

Schlussbericht

für das Teilprojekt (Titel und FKZ):

CLOUD-12 – Untersuchung von Aerosolnukleation, Aerosolwachstum und Wolkenaktivierung an der CLOUD-Kammer am CERN zur Erforschung des Einflusses von galaktischer kosmischer Strahlung auf das Klima – Teilvorhaben 2, 01LK1222B, PT-DLR

Zuwendungsempfänger:

Dr. Frank Stratmann
Leibniz-Institut für Troposphärenforschung e.V.
Permoserstr. 15
04157 Leipzig

Projektlaufzeit:

01.10.2012 bis 31.12.2015 (kostenneutral verlängert bis 30.06.16)

I. Kurze Darstellung zu

1. Aufgabenstellung,

Das CLOUD-Projekt am CERN zielt auf die quantitative Untersuchung der potenziellen Einflüsse galaktischer kosmischer Strahlung (GCR) auf das Erdklima ab. Das CLOUD-Konsortium untersucht mögliche Einflüsse auf atmosphärische Ionen, Aerosolpartikel, Wolkenkondensationskerne (CCN), eiskleinernde Partikel (INP) im Speziellen, und Wolken im Allgemeinen. Dies geschieht, um die möglichen indirekten solaren Einflüsse auf das Erdklima bewerten und quantifizieren zu können. Weiterhin werden die Einflüsse verschiedener Spurengase natürlichen oder anthropogenen Ursprungs auf Aerosolpartikelbildungs- und Aerosolpartikelwachstumsprozesse untersucht. Diese Studien werden helfen, die in der gegenwärtigen Klimamodellierung bzgl. anthropogener Einflüsse bestehenden Unsicherheiten zu reduzieren.

In diesem allgemeinen Rahmen, bestanden die konkreten Aufgabenstellungen des TROPOS für das hier behandelte Projekt laut Antrag (Originalsprache) in:

- Conduct activation studies for cloud condensation nuclei and ice nuclei during expansion experiments, when the pressure in the chamber is rapidly changed and a well-controlled supersaturation is established.
- Operate a CCN-counter and an IN-counter and study activation, growth, droplet and ice formation when adiabatic expansion experiments are conducted at CLOUD.
- Describe the cloud formation, growth and freezing processes with the help of accompanying computational fluid dynamics calculations by the CLOUD-Fine Particle Model.

Es soll an dieser Stelle erwähnt werden, dass im Zuge der Durchführung des Projektes, aus wissenschaftlichen Gründen, die experimentellen Aufgabenstellungen derart erweitert wurden, dass nicht nur Untersuchungen während, sondern auch vor und/oder nach Expansionsexperimenten durchgeführt wurden.

2. Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde,

Im Rahmen der BMBF-geförderten CLOUD-09- und CLOUD-12-Projekte war TROPOS zusammen mit weiteren Projektpartnern maßgeblich an der Realisierung der thermischen Ummantelung und des Befeuchtungssystems (Design und Aufbau) für die CLOUD-Kammer beteiligt. TROPOS war und ist weiterhin im Rahmen des CLOUD-16-Projektes zuständig für Teilbereiche der physikalischen Charakterisierung (speziell Aktivierungs- und Eisnukleationsverhalten) der in der CLOUD-Kammer erzeugten Aerosolpartikel, und für die Modellierung der in der CLOUD-Kammer ablaufenden fluid- und aerosoldynamischen Prozesse. Letzteres dient der Unterstützung der Auslegung von Experimenten und der Interpretation der gewonnenen Daten.

Dr. Frank Stratmann, leitet eine auf dem Gebiet der Aerosol-Wolken-Wechselwirkungen sehr aktive und weltweit anerkannte Arbeitsgruppe. Die Gruppe ist mit einer Vielzahl von modernen Geräten zur Untersuchung derartiger Prozesse ausgerüstet und zeichnet sich durch langjährige Erfahrungen von Aerosol-Wolken-Wechselwirkungsprozesse in Labor und Feld aus.

3. Planung und Ablauf des Vorhabens

Der geplante Ablauf des Vorhabens ist in der nachstehenden Tabelle 3.1 dargestellt. Er umfasst im Wesentlichen die Beschaffung und das Testen eines Zählers zur Bestimmung der Konzentrationen eisnukleierender Partikel (INP-Zähler), die Durchführung von Messungen an der CLOUD-Kammer zur Charakterisierung des Aktivierungs- (Wolkenkondensationkernzähler, CCN-Zähler) und Eisnukleationsverhaltens (INP-Zähler) in der Kammer gebildeten Aerosolpartikel, und die Begleitung dieser Aktivitäten durch numerische Simulationen.

Tabelle I.1: Auszug (Originalsprache) aus Gantt Chart im Antrag

	Year 1			Year 2			Year 3			
Description										
Start of project										
Purchase and test of IN counter										
IN measurements and data evaluation										
CCN measurements and data evaluation										
Numerical modelling										
End of Project										

Es muss an dieser Stelle angemerkt werden, dass sich aufgrund von technischen Problemen mit dem beschafften INP-Zähler, die Testphase dieses Gerätes als deutlich länger, und die damit verbundenen Aktivitäten als deutlich umfangreicher, als ursprünglich geplant erwiesen haben. Die Charakterisierung und Optimierung des Gerätes konnten im Rahmen des Projektes weit vorangetrieben, leider aber im Zuge des Projektes nicht vollständig abgeschlossen werden.

Trotzdem konnte der Meilenstein des Projektes (Tabelle I.2) erreicht werden.

Tabelle 1.2.: Auszug (Originalsprache) aus Meilensteinauflistung im Antrag

M3: Two CLOUD experimental phases on CCN and IN activation completed	Month 37
--	----------

4. Wissenschaftlicher und technischem Stand, an den angeknüpft wurde

Wolken beeinflussen sowohl das Wetter als auch das Klima der Erde. Wolken stellen die Hauptquelle von Niederschlag dar und beeinflussen die Strahlungsbilanz der Erde indem sie a) Sonnenlicht in den Weltraum zurück reflektieren und b) in dem sie terrestrische Strahlung wie eine atmosphärische Decke zurückhalten. Welcher Effekt überwiegt, hängt von der Höhe der Wolken, ihrer Temperatur, ihrer Dicke und ihrem Phasenzustand (flüssig, fest) ab (Lohmann and Feichter 2005). Hydrometeore in Wolken, egal ob Tropfen oder Eiskristalle, haben sich aus atmosphärischen Aerosolpartikeln gebildet. Daher ist es von speziellem Interesse, a) wie genau Aerosolpartikel die Wolkenbildung und die Wolkenvereisung beeinflussen, und b) wie diese Prozesse die Bildung von Niederschlag (speziell in Mischphasenwolken) und die Strahlungseigenschaften von Wolken beeinflussen. Große Simulationskammern wie die AIDA (Moehler et al. 2003) oder der Leipzig Aerosol Cloud Interaction Simulator LACIS (Stratmann et al. 2004; Hartmann et al. 2011) haben maßgeblich dazu beigetragen, unser Wissen und Verständnis hinsichtlich der Aktivierung und des Gefrierens von Wolkentropfen zu verbessern. Ungeachtet dieser Erfolge, sind diese Prozesse und ihre Wirkungen auf die mikrophysikalischen und dynamischen Eigenschaften von Wolken weder vollständig verstanden noch in ausreichendem Maße vorhersagbar. Daher ist die Beschreibung des Verhalten und der Effekte von Wolken in Wetter- und Klimamodellen unvollständig, und es besteht nach wie vor ein großer Bedarf, unser Verständnis hinsichtlich wolkenmikrophysikalischer Prozesse wie der Wolkentropfenaktivierung und des Gefrierens von Wolkentropfen zu verbessern.

5. Zusammenarbeit mit anderen Stellen.

Das CLOUD-Projekt stellt eine gemeinsame internationale Forschungsanstrengung verschiedener Forschungsinstitute dar, welche sich gemeinsam im CLOUD-Konsortium organisiert haben. Die beiden in das CLOUD-12 involvierten deutschen Forschungsinstitute, d.h. das Institut für Atmosphäre und Umwelt an der Johann Wolfgang-Goethe-Universität, Frankfurt/Main, und das Leibniz Institut für Troposphärenforschung (TROPOS), Leipzig, sind wichtige Partner im CLOUD-Konsortium. Das CLOUD-Konsortium ist ein starkes multidisziplinäres Team aus Atmosphären-, Kosmische Strahlungs- und Partikel-Physikern und -Ingenieuren aus 18 europäischen und 2 amerikanischen Institutionen. Das Team umfasst auf internationalem Niveau führende Experten auf den Gebieten der atmosphärischen Ionen, Spurengase, Aerosole und Wolken, sowie der Partikelphysik und globalen Modellierung. Das CERN selbst hat umfangreiche Erfahrungen auf den Gebieten der Koordination und des Managements von großen wissenschaftlichen Teams, des Designs, des Aufbaus und des Betriebs komplexer Detektoren wie z.B. der CLOUD-Kammer selbst.

Nach Jahren der Planung und Vorbereitung führt das CLOUD-Konsortium nun regelmäßig wissenschaftliche Experimente an der CLOUD-Kammer durch. Die ohnehin schon enge Zusammenarbeit innerhalb des Konsortiums wird durch das EU-finanzierte Marie-Curie „Initial Training Network CLOUD-ITN“ (<http://www.cloud-itn.uni-frankfurt.de/>), welches Mittel zur Finanzierung von 8 Doktoranden und 2 PostDocs bereitstellt, noch weiter verstärkt.

Neben der im Konsortium für die Planung und Durchführung von Versuchen an der CLOUD-Kammer vorhandenen experimentellen Expertise, verfügen einige Partner auch über umfangreiche Modellierungserfahrungen und -fähigkeiten. Diese umfassen verschiedenste Skalen von der detaillierten Modellierung des Nukleationsprozesses selbst, über die Beschreibung der in der CLOUD-Kammer auftretenden fluid- und partikel-/wolkendynamischen Prozesse, bis hin zur Berücksichtigung unterschiedlicher Nukleationsmechanismen in globalen Aerosol- und Klimamodellen.

Kooperationen mit weiteren Gruppen, welche CLOUD-Ergebnisse für globale und/oder regionale Klimastudien nutzen, existieren und wurden/werden weiter ausgebaut. Als Beispiele sind hier die Gruppen von Prof. Ulrike Lohmann, ETH Zürich, Schweiz, und von Jan Kazil, NOAA, Boulder, USA, zu nennen.

II. Eingehende Darstellung

1. Verwendung der Zuwendung und erzielte Ergebnisse

Analog zum Antragsdokument ist diese Darstellung der Verwendung der Zuwendung und der erzielten Ergebnisse in drei Themenkomplexe, d.h. Eisnukleation, Wolkentropfenaktivierung, und Modellierung gegliedert. Im Folgenden werden nun, die zu diesen drei Themenkomplexen durchgeführten Arbeiten und die dabei gewonnenen Ergebnisse und Erkenntnisse, ausführlich dargelegt. Zum Zeitpunkt der Antragstellung nicht vorhersehbare und/oder zusätzliche im Rahmen des Projektes durchgeführte Arbeiten werden explizit erwähnt und wenn nötig begründet und/oder bewertet.

Aktivitäten zum Themenkomplex der Eisnukleation

Charakterisierung und Optimierung des Eisnukleuszählers SPIN

Diese Arbeiten erwiesen sich als deutlich umfangreicher und zeitintensiver als zum Zeitpunkt der Antragstellung abzusehen war, weshalb ihnen im Rahmen dieses Berichtes etwas mehr Raum gegeben wird.

