Messung der Eigenschaften atmosphärischer Aerosole

Wissen für Morgen

Fernerkundung und In-situ Messungen

Daniel Sauer

Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt Institut für Physik der Atmosphäre, Oberpfaffenhofen

Fortbildungtag der DMG Sektion München 22. November 2019



Überblick

- Wesentliche messbare Aerosoleigenschaften
- Messmethoden Fernerkundung vs. In-situ Messungen
- Fernerkundungsmessungen
 - Passive Fernerkundung
 - Aktive Fernerkundung
- In-situ Messungen
 - Messplattformen und Einlasssysteme
 - Messtechniken für physikalisch/optische Aerosoleigenschaften
- Zusammenfassung







Messbare Aerosoleigenschaften





Eigenschaften von Aerosolpartikeln

- Anzahlkonzentrationen \rightarrow Partikelzahl pro Volumen Luft
- Größe bzw Größenverteilung, Oberfläche, Volumen
- Dichte → Masse
- Partikelformen, Oberflächenbeschaffenheit
- Optische Eigenschaften Brechungsindex, (Streueigenschaften, Absorption) → "Farbe"
- Benetzung von Partikeln mit flüchtigen Substanzen
- Flüchtigkeit, Verdampfungspunkt
- Hygroskopizität, Benetzbarkeit, Eiskeimeigenschaften
- Chemische Zusammensetzung, Material
- Chemische Reaktivität → Alterungsprozesse





Eigenschaften von Aerosolpartikeln Konzepte für Partikelgrößen

- Nachweisverfahren über Partikelverhalten bei externen Einflüssen oder direkte Partikeleigenschaften
- In der Regel wird ein Durchmesser einer Kugel angenommen, die die jeweils gemessenen Eigenschaften hat -> Äquivalenzdurchmesser Tatsächliche Partikelform oft nicht kugelförmig!
- Unterschiedliche Definitionen müssen beim Vergleich der Ergebnisse verschiedener Messverfahren beachtet werden.







Grobe Einteilung in **Größenklassen**, zB basierend auf biologischer Wirksamkeit (→ Anhaltspunkt für **Luftqualität**) → Grobstaub (D>10µm), Feinstaub (D<10µm), ultrafeine Partikel (D<0.1µm) → Üblicherweise Angabe der Gesamtmasse im jeweiligen Größenbereich

Für **quantitativere Anwendung** in der Wissenschaft: Bestimmung einer **Partikelgrößenverteilung**

→ Histogramm der Häufigkeit von Partikeln eines bestimmten Größenbereiches, bzw daraus abgeleitet, das Volumen (→Masse) in dem Größenbereich





Grobe Einteilung in **Größenklassen**, zB basierend auf biologischer Wirksamkeit (→ Anhaltspunkt für **Luftqualität**) → Grobstaub (D>10µm), Feinstaub (D<10µm), ultrafeine Partikel (D<0.1µm) → Üblicherweise Angabe der Gesamtmasse im jeweiligen Größenbereich

Für quantitativere Anwendung in der Wissenschaft:
Bestimmung einer Partikelgrößenverteilung
→ Histogramm der Häufigkeit von Partikeln eines bestimmten Größenbereiches, bzw daraus abgeleitet, das Volumen (→Masse) in dem Größenbereich







Grobe Einteilung in **Größenklassen**, zB basierend auf biologischer Wirksamkeit (\rightarrow Anhaltspunkt für **Luftqualit** \rightarrow Grobstaub (D>10µm), Feinstaub (D<10µm), ultrafeine Pa \rightarrow Üblicherweise Angabe der Gesamtmasse im jeweiligen G

Für quantitativere Anwendung in der Wissenschaft:
Bestimmung einer Partikelgrößenverteilung
→ Histogramm der Häufigkeit von Partikeln eines bestimmten Größenbereiches, bzw daraus abgeleitet, das Volumen (→Masse) in dem Größenbereich





Grobe Einteilung in **Größenklassen**, zB basierend auf biologischer Wirksamkeit (\rightarrow Anhaltspunkt für **Luftqualit** \rightarrow Grobstaub (D>10µm), Feinstaub (D<10µm), ultrafeine Pa \rightarrow Üblicherweise Angabe der Gesamtmasse im jeweiligen G

