Vor jeder Versuchsreihe eines Tages wird der Hintergrund in den drei Detektionskanälen bestimmt. Das Hintergrundsignal beinhaltet die Luftmolekülstreuung, die Reflexionen an den Kammerwänden, Verstärkungsunterschiede der PMTs, sowie die Streuung an in der Versuchskammer befindlichen Partikeln. Die Hintergrundmessung umfasst auch die Drehung der Polarisationssebene. Auch für die Vorwärtsrichtung ergibt sich so je nach Laserpolarisation ein entsprechender Hintergrundwert. Es ist sinnvoll, die Hintergrundmessung vor dem Einleiten des Aerosols vorzunehmen, da sich das Depolarisationssignal mit der Aerosolzugabe erhöht. Eine Hintergrundmessung nach dem Partikeleinleiten würde zu folgendem Problem führen: Im Lauf der Aktivierungszyklen eines Tages verringert sich die Partikelkonzentration in AIDA, weil Partikel abgepumpt werden.

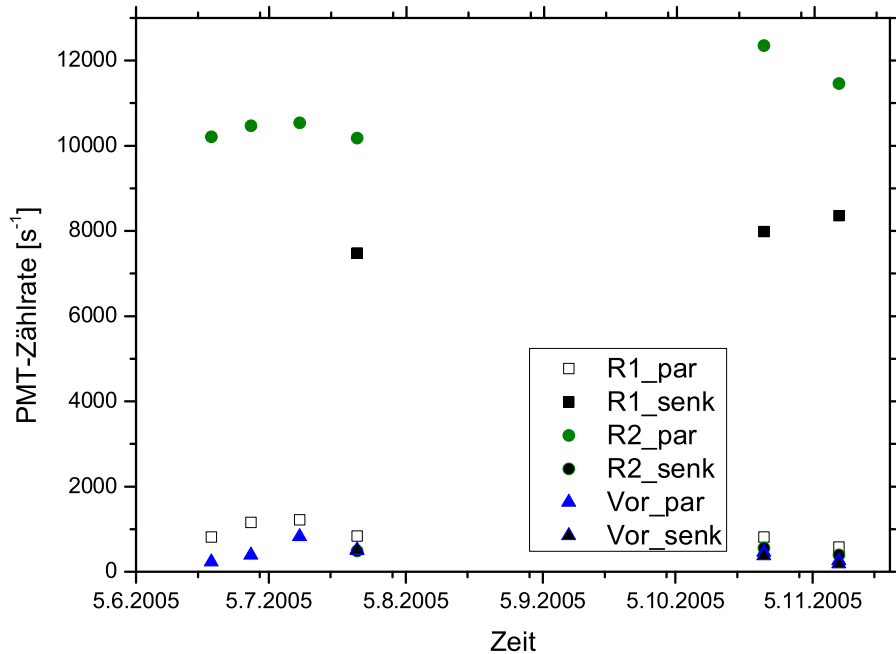


Abbildung 5.8: Langzeitstabilität der Hintergrundmessungen. Bei Einkopplung paralleler Laserpolarisation ist $R1_{par}$ der depolarisierte und $R2_{par}$ der undepolarisierte Kanal. Bei Einkopplung vertikaler Laserpolarisation ist $R1_{senk}$ der undepolarisierte und $R2_{senk}$ der depolarisierte Kanal. Die Hintergrundmessung in Vorwärtsrichtung erfolgt ebenfalls polarisationsaufgelöst, d.h. über die Drehung der Laserpolarisation.

Das Auffüllen nach jeder Aktivierung erfolgt mit partikelfreier synthetischer Luft. Das hat zur Folge, dass ab der zweiten Aktivierungsphase von den Messdaten zu hohe Hintergrundsignale abgezogen würden. Für die konzentrationsunabhängigen Größen Depolarisation und Vorwärtsstreuverhältnis bleibt das zunächst ohne Folgen. Besäßen einige Messwerte nach Hintergrundabzug allerdings ein negatives Vorzeichen, wären sowohl die Depolarisations- als auch die Vorwärtsstreuverhältniswerte zu verwerfen. Deshalb ist zusätzlich zu empfehlen, vor jedem Aktivierungszyklus eine Hintergrundsignalmessung vorzunehmen. Dies setzt stabile Bedingungen vor jedem Aktivierungsvorgang voraus. Die Depolarisation an der Kammerwand geht in die Hintergrundmessung ein. Da sich die Kammerwand während der kurzen Aktivierungsphasen nicht verformt, ist eine Variierung des

5.7 HINTERGRUNDMESSUNG UND DATENAUSWERTUNG

Hintergrundes ausgeschlossen. Abbildung 5.8 stellt die Langzeitstabilität der über Monate ermittelten Hintergrundsignale dar. Es ist ersichtlich, dass die depolarisierten Kanäle (je nach Laserpolarisation *R1_par* oder *R2_senk*) niedrige Werte aufweisen, aber nicht vernachlässigbar sind. Der Hintergrund in Vorwärtsrichtung erscheint in dieser Graphik gering, da sich vor PMT-V ein fixer 1 %-Filter befindet. Für alle Kanäle gilt: Es ist keine signifikante Langzeit-Hintergrundvariation erkennbar.

Wandreflexe haben einen Einfluss auf die Hintergründe: Für die Vorwärtsrichtung ergibt sich mit dem Fernrohröffnungswinkel $\alpha_R = 0,0859^\circ$ und dem Kammerdurchmesser 4 m ein Divergenzradius an der vorwärtigen Wand von 12 mm. Zusammen mit dem Durchmesser des Beobachtungsstrahls (22,4 mm) beträgt das Gesichtsfeld von PMT-R 35 mm. Die lichte Weite des Strahlaustrittsfensters sind 32 mm. Zusätzlich zur vollen „Ausleuchtung“ des Fensters sind die optischen Achsen der Fernrohre nicht zentrisch zum Austrittsfenster ausgerichtet. Dies alles führt zu einem in Rückwärtsrichtung detektierten Reflex am Vorwärtsflansch. Selbiges gilt für PMT-V. Während des Aktivierungszeitraumes tritt wegen großer Partikel ein Vielfaches der Hintergrundstreuintensitäten auf (z.B. Deliqueszenzexperiment: Faktor 13 im Kanal R1, Faktor 40 im Kanal R2, Faktor 5150 im V-Kanal). Der Kammerreflex erhöht sich. Das hat zur Folge, dass bei der Datenauswertung zu geringe Hintergründe abgezogen werden, die Vorwärtsstreu- und Depolarisationsergebnisse demnach leicht zu hoch sind.

Die Datenauswertung erfolgt nach folgendem Schema:

1. Die Rohdaten werden unter Verwendung der Kalibrierfunktionen der Abschwächerplättchen auf eine Transmission von 100 % korrigiert.
2. Im ersten Teil der IN06-Kampagne standen beide Neutralfilter senkrecht zum Einfallslight im Strahlengang, weswegen sie sich gegenseitig beeinflussten (siehe Kapitel 5.4). Da die entstandenen Sprünge nicht über die Kalibrierfunktionen der Plättchen bereinigt werden können, wurde manuell auf 100 % nachkorrigiert.
3. Es folgt der Abzug der Hintergründe jedes Kanals in Abhängigkeit der Laserpolarisation.
4. Mit den entsprechenden Kalibrierfaktoren (siehe Kapitel 5.5) wird der Abgleich der Fotomultiplier vollzogen.

-
5. Im letzten Schritt schließt sich die Berechnung des Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnisses und der Depolarisation an.

Kapitel 6

Ergebnisse und Modellrechnungen

Atmosphärische Verhältnisse können mit AIDA nur zum Teil simuliert werden: Wegen des relativ raschen Austausches von Wasserdampf und Wärme zwischen Kammerwand und Kammervolumen lässt sich der Zustand der Eisübersättigung durch langsames Pumpen nur über eine begrenzte Zeitspanne aufrecht erhalten. Daher können Eiswolken in AIDA nicht wesentlich länger als etwa 30 Minuten lang beobachtet werden. Im Sinne präziser instrumenteller Messungen überschreiten die Aerosolpartikelanzahldichten bei Flüssigphasenexperimenten die typischen atmosphärischen Bedingungen. In Eisphasenexperimenten liegen die Eispartikelanzahlkonzentrationen dagegen zwischen 10 und 100 cm⁻³, was natürlichen Bedingungen gleichkommt. Chemische Prozesse in der Gasphase lassen sich in AIDA sogar über Tage hinweg simulieren. Zur Charakterisierung der Streulichtapparatur werden in diesem Kapitel jeweils ein Tröpfchen-, ein Deliqueszenz- und ein Eisexperiment ausgewertet.

6.1 Tröpfchenexperiment

In Experiment IN06_07 werden Ammoniumsulfatlösungströpfchen (AS-Lösungströpfchen) als Ausgangsaerosol verwendet. Die Aerosolerzeugung erfolgt mit einem Atomizer: In einem Glaskolben befindet sich 0,1 %ige AS-Lösung. Unter einem Vordruck im Bereich von 50 – 300 kPa wird gefilterte synthetische Luft in die Dispergierdüse eines Atomizers geleitet. Der durch die Strömung entstehende

dynamische Unterdruck saugt Ammoniumsulfatlösung an. Diese wird zerstäubt und über ein etwa 1 m langes zylindrisches Sedimentationsvolumen, dem eine Impaktorstufe zur Abscheidung größerer Tröpfchen nachgeschaltet ist, in AIDA eingeleitet. Nicht zerstäubte Lösung geht über einen Rücklauf zurück in den Kolben. Die Partikelgröße ist über den Vordruck regelbar.

Zeitlicher Ablauf des Tröpfchenexperimentes. Vor Experimentstart wird die Versuchskammer befeuchtet: Um partikelfreie Bedingungen sicherzustellen, wird die Kammer nach dem Evakuieren mehrmals gespült, d.h. es wird bis zum Erreichen von $p = 5$ hPa synthetische Luft zugesetzt und wieder evakuiert. Im Anschluss wird deionisiertes Wasser verdampft und in das Kammervolumen eingeleitet, bis der Partialdruck der gewünschten Feuchte bei der Experimenttemperatur von 273 K entspricht. Danach wird das Kammervolumen mit gefilterter synthetischer Luft bis auf Atmosphärendruck aufgefüllt. Es folgt das langsame Abkühlen der Kammer mit Kühlraten bis zu 4 K h^{-1} . Abbildung 6.1 verdeutlicht den zeitlichen Verlauf des Tröpfchenexperimentes IN06_07. Im ersten Bild sind Druck p , Gas- und Wandtemperatur T_W bzw. T_G dargestellt, im zweiten Bild die relative Feuchte bzgl. Wasser RH_W . Das V/R-Verhältnis (Abb. 6.1, Bild c) gibt Auskunft über die Partikelgröße, die Depolarisation (Abb. 6.1, Bild d) über die Partikelphase. Während des Experiments wurden mit WELAS Größenverteilungen des Tröpfchenaerosols mit einer Zeitaufösung von fünf Sekunden aufgenommen.