Eine erste Version (Seriennummer 4) des Eisnukleuszählers (SPIN, "Spectrometer for Ice Nuclei", Droplet Measurement Technologies, DMT, USA) (Abb. 1, rechts) wurde im Februar 2013 an das TROPOS ausgeliefert. In diesem Zusammenhang gründeten wir eine SPIN-Nutzergruppe zum Austausch von Wissen und Erfahrungen. In den folgenden 2 Jahren, wurde das Instrument in enger Zusammenarbeit mit den anderen Nutzern und dem Hersteller charakterisiert und weiterentwickelt. Das Arbeitsprinzip des Instruments (Abb. 1, links) basiert darauf, dass in einer Kammer mit zwei eisbeschichteten parallelen Wänden unterschiedlicher Temperatur („warm/cold“) eine Übersättigung bzgl. Eis erzeugt wird. Die Temperaturen der beiden Wände können variiert werden und Eisübersättigung wird über einen Temperaturgradienten zwischen den beiden Wänden erreicht. Die Minimumtemperatur der beiden Platten ist -70°C für die "kalte" und -40°C für die "warme" Platte. Die zu untersuchenden Aerosolpartikel („aerosol sample“) strömen umgeben von einem Schleierluftstrom („sheath air“) zwischen den beiden Platten hindurch. Eisnukleierende Partikel können unter diesen Bedingungen Eisnukleation induzieren, und die dabei gebildeten Eiskristalle wachsen aufgrund der vorherrschenden Eisübersättigung.

Auf diese Sektion, in der im Aerosol vorhandenen eisnukleierende Partikel zu Eispartikel aktiviert werden, folgt die Verdampfungssektion („evaporation section“), in der evt. vorhandenen ungefrorene Tropfen verdampft werden. Die aus der Verdampfungssektion ausströmenden Partikel (unaktivierte Aerosol- und aktivierte Eispartikel) werden am Ausgang der Verdampfungssektion unter Verwendung eines optischen Partikelzählers (OPC) detektiert. Zwischen eisnukleierenden und nicht-eisnukleierenden Partikeln wird anhand der Größe unterschieden. Über Vergleich der Konzentration der Eiskristalle und der Konzentration aller Aerosolpartikel kann die aktivierte eisaktive Fraktion für die eingestellten Bedingungen (Temperatur und Feuchte) bestimmt werden.

Das Arbeitsprinzip des Gerätes mag einfach erscheinen, die volle Funktionsfähigkeit des Instrumentes hängt allerdings von vielen Faktoren ab. Zu nennen sind in diesem Zusammenhang die Homogenität und Regelgüte der Wandtemperaturen, die Regelung der Volumenströme, die Leistungsfähigkeit und Reproduzierbarkeit des OPC, und das Verfahren zur Vereisung der Wände.

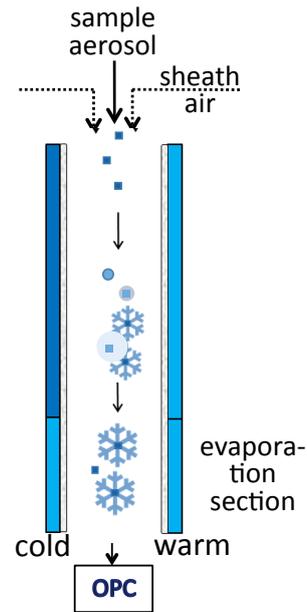


Abb.1: links: Prinzipskizze des Eisnukleuszählers; rechts: Foto des Eisnukleuszählers SPIN.

Mitte 2013 stand nach intensiven Charakterisierungsanstrengungen fest, dass SPIN nicht die für einen wissenschaftlichen Einsatz des Gerätes notwendigen Anforderungen erfüllte. Einerseits identifizierten wir signifikante Probleme bzgl. des OPCs. In Anwesenheit großer (Durchmesser $> \sim 5 \mu\text{m}$) Eispartikel führte zu Fehlzählungen im Bereich submikroner Partikel. In Abb. 2, links, sind Beispiele für vor der Modifizierung durch DMT für Melaminharzpartikel mit Durchmessern von $3.5 \mu\text{m}$ and $8.1 \mu\text{m}$ gemessene Größenspektren gezeigt. Das unimodale Spektrum der $3.5 \mu\text{m}$ Partikel entspricht den Erwartungen. Das Spektrum der $8.1 \mu\text{m}$ Partikel hingegen ist bimodal mit einer "Geistermode" im Bereich submikroner Partikel.

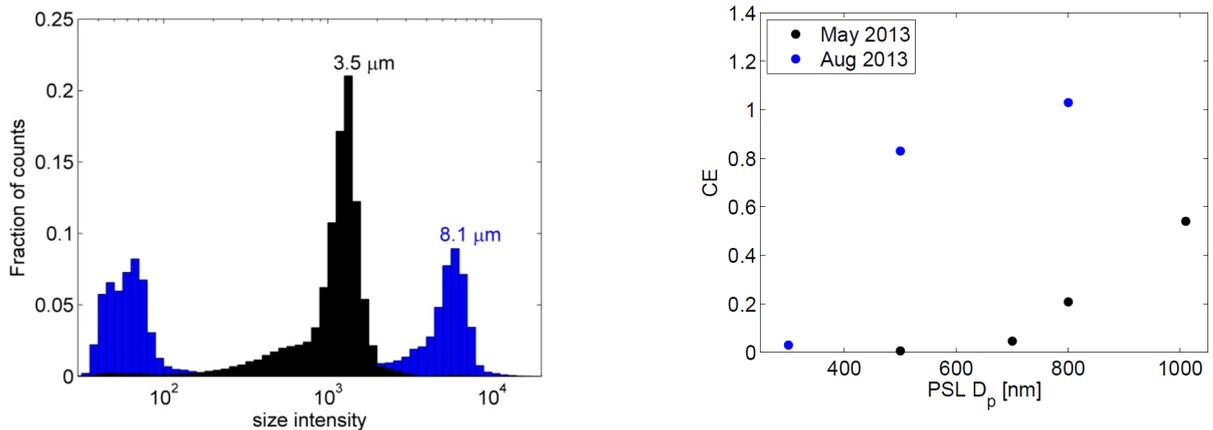


Abb. 2: links: Mit dem SPIN-OPC vor der Modifizierung durch DMT gemessene Rohgrößenverteilungen für monodisperse kugelförmige $3.5 \mu\text{m}$ (schwarz) und $8.1 \mu\text{m}$ (blau) Melaminharzpartikel. Für $8.1 \mu\text{m}$ erschienen Geisterimpulse im Bereich kleiner Durchmesser/Intensitäten; rechts: SPIN4-OPC-Zähleffizienz (CE) im Bereich kleiner Durchmesser vor (Schwarz) und nach (blau) der Modifizierung durch DMT.

Aufgrund dieser Beobachtungen testeten wir die OPCs dreier anderer Eiszähler der Firma DMT (SPIN 1+2+3) während eines Workshops in Leipzig im Januar 2014. Die Tests ergaben, dass dieses Verhalten bei allen Zählern auftrat, der Effekt bei SPIN 4 aber am stärksten ausgeprägt war.

Nach dreimaliger Überarbeitung des OPCs durch DMT (Juli + September 2013 und Februar 2014) wurde schließlich im März 2014 eine Lösung für das Problem der „Geistermode“ gefunden. Diese bestand in der Erhöhung des unteren Detektionslimits des Zählers.

Der SPIN-OPC wurde ebenfalls hinsichtlich seiner Zähleffizienz als Funktion der Partikelgröße und möglicher Sättigungseffekte bei hohen Anzahlkonzentrationen charakterisiert. Für diese Untersuchungen wurde ein Kondensationspartikelzähler (TSI, CPC-3010) parallel zum OPC am Auslass von SPIN angebracht. Zwei Beispiele (vor und nach der ersten Änderung am SPIN OPC) für die effektive Zähleffizienz (CE) als Funktion des Partikeldurchmessers sind für polydisperse Latex-Partikel in Abb. 1 dargestellt. Nach erfolgter Änderung werden nahezu alle Partikel mit Durchmessern oberhalb von $\sim 0.5 \mu\text{m}$ detektiert, wohingegen die Zähleffizienz für Partikel kleiner $0.3 \mu\text{m}$ nahezu Null ist. Vor der Modifikation, detektierte der OPC nur eine geringe Menge submikroner Partikeln mit Durchmessern größer $\sim 0.7 \mu\text{m}$. Mögliche Sättigungseffekte bei hohen Partikelanzahlkonzentrationen wurden mit Latexpartikeln unterschiedlicher Größen untersucht. Selbst bei Konzentrationen von einigen hundert submikroner Partikeln pro Kubikzentimeter wurden keine Sättigungseffekte beobachtet.

Mit SPIN nahmen wir vom Oktober bis Dezember 2013 an der CLOUD8 Kampagne am CERN teil. Aufgrund der Probleme mit dem SPIN-OPC ergaben sich aus dieser Kampagne keine wissenschaftlichen Ergebnisse. Allerdings, sammelten wir umfangreiche Erfahrungen hinsichtlich des Einsatzes von SPIN im Rahmen von Messkampagnen. Weiterhin sammelten wir wichtige Erfahrungen bzgl. der Durchführung wolkenmikrophysikalischer Experimente an der CLOUD-Kammer.

Im Januar 2014, veranstalteten wir eine SPIN-Vergleichskampagne in Leipzig. Teilnehmer kamen vom Massachusetts Institute of Technology (MIT, USA), die SPIN1 betrieben und Repräsentanten der drei Gruppen, die SPIN3 im Vereinigten Königreich betreiben, waren anwesend. Zusätzlich, schickte die University of Toronto, Kanada, den OPC des SPIN2. Im Rahmen dieser Kampagne identifizierten wir u.a. Probleme mit der Kontrolle der Volumenflüsse in SPIN. Ferner erkannten wir schwerwiegende Probleme bzgl. der Temperaturkontrolle und Temperaturverteilung über den gekühlten Platten. Unverzüglich nach der Kampagne wurde SPIN4 zum wiederholten Male zur Behebung dieser und weiterer Probleme zu DMT geschickt.

Im März 2014 reisten 2 Repräsentanten des TROPOS zu DMT nach Boulder, Colorado, USA, um das Testen und die Weiterentwicklung von SPIN voran zu treiben. Experimente mit monodispersen Ammoniumsulfatpartikeln wurden durchgeführt um das homogene Gefrieren von Wassertropfen in SPIN4 zu untersuchen. Zur Aktivierung der Partikel zu Tropfen wurde SPIN im Bereich der Wasserübersättigung betrieben. Diese Experimente erwiesen sich als extrem wertvoll bzgl. der Identifikation geeigneter Betriebsparameter, und erfolgreich in dem Sinne, das homogenes Gefrieren von Tropfen im erwarteten Temperaturbereich (-36°C bis -37°C) beobachtet werden konnte. In anderen Worten, in einem begrenzten Parameterbereich, konnten erstmalig mit SPIN4 reproduzierbare und quantitative Untersuchungen durchgeführt werden.

Als nächstes konzentrierten sich unsere Bemühungen auf die Vorbereitung für die Teilnahme an der CLOUD9-Kampagne, welche im Herbst 2014 stattfand. Die im Rahmen dieser Kampagne gewonnenen Ergebnisse werden im nächsten Kapitel beschrieben.