Für quantitativere Anwendung in der Wissenschaft:
Bestimmung einer Partikelgrößenverteilung
→ Histogramm der Häufigkeit von Partikeln eines bestimmten Größenbereiches, bzw daraus abgeleitet, das Volumen (→Masse) in dem Größenbereich





Eigenschaften von Aerosolpartikeln Messprinzipien nach Größenbereichen



Minikin et al. (2012)

Eigenschaften von Aerosolpartikeln Messprinzipien nach Größenbereichen



Eigenschaften von Aerosolpartikeln Optische Eigenschaften – Wechselwirkung mit Strahlung

- Einfallendes Licht wird an Aerosolpartikeln gestreut oder absorbiert
- Streuung, Absorption und deren Wellenlängenabhängigkeit werden durch die optischen Eigenschaften der Aerosole beschrieben

$$I(\lambda, z) = I_{o}(\lambda) exp\left(-\int \alpha_{ext}(\lambda, z) dz\right)$$



Beer–Lambert–Bouguer Gesetz → Abschwächung von Licht in einem Medium



Eigenschaften von Aerosolpartikeln Optische Eigenschaften – Aerosol Optische Dicke

Charakterisierung der "Aerosol-Menge" in der gesamten atmosphärischen Säule

- AOD Aerosol Optical Depth
 - → Optische Messung der Abschwächung von Licht durch Aerosolschichten (wellenlängenabhängig)

Typische Werte:

- 0.02 saubere, abgelegene Gebiete
- 0.2 saubere urbane Umgebung
- 0.4 leicht verschmutzte urbane Umgebung
- 0.6 stark verschmutzte urbane Umgebung
- 1.5 hohe Aerosolbelastung,

zB durch Waldbrand oder Mineralstaub





0.05 0.00 0.05 0.10 0.15 0.20 0.25 0.30 0.35 0.40 0.45 0.50 1.00

AOD

Grundlegende Messansätze

Fernerkundung → Charakterisierung "aus der Ferne"

- Messung primär über Strahlungseigenschaften
- Größere Räumliche Abdeckung Satelliten → global Stationär → atmosphärische Säule
- Lange Zeiträume
- Geringe Ortsauflösung
- Nur wenige Parameter
- Limitationen Wetter (Wolken), Oberflächen, etc
- zT große Messunsicherheiten

In-Situ Messungen → Messung "am Ort"

- Andere Wechselwirkungen möglich
- Geringe räumliche Abdeckung \rightarrow Punktmessung
- Kurze Messsequenzen (Kampagnen) oder ortsfeste Langzeitmessungen
- Spezifische Messsituationen
- Viele Parameter erfassbar
- Gezielte Erfassung bestimmter Prozesse



Kombination von beidem: Validierung, Interpretation und Optimierung von Fernerkundungsmethoden mit in-situ Messungen für große räumliche/zeitliche Abdeckung

Aerosolfernerkundung





Passive Fernerkundung





Source: Boucher, Atmospheric Aerosols – Properties and Climate Impact

Passive Fernerkundung

MODIS – Moderate Resolution Imaging Spectrometer

- Instrumente auf NASA Satelliten TERRA und AQUA
- Strahlungsmessung in 36 Kanälen mit Wellenlängen zwischen 0.41 und 15µm – 8 davon zur Aerosolerkennung

 Polarer Orbit

 → Erfassung der gesamten Erde innerhalb von 2 Tagen





https://worldview.earthdata.nasa.gov



Passive Fernerkundung

MODIS – Moderate Resolution Imaging Spectrometer

- Instrumente auf NASA Satelliten TERRA und AQUA
- Strahlungsmessung in 36 Kanälen mit Wellenlängen zwischen 0.41 und 15µm – 8 davon zur Aerosolerkennung
- Polarer Orbit

 → Erfassung der gesamten Erde innerhalb von 2 Tagen





Ostküste Australiens am 14. Nov 2019 - MODIS True Color - AOD Overlay

https://worldview.earthdata.nasa.gov



Passive Fernerkundung MODIS – Moderate Resolution Imaging Spectrometer

- Trennung von Grobpartikeln und Feinmode über Vergleich der Beobachtung bei verschiedene Wellenlängen
- in kurzwelligem Licht
 → Staub und Rauch sichtbar
- In langwelligem Licht:
 → nur Staub sichtbar

MODIS, Dust over Sahara, (R: 0.66μm, G: 0.55μm, E: 0.47μm) Staub

MODIS, Smoke over Australia, Dec. 25, 2001 (359.2345)