Die zunächst adiabatische Expansion beginnt bei $p = 1010$ hPa und $T = 273$ K. Ab $t = 40$ s wird der Kammerdruck mit einer Pumprate von etwa 400 l min^{-1} erniedrigt, um die Gastemperatur abzusenken und die relative Feuchte zu erhöhen. Die CNC-Konzentration beträgt zu diesem Zeitpunkt 310 cm^{-3} , die Partikel sind ca. $1 \mu\text{m}$ groß. Der Wasserdampfpartialdruck ist linear proportional zum Totaldruck und nimmt deshalb fast linear ab, während der Sättigungsdampfdruck bzgl. Wasser exponentiell abnimmt. Dies resultiert in einem Anstieg der relativen Feuchte von 94 auf 101 %, was zu einem Quellen und dann zu einer Aktivierung der Partikel führt. Die Folge sind größere Streuquerschnitte und damit ein Anstieg der Streusignale (Abb. 6.1, Bild c). Das V/R-Verhältnis (Abb. 6.1, Bild d) verringert sich aber zunächst. Der Grund für dieses Verhalten ist aus Abbildung 3.1 ersichtlich: Die Partikel wachsen von 1 auf $1,5 \mu\text{m}$ und durchlaufen dabei das Minimum des V/R-Verhältnisses. Die Ammoniumsulfatpartikel werden schließlich nach 300 Sekunden zu Wolkentropfen aktiviert und wachsen dabei auf

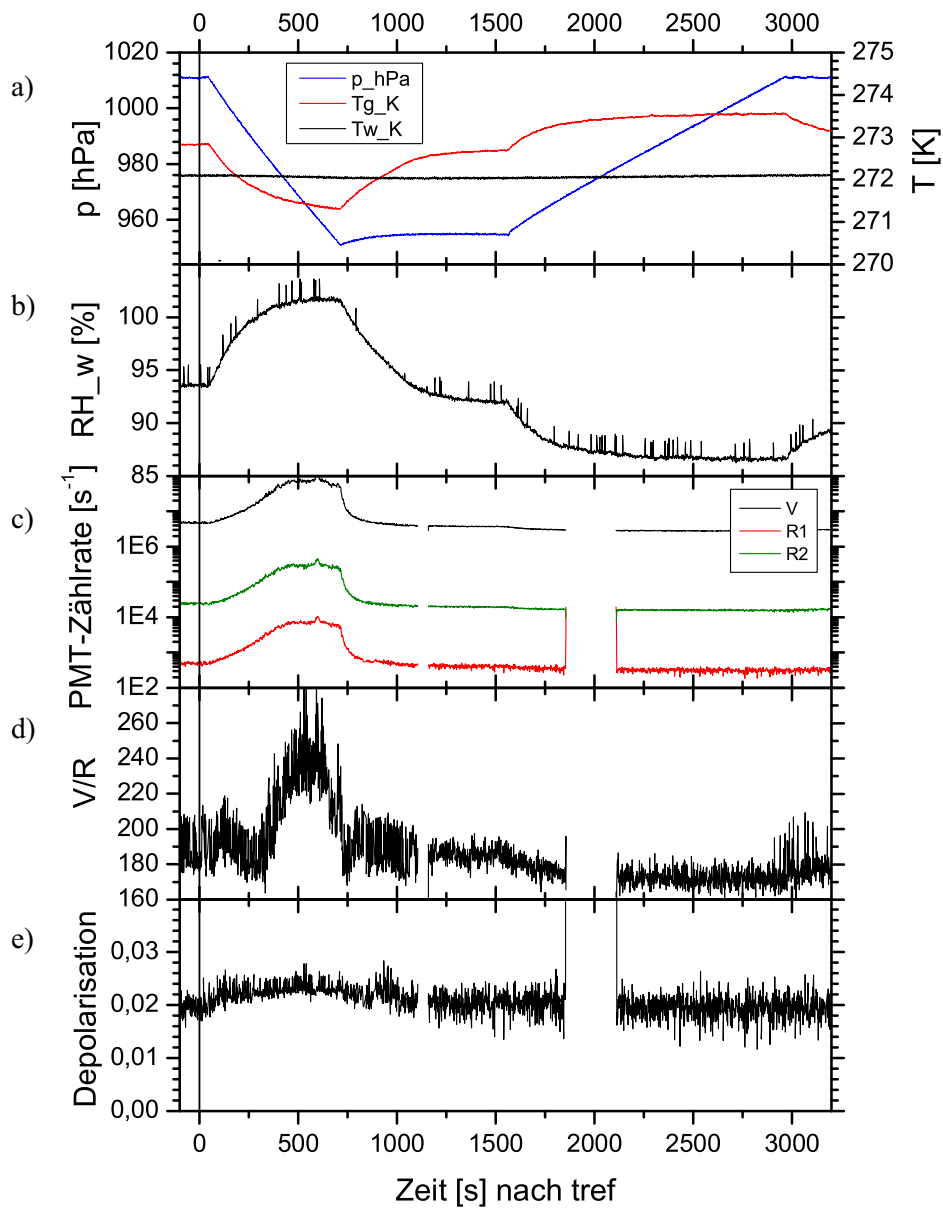


Abbildung 6.1: Zeitlicher Verlauf des Tröpfchenexperimentes IN06.07. Bild a: Druck, Gas- und Wandtemperatur; Bild b: relative Feuchte bzgl. Wasser; Bild c: korrigierte Zählraten der PMTs; Bild d: Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnis; Bild e: Depolarisation. Erläuterungen im Text.

3,2 μm an. Bei dieser Größe erreicht das V/R-Verhältnis ein Maximum (Abbildung 3.4). Die hohe Wärmekapazität der Kammerwand hält die Wandtemperatur nahezu konstant und sorgt für einen zunehmenden Wärmefluss von der Wand ins Gasvolumen ab dem Zeitpunkt, ab dem $T_G < T_W$ ist. Aufgrund des zunehmenden Temperaturgradienten ebbt der T_G -Abfall langsam ab. Nach Pumpstopp bei $p = 950 \text{ hPa}$, 710 Sekunden nach Experimentbeginn, liegt die Partikelanzahlkonzentration bei nur noch 185 cm^{-3} . Da sich der Druck durch den Pumpvorgang um 6 % verringerte, hätte sich auch die Aerosolpartikelkonzentration nur um 6 % reduzieren dürfen. Stattdessen sank sie durch Sedimentation der aktivierten Tröpfchen um etwa 40 %. Nach Pumpstopp nähert sich die Gastemperatur infolge des anhaltenden Wärmeflusses von der Wand ins Gasvolumen langsam wieder der Ausgangstemperatur. Dabei stellt sich auch der Startwert von RH_W wieder ein. Die Tröpfchen verdampfen teilweise auf ca. $1,7 \mu\text{m}$, was auch anhand des Rückganges des V/R-Verhältnisses zu beobachten ist. 26 Minuten nach Pumpbeginn wird die Versuchskammer mit rund 200 Litern trockener synthetischer Luft pro Minute aufgefüllt. Aus diesem Grund sinkt RH_W langsam auf 87 % und das Gasvolumen erwärmt sich durch Kompression. Der Befüllvorgang endet, wenn Atmosphärendruck erreicht wird. T_G bewegt sich auf die ursprüngliche Gleichgewichtstemperatur zu.

Die sphärischen Ammoniumsulfatlösungstropfen wirken nicht depolarisierend. In Abbildung 6.1 ist tatsächlich keine signifikante Zunahme des Depolarisationssignals während der Aktivierungsphase zu erkennen. Die Änderung der Depolarisation bewegt sich innerhalb der Nachweisgrenze. Wie in Kapitel 5.1 bereits erwähnt, war zum Zeitpunkt dieses Experiments die Laserpolarisation nicht exakt parallel zur Streuebene ausgerichtet. Deshalb detektierte PMT-R1 einen Anteil des undepolarisierten Streulichtes, was zu einer minimalen Erhöhung des Depolarisationssignals führte. Wie beschrieben, wurde daraufhin die Laserpolarisation mittels Nachjustage am DSP parallel zur Streuebene ausgelegt.

Experimentelle Ableitung der Detektionswinkel aus Streulichtdaten.

In Kapitel 5.6 wurden die Detektionswinkel auf zwei Wegen trigonometrisch berechnet. Anhand des Experimentes IN06_07 wird versucht, die Detektionswinkel β aus der experimentell bestimmten Größenabhängigkeit der Streuintensitäten abzuleiten. Die theoretische Grundlage hierfür wurde in Kapitel 3.4 erläutert. Es werden erneut Mie-Rechnungen mit der `bhmiecoatingpol`-Routine für $\lambda = 488 \text{ nm}$ durchgeführt. Der Mie-Rechnung werden die mit WELAS gemessenen Tropfen-

größenverteilungen zugrunde gelegt. Diese wurden im Experimentzeitraum mit einer zeitlichen Auflösung von 5 Sekunden aufgenommen. Daraus resultieren 148 Größenverteilungen. Da die Konzentration von Ammoniumsulfat in den Tröpfchen im Zeitraum der Detektionswinkelbestimmung gering ist, wird für die Rechnungen näherungsweise der Brechungsindex von Wasser (1,33) angenommen. Mit den aus den Streumatrixelementen S_{11} für parallele Einfallspolarisation errechneten Phasenfunktionen wird Gleichung (5.6) gelöst. Als Integrationsbereich wurde zunächst irrtümlich $\alpha = 0,2^\circ$ angesetzt, d.h. $\beta = \pm 0,2^\circ$. Es ergeben sich für verschiedene Detektionswinkelpaare β die in Abbildung 6.2 dargestellten V/R-Verhältnisse. Der grüne Graph markiert den V/R-Verlauf für

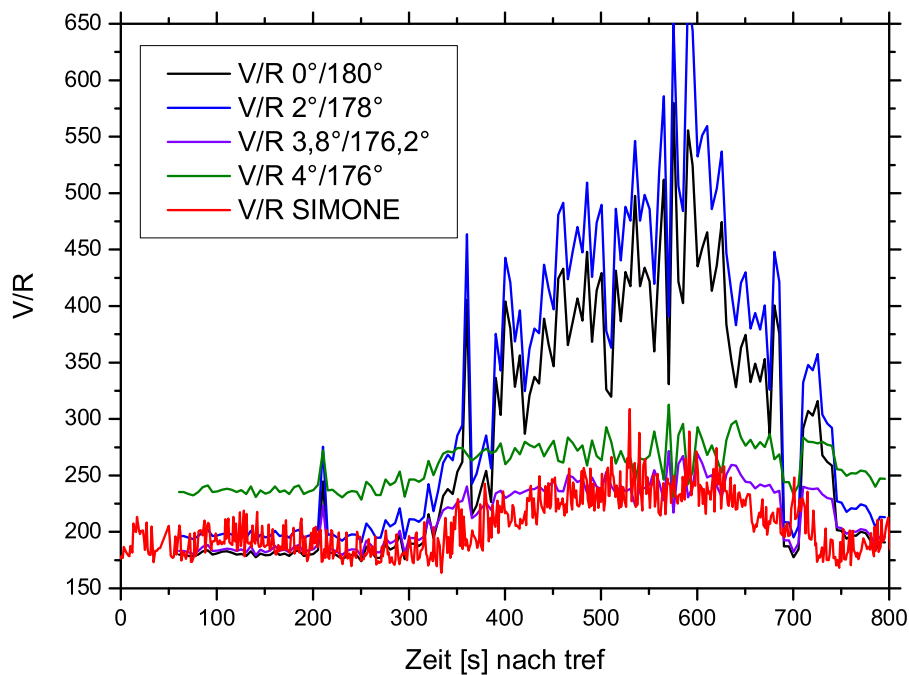


Abbildung 6.2: Entwicklung des V/R-Verhältnisses im Experimentverlauf. Rot, schwarz, blau, lila und grün: mit Mie-Theorie berechnet. Rot: mit der Streulich- apparatur gemessen. Erläuterungen im Text.

die Detektionswinkel des alten Streulichtaufbaus ($4^\circ/176^\circ$). Die blaue Kurve kennzeichnet den zu erwartenden Verlauf für die aktuellen Beobachtungswinkel $1,8^\circ/178,2^\circ$. Die mit SIMONE während des Experimentzeitraumes gemesse-

nen Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnisse sind rot dargestellt. Ziel ist, anhand eines Vergleiches zwischen berechneten und gemessenen Kurvenverläufen Rückschlüsse auf die Detektionswinkel zu ziehen. Da sowohl die WELAS- als auch die SIMONE-Daten stark verrauscht sind, sind nur Aussagen über einen Detektionswinkelbereich möglich. Abbildung 6.2 deutet an, dass es zwischen experimentell ermitteltem und trigonometrisch berechneten Detektionswinkelpaar eine Diskrepanz gibt. Vielmehr spricht der gemessene V/R-Verlauf für ein Winkelpaar in der Nähe von $3,8^\circ/176,2^\circ$. Ausgehend von einem Partikeldurchmesser von $1\ \mu\text{m}$ setzt die Winkelsensitivität des V/R-Verhältnisses nach Abbildung 3.1 ab einem Tropfendurchmesser von rund $2,5\ \mu\text{m}$ ein. Diese Größe wird in Experiment IN06.07 im Aktivierungszeitraum überschritten: Zu $t = 590\ \text{s}$ beträgt der Tröpfchendurchmesser $3,2\ \mu\text{m}$. Daher sind die Messdaten von 350 bis 700 Sekunden winkelsensitiv, was zu einer höheren Variabilität der V/R-Verhältnisse für $0^\circ/180^\circ$ und $2^\circ/178^\circ$ im Vergleich zu höheren Detektionswinkeln führt.