Nach der CLOUD9-Kampagne wurde SPIN4 für ein weiteres „Upgrade“ zu DMT geschickt. Hierbei wurden zusätzliche Thermoelemente installiert und die Temperaturregelung weiter optimiert. Wieder sendeten wir zwei Vertreter zu DMT um die Weiterentwicklung und Charakterisierung des Gerätes aktiv zu begleiten. Speziell die verbesserte Temperaturkontrolle erwies sich als signifikanter Schritt in der Entwicklung des Gerätes. Anfang März 2015 führten wir eine weitere Vergleichskampagne mit den beiden zu diesem Zeitpunkt bereits modifizierten Geräten (SPIN1 und SPIN4) am TROPOS durch.

Später im März 2015 nahmen wir mit SPIN4 am 5. Internationalen Eisnukleationsworkshop in Karlsruhe teil, in dessen Rahmen eine Vielzahl von Geräten zur Charakterisierung von Eiskeimen verglichen wurden. Besonders hervorzuheben ist in diesem Zusammenhang die enge Zusammenarbeit mit dem CLOUD-12 Projektpartner, der ebenfalls mit zwei Geräten an dieser Kampagne teilnahm. Die Messungen, die Rahmen des Workshops durchgeführt wurden, ergaben eine zufriedenstellende Übereinstimmung der SPIN-Daten mit denen vergleichbarer Geräte. Im September 2015 führten wir am TROPOS eine weitere Vergleichskampagne durch. Im Zuge dieser Kampagne wurde SPIN4 mit dem Eispartikelzähler der ETH Zürich (PINC) und dem „Leipzig Aerosol

Cloud Interaction Simulator“ (LACIS) verglichen. Während generell eine gute Übereinstimmung zwischen SPIN4 und PINC beobachtet wurde, erwies sich der Vergleich mit LACIS-Daten als abhängig von der Hygroskopizität der betrachteten Partikel. Dieser Umstand wird gegenwärtig genauer untersucht.

Zusammenfassend ist somit fest zu halten, dass bzgl. des Eisnukleuszählers SPIN im Rahmen des Projektes maßgebliche Fortschritte in der Entwicklung, Optimierung und Charakterisierung des Gerätes erzielt werden konnten, welche in eine gemeinsame Publikation mit dem MIT (Garimella et al. 2016) mündeten. Allerdings gibt es immer noch offene Fragen bzgl. des Verhaltens und der Vergleichbarkeit des Gerätes. Trotzdem konnten unter Verwendung des Gerätes bereits erfolgreiche wissenschaftliche Untersuchungen durchgeführt werden, welche im Folgenden Kapitel beschrieben werden.

Heterogene Eisnukleation an sekundären organischen Aerosolpartikeln

Im September-November 2014 nahmen wir an der CLOUD9-Kampagne am CERN teil. Für TROPOS lag der Fokus hierbei auf der Untersuchung des Phasenzustandes und des heterogenen Eisnukleationsverhaltens sekundärer organischer Aerosolpartikel (SOA-Partikel). Die Experimente, die zu diesem Themenkomplex von TROPOS geplant und geleitet wurden, erwiesen sich als sehr erfolgreich und führten zu 3 Publikationen (Ignatius et al. 2016; Jaervinen et al. 2016; Nichman et al. 2016). Ungeachtet des Umstandes, dass SPIN4 im Jahr 2014 noch nicht vollständig ausgereift war, konnten wir hoch interessante Ergebnisse und Erkenntnisse gewinnen und publizieren. Im Folgenden werden diese dargelegt.

Es gibt Anzeichen dafür, dass SOA-Partikel unter atmosphärischen Bedingungen in amorpher, hochviskoser oder fester Form vorliegen (Virtanen et al. 2010), und als eisnukleierende Partikel fungieren (Murray et al. 2010; Wilson et al. 2012; Berkemeier et al. 2014; Price et al. 2015). Zur genaueren Untersuchung dieses Umstandes erzeugten wir, bei niedriger relativer Feuchtigkeit (~10 %) und bei 4 unterschiedlichen Temperaturen (-10°C, -20°C, -30°C and -38°C), über die ozoninitiierte Oxidation von Alpha-Pinen, SOA-Partikel in der CLOUD-Kammer. Der Phasenzustand der erzeugten Partikel wurde unter Verwendung einer neuen optischen in-situ-Methode, welche die Depolarisationsrate der betrachteten Partikel nutzt (Jaervinen et al. 2016), bestimmt. Erstmals konnte so der Übergang von der amorphen, hochviskosen, zur niedrigviskosen, flüssigen Phase als Funktion der relativen Feuchte beobachtet werden. Die gewonnenen Ergebnisse waren in guter Übereinstimmung mit in der Literatur vorhandenen theoretischen Vorhersagen (Koop et al. 2011).

Unter Verwendung des Eisnukleuszählers SPIN4 konnten wir erstmalig heterogene Eisnukleation an hochviskosen Alpha-Pinen-SOA-Partikeln beobachten (Ignatius et al. 2016). Die Bedingungen unter denen das Einsetzen der Eisnukleation (definiert als das Erreichen einer eisaktivierten Fraktion von 10%) beobachtet wurde sind in Abb. 3 dargestellt.

Die Eisbildung erfolgte für wasseruntersättigte (relative Feuchte <100%) Bedingungen und ist daher heterogener Natur. Der genaue Mechanismus der Eisbildung konnte jedoch im Rahmen der Untersuchungen nicht identifiziert werden. Verschiedene Szenarien sind denkbar: i) Depositionsnukleation auf hochviskosen SOA-Partikeln; ii) Immersionsgefrieren teilweise deliqueszierter SOA-Partikel mit Kern-Mantel-Morphologie (Berkemeier et al. 2014; Price et al. 2015), iii) Immersionsgefrieren von Tropfen induziert durch suspendierte eisnukleierende organische Makromoleküle wie in Pummer et al. (2012) beschrieben. Unsere Messungen erlaubten keine Schlüsse hinsichtlich welcher Mechanismus der dominierende sein könnte.

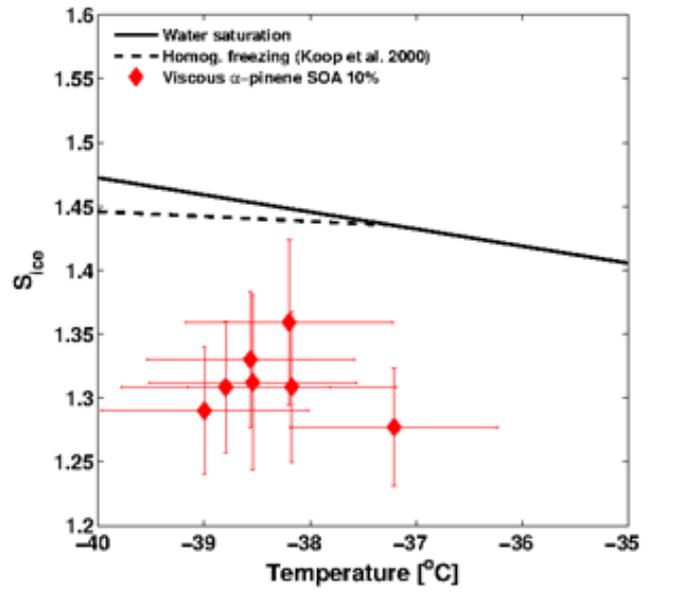


Abb. 3: Bedingungen unter denen das Einsetzen (Eisfraktion = 10%) heterogener Eisnukleation für hochviskose Alpha-Pinen-SOA-Partikel beobachtet wurde. Die horizontalen Fehlerbalken repräsentieren die instrumentellen Unsicherheiten in der Temperatureinstellung (0.5°C), und die vertikalen Fehlerbalken sind ein Maß für die maximalen Unsicherheiten in den Eisübersättigungen denen die Partikel ausgesetzt waren.

Verglichen mit anderen SOA-Partikeln und deren Proxies, sind unsere Daten denjenigen ähnlich, die für „glasartige“ oder schwer-lösliche Substanzen gefunden wurden. Allerdings unterscheiden sie sich deutlich von bereits bekannten Ergebnissen die für Alpha-Pinen-SOA ermittelt wurden (siehe Abb. 4). Dies deutet darauf hin, dass der Phasenzustand einer der wichtigsten Faktoren für die Eisnukleationseffizienz von SOA Partikeln sein könnte.

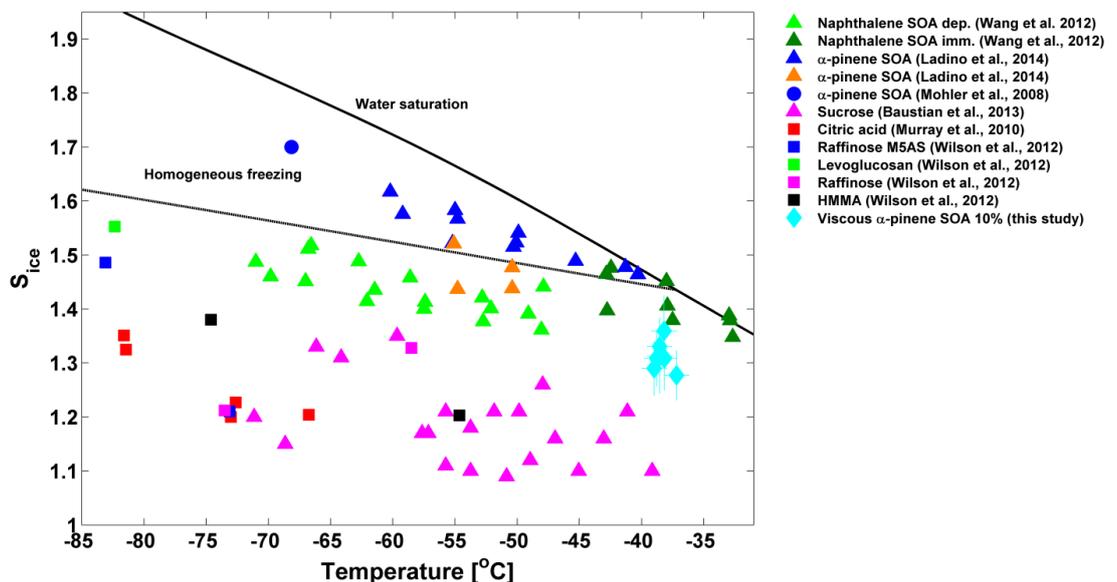


Abb. 4: Vergleich des Einsetzens der Eisnukleation für verschiedene Arten von SOA und Proxies. Unsere Ergebnisse sind als hellblaue Rauten dargestellt.

Zusätzlich zu den o.g. Publikationen, wurden die hier beschriebenen Ergebnisse auf internationalen Konferenzen vorgestellt (Ignatius et al., 2016b; Kristensen et al., 2016b).

Ferner nahmen wir im Rahmen des CLOUD-12-Projektes an der Messkampagne TRACA3 teil, welche an der Universität Ost-Finnlands in Kuopio, stattfand. Thema war die Untersuchung des Eisnukleationsverhaltens anthropogener SOA-Partikel. Die Messungen wurden mit der zwischenzeitlich verbesserten Version von SPIN durchgeführt. Die untersuchten Aerosolpartikel stammten aus frischen Autoabgasen (Benzinmotor), welche mit oder ohne Alpha-Pinen-Zugabe in eine Aerosolkammer, in der sich die SOA-Partikel bildeten, geleitet (Leskinen et al. 2015). Die Alterung erfolgte in einem Strömungsreaktor (Lambe et al. 2011) und entsprach einer atmosphärischen OH-Radikal induzierten Alterung von 21 Tagen Dauer. Da diese Vorgänge bei Raumtemperatur und 50% relativer Feuchte abliefen, ist das Vorhandensein glasartiger hochviskoser SOA-Partikel extrem unwahrscheinlich.