Rauch

Mid IR

(R: 2.13µm, G: 1.64µm, B: 1.24µm)

visible

(R: 0.66 μ m, G: 0.55 μ m, E: 0.47 μ m)

visił







Passive Fernerkundung Sonnenphotometer

Direkte Messung der Strahlungsintensität von der Sonne → Aerosol Optische Dicke Messung typischerweise bei verschiedenen Wellenlängen → Bestimmung des Angström-Exponenten





Passive Fernerkundung Sonnenphotometer

Durch Messung der Strahlung aus verschiedenen Winkelbereichen um die Sonne → Ableitung zusätzlichen Aerosoleigenschaften





Fig. 12.9: Similar to Fig. 12.8, but plotted as $\log[p(\Theta)]$ so as to better accommodate the extreme variations in the amplitude of the phase function for large x. Commonly observed optical features associated with the phase function are indicated. Note the δ -function-like characteristic of the forward and backward peaks for the largest values of x.



Passive Fernerkundung Sonnenphotometer

Durch Messung der Strahlung aus verschiedenen Winkelbereichen um die Sonne → Ableitung zusätzlichen Aerosoleigenschaften





AERONET – Aerosol Robotic Network

- → Bodengebundenes weltweites Netzwerk von Sonnenphotometern
- → Reichhaltiger Datensatz aus ~25Jahren automatisierter Beobachtungen von Aerosoleigenschaften



https://aeronet.gsfc.nasa.gov/



Aktive Fernerkundung – Lidar "Light Detection and Ranging"

Scattering volume





Time/Distance

S. Groß

Aktive Fernerkundung – Lidar Einfaches Rückstreulidar - Ceilometer



Bestimmung von Wolken und dickeren Aerosolschichten

→ Flächendeckendes Beobachtungsnetzwerk



14:00

16:00

18:00

20:00

22:00

14.00

16:00

18.00

20.00

22.00

-0.50

-1.25

-2.00

-2.75

-3 50

DWD Ceilometernetzwerk



https://www.dwd.de/DE/forschung/atmosphaerenbeob /zusammensetzung_atmosphaere/aerosol/inh_nav/aer osolprofile_node.html





$$P(r) = P'_0 \eta \left(\frac{A}{r^2}\right) \left(\frac{c\Delta\tau}{2}\right) O(r) \beta(r) T(r,\lambda)$$



$$P(r) = P'_0 \eta \left(\frac{A}{r^2}\right) \left(\frac{c\Delta\tau}{2}\right) O(r)\beta(r) \exp\left(-2\int_0^r \alpha(r,\lambda) dr\right)$$

Lidar Systemparameter





$$P(r) = P'_0 \eta \left(\frac{A}{r^2}\right) \left(\frac{c\Delta\tau}{2}\right) O(r) \beta(r) \exp\left(-2\int_0^r \alpha(r,\lambda) dr\right)$$

Lidar Systemparameter Atmosphäre
Rückstreukoeffizient Transmission



$$P(r) = P'_0 \eta \left(\frac{A}{r^2}\right) \left(\frac{c\Delta\tau}{2}\right) O(r) \beta(r) \exp\left(-2 \int_0^r \alpha(r,\lambda) dr\right)$$

Lidar Systemparameter Atmosphäre



Rückstreukoeffizient Transmission Rückstreukoeffizient β und Extinktion α enthalten Informationen über die Eigenschaften der streuenden Partikel

Definition Lidar-Verhältnis: $S = \frac{\alpha_{aer}}{\beta_{aer}} \rightarrow$ notwendig zu Ableitung von Aerosoleigenschaften

→ S aus Annahmen über Annahmen oder über direkte Messung:

Raman-Streusignal oder High-Spectral-Resolution Lidar Technik

Aktive Fernerkundung – Lidar Weitergehende Techniken

Zusätzliche Informationen über Aerosoleigenschaften durch

- Nutzung mehrerer Wellenlängen
- Auswertung des Signals elastischer Streuvorgänge (Raman-Streuung)
- Trennung von Molekül- und Partikelstreuung durch schmal-bandige Filter (High-Spectral-Resolution Lidar)
- Nutzung der Änderung in der Polarisation des rückgestreuten Lichts



Time/hh:mm



Groß et al., 2012



Validierung von Fernerkundungsmessungen

Durch koordinierte in-situ Messungen können Datenretrival-Algorithmen valdiert werden.