Eine mögliche Ursache für die Nichtübereinstimmung könnte sein, dass die optischen Achsen der Fernrohre nicht übereinanderliegen. Zur Prüfung dieser Frage werden für den Zeitpunkt des Aktivierungsmaximums die WELAS-basierten V/R-Verhältnisse neu kombiniert. Die erwarteten Verhältnisse von $V/R \approx 550$ werden auf diese Weise jedoch nicht erreicht. Eine zweite mögliche Ursache könnte eine Verkipfung des Glan-Laser-Prismas sein. Diese besteht tatsächlich, siehe Kapitel 5.1. Allerdings wurde die Fehlerquelle durch die Wahl der DSP-Drehwinkel bereits minimiert. Ob der Restfehler die Detektionswinkelbestimmung beeinflusst, lässt sich prüfen, indem der Integration statt S_2 die Streumatrixelemente S_{11} aus Gleichung (3.10) zugrunde gelegt werden. Da in naher Vorwärts-Rückwärts-Richtung nach dem Programm MIEPLOT [14] kaum Differenzen zwischen S_2 und S_{11} für unpolarisiertes Einfalllicht existieren, hat diese Änderung keinen Einfluss. Wie oben angesprochen, wurde bei der Integration zunächst ein falscher Raumwinkel zugrunde gelegt. Die Objektivbrennweiten f_{Objektiv} der Fernrohr-linsen betragen in Vorwärtsrichtung 230 mm, in Rückwärtsrichtung 200 mm. Weil Blendenradius und Linsenbrennweite die detektierte Lichtmenge bestimmen, ist nach (4.2) und (4.3) nicht $2\alpha = 0,4^\circ$ der richtige Integrationsbereich, sondern $2\alpha_V = 0,15^\circ$ und $2\alpha_R = 0,17^\circ$. Die Neuberechnung der aus den WELAS-Größenverteilungen berechneten korrekten V/R-Verhältnisse konnte aus Zeitgründen leider nicht mehr durchgeführt werden. Der Brennweitenunterschied könnte aber einen signifikanten Einfluss auf das Rechenergebnis haben.

Ein dritter Grund für die Diskrepanz zwischen gemessenem und berechneten

Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnis ist die Erhöhung der Reflexionen an der Kammerwand und somit der Hintergrundsignale während der Tropfenaktivierung. Da v.a. die Vorwärtsstreuintensität zunimmt, erhöht sich der Hintergrund in Rückwärtsrichtung relativ gesehen stärker als der in Vorwärtsrichtung. Da die Detektionsstrahlen an den Austrittsöffnungen mit einem Durchmesser von 35 mm im Bereich des Durchmessers der Öffnung (32 mm) liegen, kommt es somit zu Reflexen besonders am Metall des Vorwärtsflansches und zur Erhöhung der Zählraten der Kanäle PMT-R1 und PMT-R2. Aus den Ausführungen in Kapitel 5.7 ergäbe sich eine Erniedrigung der Rückwärtsstreuintensität und damit eine Zunahme der gemessenen V/R-Verhältnisse. Ob dieser Effekt ausreicht, um eine Annäherung an den entsprechenden berechneten V/R-Graphen zu erzielen, ist spekulativ.

6.2 Deliqueszenzexperiment

In dem hier beschriebenen Experiment IN06_12 wird die Deliqueszenz von trockenem AS-Aerosol bei langsamer Erhöhung der relativen Feuchte untersucht. Daher wird im Gegensatz zu IN06_07 trockenes AS in AIDA eingeleitet. Die Aerosolherzeugung ist die Gleiche wie unter 6.1. Die $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ -Lösungströpfchen durchlaufen nach Abscheiden der größeren Tröpfchen nacheinander zwei Diffusionstrockner. Diese beinhalten Silicagel als Trockenmittel, wodurch den AS-Tröpfchen das Wasser vollständig entzogen wird.

Abbildung 6.3 stellt den Ablauf des Experiments dar. Da trockene AS-Partikel nicht sphärisch sind, wird das Streulicht in Rückwärtsrichtung signifikant depolarisiert. Der leichte Depolarisationssprung zu Experimentbeginn kommt durch eine unvollständige PMT-Zählratenkorrektur zustande. Wie in Kapitel 5.4 dargelegt, hatten die Neutralfilter zu diesem Zeitpunkt der Kampagne noch eine senkrechte Stellung zur optischen Achse des Fernrohres, wodurch sie sich durch Reflexion des nicht transmittierten Streulichtes wechselseitig beeinflussten.

Das Experiment beginnt bei einer Temperatur von 273 K und einem Kammerdruck von 1010 hPa. Zum Zeitpunkt $t = 0$ s wird der Kammerdruck mit einer Pumprate von etwa 300 l min^{-1} erniedrigt, um die Gastemperatur abzusenken und die relative Feuchte zu erhöhen. Mit dieser vergleichsweise langsamen Abpumprate ist auch der Anstieg der relativen Feuchte bzgl. Wasser RH_W sehr flach und die Annäherung an den Deliqueszenzpunkt erfolgt langsam. Da der Gastem-

6.2 DELIQUESZENZEXPERIMENT

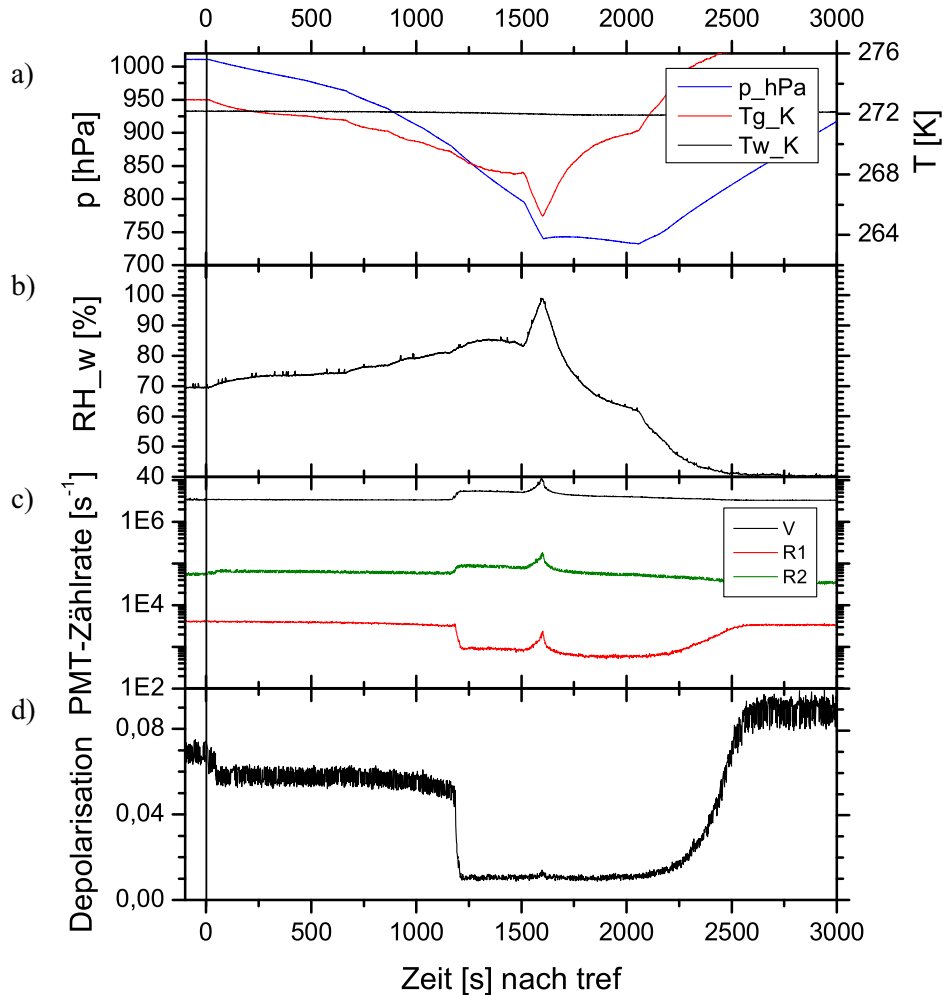


Abbildung 6.3: Zeitlicher Verlauf des Deliqueszenzexperimentes IN06_12. Bild a: Druck, Gas- und Wandtemperatur; Bild b: relative Feuchte bzgl. Wasser; Bild c: korrigierte Zählraten der PMTs; Bild d: Depolarisation. Erläuterungen im Text.

peraturabfall stagniert, wird nach ca. 660 Sekunden die Pumprate schrittweise leicht erhöht. Die letzte Erhöhung findet bei $t = 1140$ s statt. Die Deliqueszenz der Partikel setzt 1185 s nach Pumpstart ein und ist nach 30 Sekunden abgeschlossen. Sie ist damit im Vergleich zu weiteren Deliqueszenzexperimenten bei tieferen Temperaturen vergleichsweise scharf. Die Zeit bis zur vollständigen

Verflüssigung der AS-Partikel ist umso kürzer, je mehr Wasserdampf für die gleiche Zahl von AS-Partikeln zur Verfügung steht, und je rascher der Anstieg der relativen Feuchte erfolgt. Es gibt Hinweise darauf, dass an einigen Partikeln bereits vor dem Deliqueszenzsprung Wasser angelagert war: Mit Hilfe der Infrarotspektroskopie konnte eine Wasserbande nachgewiesen werden und das Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnis nimmt schon vor Auftreten des Deliqueszenzsprunges zu. Tatsächlich erhöhen sich die Streusignale aller Kanäle bereits zur Zeit $t = 1170$ s (Bild c), da die Partikel vor dem Deliqueszenzsprung langsam Wasser aufnehmen und leicht quellen. Der Kern der Partikel ist somit noch fest, während an der Oberfläche bereits Wasser vorliegt. Zu diesem Zeitpunkt steigt auch die relative Feuchte steiler an als zuvor. Der depolarisierte Kanal R1 und mit ihm das Depolarisationssignal erfahren erst bei $t = 1185$ s infolge der plötzlich einsetzenden Deliqueszenz einen deutlichen Signalsprung nach unten (Abbildung 6.4). Der

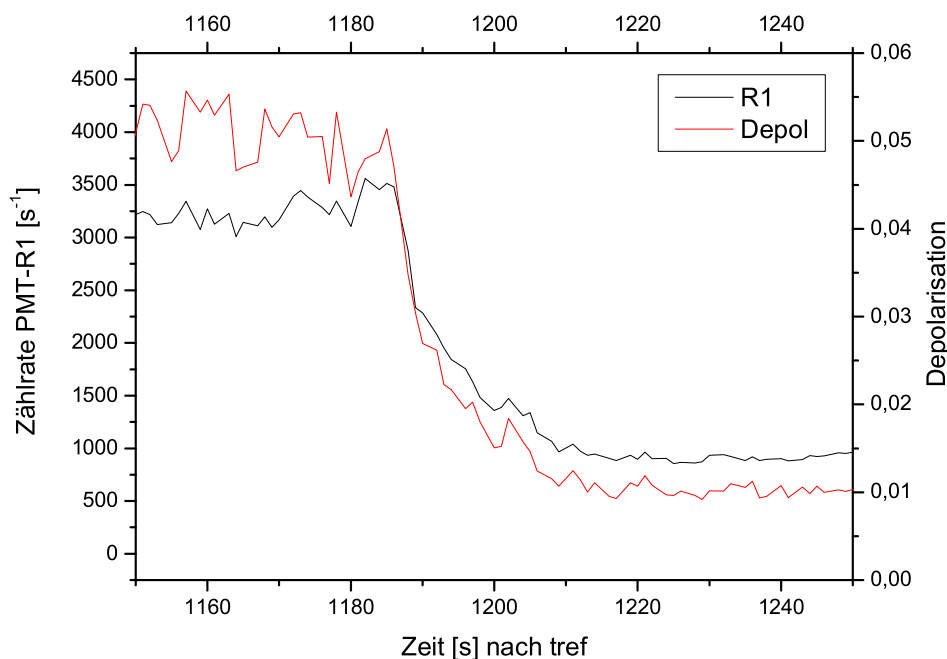


Abbildung 6.4: Deliqueszenzsprung des Experimentes IN06_12 im Kanal PMT-R1 und im Depolarisationssignal.

relativ scharfe Deliqueszenzsprung beweist die gute homogene Durchmischung

des Kammervolumens. Infolge des im Anschluss an den Deliqueszenzsprung einsetzenden Quellens der zunächst aus gesättigter AS-Lösung bestehenden Tröpfchen werden Partikelgrößen bis $2 \mu\text{m}$ erreicht. 1500 Sekunden nach Start wird die Pumpleistung auf 80 % erhöht, um eine Wolkenaktivierung auszulösen. Die Gastemperatur sinkt dabei von 268 K auf 265 K, RH_W steigt auf 99 %, d.h. die Aktivierungsschwelle wurde nur knapp verfehlt. Die Streusignale zeigen aber ein starkes Partikelwachstum an (Man beachte die logarithmische Darstellung!). Bei $T = 1680 \text{ s}$ wird die Pumpe gestoppt, die Gastemperatur steigt infolge des Wärmeflusses von der Wand, die relative Feuchte sinkt unter ihren Ausgangswert, da auch Wasserdampf abgepumpt wurde. Die Tröpfchen schrumpfen entlang des feuchten Astes der Hysteresekurve (Abbildung 2.1), d.h. unterhalb der Deliqueszenzfeuchte bleiben sie metastabil-flüssig. Das AIDA-Volumen wird mit synthetischer Luft aufgefüllt, woraufhin die relative Feuchte deutlich abnimmt. Es ist somit wahrscheinlich, dass der Effloreszenzpunkt zumindest lokal unterschritten wird, so dass wieder feste AS-Partikel entstehen. Deswegen ist gegen Ende des Experiments bei $t = 3000 \text{ s}$ die Depolarisation höher als zu Anfang. Eine mögliche Erklärung ist, dass es während des Quellens der AS-Tröpfchen zu Koagulationen zwischen kleinen und großen Tropfen kommt und nach dem Verdunsten die Ammoniumsulfatpartikel größer als bei Experimentstart sind.