Basierend auf den durchgeführten Untersuchungen kann festgehalten werden, dass aus Benzinmotorabgasen gebildete SOA-Partikel sehr schlechte Eiskeime sind. Im Rahmen der Messungenauigkeiten wird Eisbildung in der Nähe der Wassersättigung und des homogenen Eisnukleationslimits beobachtet (Abb. 5). Die Anwesenheit von Alpha-Pinen führt zu keinen signifikanten Änderungen in diesem Verhalten. Eine Publikation zu diesem Themenkomplex ist für Ende 2017 geplant.

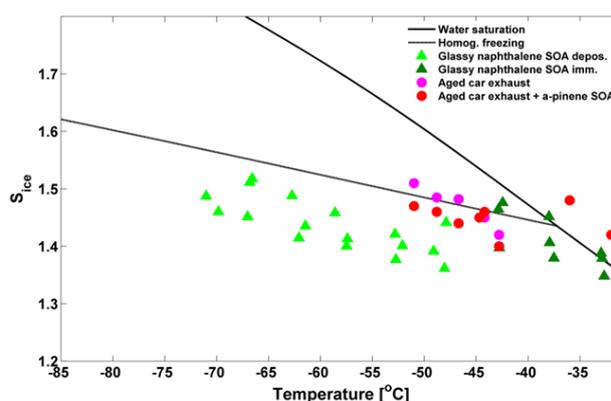


Abb. 5 links: Das untersuchte Kfz und Teile des experimentellen Aufbaus während der TRACA3-Kampagne; rechts: Eisübersättigungen im Temperaturbereich zwischen -50 und -32°C bei denen das Einsetzen von Eisnukleation beobachtet wurde. Betrachtet wurde gealterte Abgase mit (rote Kreise) und ohne (pinkfarbene Kreise) Zugabe von Alpha-Pinen. Zum Vergleich sind Daten für glasförmige Naphtalenpartikel (Wang et al. 2012) mit dargestellt.

Zusätzliche Aktivitäten zum Themenkomplex Eisnukleation:

Atmosphärische Konzentrationen eisnukleierender Partikel in der marinen Grenzschicht

SPIN4 wurde an Bord des Forschungsschiffes Polarstern (Okt. – Dez. 2015) zur Messung atmosphärischer Konzentrationen eisnukleierender Partikel (INP) eingesetzt. Die Fahrt von Bremerhaven nach Kapstadt eröffnete die Möglichkeit regionale INP-Konzentrationen zwischen 54°N und 35°S zu messen. Der einzigartige Datensatz bzgl. der Abhängigkeit der INP Konzentrationen von der geographischen Position und der Temperatur gibt Hinweise auf regional vorhandene INP-Arten (mineralisch oder biologisch) und deren Quellen.

In Übereinstimmung von Feldstudien in anderen Teilen der Welt beobachteten wir, dass mit abnehmender Temperatur die INP Anzahlkonzentration exponentiell, allerdings mit lokal unterschiedlicher Steigung zunimmt. Eine exponentielle Temperaturabhängigkeit wird erwartet, wenn die Nukleationseigenschaften der vorhandenen Partikelpopulation sehr heterogen sind und eine Vielzahl von Aerosolpartikeln als INP fungiert.

Abb. 6 zeigt, in 4°C-Temperaturschritten im Temperaturbereich zwischen -36°C und -28°C gemessene, 30-Minuten-Mittel der INP-Anzahlkonzentrationen. Abhängig von der eingestellten Temperatur, tragen unterschiedliche Quellen zur aktiven INP-Population bei. Beispielsweise ist im Temperaturbereich um -32°C ein klarer Einfluss von Wüstenstaub aus der Sahara zu erkennen. Ferner konnte festgestellt werden, dass zusätzlich zum Wüstenstaub, kontinentales Aerosol aus Europa und Südafrika eine wichtige Quelle für INP im Temperaturbereich um -36°C ist. Lokale

Quellen scheinen die INP-Konzentrationen speziell bei niedrigsten Temperaturen zu beeinflussen. Bei -28°C gemessene INP-Konzentrationen ändern sich weniger mit der geographischen Position als solche die bei niedrigeren Temperaturen beobachtet wurden. Dies deutet für höhere Temperaturen auf das Hintergrundaerosol als INP-Quelle, und die geringe Bedeutung lokaler Quellen hin.

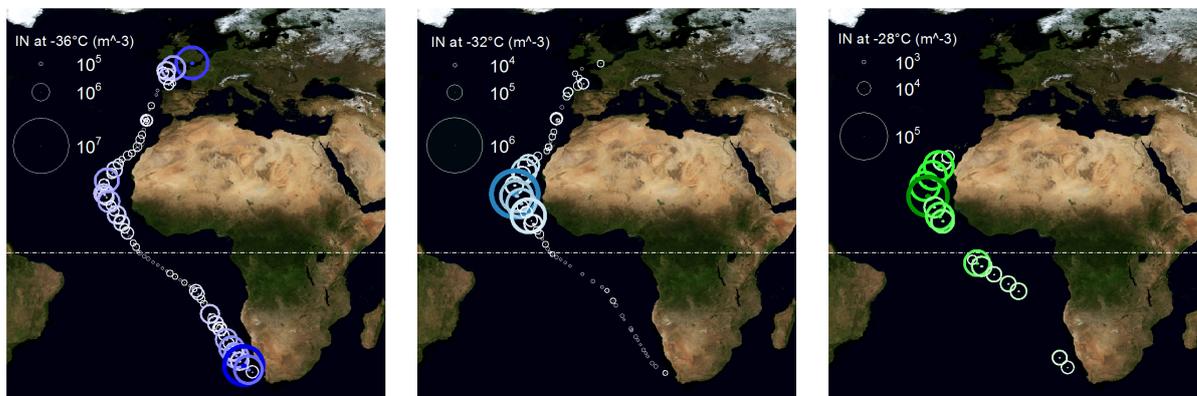


Abb. 6: An Bord des Forschungsschiffes Polarstern bei Temperaturen -36°C , -32°C , -28°C 105% relativer Feuchte in Bezug auf Wasser gemessene INP-Konzentrationen. Die Kreisflächen und Farben skalieren mit der INP-Konzentration. Die Skalierung der Kreisflächen variiert von Bild zu Bild.

Aktivitäten zum Themenkomplex der Wolkentropfenaktivierung (CCN-Aktivierung)

CCN-Aktivität von gemischten Sulfat-Sekundärem-Organischen-Aerosol-Partikeln

Während der CLOUD8 und 9 Kampagnen am CERN wurde eine größere Anzahl von Experimenten zur Untersuchung von flüssigwasserchemischen Prozessen durchgeführt. Zunächst wurde damit begonnen die anorganische Schwefel-Sulfat-Chemie bei unterschiedlichen Temperaturen zu betrachten (Hoyle et al. 2016). Der Hauptfokus bei den durchgeführten Untersuchungen lag aber auf der Rolle von Isopren als Vorläufersubstanz für organisches Partikelmaterial, und seine möglichen Auswirkungen auf die Wolkenskondensationskerneigenschaften von Aerosolpartikeln, welche noch weitestgehend unverstanden sind. Isopren wird durch die Vegetation emittiert und stellt einen sehr großen Prozentsatz der in der Atmosphäre vorhandenen reaktiven Kohlenwasserstoffen dar. Die Oxidationsprodukte von Isopren sind daher von großem Interesse für die Atmosphärenforschung im Allgemeinen und das CLOUD-Projekt im Besonderen. Eine große Anzahl von Experimenten wurde mit Sulfat-Partikeln als Keime für das in der Kammer über die ozoninduzierte Oxidation von Isopren bei hohen Luftfeuchten (nahe 95%) gebildete sekundäre organische Aerosolmaterial durchgeführt. Während dieser Experimente wurden auch adiabatische Expansionen in der CLOUD-Kammer vorgenommen, um die Effekte der Bildung von Wolkentropfen zu untersuchen. Die Zusammensetzung der Kerne wurde von fast reiner Schwefelsäure bis hin zu fast reinem Ammoniumsulfat variiert. Auch die Gasphasenkonzentration von NO_x ($\text{NO}+\text{NO}_2$) wurde variiert, um potenzielle anthropogene Einflüsse zu untersuchen. Nach unserem Wissen sind dies die ersten systematischen Untersuchungen dieser Art, die bei derart hohen Feuchten durchgeführt wurden.

Während der Experimente wurde der Druck in der CLOUD-Kammer im Bereich von +5 bis 220 mBar (relativ zur Umgebung) entweder langsam erhöht, oder schnell erniedrigt. Um unsere CCN-Messungen in adäquater Weise durchführen zu können, entwickelten wir ein Gerät, welches den Druck in der Sammelleitung und damit am Einlass unseres Wolkenskondensationskernenzählers (CCNc), konstant hielt. Ferner mussten wir die Hard- und Software des dem CCNc vorgeschalteten Partikelgrößenspektrometers optimieren, um die bei den Experimenten auftretenden schnellen zeitlichen Änderungen in der Partikelgröße und -zusammensetzung erfassen zu können.

Hierdurch wurde eine Verkürzung der Messzeiten um ungefähr einen Faktor 5, d.h. von ca. 15 auf ca. 3 min erreicht. Diese Arbeiten erwiesen sich als umfangreicher und zeitintensiver als bei der Antragstellung angenommen, weshalb sie hier explizit erwähnt werden.

Die wissenschaftlichen Fragestellungen der im Rahmen des CLOUD-12-Projektes durchgeführten Aktivitäten waren: 1) Was sind die Hygroskopizitätswerte des in der CLOUD-Kammer erzeugten sekundären organischen Aerosols (SOA)? 2) Gibt es Indizien dafür, dass organische Spezies mit den in den Keimen vorhandenen Sulfaten reagieren und Organosulfate in signifikanten Mengen gebildet werden? 3) Beeinflussen die Acidität der Kernpartikel, die NO_x Konzentration, oder die Temperatur ($-10/10^\circ\text{C}$) die Hygroskopizität (κ -Werte, Petters and Kreidenweis 2007) des gebildeten SOA? Beispiele für vorläufige Ergebnisse bzgl. gemessener und modellierter κ -Werte sind im oberen Bereich von Abb. 7 dargestellt. Für unterschiedliche Experimente kann, unter der Annahme eines konstanten κ -Wertes von 0.1, eine sehr gute Übereinstimmung erzielt werden. Dieser κ -Wert ist ein Indiz dafür, dass keine signifikanten Mengen von Organosulfaten gebildet werden. Allerdings kann eine Abnahme der Bildungsrate organischer Partikelsubstanzen mit zunehmendem NO_x -Niveau beobachtet werden. Eine genauere Analyse hierzu ist in (Fuchs and the cloud collaboration, 2017) zu finden.