→ Überflüge über Lidar-Stationen
→ Satelliten-Unterfliegungen





Validierung von Fernerkundungsmessungen

Durch koordinierte in-situ Messungen können Datenretrival-Algorithmen valdiert werden.

- → Überflüge über Lidar-Stationen
- → Satelliten-Unterfliegungen



Validierung von Fernerkundungsmessungen

Durch koordinierte in-situ Messungen können Datenretrival-Algorithmen valdiert werden.

- → Überflüge über Lidar-Stationen
- → Satelliten-Unterfliegungen



SALTRACE: 11 Jul 2013 (high dust load) & 8 Jul 2013 (low dust load)



In-situ Messungen





Veränderung der Aerosolgrößenverteilung durch Messung



Eine gute Charakterisierung des Messsystems hinsichtlich Detektionseffizienz und Partikelverluste ist unerlässlich, um auf die ursprünglichen Aerosoleigenschaften in der Atmosphäre rückschließen zu können!



Baron and Willeke, Aerosol Measurement, 2001.

Verluste in Einlässen und Leitungen



von der Weiden et al, (2009)

Sammeleffizienz des Gesamtsystems ergibt sich aus dem Produkt der Effizienzen der Einzelkomponenten → Detaillierte Charakterisierung aller Verlustprozesse wichtig!

Verluste in Einlässen und Leitungen



Sammeleffizienz des Gesamtsystems ergibt sich aus dem Produkt der Effizienzen der Einzelkomponenten → Detaillierte Charakterisierung aller Verlustprozesse wichtig!

Einlasssysteme für Flugzeugmessungen



Einlasssysteme für Flugzeugmessungen HALO Aerosoleinlass – HASI (HALO Subr

Ziel: Messung von interstitiellen sub-mikrometer Aerosolen unter Erhaltung der Größenverteilung

➔ Isokinetischer Einlass

- Verlangsamung des Luftstroms
- Abgriffe der Probenluft mit gleicher Geschwindigkeit
- Vermeidung von scharfen Kurven und zu langen Leitungen zur Reduktion von Partikelverlusten

Einlasssysteme für Flugzeugmessungen HALO Aerosoleinlass – HASI (HALO Subr

Ziel: Messung Aerosolen unte

➔ Isokinetisc

- Verlangs:
- Abgriffe c Geschwii
- Vermeidu langen Le Partikelve

Einlasssysteme für Flugzeugmessungen Counterflow Virtual Impactor Inlet

Gezieltes Sammeln von **Wolkentropfen** und **Eispartikeln**.

Verdampfen des Wassers im Einlasssystem

→ Analyse der zurückbleibenden Aerosolpartikel mit entsprechenden Geräten

In-situ Messmethoden - Kondensationspartikelzähler

In-situ Messmethoden - Kondensationspartikelzähler Gesamtpartikelkonzentrationen

Partikel werden in eine dampfübersättigten Atmosphäre gebracht und wachsen dort bis zu Streulicht-detektierbaren Größen an.

→ Gesamtpartikelanzahl oberhalb eines charakteristischen "Cut-off" Durchmessers

- → Sehr kleine Partikel (bis < 5nm) nachweisbar
- → Keine direkte Größeninformation
- → Indirekte Größeninformation durch Abhängigkeit des Cutoffs von der Temperaturdifferenz zwischen Saturator und Kondensator.

In-situ Messmethoden - Kondensationspartikelzähler Gesamtpartikelkonzentrationen

Partikel werden in eine dampfübersättigten Atmosphäre gebracht und wachsen dort bis zu Streulicht-detektierbaren Größen an.

→ Gesamtpartikelanzahl oberhalb eines charakteristischen "Cut-off" Durchmessers

- \rightarrow Sehr kleine Partikel (bis < 5nm) nachweisbar
- → Keine direkte Größeninformation
- → Indirekte Größeninformation durch Abhängigkeit des Cutoffs von der Temperaturdifferenz zwischen Saturator und Kondensator.