Wie der experimentell ermittelte Deliqueszenzsprung theoretisch einzuordnen ist, zeigt Abbildung 6.5. Darin ist in schwarz der Temperatur- und Wassersättigungsverlauf während des IN06_12-Experiments abgetragen. Die Pfeile geben den zeitlichen Verlauf an. Die rote Linie markiert die Deliqueszenzfeuchte in Abhängigkeit der Temperatur auf der Grundlage von Berechnungen mit dem AIM-Modell (European Aerosol Inorganics Model; CLEGG ET AL., 1998 [7], [33]). Das Fehlerkreuz um das schwarze Quadrat kennzeichnet denjenigen gemessenen Temperatur- und Feuchtebereich, in dem im Experiment der Deliqueszenzsprung einsetzt: $RH_W = 81,9 \%$ bis 82% , $T_G = -3,8 \text{ }^\circ\text{C}$ bis $-3,9 \text{ }^\circ\text{C}$. Der Gerätefehler der Feuchtemessung zusammen mit der Feuchteunsicherheit, die durch die Ungenauigkeit in der Temperaturmessung ($0,2 \text{ K}$) hervorgerufen wird, ergibt einen Feuchtefehler von maximal $\pm 5,3 \%$. Abbildung 6.6 stellt die relative Wasserfeuchte, bei der für Ammoniumsulfatpartikel der Deliqueszenzsprung stattfindet (DRH AS) in Abhängigkeit der Temperatur dar. Der rote Graph kennzeichnet den Deliqueszenzverlauf, wie er mit dem AIM-Modell simuliert wird. Im Intervall von Raumtemperatur bis ungefähr $-20 \text{ }^\circ\text{C}$ ist der Zusammenhang zwischen Deliqueszenzfeuchte und Temperatur linear. In diesem

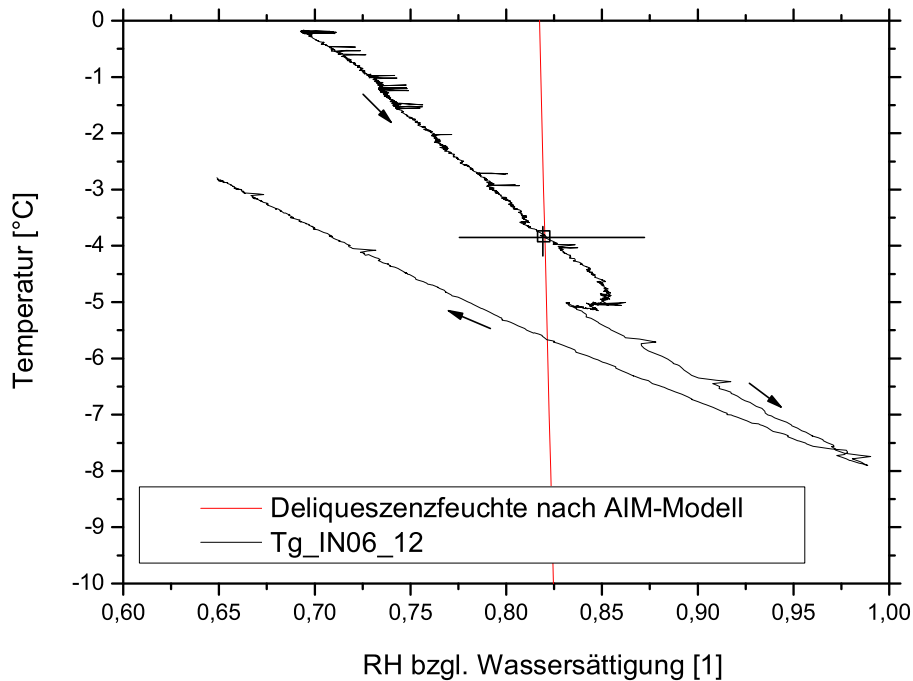


Abbildung 6.5: Experimentell ermittelter Deliqueszenzpunkt im Experiment IN06_12 (schwarzes Quadrat) im Vergleich zu der mit dem AIM-Modell (Referenz) modellierten Temperaturabhängigkeit der Deliqueszenzfeuchte von AS.

Bereich gibt es zahlreiche experimentelle Daten, z.B. die in Form schwarzer Quadrate dargestellten Messpunkte von CZICZO UND ABBATT, 1999 [8]. Es wird mangels experimenteller Daten vermutet, dass sich die Linearität unterhalb von -20 °C weiter fortsetzt. Die schwarzen Kreise repräsentieren die Einsatzpunkte der Deliqueszenzübergänge der Experimente IN06_12 ($-3,8\text{ °C}$) und IN08_43 ($-23,5\text{ °C}$). Im Rahmen der Messgenauigkeit ist die Messung bei $T = 23,5\text{ °C}$ mit der linearen Extrapolation kompatibel. Für tiefere Temperaturen liegen keine systematischen Messungen der Deliqueszenzfeuchte vor. Die nachträgliche Auswertung von Streulichtmessungen bei $T = -51\text{ °C}$, die eigentlich nicht mit dem Ziel der Bestimmung von Deliqueszenzfeuchten durchgeführt wurden, ergeben die mit grauen Fehlerbalken in Abbildung 6.6 eingefügten Daten. Die Fehlerbalken markieren hier nur den zeitlichen Unsicherheitsbereich des Deliqueszenzeinsatz-

6.3 EXPERIMENTE MIT EINEM EISKEIMGENERATOR

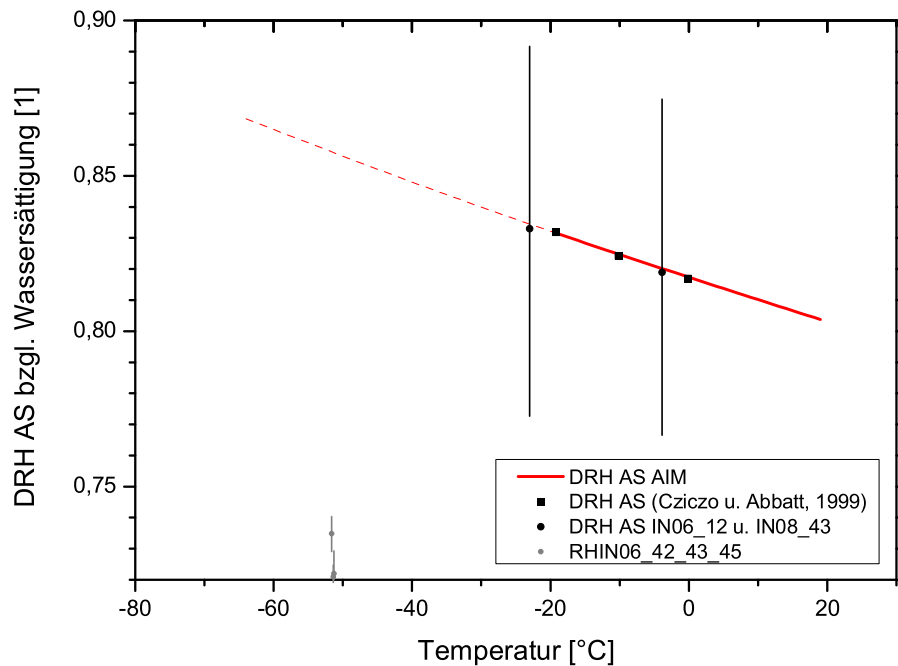


Abbildung 6.6: Einsatzpunkte des Deliqueszenzsprunges für Ammoniumsulfatpartikel in Abhängigkeit der Wassersättigung und der Temperatur. Rot, durchgehend: nach AIM-Modell; rot, gestrichelt: lineare Extrapolation der Temperaturabhängigkeit; schwarze Quadrate: nach CZICZO UND ABBATT, 1999 [8]; schwarze und graue Kreise: AIDA-Messungen der Kampagnen IN_06 und IN_08.

punktes. Die Messdaten liegen weit unter den durch lineare Extrapolation des AIM-Modells zu erwartenden Deliqueszenzfeuchten. Es sollten daher bei tiefen Temperaturen systematische Experimente durchgeführt werden, deren Ziel das Nachweisen von Deliqueszenzsprüngen ist.

6.3 Experimente mit einem Eiskeimgenerator

Ziel des Experimentes IN06.50 ist, den Einfluss der Größe von Eiskristallen auf das Depolarisationssignal der neuen Streulichtapparatur zu untersuchen. Dazu werden sehr kleine Eiskristalle aus einem externen Generator in AIDA eingeleitet und durch unterkühlte Wassertröpfchen zum stufenweisen Wachstum angeregt. Dabei wird das Depolarisationssignal kontinuierlich gemessen.

Vorbereitung eines Eisexperiments und Aerosolerzeugung. Eisaktivierungsexperimente starten bei fast eisgesättigten Bedingungen. Eissättigung wird hergestellt, indem die Kammerwand mit einer Eisschicht überzogen wird: Ist eine Wandtemperatur von $T_W = 0\text{ °C}$ erreicht, wird die Kammer auf $p = 0,01\text{ hPa}$ evakuiert, mehrfach gespült, anschließend Wasserdampf zugegeben, mit synthetischer Luft aufgefüllt und langsam abgekühlt. Eissättigung herrscht, wenn die Kammerwand auf den Frostpunkt gekühlt ist, es bildet sich eine Eisschicht an der Wand. Ist die Experiment-Starttemperatur erreicht, werden Druck und Temperatur konstant gehalten, so dass sich zwischen der eisbedeckten Wand und dem Kammervolumen ein Gleichgewicht hinsichtlich der relativen Luftfeuchte bzgl. Eis (RH_i) einstellt. Aufgrund verschiedener Wärmequellen ist die Gastemperatur etwas höher als die Wandtemperatur und daher $RH_i \approx 90\%$ statt 100% . Bei einer Eisaktivierung von unterkühlten Wasser- oder Lösungströpfchen muss durch Pumpen eine relativ hohe kritische Eisübersättigung erreicht werden, damit die in der Kammer befindlichen Tröpfchen gefrieren, sobald eine kritische Eisübersättigung erreicht ist. Für das hier beschriebene Eiswachstumsexperiment ist stattdessen eine leichte Eisübersättigung ausreichend, die durch sukzessive Wasserzugabe erzeugt wird.

Abbildung 6.7 verdeutlicht die wesentlichen Schritte der Eispartikelerzeugung mit einem Eiskeimgenerator. Gereinigte synthetische Luft wird in ein mit Wasser gefülltes Gefäß, den Sättiger, eingeleitet. Die bei der Temperatur des Sättigers mit Wasserdampf gesättigte Luft wird danach in einen Eisgenerator eingeleitet. Er besteht aus einem zylindrischen Gefäß, das mit einem Kryostaten auf -60 °C gekühlt wird. Am Einlass der Eiskammer befindet sich eine Heizung, die das Gefrieren und damit ein Verstopfen der Einlassöffnung verhindert. Während der IN06-Kampagne erfolgte die Eispartikelbildung im Eisgenerator durch Depositionsnukleation auf Eiskeimen. Hierzu wird synthetische Luft mit einem Atomizer (siehe Kapitel 6.1) mit Salztröpfchen angereichert. Nach Passieren eines Diffusionstrockners (Kapitel 6.2) gelangt das trockene Salzaerosol mit dem Strom synthetischer Luft in den Kryostaten, wird dort auf -60 °C abgekühlt und über eine gekühlte Leitung in die Eiskammer eingebracht und dort mit der einströmenden warmen, wassergesättigten synthetischen Luft gemischt. Auf diese Weise entstehen aus den Salzpartikeln durch Depositionsnukleation sehr kleine Eiskristalle. Im Mittel wachsen die Eispartikel auf etwa $3\text{ }\mu\text{m}$ volumenäquivalenter Durchmesser. Im Anschluss erfolgt die Einleitung in die AIDA-Versuchskammer (Ebene 3), wo die Eispartikel bei Eisübersättigung anwachsen können.