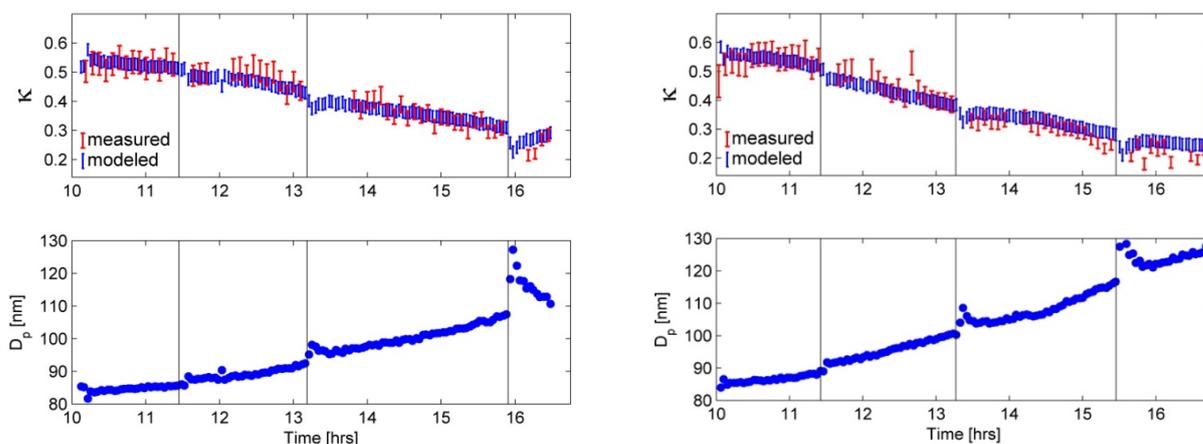


Abb. 7: Beispiele für Experimente mit Schwefelsäurekeimen, bei einer Temperatur von 10°C , und ohne (links) bzw. für hohe NO_2 Konzentrationen (rechts), gemessene und modellierte κ -Werte (oben). Gemessenen und modellierten κ -Werte stimmen sehr gut überein. Der mittlere Partikeldurchmesser der Aerosolpartikel nimmt durch den Übergang organischen Materials in die Partikelphase zu (κ -Werte nehmen ab) (unten), und das Partikelwachstum verlangsamt sich mit zunehmender NO_2 -Konzentration. Die schwarzen vertikalen Linien markieren Zeitpunkte zu denen Expansionen stattfanden.

Zusätzliche Aktivitäten zum Thema Wolkenkondensationskerne:

Atmosphärische Konzentrationen von Wolkenkondensationskernen in der marinen Grenzschicht

Die im Rahmen des CLOUD-12-Projektes entwickelten Methoden (Messhard- und/oder Auswertungssoftware), wurden auch zur Erhebung und Auswertung von CCN-bezogenen Daten in der marinen Grenzschicht eingesetzt. Speziell waren dies Daten die im Rahmen einer Feldmesskampagne auf Barbados (Kristensen et al., 2016c; Weinzierl et al. in press.) und mehrere Polarsternfahrten im Nord- und Südatlantik (Kristensen et al. 2016) erhoben wurden. Als Beispiel hierfür sind in Abb. 8 CCN-Konzentrationen und Hygroskopizitäten (κ -Werte) entlang der Fahrtroute (Polarsternfahrt im April/Mai 2012) dargestellt. Die Abbildung beinhaltet auch Rückwärtstrajektorien für die an der jeweiligen Schiffsposition vorhandenen Luftmassen (Druckniveau 950 hPa). Wie zu erkennen ist, waren die betrachteten Luftmassen größtenteils marinen Ursprungs. Sporadisch wurden auch kontinentale Luftmassen beobachtet.

Die Zeiträume während derer die Messungen durch lokale Verschmutzung, d.h. Schiffsemissionen, beeinträchtigt waren, werden hier nicht gezeigt. Für Übersättigungen 0.1% und 0.2% wurden für marine Luftmassen Median-CCN-Konzentrationen von 57 und 110 cm^{-3} beobachtet. Die für kontinentale Luftmassen gemessene Konzentrationen waren nahezu doppelt so hoch (100 und 186 cm^{-3}). Die gemessenen Hygroskopizitäten lagen typischerweise im Bereich von 0.5.

Dies deutet darauf hin, dass die Partikel aus Mischungen von Sulfat (dominierende Spezies) mit unterschiedlichen Mengen organischer Substanzen bestehen. Dieser Umstand wird durch die Ergebnisse aerosol-massen-spektroskopische Messungen unterstützt. Vergleichbare Beobachtungen wurden während zweier sehr ähnlicher Polarsternfahrten im April/Mai und Oktober/November gemacht. Zusammenfassend ist somit fest zu halten, dass im Frühjahr und Herbst, marine CCN-Konzentrationen von der Luftmassenherkunft abhängen, dessen ungeachtet aber die Hygroskopizität der CCN in der Nähe von 0.5 angesiedelt ist, also nur eine schwache Luftmassenabhängigkeit aufweist.

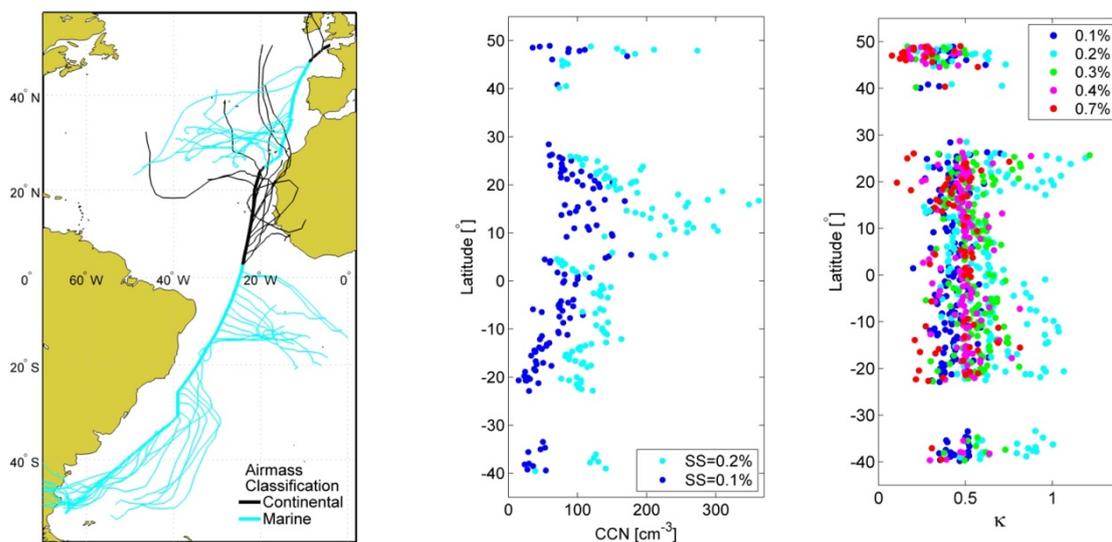


Abb. 8: Von links nach rechts: Die Schiffsroute farblich (zyan: marin; schwarz: kontinental) markiert entsprechend der Herkunft der beobachteten Luftmasse basierend auf 120h Rückwärtstrajektorien; entsprechende CCN-Konzentrationen für Übersättigungen von 0.1% (blau) und 0.2% (zyan); entsprechende κ -Werte für Übersättigungen von 0.1-0.7%.

Aktivitäten zum Themenkomplex Modellierung

Die im Rahmen von CLOUD-12 durchgeführten Modellierungsaktivitäten konzentrierten sich auf 2 Bereiche, d.h. die Modellierung von Eiskondensationsprozessen selbst, und Arbeiten in Zusammenhang mit der Charakterisierung und Optimierung des Eiskondensationszählers SPIN. Es soll an dieser Stelle angemerkt werden, dass letztere Arbeiten nicht im ursprünglichen Antrag vorgesehen, jedoch für die gründliche SPIN-Charakterisierung und -Optimierung dringend notwendig waren.

Modellierung von Eiskondensationsprozessen

Die Arbeiten zu diesem Themenkomplex konzentrierten sich im Wesentlichen auf die Entwicklung einer einfacheren und numerisch effizienteren Version des „Soccer Ball Models“ (SBM, Niedermeier et al. 2011). Avisierte Anwendungen waren/sind speziell CFD (CLOUD-FPM), und wolkenauflösende atmosphärische Modell (z.B. LES). Die im Rahmen des CLOUD-12-Projektes durchgeführten Arbeiten resultierten in einer wissenschaftlichen Veröffentlichung (Niedermeier et al. 2014). Das wichtigste Ergebnis ist in Abb. 9 dargestellt, welche den Vergleich von Ergebnissen des originalen und der Weiterentwicklung des SBM darstellt.

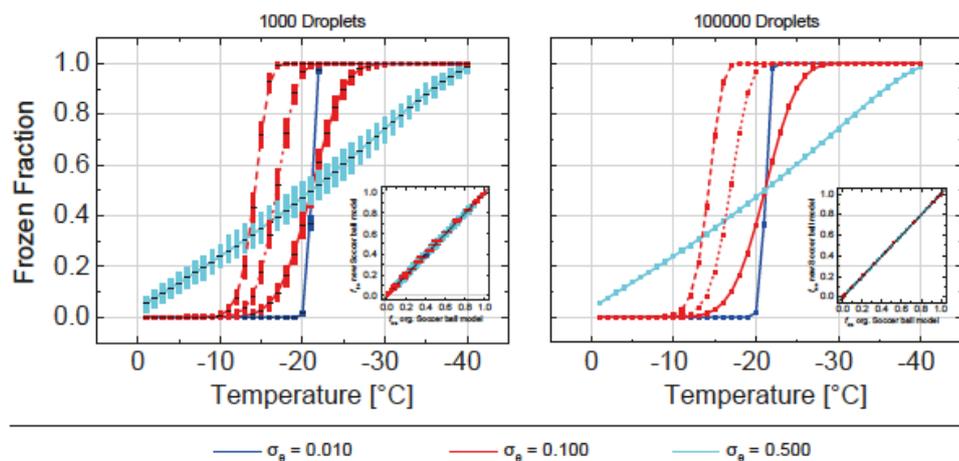


Abb. 9: Eisfraktionen f_{ice} als Funktion der Temperatur für gegebene Parameter des Soccer Ball Modells (SBM) ($\mu_\Theta = 1.0$ rad): Durchgezogene ($n_{site} = 1$), gepunktete ($n_{site} = 10$) und gestrichelte ($n_{site} = 100$) Linien repräsentieren Ergebnisse, die mit dem neuen SBM ermittelt wurden. Unterschiedliche Farben kennzeichnen unterschiedliche Kontaktwinkelverteilungsbreiten. Symbole stellen entsprechende Ergebnisse des Originalmodells dar. Die kleinen Bilder zeigen den direkten Modellvergleich.

Wie aus Abb. 9 zu sehen ist, stimmen die beiden SBM-Versionen in exzellenter Art und Weise überein. Somit steht mit dem neuen, einfacheren und numerisch deutlich effizienteren SBM ein Handwerkzeug zur Beschreibung heterogener Eisnukleationsprozesse in CFD (z.B. CLOUD-FPM) und Wolken auflösenden Modellen zur Verfügung.

Charakterisierung und Optimierung des Eisnukleuszählers SPIN

Im Rahmen der innerhalb des CLOUD-12-Projektes durchgeführten numerischen Strömungssimulationen (CFD-Simulationen) wurden sowohl die Strömungsverhältnisse, als auch die Verteilung der thermodynamischen Felder (vor allem Temperatur und Sättigung/Feuchte), im Eisnukleuszähler SPIN untersucht. Die entsprechenden dreidimensionalen Simulationen wurden mit der Software Ansys Fluent (Ansys Inc. Canonsburg, PA, USA) als Teil des CLOUD-FPM-Modells durchgeführt.

