Zusammenfassung

Atmosphärische Aerosole haben einen wichtigen Einfluss auf die Strahlungsbilanz und damit auf das Klima der Erde. Aerosolpartikel streuen und absorbieren einfallende solare und terrestrische Strahlung. Abgesehen von diesem direkten Effekt sind sie auch Wolkenkondensationskeime (CCN) und beeinflussen dadurch die Mikrophysik von Wolken. In vielen Regionen machen sekundäre organische Aerosole (SOA) einen großen Anteil der Gesamtaerosolmasse aus. Sie sind hauptsächlich Produkte der Oxidation von biogenen flüchtigen organischen Verbindungen.

In der vorliegenden Arbeit wurde das hygroskopische Wachstum und die CCN-Aktivierung von biogenem SOA untersucht, das durch die Oxidation von VOCs mit Ozone und photochemische gebildeten OH-Radikalen bei geringen NO_x Konzentrationen hergestellt wurde. Zu diesem Zweck wurden in der Jülich Plant Atmosphere Chamber (JPAC) komplexe Mischungen von VOCs, die von für boreale Wälder typischen Baumarten emittiert wurden, als Vorläufer verwendet. In Langzeitstudien in der Atmosphärensimulationskammer SAPHIR wurden α -Pinen oder eine Mischung mit gleichen Anteilen von α -Pinen, β -Pinen, Limonen, Ocimen und Δ -3-Caren als Vorläufer benutzt. Die VOC-Startkonzentrationen lagen zwischen 40 und 1000 ppbC.

Das hier untersuchte SOA war wenig hygroskopisch und der mittlere Hygroskopizitätparameter lag bei $\kappa(\text{CCN}) = 0.10 \pm 0.02$ und $\kappa(90\% RH) = 0.05 \pm 0.01$. Die Messungen des hygroskopischen Wachstums und der CCN-Aktivität konnten zur Deckung gebracht werden unter der Annahme von reduzierter Oberflächenspannung, begrenzter Löslichkeit oder Nichtidealität der Lösung im untersättigten Regime. SOA-Lösungen, die mit RH < 95% im Gleichgewicht sind, sind wahrscheinlich hoch nichtideal. Deshalb wurden die Wasser-Organik-Wechselwirkungen mit dem UNIFAC-Model untersucht. Berechnungen mit Surrogatverbindungen ergaben die gleiche starke Konzentrations- bzw. RH-Abhängigkeit von κ bei Untersättigung. Für die Anpassung der Wachstumskurven und die Vorhersage der CCN-Eigenschaften wurde ein binäres Wasser-Organik-System angenommen und das Auftreten der funktionellen Gruppen in dieser hypothetischen Verbindung angepasst. Allerdings werden weitere Angaben zur Oberflächenspannung und dem Verhältnis von Molmasse und Dichte des gelösten Stoffs benötigt, um aus Messungen des hygroskopischen Wachstums die Aktivierungseigenschaften abzuleiten.

Es wurde eine Abhängigkeit von κ vom Verhältnis aus OH-Primärproduktion und VOC-Startkonzentration festgestellt. Die höhere κ -Werte bei niedrigen Vorläuferkonzentrationen konnte dem ebenfalls höheren OH/VOC-Level zugeschrieben werden. Die genaue chemische Zusammensetzung der Vorläufersubstanzen hatte nur einen geringen Einfluss auf κ . In Langzeitstudien hatte die beobachtete chemische

Alterung der Partikle keinen signifikanten Effekt auf κ . Die beobachtete geringe Varabilität von κ erleichtert die Einbindung in globale Modelle, da ein mittlerer Wert von $\kappa=0.1$ angenommen werden kann.