6.3 EXPERIMENTE MIT EINEM EISKEIMGENERATOR

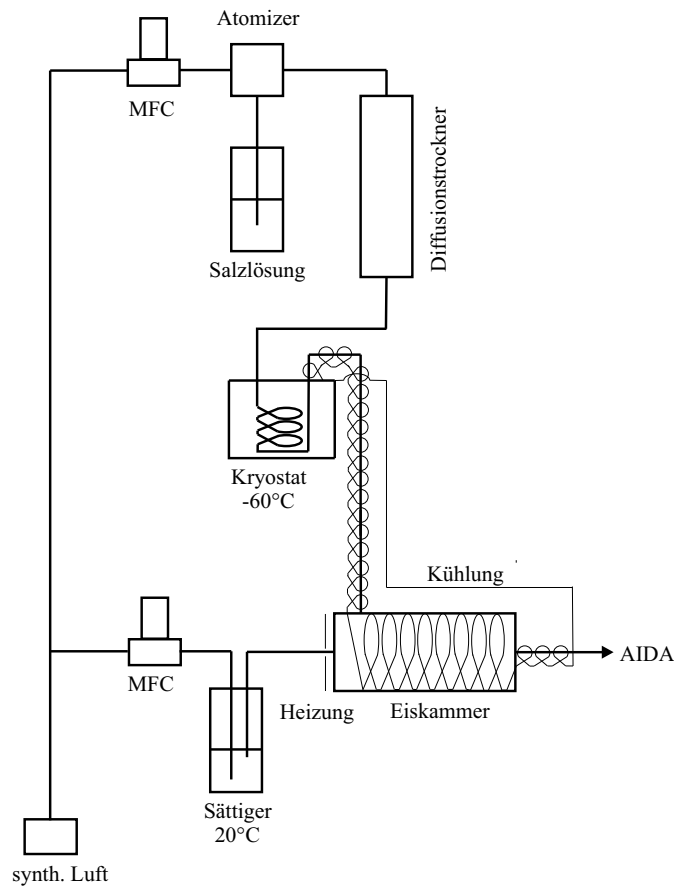


Abbildung 6.7: Prinzipskizze des Eiskeimgenerators.

Die Generierung der für dieses Experiment benötigten Eisübersättigung erfolgte durch Einbringen unterkühlter Wassertröpfchen mit Hilfe einer Zweistoffdüse, die innerhalb der AIDA-Kammer angebracht ist. Sie vernebelt Wasser mittels synthetischer Luft zu mikrometergroßen Wassertröpfchen. Das Eindüsen von Wassertröpfchen findet am selben Flansch wie die Eispartikeleinleitung statt. Die Einlässe haben einen Abstand von 20 cm.

Abbildung 6.8 zeigt den zeitlichen Ablauf des Experiments. Die Gas- und Wandtemperatur beträgt fast konstant 245 K. Beide Temperaturverläufe sind identisch. Somit gibt es keinen Wärmefluss von den Wänden ins Kammervolumen. Die Gas-temperatur ist ein Mittelwert aus Temperaturmessungen mehrerer Sensoren. Es besteht Grund zu der Annahme, dass der Temperaturmittelwert zu hoch ist, aus diesem Grund wird die relative Eisfeuchte RH_i etwas zu niedrig berechnet, wes-

halb eisgesättigte Bedingungen zu Beginn des Experimentes erreicht werden. Der Druck nimmt während der Experimentdauer nur leicht ab. Ursache ist, dass die Druckabnahme durch die Probennahme des CPI und CDP mit einem Gesamtvolumenfluss von 300 l min^{-1} mittels permanenter Zufuhr synthetischer Luft derselben Menge ausgeglichen wird. Die mittlere Partikelgröße D_{mittel} stammt vom CDP, weil die untere Nachweisgrenze des CPI bei $30 \mu\text{m}$ liegt und damit das CDP-Gerät eine bessere Zählstatistik besitzt.

Im Vorfeld wurden in der Kammer durch Zugabe von Eiskristallen und Wassertröpfchen eisgesättigte Bedingungen hergestellt. Durch sukzessive Beigabe von Wasser werden die Eispartikel zum Wachsen gebracht. Die letzte Wassereinleitung vor Beginn des Experiments ist in Abbildung 6.8 zum Zeitpunkt $t = 12200 \text{ s}$ sichtbar: Da wasseruntersättigte Bedingungen vorliegen, verdunsten die Tröpfchen im AIDA-Volumen, RH_i steigt an. Da der Wasserdampfpartialdruck über Eis geringer ist als über Wasser, kommt es zur Deposition des entstehenden Wasserdampfes an die Eiskristalle. Diese besitzen einen Durchmesser von $25 \mu\text{m}$ (Bild d) und sedimentieren langsam aus, wodurch sich ihre Konzentration verringert. Dies ist in Abbildung 6.8 an der Abnahme der Streuintensitäten und der Depolarisation, sowie am verrauschten Signal des Partikeldurchmessers erkennbar. Der Abfall der relativen Feuchte stagniert, da zunehmend weniger Eispartikel für die Wasserdampfanlagerung zur Verfügung stehen, die Deposition an der Kammerwand aber ein langsamer Prozess ist. Zum Zeitpunkt $t = 12780 \text{ s}$ erfolgt die Zugabe von Eiskristallen. Die vom CDP detektierte Konzentration steigt auf 14 cm^{-3} . Der in AIDA vorhandene Wasserdampf deponiert nun auf die zahlreichen kleinen Eispartikel, die Streu-, sowie die Depolarisationssignale zeigen deren Wachstum an (Bild d). Die relative Eisfeuchte nimmt bis zum Sättigungszustand ab. Während der neunminütigen Eiseinleitungsphase bis $t = 13330 \text{ s}$ vermindert sich die Eispartikelkonzentration infolge Sedimentation auf 10 cm^{-3} . Das Depolarisationssignal weist ebenfalls auf die Existenz von Eiskristallen hin, da es mit $D = 0,04$ fast doppelt so hoch ist als im Vergleich zu einem Flüssigphasenexperiment. Es ist jedoch niedriger als zu Experimentbeginn, da nun mit $10 \mu\text{m}$ im Mittel kleinere Eiskristalle in der Kammer vorliegen. Zu $t = 13680 \text{ s}$ werden 30 Sekunden lang Wassertröpfchen eingespritzt. Auch sie verdunsten, dies führt zu einem kurzzeitigen Anstieg der relativen Eisfeuchte. Der Wasserdampf sammelt sich jedoch nicht nur an den Wänden, sondern gefriert auf den vorhandenen Eiskristalloberflächen. Aus diesem Grund reduziert sich die relative Eisfeuchte. Dieser Effekt hält solange an, bis der Wasserdampf vollständig in die Eisphase

6.3 EXPERIMENTE MIT EINEM EISKEIMGENERATOR

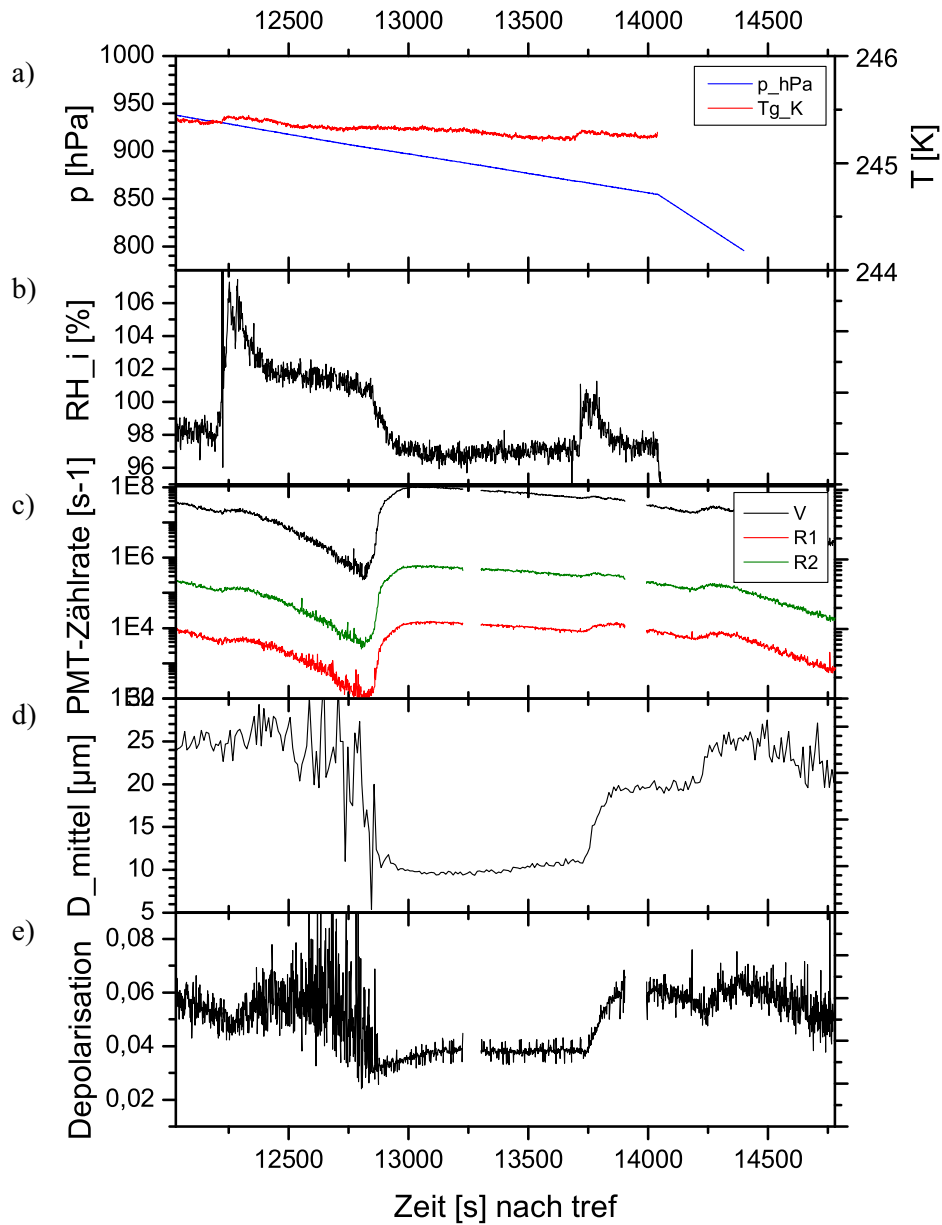


Abbildung 6.8: Zeitlicher Verlauf des Eiskeimgeneratorexperimentes IN06_50. Bild a: Druck und Gastemperatur; Bild b: relative Feuchte bzgl. Eis; Bild c: korrigierte Zählraten der PMTs; Bild d: mittlere Eispartikelgröße; Bild e: Depolarisation. Erläuterungen im Text.