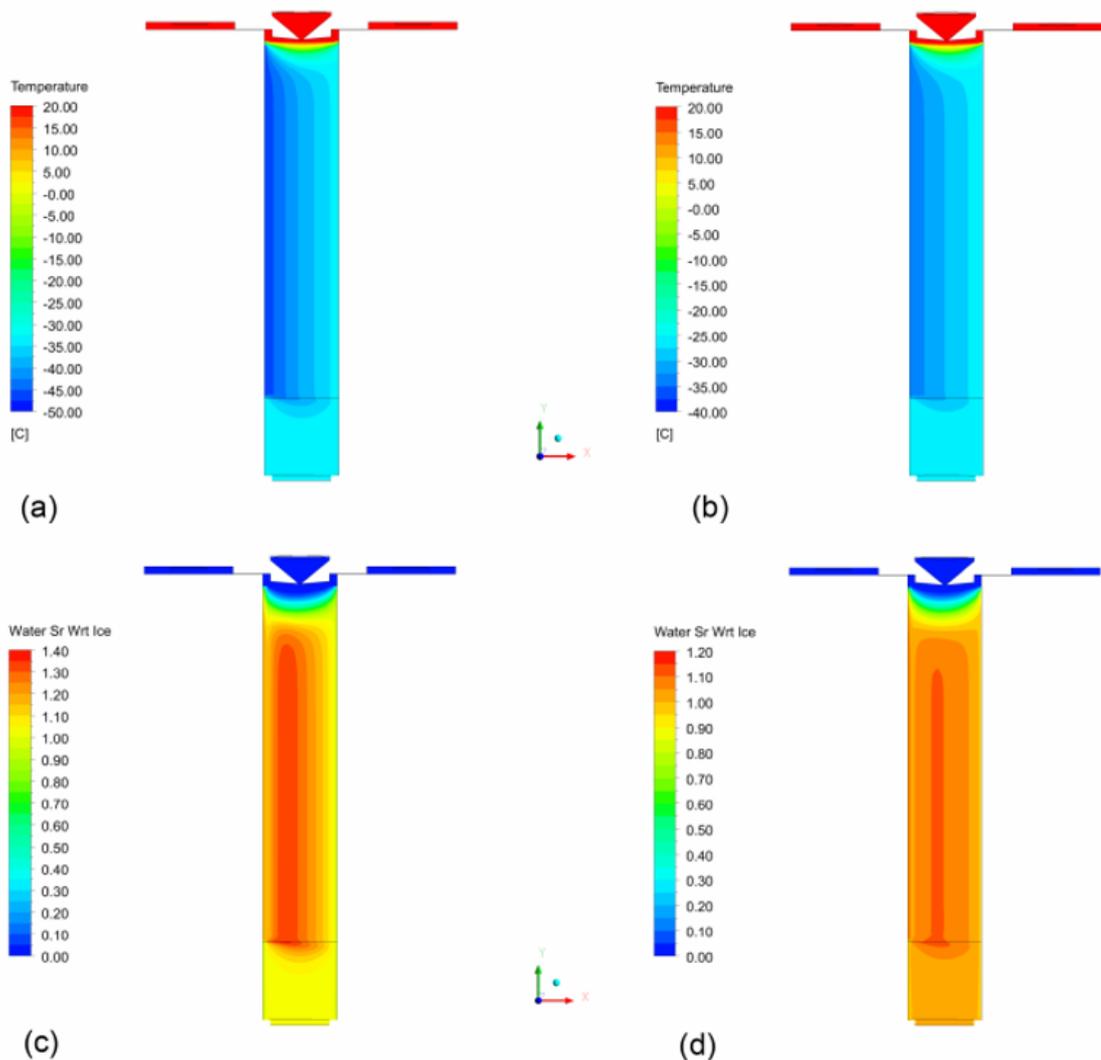
Ziel der Untersuchungen war vor allem die Überprüfung der Anwendbarkeit eines vereinfachten analytischen Modells (Rogers 1988), welches normalerweise für die Abschätzung und Vorhersage der Verhältnisse in der Kammer benutzt wird. Derartige Abschätzungen sind eine wertvolle Hilfe bei der Durchführung der Messungen selbst und der Auswertung und Interpretation der experimentellen Daten.

Das Funktionsprinzip der SPIN Kammer beruht darauf, dass es durch den Temperaturunterschied zwischen den eisbeschichteten Wänden zur lokalen Übersättigung (in Bezug auf Flüssigwasser und/oder Eis) im durchströmenden Aerosol, damit ggf. zur Eisnukleation (heterogen oder homogen) und Eiskristallwachstum, kommt. Die Temperaturunterschiede resultieren allerdings auch in Dichteunterschieden und damit in Auftriebseffekten. Bei den in den Experimenten normalerweise eingestellten Volumenströmen (10 l/min partikelfreie Schleierluft) können Temperaturunterschiede ab etwa 10-15°C (auch abhängig von den Sättigungsverhältnissen in der Kammer) dazu führen, dass der statische Auftrieb entlang der wärmeren Wand so groß wird, dass die Auftriebsbewegung die mittlere Strömungsgeschwindigkeit in diesem Bereich übersteigt und dadurch eine aufwärtsgerichtete Gegenbewegung erzeugt wird.

Diese aufwärts gerichtete Strömung könnte durch einen höheren Fluss und damit eine höhere mittlere Strömungsgeschwindigkeit verhindert werden, was aber im Gegenzug zu geringeren Verweilzeiten und damit zu geringerem Eiskristallwachstum und einer schlechteren Zähleffizienz führt. Daher werden Auftriebseffekte und die entgegen gerichtete Strömung entlang der wärmeren Wand teilweise in Kauf genommen und bei der Interpretation der experimentellen Daten auf Basis der Modellergebnisse entsprechend berücksichtigt.

Über im Rahmen des Projektes durchgeführte CFD-Simulationen konnte gezeigt werden (Abb. 10 zeigt zwei Beispiele für berechnete Profile der Strömungsgeschwindigkeit, Temperatur und Sättigung), dass das CFD-Modell und das analytische Modell (Rogers 1988) gut übereinstimmen. Insbesondere das qualitative Verhalten ist in beiden Modellen identisch. Mit zunehmendem Temperaturunterschied zwischen den Wänden der Kammer kommt es zu Asymmetrien im Strömungsprofil was schließlich zu der erwähnten entgegen gerichteten Strömung an der warmen Wand führt.

Mit Hilfe der Ergebnisse konnten damit die bisher mit dem analytischen Modell nach Rogers (1988) abgeschätzten Verhältnisse in der SPIN Kammer (Strömung, Temperatur und Sättigungsfelder) bestätigt werden. Das wiederum bestätigt und erhöht die Sicherheit der Methode der verwendeten Dateninterpretation, was die Qualität und Aussagefähigkeit der experimentellen Daten signifikant erhöht. Die Ergebnisse der Berechnungen fanden auch Eingang die zum Thema SPIN erschienene Veröffentlichung (Garimella et al. 2016).



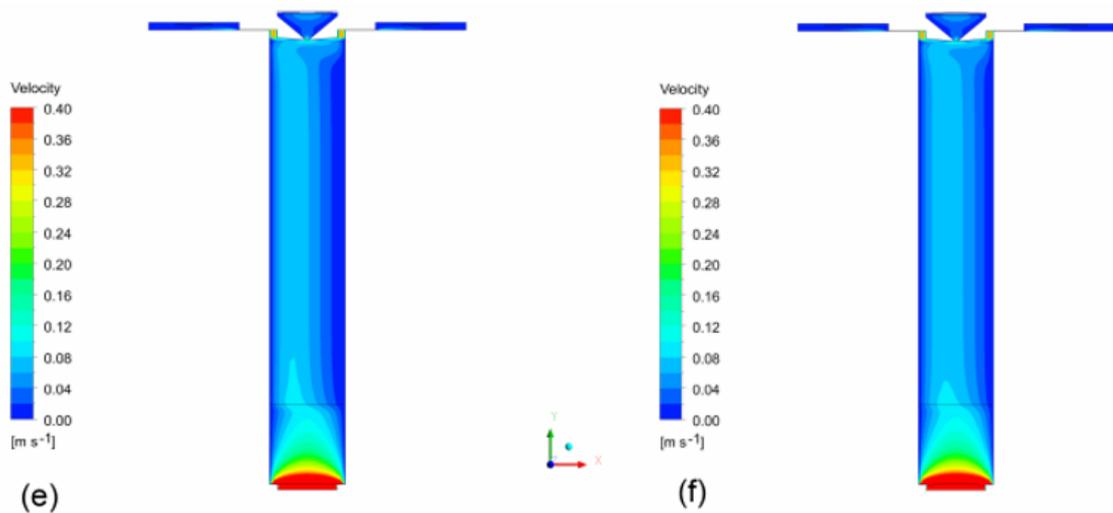


Abb. 10: Ergebnisse aus 2 CFD-Simulationen für verschiedene Temperaturen und Sättigungsverhältnisse. Die Bilder auf der linken Seite (a, c, e) zeigen dabei das Temperatur-, Sättigungs- und Geschwindigkeitsprofil für eine Simulation bei -40°C und einer max. Eissättigung von 1.3, auf der rechten Seite (b, d, f) sind Ergebnisse für -30°C und Eissättigung von 1.1 dargestellt. In den Abbildungen ist jeweils die Querschnittsfläche in der Mitte der Kammer (parallel zu den beiden verschieden temperierten Wänden) gezeigt.

2. Zahlenmäßiger Nachweis

Der zahlenmäßige Nachweis der im Rahmen des Projektes angefallenen Kosten ist in Tab. II.2 dargestellt.

Position	Ausgaben	Betrag
0812	Personal	230295,92
0835	Werkverträge	40698,00
0843	CERN-Beiträge	88843,29
0846	Dienstreisen	20700,23
0850	IN-Spektrometer (SPIN)	200533,66
Summe		581071,10

Tabelle II.1: Zahlenmäßiger Nachweis

3. Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit

Alle geleisteten Arbeiten waren notwendig und angemessen. Wie bereits oben erwähnt erwiesen sich die bzgl. der Charakterisierung, Evaluierung und Optimierung des Eisnukleuszählers (SPIN) notwendigen Untersuchungen als deutlich umfangreicher als erwartet. Als Resultat dieser Arbeiten konnten jedoch maßgebliche Fortschritte erzielt und das Gerät sowohl an der CLOUD-Kammer am CERN, als auch bei Feldmessungen erfolgreich eingesetzt werden.

4. Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit der Ergebnisse

Der Nutzen und die Verwertbarkeit der gewonnenen Ergebnisse und Erkenntnisse sind vielfältig und vielschichtig:

Beginnend mit dem Eisnukleuszähler SPIN kann festgehalten werden, dass mit Abschluss des Projektes ein Gerät zur Verfügung steht, welches die Quantifizierung und Charakterisierung sowohl laborgenerierter als auch atmosphärischer eisnukleierender Partikel ermöglicht. Dies gilt ungeachtet der noch weiterhin zur Optimierung des Gerätes notwendigen Arbeiten, und manifestiert sich nicht nur über den weiteren Einsatz des Gerätes im Rahmen des bewilligten CLOUD-16 Folgeprojektes, sondern auch über die Teilnahme des Gerätes an der aktuellen „Antarctic Circumnavigation Expedition“ ACE (<http://polar.epfl.ch/page-131984-en.html>) des neugegründeten Schweizer Polarforschungsinstituts (SPI), und an der für 2017 geplanten Polarstern basierten PASCAL-Kampagne (im Rahmen des DFG-geförderten TR 172, <http://www.ac3-tr.de/>, Teilprojekt B04).