übergegangen ist und ein Gleichgewicht zwischen dem Wasserpartialdruck über der Wand und über den Eispartikeln entsteht. Die Eispartikel haben zu diesem Zeitpunkt einen oberflächenäquivalenten Durchmesser von rund $20\ \mu\text{m}$ erreicht. Eine erneute Wassereinleitung bei $t = 14150\ \text{s}$ über eine Minute hat ein weiteres Anwachsen der Eiskristalle zur Folge. Mit $D_{\text{mittel}} = 25\ \mu\text{m}$ erreichen sie ihr größtes Volumen und sedimentieren entsprechend schnell. Aus Abbildung 6.8 ist zu entnehmen, dass das Depolarisationssignal mit der Eiskristallgröße korreliert. Abbildung 6.9 enthält eine Auswahl der während des Experiments vom CPI detektierten Eiskristalle. In kleineren Größenklassen wurden hauptsächlich sphärische Wassertropfen, aber auch Eiskristalle nachgewiesen. In höheren Größenklas-

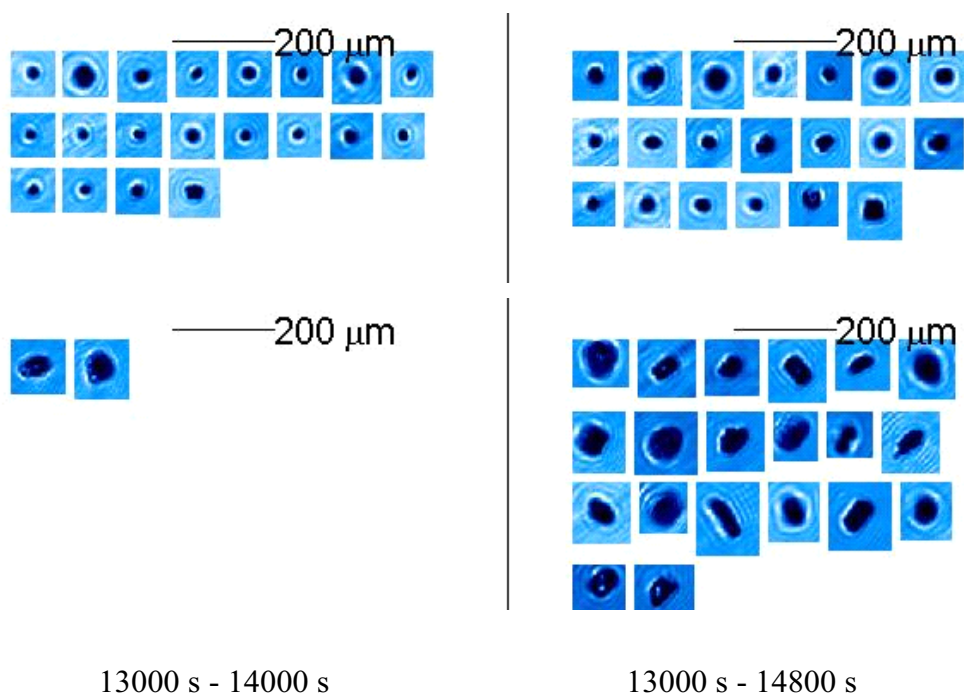


Abbildung 6.9: Auswahl der während des Experiments IN06_50 vom CPI detektierten Eiskristalle.

sen sind Plättchen zu erkennen. Dies deckt sich mit Beobachtungen von Bailey und Hallet [2], die im Temperaturbereich von -20 bis $-30\ ^\circ\text{C}$, allerdings bei höheren Übersättigungen, Plättchen und plättchenartige Polykristalle nachgewiesen haben. Eindeutige Aussagen über die Kristallform zu treffen, ist schwierig, da die Form des Eiskristallbildes stark von der Orientierung der Kristalle im Messvolumen des CPI abhängt. Deshalb werden für zuverlässige Formaussagen hohe Partikelkonzentrationen für entsprechend hohe Bildraten benötigt.

Kapitel 7

Zusammenfassung und Ausblick

In diesem Kapitel werden Anregungen zu technischen Verbesserungen der Streulichtapparatur gegeben, die hauptsächlich Messfehler reduzieren sollen, aber auch die systematische Bestimmung der Streumatrixelemente erlauben.

In der AIDA-Aerosolkammer werden atmosphärische Verhältnisse nachgestellt, z.B. können durch kontrolliertes Pumpen adiabatische Expansionen simuliert werden, die zur Wolkenbildung führen. Die SIMONE-Streulichtapparatur dient vorrangig dem Nachweis des Überganges von der flüssigen in die feste Partikelphase, wie er z.B. durch Eiskernung ausgelöst wird. Dazu wird linear polarisiertes Laserlicht der Wellenlänge $\lambda = 488 \text{ nm}$ in die Aerosolkammer eingekoppelt. Die Detektion des Streulichtes erfolgt in Vorwärtsrichtung unter einem Winkel von $1,8^\circ$ und in Rückwärtsrichtung polarisationsaufgelöst unter $178,2^\circ$. Das Messvolumen wird durch den Überlappbereich von Laser- und Detektionsstrahl bestimmt und umfasst $7,3 \text{ cm}^3$. Anhand mehrerer Experimente wurde der Abgleich der Fotomultiplier vorgenommen. Aus den gemessenen Zählraten der PMTs wird das Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnis sowie die Depolarisation des rückgestreuten Lichtes errechnet. Das Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnis ist ein Maß für die Partikelgröße, der Depolarisationsverlauf gibt Auskunft über die Partikelphase: Flüssige (sphärische) Partikel verursachen im Gegensatz zu festen (nicht-sphärischen) Partikeln keine Depolarisation, sodass ein Sprung im Depolarisationsverlauf auf einen Phasenübergang hinweist. Depolarisationssprünge werden beim Gefrieren von Tröpfchen zu Eis beobachtet (Sprung nach oben), und für Salzaerosole beim Erreichen der Deliqueszenzfeuchte (Sprung nach unten). Im Fall von asphärischen Partikeln korreliert das Depolarisationssignal mit der Partikelgröße, was im Eiskeimgeneratorexperiment nachvollzogen wurde. Die Nachweisgrenze

der Depolarisation beträgt 0,02. Sie ist durch die Genauigkeit, mit der die optischen Elemente justiert werden können, durch die depolarisierende Wirkung der Kammerwand, sowie durch das Signalrauschen begrenzt. Exzessives Rauschen in den drei Fotomultiplikanälen ist vermutlich durch einen Software-Fehler der Messdatenerfassung bedingt, der behoben werden kann.

Die den Streulichtmessungen an der AIDA-Kammer zugrunde gelegte Definition der Depolarisation unterscheidet sich von der überwiegend in der Literatur verwendeten Definition, wie sie z.B. in der LIDAR-Fernerkundung benutzt wird. Im Sinne einer leichteren Vergleichbarkeit mit LIDAR-Messungen sollte in Zukunft die in der LIDAR-Fernerkundung benutzte Definition auch auf Streulichtmessungen in AIDA angewandt werden.

Die Deliqueszenzsprünge bei für -51 °C angegebenen Deliqueszenzfeuchten von Ammoniumsulfat (siehe Graphik 6.6) sind sehr kritisch zu bewerten, denn die Versuche wurden aufeinander folgend, also nicht unabhängig voneinander, ausgeführt. Das Ziel der betreffenden Experimente war außerdem nicht die Bestimmung von Deliqueszenzfeuchten. Zudem sind zwar die Deliqueszenzeinsatzpunkte in relativ engen Zeitgrenzen von ca. 15 Sekunden bestimmbar, der Deliqueszenzübergang vollzieht sich wegen des niedrigen Wasserdampfpartialdruckes in diesem Temperaturbereich allerdings sehr langsam. Es empfiehlt sich deshalb, eine gezielte Experimentreihe zur Bestimmung von Deliqueszenzfeuchten bei tiefen Temperaturen durchzuführen.

Wie in den Kapiteln 5.7, 6.1 und 6.2 dargestellt, nehmen die Hintergrundsignale, v.a. in Vorwärtsrichtung, im Verlauf der Aktivierungsphasen aufgrund des Partikelwachstums zu, weil die Gesichtsfelder der PMTs auch das von den Flanschen der jeweils gegenüberliegenden Austrittsfenster reflektierte Streulicht miterfassen. Diese Reflexionen können durch Schwärzung der Austrittsflansche vermindert werden. Damit die Reflexsignale nicht auftreten, empfiehlt sich zudem die Verwendung einer kleineren Blende in den Fernrohren, z.B. 0,3 mm statt 0,6 mm Durchmesser. Der Durchmesser des kreisförmigen Gesichtsfeldes von PMT-R auf der gegenüberliegenden Kammerwand reduziert sich dann von 35 mm auf 29 mm. Da die lichte Weite der Austrittsfenster 32 mm beträgt, besteht bei ungenauer Justage der Fernrohrachsen dennoch die Gefahr von Rückreflexen. Je kleiner der Blendendurchmesser, umso gründlicher muss auch die Justage erfolgen, um die optischen Achsen der Fernrohre zur Deckung zu bringen.

Es empfiehlt sich, die Brennweiten der vor- und rückwärtigen Objektivlinsen der

Fernrohre zu vereinheitlichen. Um die Detektion von Reflexen, die am gegenüberliegenden Flansch stattfinden, zu verringern, sollte der Divergenzwinkel des jeweiligen Detektionsstrahls so gering wie möglich sein. Dies gelingt durch eine Erhöhung der rückwärtigen Objektivlinsenbrennweite.

Zur Bestimmung der Streumatrixelemente wäre es vorteilhaft, die Polarisations Ebene des eingekoppelten Laserstrahls mit hoher Frequenz drehen zu können (BÜTTNER, 2004 [6]). Dabei handelt es sich um einen Einkristall, der je nach angelegter Spannungsphase doppelbrechend wirkt. Mittlerweile gibt es auch Polarisationsmodulatoren auf Basis von Flüssigkristallen. Diese haben den Vorteil, dass sie kompakter aufgebaut und im Niedervoltbereich abstimmbare sind. Bei einem solchen Aufbau muss das Auslesen der PMTs in Phase mit dem polarisationsmodulierenden Spannungssignal geschehen.

Die leichte Verkippung des Glan-Laser-Prismas relativ zur optischen Achse des Fernrohres führte zu einer fehlerhaften Polarisationsauflösung des Streulichtes, wodurch der depolarisierte Kanal PMT-R1 einen Anteil undepolarisierten Lichtes detektierte und somit das Depolarisationssignal verfälschte. Daher wird empfohlen, das Glan-Laser-Prisma von außen zugänglich zu machen und mit einer Möglichkeit zur Feinjustage zu versehen. Außerdem sollte statt mit paralleler mit senkrechter Laserpolarisation gearbeitet werden: Auf diese Weise wird gewährleistet, dass nur depolarisiertes Streulicht im depolarisierten Kanal detektiert wird. Der Neutralfilter muss bei diesem Aufbau vor PMT-R1 montiert werden. Wie bereits in BÜTTNER, 2004 [6] angeregt, kann mit sphärischen Partikeln in AIDA unter Variation der Anzahlkonzentration das Streusignal im senkrechten Kanal minimiert werden. Dies setzt abgeglichene Fotomultiplier voraus.

Statt kontinuierlich beschichteter Neutralfilter wird die Nutzung mehrerer getrennter Filter mit jeweils definierter Abschwächung vorgeschlagen, die auf einem Filterrad fest montiert sind. Bei den aktuell verwendeten Filtern passiert der Detektionsstrahl einen mehrere Millimeter großen Bereich, in dem sich die Abschwächung räumlich kontinuierlich verändert. Zudem besitzen die aktuellen Neutralfilter Unsicherheiten in der optischen Dicke, da die Metallschicht nicht kontinuierlich aufgedampft ist, siehe Abbildung 4.4. Sinnvoller ist es, einen Filter mit definierter Abschwächung bei Bedarf in den Strahlengang einzubringen. Da ohnehin nur ausgewählte Filterpositionen verwendet werden, genügen fünf bis sechs Filter mit definierter Abschwächung.

Der PMT-Abgleich wurde relativ aufwendig in eigens dafür vorgesehenen Expe-

rimentzeiträumen vollzogen. Es bleibt zu überlegen, wie der Abgleich jederzeit und schnell durchgeführt werden kann.

Anhang

Herleitung von Gleichung (3.10) zur Integration der streuwinkelabhängigen differentiellen Wirkungsquerschnitte über die Fernrohrapertur

Die Strahlungsintensität in einem Raumwinkelintervall Ω kann unter Verwendung der Polarkoordinaten θ und Φ ausgedrückt werden als

$$I(\theta) = I_0 \int_{\Omega} \frac{dC(\theta)}{d\Omega} d\Omega = I_0 \int_{\theta_1}^{\theta_2} \int_{\Phi_1(\theta)}^{\Phi_2(\theta)} \frac{dC(\theta)}{d\Omega} \sin \theta d\theta d\Phi. \quad (\text{A.1})$$

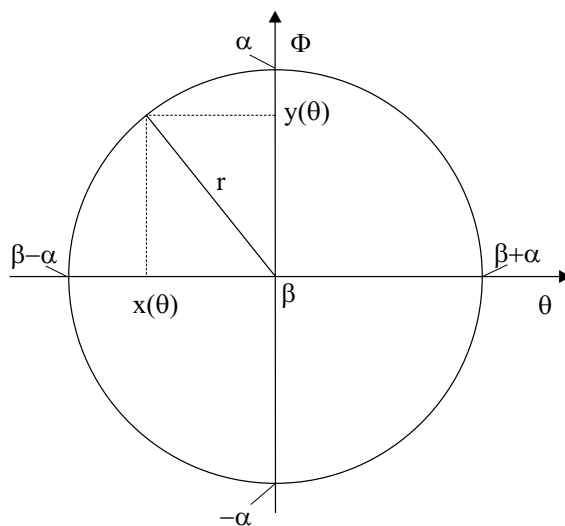


Abbildung A.1: Ansicht des vom Fernrohr detektierten Raumwinkelbereiches Ω .

Gemäß den Abbildungen A.1 und A.2 gilt für den Fernrohraperturradius r und die kartesischen Koordinaten x und y :

$$r = R \tan(\alpha), \quad (\text{A.2})$$

$$x(\theta) = \tan(\theta - \theta_0) R, \quad (\text{A.3})$$

$$y(\theta) = \tan(\Phi) R. \quad (\text{A.4})$$

Wobei weiterhin gilt:

$$y(\theta) = \sqrt{r^2 - x^2(\theta)} = \sqrt{r^2 - \tan^2(\theta - \theta_0) R^2}. \quad (\text{A.5})$$

Mit (A.4) und (A.5) lässt sich Φ ausdrücken durch

$$\Phi = \arctan\left(\frac{1}{R} \sqrt{r^2 - \tan^2(\theta - \theta_0) R^2}\right). \quad (\text{A.6})$$

Somit erhält man aus Gleichung (A.1):

$$I(\theta) = 2 I_0 \int_{\theta_1}^{\theta_2} \frac{dC(\theta)}{d\Omega} \sin \theta d\theta \int_0^{\arctan\left(\frac{1}{R} \sqrt{r^2 - \tan^2(\theta - \theta_0) R^2}\right)} d\Phi. \quad (\text{A.7})$$

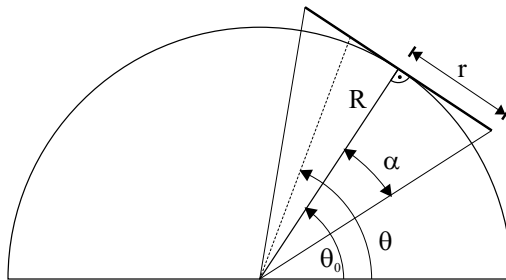


Abbildung A.2: Draufsicht des vom Fernrohr detektierten Streuwinkelbereiches. Die Tangente markiert die Apertur des Fernrohres.

Da in Gleichung (A.7) die Integration über den Azimutwinkel Φ nur über den oberen Halbraum der Fernrohrapertur erfolgt, siehe Abbildung A.1, muss zur Berücksichtigung des unteren Halbraumes ein Faktor Zwei ergänzt werden. Dies

führt zur Integrationsgleichung für die differentiellen Wirkungsquerschnitte über die Fernrohrapertur:

$$I = 2I_0 \int_{\theta_1}^{\theta_2} \frac{dC(\theta)}{d\Omega} \sin \theta \arctan \left(\sqrt{\tan^2(\alpha) - \tan^2(\theta - \theta_0)} \right) d\theta. \quad (\text{A.8})$$

Diese allgemeine Integrationsgleichung wird für die in der vorliegenden Arbeit verfolgten Ziele leicht umgeformt: Der allgemeine Streuwinkel θ wird durch den konkreten Detektionswinkel β ersetzt. Der Term $\sin \theta$ entfällt, da der vom Fernrohr detektierte Raumwinkelbereich für jeden Detektionswinkel β gleich groß ist. Damit wird aus A.8:

$$I = 2I_0 \int_{\beta_0 - \alpha}^{\beta_0 + \alpha} \frac{dC(\beta)}{d\Omega} \arctan \left(\sqrt{\tan^2(\alpha) - \tan^2(\beta - \beta_0)} \right) d\beta. \quad (\text{A.9})$$

Abkürzungen

AIDA	Aerosol Interactions and Dynamics in the Atmosphere
ao-Strahl	außerordentlicher Strahl
AS	Ammoniumsulfat
BPC	Bulk-to-Particle-Conversion
CCD	Charge-Coupled Device
CCN	Cloud Condensation Nuclei
CDP	Cloud Droplet Probe
CNC	Cloud Nuclei Counter
CPI	Cloud Particle Imager
DMA	Differential Mobility Analyzer
DMS	Dimethylsulfid
DSP	Dünnschichtpolarisator
FTIR	Fourier-Transformations-Infrarot-Spektroskopie
GPC	Gas-to-Particle-Conversion
IPCC	Intergovernmental Panel of Climate Change
IN06_xx	Ice Nucleation-Campaign, 06 steht für die sechste Messkampagne dieser Art, xx ist die Experimentnummer
LIDAR	Light Detection and Ranging
LTP-DMA	Low-Temperature-Pressure Differential Mobility Analyzer
LVP	Lambda-Viertel-Plättchen
NAUA	Nach-Unfall-Atmosphäre
o- Strahl	ordentlicher Strahl
PDS	Particle Detection System
PMT	Photomultiplier Tube – Fotomultiplier
PMT-R1	Fotomultiplierkanal R1, Rückwärtsrichtung 1

ABKÜRZUNGEN

PMT-R2	Fotomultipliertkanal R2, Rückwärtsrichtung 2
PMT-V	Fotomultipliertkanal V, Vorwärtsrichtung
SIMONE	Streulichtintensitätsmessungen zum optischen Nachweis von Eiskristallen
SOA	Secondary Organic Aerosol
V/R-Verhältnis	Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnis
WELAS	Weißlicht-Aerosolspektrometer

Formelzeichen und Symbole

a	Parameter der optischen Dicke, halber Ein- bzw. Austrittsfensterabstand
A_p	Apertur des Beobachtungsstrahls
b	Länge für die Messvolumenbestimmung, Parameter der optischen Dicke
C	Länge für die Messvolumenbestimmung, Streuquerschnitt
CH	Fotomultiplizierkanal
CH_{depol}	depolarisierter Fotomultiplizierkanal
$CH_{undepol}$	undepolarisierter Fotomultiplizierkanal
cmd	mittlerer Partikeldurchmesser
$\frac{dC(\theta)}{d\Omega}$	differenzieller Streuquerschnitt
d	Laserstrahlausdehnung bei der Messvolumenbestimmung
D	Depolarisation, Länge des Detektionsstrahles bis zum Schnittpunkt mit dem Laserstrahl
D_{AIDA}	Depolarisation nach AIDA-Definition
D_{Lidar}	Depolarisation für die Lidar-Fernerkundung
$D_{Moleküle}$	Depolarisation an Luftmolekülen
$D_{Partikel}$	Depolarisation an Partikeln
D_{Wand}	Depolarisation an der Kammerwand
$\frac{D_p}{D_{p0}}$	Wachstumsfaktor
\vec{E}	elektrisches Feld
\hat{e}	Einheitsvektor
$f_{Objektiv}$	Objektivbrennweite des Fernrohres

FORMELZEICHEN UND SYMBOLE

f_{Okular}	Okularbrennweite des Fernrohres
f_{R1-R2}	Abgleichfaktor der rückwärtigen Fotomultiplier
f_{R-V}	Abgleichfaktor der rückwärtigen an den vorwärtigen Fotomultiplier
I	Intensität, Stokesparameter (Intensität)
\vec{I}	Stokesvektor
I_{max}	maximale Intensität
I_{min}	minimale Intensität
j	komplexe Zahl
k	Wellenzahl
L	Länge des Laserstrahles bis zum Schnittpunkt mit dem Detektionsstrahl
L_{Iso}	Wegstrecke des Strahls im Isoliergehäuse
L_W^{AIDA}	AIDA-Wanddicke
L_W^{Iso}	Wanddicke des Isoliergehäuses
L_{Rohr}	Rohrlänge vom Flansch bis zum Isoliergehäuse
\vec{M}	Dipolmoment
n	Brechungsindex
n_{ao}	Brechungsindex für den außerordentlichen Strahl
n_o	Brechungsindex für den ordentlichen Strahl
P	Laserleistung, Polarisationsgrad
p	Druck, Phasenfunktion
r	Länge entlang der Ausbreitungsrichtung eines gestreuten Strahles
R_{AIDA}	AIDA-Radius
$R1_{par}$	Fotomultiplierkanal R1, parallele Laserpolarisation
$R1_{senk}$	Fotomultiplierkanal R1, senkrechte Laserpolarisation
$R2_{par}$	Fotomultiplierkanal R2, parallele Laserpolarisation
$R2_{senk}$	Fotomultiplierkanal R2, senkrechte Laserpolarisation
Q	Stokesparameter (horizontale Polarisation)
R_{Blende}	Radius der Blende im Fernrohr
RH	relative Feuchte

RH_i	relative Feuchte bzgl. Eis
RH_W	relative Feuchte bzgl. Wasser
S_n	Amplitudenstreumatrixelemente
S_{nm}	Streumatrixelemente
t	Zeit
T	Temperatur, Transmission des Neutralfilters
T_G	Gastemperatur
T_{R2}	Transmission des Neutralfilters in Rückwärtsrichtung
T_V	Transmission des Neutralfilters in Vorwärtsrichtung
T_W	Wandtemperatur
U	Stokesparameter (45 °-Polarisation)
V	Stokesparameter (zirkulare Polarisation), Volumen
$\frac{V}{R}$	Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnis
$\frac{V}{R_{mess}}$	mit SIMONE gemessenes Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnis
$\frac{V}{R_{mod}}$	modelliertes Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnis
x	Position der Neutralfilter
z	Länge entlang der Ausbreitungsrichtung des Einfallstrahles
α	Divergenzwinkel der Fernrohrobjektivlinse, entspricht dem halben Integrationswinkel
α_R	Divergenzwinkel der rückwärtigen Fernrohrobjektivlinse, entspricht dem halben Integrationswinkel
α_V	Divergenzwinkel der vorwärtigen Fernrohrobjektivlinse, entspricht dem halben Integrationswinkel
β	Detektionswinkel
$\delta_{DSP}^{maxSkala}$	Skalenwinkel der maximalen Transmission am Dünnschichtpolarisator
$\delta_{DSP}^{minSkala}$	Skalenwinkel der minimalen Transmission am Dünnschichtpolarisator
δ_{LVP}^{Skala}	Skalenwinkel am Lambda-Viertel-Plättchen
λ	Wellenlänge
θ	Streuwinkel
σ	Verteilungsbreite einer Größenverteilung

FORMELZEICHEN UND SYMBOLE

τ	optische Dicke der Neutralfilter
ϕ	Drehwinkel eines optischen Elements bzgl. einer Basisebene im Laborsystem
φ	Phasenverschiebung am Lambda-Viertel-Plättchen
χ	Drehwinkel zw. Kristallhauptschnitt und Laserpolarisation am Lambda-Viertel-Plättchen
Ω	Raumwinkel
Index \parallel	parallel
Index \perp	senkrecht
Index i	einfallendes Licht
Index s	ausfallendes Licht

Abbildungs- und Tabellenverzeichnis

- 1.1 Schematischer Aufbau der ursprünglichen Streulichtapparatur

- 2.1 Wachstumsfaktor $\frac{D_p}{D_{p0}}$ von Ammoniumsulfat als Funktion der relativen Feuchte
- 2.2 Kristallformen
- 2.3 Strahlungseinflüsse nach dem IPCC-Report 2001
- 2.4 Schematischer Aufbau der AIDA-Aerosolkammer mit Instrumentierung
- 2.5 Schematischer Aufbau des WELAS
- 2.6 Aufbau und Funktion des Cloud Particle Imagers
- 2.7 Aufbau und Funktion des Cloud Droplet Probe

- 3.1 Abhängigkeit des Vorwärts-Rückwärts-Streuverhältnisses vom Partikeldurchmesser
- 3.2 Bzgl. S_{11} normierte Matrixelemente $-S_{21}$ und S_{22} in Abhängigkeit des Streuwinkels

- 4.1 Rückwärtiger Aufbau der Streulichtapparatur SIMONE
- 4.2 Vorwärtiger Aufbau der Streulichtapparatur SIMONE
- 4.3 Divergenzwinkel der Objektivlinse an der Fernrohroptik
- 4.4 Verlauf der optischen Dicke am Neutralfilter entlang dessen Längsachse

- 5.1 Vergleich zwischen idealer und mit der Polarisationsoptik erzeugter realer zirkularer Polarisation