Hinsichtlich der bzgl. des Eisnukleationsverhaltens von sekundären organischen Aerosolpartikeln (SOA) gewonnenen Ergebnisse und Erkenntnisse kann festgehalten werden, dass diese einerseits tiefergehenden Untersuchungen im Rahmen des CLOUD-16 Folgeprojektes motiviert haben, andererseits auch einen zur Zeit in der Begutachtung befindlichen DFG-Antrag motiviert haben.

Zum Themenkomplex der Wolkenkondensationskerne sollte angemerkt werden, dass die im Rahmen des CLOUD-12 Projektes gewonnenen Ergebnisse und Erkenntnisse einerseits zu einem besseren Verständnis der SOA-Produktion in der Flüssigphase beigetragen haben, andererseits die entwickelten Datenauswertetechniken bereits jetzt und auch zukünftig die Auswertung und Interpretation von CCN- und Hygroskopizitätsmessungen massiv beschleunigen und erleichtern werden.

Nicht zuletzt ist zu erwähnen, dass sowohl die an der CLOUD-Kammer als auch in atmosphärischen gewonnenen CCN- und INP-Daten Eingang in entsprechende Datenbanken (z.B. ACTRIS, GASSP) und atmosphärische Klimamodelle (z.B. GLOMAP) gefunden haben bzw. finden werden, und damit z.B. zum Betrieb und zur Evaluierung atmosphärischer Modelle zur Verfügung stehen.

5. Während der Durchführung des Vorhabens dem ZE bekannt gewordenen Fortschritte bei anderen Stellen

Während der Durchführung des Vorhabens sind dem ZE keine Fortschritte anderer Stellen mit direktem Bezug zu dem Vorhaben bekannt geworden. In diesem Zusammenhang soll jedoch die enge Kooperation mit dem „Massachusetts Institute of Technology“ (MIT) bzgl. der Evaluierung, Charakterisierung und Optimierung des Eisnukleuszählers SPIN erwähnt werden, deren Ergebnisse in einer gemeinsamen wissenschaftlichen Publikation dokumentiert wurde.

6. Erfolgte oder geplante Veröffentlichungen des Ergebnisses nach Nr. 6.

Für eine vollständige Darstellung im Rahmen des CLOUD-12 Projektes erfolgten und geplanten Veröffentlichungen wird an dieser Stelle auf den Bericht des Partnerprojektes der Goethe-Universität Frankfurt verwiesen. Unter direkter Beteiligung des TROPOS erschienen im Rahmen von CLOUD-12 insgesamt 8 begutachtete Publikationen, davon 3 in Erstautorenschaft. Im Einzelnen (Konferenzbeiträge kursiv) sind dies:

- Garimella, S., T. B. Kristensen, K. Ignatius, A. Welti, J. Voigtlander, G. R. Kulkarni, F. Sagan, G. L. Kok, J. Dorsey, L. Nichman, D. A. Rothenberg, M. Rosch, A. C. R. Kirchgassner, R. Ladkin, H. Wex, T. W. Wilson, L. A. Ladino, J. P. D. Abbatt, O. Stetzer, U. Lohmann, F. Stratmann, and D. J. Cziczo. 2016: The SPectrometer for Ice Nuclei (SPIN): an instrument to investigate ice nucleation, *Atmos. Meas. Tech.*, 9: 2781-95, doi: 10.5194/amt-9-2781-2016.
- Hoyle, C. R., C. Fuchs, E. Jarvinen, H. Saathoff, A. Dias, I. El Haddad, M. Gysel, S. C. Coburn, J. Trostl, A. K. Bernhammer, F. Bianchi, M. Breitenlechner, J. C. Corbin, J. Craven, N. M. Donahue, J. Duplissy, S. Ehrhart, C. Frege, H. Gordon, N. Hoppel, M. Heinritzi, T. B. Kristensen, U. Molteni, L. Nichman, T. Pinterich, A. S. H. Prevot, M. Simon, J. G. Slowik, G. Steiner, A. Tome, A. L. Vogel, R. Volkamer, A. C. Wagner, R. Wagner, A. S. Wexler, C. Williamson, P. M. Winkler, C. Yan, A. Amorim, J. Dommen, J. Curtius, M. W. Gallagher, R. C. Flagan, A. Hansel, J. Kirkby, M. Kulmala, O. Mohler, F. Stratmann, D. R. Worsnop, and U. Baltensperger. 2016: Aqueous phase oxidation of sulphur dioxide by ozone in cloud droplets, *Atmos. Chem. Phys.*, 16: 1693-712, doi: 10.5194/acp-16-1693-2016.
- Ignatius, K., T. B. Kristensen, E. Jarvinen, L. Nichman, C. Fuchs, H. Gordon, P. Herenz, C. R. Hoyle, J. Duplissy, S. Garimella, A. Dias, C. Frege, N. Hoppel, J. Troestl, R. Wagner, C. Yan, A. Amorim, U. Baltensperger, J. Curtius, N. M. Donahue, M. W. Gallagher, J. Kirkby, M. Kulmala, O. Mohler, H. Saathoff, M. Schnaiter, A. Tome, A. Virtanen, D. Worsnop, and F. Stratmann. 2016: Heterogeneous ice nucleation of viscous secondary organic aerosol produced from ozonolysis of alpha-pinene, *Atmos. Chem. Phys.*, 16: 6495-509, doi: 10.5194/acp-16-6495-2016.
- Ignatius, K., T. B. Kristensen, E. Järvinen, L. Nichman, C. Fuchs, H. Gordon, P. Herenz, C. R. Hoyle, J. Duplissy, U. Baltensperger, J. Curtius, N. M. Donahue, M. W. Gallagher, J. Kirkby, M. Kulmala, O. Möhler, H. Saathoff, M. Schnaiter, A. Virtanen, D. Worsnop, F. Stratmann, and CLOUD-collaboration. 2016b: Heterogeneous ice nucleation and phase transition of viscous α -pinene secondary organic aerosol, *EGU General Assembly 2016, Conference 2016, Vienna, Austria, 17-22 April 2016*.
- Jaervinen, E., K. Ignatius, L. Nichman, T. B. Kristensen, C. Fuchs, C. R. Hoyle, N. Hoppel, J. C. Corbin, J. Craven, J. Duplissy, S. Ehrhart, I. El Haddad, C. Frege, H. Gordon, T. Jokinen, P. Kallinger, J. Kirkby, A. Kiselev, K. H. Naumann, T. Petaja, T. Pinterich, A. S. H. Prevot, H. Saathoff, T. Schiebel, K. Sengupta, M. Simon, J. G. Slowik, J. Trostl, A. Virtanen, P. Vochezer, S. Vogt, A. C. Wagner, R. Wagner, C. Williamson, P. M. Winkler, C. Yan, U. Baltensperger, N. M. Donahue, R. C. Flagan, M. Gallagher, A. Hansel, M. Kulmala, F. Stratmann, D. R. Worsnop, O. Mohler, T. Leisner, and M. Schnaiter. 2016: Observation of viscosity transition in alpha-pinene secondary organic aerosol, *Atmos. Chem. Phys.*, 16: 4423-38, doi: 10.5194/acp-16-4423-2016.
- Kristensen, T.B., K. Ignatius, E. Järvinen, C. Fuchs, H. Gordon, S. Garimella, P. Herenz, L. Nichman, C.R. Hoyle, J. Duplissy, A. Virtanen, D. Worsnop, O. Möhler, J. Kirkby, F. Stratmann, and CLOUD collaboration. 2016: Phase state of and deposition ice nucleation on secondary organic aerosol particles, *NOSA, Conference 2016b, Aarhus, Denmark, April 4-6*.
- Kristensen, T. B., T. Müller, K. Kandler, N. Benker, M. Hartmann, J. M. Prospero, A. Wiedensohler, and F. Stratmann. 2016: Properties of cloud condensation nuclei (CCN) in the trade wind marine boundary layer of the western North Atlantic, *Atmos. Chem. Phys.*, 16: 2675-88, doi: 10.5194/acp-16-2675-2016.
- Kristensen, T.B., S. Huang, M. Merkel, S. Henning, K. Dieckmann, S. Hartmann, M. Schäfer, Z. Wu, L. Poulain, A. Wiedensohler, and F. Stratmann. 2016c: CCN properties in the marine boundary layer of the Atlantic, *NOSA, Conference 2016, NOSA, Aarhus, Denmark, April 4-6*.
- Nichman, L., C. Fuchs, E. Jarvinen, K. Ignatius, N. F. Hoppel, A. Dias, M. Heinritzi, M. Simon, J. Trostl, A. C. Wagner, R. Wagner, C. Williamson, C. Yan, P. J. Connolly, J. R. Dorsey, J. Duplissy, S. Ehrhart, C. Frege, H. Gordon, C. R. Hoyle, T. B. Kristensen, G. Steiner, N. M. Donahue, R. Flagan, M. W. Gallagher, J. Kirkby, O. Mohler, H. Saathoff, M. Schnaiter, F. Stratmann, and A. Tome. 2016: Phase transition observations and discrimination of small cloud particles by light polarization in expansion chamber experiments, *Atmos. Chem. Phys.*, 16: 3651-64, doi: 10.5194/acp-16-3651-2016.
- Niedermeier, D., B. Ervens, T. Clauss, J. Voigtlaender, H. Wex, S. Hartmann, and F. Stratmann. 2014: A computationally efficient description of heterogeneous freezing: A simplified version of the Soccer ball model, *Geophys. Res. Lett.*, 41: 736-41, doi: 10.1002/2013gl058684.
- Weinzierl, B., A. Ansmann, J. M. Prospero, D. Althausen, N. Benker, F. Chouza, M. Dollner, D. Farrell, W. K. Fomba, V. Freudenthaler, J. Gasteiger, S. Groß, M. Haerig, B. Heinold, K. Kandler, T. B. Kristensen, O. L. Mayol-Bracero, T. Müller, O. Reitebuch, D. Sauer, A. Schäfler, K. Schepanski, A. Spanu, I.

Tegen, C. Toledano, and A. Walser. in press.: The Saharan Aerosol Long-range Transport and Aerosol-Cloud-Interaction Experiment (SALTRACE): overview and selected highlights, *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 0: null, doi: 10.1175/bams-d-15-00142.1.

Weitere Veröffentlichungen sind in Planung.