- 5.2 Transmissionsverlauf am Neutralfilter der Rückwärtsrichtung in Abhängigkeit seiner Position auf der Führungsschiene
- 5.3 Langzeitstabilität der Dunkelzählraten
- 5.4 Fotomultiplierabgleich in Rückwärtsrichtung
- 5.6 Strahleinkopplungsgeometrie an AIDA
- 5.7 Streugeometrie
- 5.8 Langzeitstabilität der Hintergrundmessungen

- 6.1 Zeitlicher Verlauf des Tröpfchenexperimentes IN06_07
- 6.2 Entwicklung des V/R-Verhältnisses im Experimentverlauf
- 6.3 Zeitlicher Verlauf des Deliqueszenzexperimentes IN06_12
- 6.4 Deliqueszenzsprung des Experimentes IN06_12 im Kanal PMT-R1 und im Depolarisationssignal
- 6.5 Experimentell ermittelter Deliqueszenzpunkt des Experimentes IN06_12 im Vergleich zu der mit dem AIM-Modell (Referenz) modellierten Temperaturabhängigkeit der Deliqueszenzfeuchte von AS
- 6.6 Einsatzpunkte des Deliqueszenzsprunges für Ammoniumsulfatpartikel in Abhängigkeit der Wassersättigung und der Temperatur
- 6.7 Prinzipskizze des Eiskeimgenerators
- 6.8 Zeitlicher Verlauf des Eiskeimgeneratorexperimentes IN06_50

- Tab. 3.1 Polarisationszustand und zugehöriger Stokesvektor
- Tab. 3.2 Streulichtintensitäten in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung, ausgedrückt durch Streumatrixelemente

Literaturverzeichnis

- [1] *Droplet Measurement Technologies - Cloud Droplet Probe.*
<http://www.dropletmeasurements.com>.
- [2] BAILEY, M. / HALLETT, J.: *Growth rates and habits of ics crystals between -20° and -70° C.* Journal of the Atmospheric Sciences 61 (2003), S. 514–544.
- [3] BENZ, S. / MEGAHED, K. / MÖHLER, O. / SAATHOFF, H. / WAGNER, W. / SCHURATH, U.: *T-dependent rate measurements of homogeneous ice nucleation in cloud droplets using a large simulation chamber.* Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry 176 (2005), S. 208–217.
- [4] BOHREN, C. / SINGHAM, S. B.: *Backscattering by nonspherical particles: A review of methods and suggested new approaches.* Journal of Geophysical Research 96 (1991), S. 5269–5277.
- [5] BOHREN, C. F. UND HUFFMAN, D. R.: *Absorption and scattering of light by small particles.* Wiley science paperback series Wiley-Verlag, New York Chinchester Weinheim Brisbane Singapore Toronto, 1998.
- [6] BÜTTNER, S.: *Streulichtexperimente an asphärischen Aerosolpartikeln: Depolarisation und Vorwärtsstreuverhältnis von Mineralstaub und Eiskristallen.* Dissertation, Universität Fridericiana zu Karlsruhe, 2004.
- [7] CLEGG, S. L. / BRIMBLECOMBE, P. / WEXLER, A. S.: *A thermodynamic model of the system H-NH₄-SO₄-NO₃-H₂O at tropospheric temperatures.* Journal of Physical Chemistry 102A (1998), S. 2137–2154.
- [8] CZICZO, D. J. / ABBATT, J. P. D.: *Deliquescence, efflorescence, and supercooling of ammonium sulfate aerosols at low temperature: Implication for cirrus cloud formation and aerosol phase in the atmosphere.* Journal of Geophysical Research 104 (D11) (1999), S. 13781–13790.

- [9] FEICHTER, J. / LOHMANN, U.: *Aerosole und Klima*. Promet 3 (2004), S. 122–133.
- [10] FLYNN, M.: *Cloud Particle Imager - Technical Information*.
<http://cloudbase.phy.umist.ac.uk/field/instruments/cpi.htm>.
- [11] GOBBI, G. P.: *Polarization lidar returns from aerosols and thin clouds: a framework for the analysis*. Applied Optics 37 (1998), S. 5505–5508.
- [12] INC., SPEC: *CPI Operating Principals*.
http://www.specinc.com/cpi_operation.htm.
- [13] KASANG, D.: *Strahlungsantrieb 2000 (relativ zu 1750)*.
<http://www.hamburger-bildungserver.de/welcome.phtml?unten=/klima/ipcc2001>.
- [14] LAVEN, P.: *Mie scattering: Water in a vacuum*.
<http://www.philiplaven.com/mieplot.htm>.
- [15] LIOU, K. N.: *Influence of cirrus clouds on weather and climate processes: A global perspective*. Monthly Weather Review 114 (1986), S. 1167–1199.
- [16] LIU, C. / JONAS, P. R. / SAUNDERS, C. P. R.: *Pyramidal ice crystal scattering phase functions and concentric halos*. Annales Geophysicae-Atmospheres Hydrospheres and Space Sciences 14 (11) (1996), S. 1192–1197.
- [17] MÖHLER, O. / STETZER, O. / SCHÄFERS, S. / LINKE, C. / SCHNAITER, M. / TIEDE, R. / SAATHOFF, H. / KRÄMER, M. / MANGOLD, A. / BUDZ, P. / ZINK, P. / SCHREINER, J. / MAUERSBERGER, K. / HAAG, W. / KÄRCHER, B. / SCHURATH, U.: *Experimental investigation of homogeneous freezing of sulphuric acid particles in the aerosol chamber AIDA*. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions 3 (2003), S. 211–223.
- [18] MIE, G.: *Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metalllösungen*. Annalen der Physik 25 (1908), S. 377–445.
- [19] MISHCHENKO, M. I. / SASSEN, K.: *Depolarisation of lidar returns by small ice crystals: An application to contrails*. Geophysical Research Letters 25 (1998), S. 309–312.

-
- [20] MISHCHENKO, M. I. / TRAVIS, L. D.: *Light scattering by polydispersions of randomly oriented spheroids with size comparable to wavelengths of observation*. Applied Optics 33 (1994), S. 7206–7225.
- [21] MISHCHENKO, M. I. / TRAVIS, L. D. / MACKOWSKI, D. W.: *T-matrix computations of light scattering by nonspherical particles: A review*. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 55 (1996), S. 535–575.
- [22] OKAMOTO, H. / MACKE, A. / QUANTE, M. / RASCHKE, E.: *Modeling of backscattering by nonspherical ice particles for the interpretation of cloud radar signals at 94 GHz: an error analysis*. Beiträge zur Physik der Atmosphäre 68 (1995), S. 319–334.
- [23] PAL, S. R. / CARSWELL, A. I.: *The polarization characteristics of lidar scattering from snow and ice crystals in the atmosphere*. Journal of Applied Meteorology 16 (1977), S. 70–80.
- [24] PRUPPACHER, H. R. / KLETT, J. D.: *Microphysics of clouds and precipitation*. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, The Netherlands, 1997.
- [25] SCHRÖDER, F. / KÄRCHER, B. / DUROURE, C. / STRÖM, J. / PETZOLD, A. / GAYET, J.-F. / STRAUSS, B. / WENDLING, P. / BORRMANN, S.: *On the transition of contrails into cirrus clouds*. Journal of the Atmospheric Sciences 57 (2000), S. 464–480.
- [26] SEINFELD, J. H. / PANDIS, S. N.: *Atmospheric chemistry and physics - From air pollution to climate change*. Wiley-Verlag, New York Chinchester Weinheim Brisbane Singapore Toronto, 1998.
- [27] TABAZADEH, A. / DJIKAEV, Y. S. / REISS, H.: *Surface crystallization of supercooled water in clouds*. Proceedings of the National Academy of Sciences 99 (2002), S. 15873–15878.
- [28] TAVKER, S. / KUMAR, P. P.: *Laser depolarization studies of simulated crystallized H₂O/H₂SO₄-clouds*. Atmospheric Research 53 (1999), S. 219–230.
- [29] TWOMEY, S.: *The influence of pollution on the shortwave albedo of clouds*. Journal of the Atmospheric Sciences 34 (1977), S. 1149–1152.

- [30] WAGNER, R. / BUNZ, H. / LINKE, C. / MÖHLER, O. / NAUMANN, K.-H. / SAATHOFF, H. / SCHNAITER, M. / SCHURATH, U.: *Chamber simulations of cloud chemistry: The AIDA Chamber*. Proceedings of the NATO Advances Research Workshop on Environmental Simulation Chambers: Application to Atmospheric Chemical Processes; Zakopane, Poland; 1. bis 4. 10. 2004 (2006).
- [31] WARNECK, P.: *Chemistry of the Natural Atmosphere*. Band 71, in der Reihe: International Geophysics Series Academic Press, San Diego San Francisco New York Boston London Sidney Tokyo, 2. Auflage, 2000.
- [32] WEBER, A. / PORTO, S. P. S. / CHEESMAN, L.E. / BARRETT, J. J.,: *High-resolution Raman spectroscopy of gases with cw-laser excitation*. Journal of the Optical Society of America 57 (1967), S. 19–28.
- [33] WEXLER, A. S.: *European Aerosol Inorganics Model*. <http://mae.ucdavis.edu/wexler/aim>.
- [34] WHITBY, K. T.: *The physical characteristics of sulfur aerosols*. Atmospheric Environment 12 (1978), S. 135–159.
- [35] WIEDENSOHLER, A. / STRATMANN, F.: *Environmental particles*. In: GEHR, P., HEYDER J., (HRSG.), *Particle-Lung interactions*. Marcel Dekker, New York, 2000.
- [36] ZAKHAROVA, N. T. / MISHCHENKO, M. I.: *Scattering properties of needle-like and platelike ice spheroids with moderate size parameters*. Applied Optics 39 (27) (2000), S. 5052–5057.

Danke!

Nun ist es Zeit, all jenen zu danken, die zum Gelingen der Arbeit direkt oder indirekt beigetragen haben, auch denen, die ich vergesse zu erwähnen. Die Atmosphäre am Institut war im wahrsten Sinne des Wortes sehr angenehm.

Mein erster Dank gilt Herrn Prof. Schurath für die Bereitstellung des Themas, der Übernahme des Korreferates und der konstruktiven Kritik.

Bei Prof. Heintzenberg bedanke ich mich für die Bereitschaft, die Arbeit zu begutachten.

Ein ganz besonderer Dank gilt Martin Schnaiter. Ich hätte kaum einen engagierteren Betreuer für meine Arbeit haben können. Heieiei. Er hatte immer ein offenes Ohr und stand mir stets mit Rat und Tat konstruktiv zur Seite.

Ottmar Möhler öffnete mir die Tür zum Institut. Außerdem danke ich ihm für die Bereitstellung der Temperatur- und Feuchtedaten und für den Weihnachtsmann.

Für die WELAS-Daten danke ich Stefan Benz, dem nach eigener Aussage jeder meiner Wünsche Befehl ist.

Paul Connolly sei für die CPI-Daten gedankt.

Der norddeutschen Frohnatur Harald Saathoff danke ich herzlich für die Seelsorge in den letzten Tagen vor Abgabe der Diplomarbeit, sowie für das ausgiebige Badmintontraining. Dasselbe gilt für Helmut Bunz und Robert Wagner.

Roland Schön stand mir jederzeit im Kampf gegen die Tücken der Technik zur Seite. Vielen Dank auch dafür.

Frauen sind anders, Männer auch. Dem Philosophen über den kleinen Unterschied, Steffen Vogt, danke ich nicht nur für die technische Unterstützung, ich wünsche ihm auch allseits gute Nerven für das tägliche Überleben inmitten holder Weiblichkeit.

DANKE!

Die gute Laune auf dem Gang und eine volle Keksdose erleichterten die Arbeit ungemein. Dafür geht ein Dankeschön an unsere Betty.

Rainer Buschbacher, Tomasz Chudy und Georg „Schorsch“ Scheurig standen mir stets in technischen Belangen zur Seite, was einen besonderen Dank verdient.

Nicht zuletzt danke ich meinen Eltern für die jahrelange Unterstützung.

Jochen Wüst verleihe ich das Seelsorger-Diplom. Er bewies herausragende Fähigkeiten auf dem Gebiet des allabendlichen Zuhörens und der moralischen Unterstützung. Vielen Dank für das Korrekturlesen.

Erklärung

Ich versichere, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig und unter ausschließlicher Verwendung der angegebenen Literatur angefertigt habe.

Ich erkläre mich einverstanden, dass meine Diplomarbeit nach positiver Begutachtung zur Benutzung in der Zweigstelle Geowissenschaften der Universitätsbibliothek Leipzig zur Verfügung steht.

Karlsruhe, den 27. Januar 2006

Marlen Vragel