Referenzen zu I und II

- Berkemeier, T., M. Shiraiwa, U. Poschl, and T. Koop. 2014: Competition between water uptake and ice nucleation by glassy organic aerosol particles, *Atmos. Chem. Phys.*, 14: 12513-31, doi: 10.5194/acp-14-12513-2014.
- Fuchs. and the cloud collaboration, 2017: Enhanced SOA production from isoprene ozonolysis at high RH, *manuscript in prep. for submission to Atmos. Chem. Phys.*
- Garimella, S., T. B. Kristensen, K. Ignatius, A. Welti, J. Voigtlander, G. R. Kulkarni, F. Sagan, G. L. Kok, J. Dorsey, L. Nichman, D. A. Rothenberg, M. Rosch, A. C. R. Kirchgassner, R. Ladkin, H. Wex, T. W. Wilson, L. A. Ladino, J. P. D. Abbatt, O. Stetzer, U. Lohmann, F. Stratmann, and D. J. Cziczo. 2016: The SPectrometer for Ice Nuclei (SPIN): an instrument to investigate ice nucleation, *Atmos. Meas. Tech.*, 9: 2781-95, doi: 10.5194/amt-9-2781-2016.
- Hartmann, S., D. Niedermeier, J. Voigtlaender, T. Clauss, R. A. Shaw, H. Wex, A. Kiselev, and F. Stratmann. 2011: Homogeneous and heterogeneous ice nucleation at LACIS: operating principle and theoretical studies, *Atmos. Chem. Phys.*, 11: 1753-67, doi: 10.5194/acp-11-1753-2011.
- Hoyle, C. R., C. Fuchs, E. Jarvinen, H. Saathoff, A. Dias, I. El Haddad, M. Gysel, S. C. Coburn, J. Trostl, A. K. Bernhammer, F. Bianchi, M. Breitenlechner, J. C. Corbin, J. Craven, N. M. Donahue, J. Duplissy, S. Ehrhart, C. Frege, H. Gordon, N. Hoppel, M. Heinritzi, T. B. Kristensen, U. Molteni, L. Nichman, T. Pinterich, A. S. H. Prevot, M. Simon, J. G. Slowik, G. Steiner, A. Tome, A. L. Vogel, R. Volkamer, A. C. Wagner, R. Wagner, A. S. Wexler, C. Williamson, P. M. Winkler, C. Yan, A. Amorim, J. Dommen, J. Curtius, M. W. Gallagher, R. C. Flagan, A. Hansel, J. Kirkby, M. Kulmala, O. Mohler, F. Stratmann, D. R. Worsnop, and U. Baltensperger. 2016: Aqueous phase oxidation of sulphur dioxide by ozone in cloud droplets, *Atmos. Chem. Phys.*, 16: 1693-712, doi: 10.5194/acp-16-1693-2016.
- Ignatius, K., T. B. Kristensen, E. Jarvinen, L. Nichman, C. Fuchs, H. Gordon, P. Herenz, C. R. Hoyle, J. Duplissy, S. Garimella, A. Dias, C. Frege, N. Hoppel, J. Troestl, R. Wagner, C. Yan, A. Amorim, U. Baltensperger, J. Curtius, N. M. Donahue, M. W. Gallagher, J. Kirkby, M. Kulmala, O. Mohler, H. Saathoff, M. Schnaiter, A. Tome, A. Virtanen, D. Worsnop, and F. Stratmann. 2016: Heterogeneous ice nucleation of viscous secondary organic aerosol produced from ozonolysis of alpha-pinene, *Atmos. Chem. Phys.*, 16: 6495-509, doi: 10.5194/acp-16-6495-2016.
- Jaervinen, E., K. Ignatius, L. Nichman, T. B. Kristensen, C. Fuchs, C. R. Hoyle, N. Hoppel, J. C. Corbin, J. Craven, J. Duplissy, S. Ehrhart, I. El Haddad, C. Frege, H. Gordon, T. Jokinen, P. Kallinger, J. Kirkby, A. Kiselev, K. H. Naumann, T. Petaja, T. Pinterich, A. S. H. Prevot, H. Saathoff, T. Schiebel, K. Sengupta, M. Simon, J. G. Slowik, J. Trostl, A. Virtanen, P. Vochezer, S. Vogt, A. C. Wagner, R. Wagner, C. Williamson, P. M. Winkler, C. Yan, U. Baltensperger, N. M. Donahue, R. C. Flagan, M. Gallagher, A. Hansel, M. Kulmala, F. Stratmann, D. R. Worsnop, O. Mohler, T. Leisner, and M. Schnaiter. 2016: Observation of viscosity transition in alpha-pinene secondary organic aerosol, *Atmos. Chem. Phys.*, 16: 4423-38, doi: 10.5194/acp-16-4423-2016.
- Koop, T., J. Bookhold, M. Shiraiwa, and U. Poschl. 2011: Glass transition and phase state of organic compounds: dependency on molecular properties and implications for secondary organic aerosols in the atmosphere, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 13: 19238-55, doi: 10.1039/c1cp22617g.
- Kristensen, T. B., T. Muller, K. Kandler, N. Benker, M. Hartmann, J. M. Prospero, A. Wiedensohler, and F. Stratmann. 2016: Properties of cloud condensation nuclei (CCN) in the trade wind marine boundary layer of the western North Atlantic, *Atmos. Chem. Phys.*, 16: 2675-88, doi: 10.5194/acp-16-2675-2016.

- Lambe, A. T., A. T. Ahern, L. R. Williams, J. G. Slowik, J. P. S. Wong, J. P. D. Abbatt, W. H. Brune, N. L. Ng, J. P. Wright, D. R. Croasdale, D. R. Worsnop, P. Davidovits, and T. B. Onasch. 2011: Characterization of aerosol photooxidation flow reactors: heterogeneous oxidation, secondary organic aerosol formation and cloud condensation nuclei activity measurements, *Atmos. Meas. Tech.*, 4: 445-61, doi: 10.5194/amt-4-445-2011.
- Leskinen, A., P. Yli-Pirila, K. Kuuspallo, O. Sippula, P. Jalava, M. R. Hirvonen, J. Jokiniemi, A. Virtanen, M. Komppula, and K. E. J. Lehtinen. 2015: Characterization and testing of a new environmental chamber, *Atmos. Meas. Tech.*, 8: 2267-78, doi: 10.5194/amt-8-2267-2015.
- Lohmann, U., and J. Feichter. 2005: Global indirect aerosol effects: a review, *Atmos. Chem. Phys.*, 5: 715-37.
- Moehler, O., O. Stetzer, S. Schaefers, C. Linke, M. Schnaiter, R. Tiede, H. Saathoff, M. Kramer, A. Mangold, P. Budz, P. Zink, J. Schreiner, K. Mauersberger, W. Haag, B. Karcher, and U. Schurath. 2003: Experimental investigation of homogeneous freezing of sulphuric acid particles in the aerosol chamber AIDA, *Atmos. Chem. Phys.*, 3: 211-23, doi: 10.1088/1748-9326/3/2/025007.
- Murray, B. J., T. W. Wilson, S. Dobbie, Z. Q. Cui, Smrk Al-Jumur, O. Mohler, M. Schnaiter, R. Wagner, S. Benz, M. Niemand, H. Saathoff, V. Ebert, S. Wagner, and B. Karcher. 2010: Heterogeneous nucleation of ice particles on glassy aerosols under cirrus conditions, *Nat. Geosci.*, 3: 233-37, doi: 10.1038/ngeo817.
- Nichman, L., C. Fuchs, E. Jarvinen, K. Ignatius, N. F. Hoppel, A. Dias, M. Heinritzi, M. Simon, J. Trostl, A. C. Wagner, R. Wagner, C. Williamson, C. Yan, P. J. Connolly, J. R. Dorsey, J. Duplissy, S. Ehrhart, C. Frege, H. Gordon, C. R. Hoyle, T. B. Kristensen, G. Steiner, N. M. Donahue, R. Flagan, M. W. Gallagher, J. Kirkby, O. Mohler, H. Saathoff, M. Schnaiter, F. Stratmann, and A. Tome. 2016: Phase transition observations and discrimination of small cloud particles by light polarization in expansion chamber experiments, *Atmos. Chem. Phys.*, 16: 3651-64, doi: 10.5194/acp-16-3651-2016.
- Niedermeier, D., B. Ervens, T. Clauss, J. Voigtlaender, H. Wex, S. Hartmann, and F. Stratmann. 2014: A computationally efficient description of heterogeneous freezing: A simplified version of the Soccer ball model, *Geophys. Res. Lett.*, 41: 736-41, doi: 10.1002/2013gl058684.
- Niedermeier, D., R. A. Shaw, S. Hartmann, H. Wex, T. Clauss, J. Voigtlaender, and F. Stratmann. 2011: Heterogeneous ice nucleation: exploring the transition from stochastic to singular freezing behavior, *Atmos. Chem. Phys.*, 11: 8767-75, doi: 10.5194/acp-11-8767-2011.
- Petters, M. D., and S. M. Kreidenweis. 2007: A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity, *Atmos. Chem. Phys.*, 7: 1961-71.
- Price, H. C., J. Mattsson, Y. Zhang, A. K. Bertram, J. F. Davies, J. W. Grayson, S. T. Martin, D. O'Sullivan, J. P. Reid, A. M. J. Rickards, and B. J. Murray. 2015: Water diffusion in atmospherically relevant alpha-pinene secondary organic material, *Chem. Sci.*, 6: 4876-83, doi: 10.1039/c5sc00685f.
- Pummer, B. G., H. Bauer, J. Bernardi, S. Bleicher, and H. Grothe. 2012: Suspendable macromolecules are responsible for ice nucleation activity of birch and conifer pollen, 12: 2541-50, doi: 10.5194/acp-12-2541-2012.
- Rogers, David C. 1988: Development of a continuous flow thermal gradient diffusion chamber for ice nucleation studies, *Atmos. Res.*, 22: 149-81, doi: 10.1016/0169-8095(88)90005-1.
- Stratmann, F., A. Kiselev, S. Wurzler, M. Wendisch, J. Heintzenberg, R. J. Charlson, K. Diehl, H. Wex, and S. Schmidt. 2004: Laboratory studies and numerical simulations of cloud droplet formation under realistic supersaturation conditions, *J. Atmos. Ocean. Technol.*, 21: 876-87, doi: 10.1175/1520-0426(2004)021<0876:lsanso>2.0.co;2.
- Virtanen, A., J. Joutsensaari, T. Koop, J. Kannosto, P. Yli-Pirila, J. Leskinen, J. M. Makela, J. K. Holopainen, U. Poschl, M. Kulmala, D. R. Worsnop, and A. Laaksonen. 2010: An amorphous solid state of biogenic secondary organic aerosol particles, *Nature*, 467: 824-27, doi: 10.1038/nature09455.

- Wang, B. B., A. T. Lambe, P. Massoli, T. B. Onasch, P. Davidovits, D. R. Worsnop, and D. A. Knopf. 2012: The deposition ice nucleation and immersion freezing potential of amorphous secondary organic aerosol: Pathways for ice and mixed-phase cloud formation, *J. Geophys. Res.: Atmos.*, 117, doi: 10.1029/2012jd018063.
- Weinzierl, B., A. Ansmann, J. M. Prospero, D. Althausen, N. Benker, F. Chouza, M. Dollner, D. Farrell, W. K. Fomba, V. Freudenthaler, J. Gasteiger, S. Groß, M. Haarig, B. Heinold, K. Kandler, T. B. Kristensen, O. L. Mayol-Bracero, T. Müller, O. Reitebuch, D. Sauer, A. Schäfler, K. Schepanski, A. Spanu, I. Tegen, C. Toledano, and A. Walser. in press.: The Saharan Aerosol Long-range Transport and Aerosol-Cloud-Interaction Experiment (SALTRACE): overview and selected highlights, *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 0: null, doi: 10.1175/bams-d-15-00142.1.
- Wilson, T. W., B. J. Murray, R. Wagner, O. Moehler, H. Saathoff, M. Schnaiter, J. Skrotzki, H. C. Price, T. L. Malkin, S. Dobbie, and S. M. R. K. Al-Jumur. 2012: Glassy aerosols with a range of compositions nucleate ice heterogeneously at cirrus temperatures, 12: 8611-32, doi: 10.5194/acp-12-8611-2012.