In-situ Messmethoden – Größenaufgelöste Messung mit einem Elektrostatischen Klassifizierer (DMA - Differential Mobility Analyzer)

In-situ Messmethoden – Größenaufgelöste Messung mit einem Elektrostatischen Klassifizierer (DMA - Differenti

Bestimmung physikalisch-chemischer Aerosoleigenschaften Volatitilät und Mischungszustand

Durch Heizen der Probenluft können leicht-flüchtige Partikel entfernt werden → Information über Mischungszustand des Gesamtaerosols

Nicht-volatile Komponenten Mineralstaub, Seesalz, Ruß,... Volatile Komponenten \bigcirc Schwefelsäure, Sulfate, flüchtige organische Substanzen,...

Mischungszustände extern

intern

non-vol. mit coating oder Kombinationen daraus

Bestimmung physikalisch-chemischer Aerosoleigenschaften Volatitilät und Mischungszustand

non-vol. mit coating oder Kombinationen

daraus

Durch Heizen der Probenluft können leicht-flüchtige Partikel entfernt werden

→ Information über Mischungszustand des Gesamtaerosols

Nicht-volatile Komponenten Mineralstaub, Seesalz, Ruß,... Volatile Komponenten Schwefelsäure, Sulfate, flüchtige organische Substanzen,...

intern

extern

Mischungszustände

Größenaufgelöste Messungen mit Streulichtspektrometern

Größenaufgelöste Messungen mit Streulichtspektrometern Streuung von Licht an Partikeln

Grundprinzip

Die Intensität von an Partikeln gestreutem Licht in einem bestimmten Winkelbereich hängt u.a. vom Partikeldurchmesser ab.

Aber: Zusätzlich müssen viele andere Parameter als bekannt vorausgesetzt werden

Größenaufgelöste Messungen mit Streulichtspektrometern Streuung von Licht an Partikeln

Grundprinzip

Die Intensität von an Partikeln gestreutem Licht in einem bestimmten Winkelbereich hängt u.a. vom Partikeldurchmesser ab.

Aber: Zusätzlich müssen viele andere Parameter als bekan vorausgesetzt werden

Größenaufgelöste Messungen mit Streulichtspektrometern Beispiel

Cloud and Aerosol Spectrometer CAS-DPOL

Forward/Backscatter Sensor Optical Path Diagram

DMT Inc. http://www.dropletmeasurement.com

Größenaufgelöste Messungen mit Streulichtspektrometern

Mit Streulichtspektrometern lassen sich, je nach Messgeometrie und verwendeter Lichtquelle, Partikel größenaufgelöst zwischen ca 90nm und 50-100µm messen.

Die korrekte Interpretation erfordert Informationen über das Messsystem aber auch über die optischen Eigenschaften der Partikel selbst!

Optische Eigenschaften Streuung und Absorption

Particle soot absorption photometer Multi-angle absorption photometer Tricolor-Absorption-Photometer

Absorptionseigenschaften des Gesamtaerosols

→ Messung der Transmission von Licht verschiedener Wellenlängen durch Filter

Nephelometer

(Winkelabhängige) Streueigenschaften eines großen Volumens Probenluft

Rußmassenbestimmung mit Laser Induced Incandescence (LII)

Grundprinzip

Bestimmung von Rußmassen durch Verdampfung von Rußpartikeln in einem starken Laser und Nachweis der emittierten Wärmestrahlung.

Beispiel: Single Particle Soot Photometer (SP2)

➔ Einzelpartikelmessung von Rußpartikeln zwischen 90nm und 800nm

Zusammenfassung und weitere Gedanken

- Aerosolphysik und -chemie ist ein weites Feld mit vielen Aspekten!
- Es gibt noch viele weitere Methoden und Strategien zur Aerosolcharakterisierung als hier gezeigt
- Aerosolmessungen komplex und zum Teil schwer zu interpretieren
- Kombination komplementärer Messungen, sowie in-situ und Fernerkundungs-Ansätze hilft Unsicherheiten zu reduzieren
- Messunsicherheiten v.a. bei Feldmessungen f
 ühren zu großen Unsicherheiten zB in Klimamodellen
 - \rightarrow In vielen Punkten noch erheblicher Forschungsbedarf
 - \rightarrow gezielte Messungen helfen, das Prozessverständnis zu verbessern

. (3

VIELEN DANK FÜR IHRE AUFMERKSAMKEI

Chemische Zusammensetzung – Aerosolmassenspektrometer

Beispiel: Compact Time-of-Flight Aerosol Mas

- Massenspektren → chemische Zusammensetzi
- Größenverteilungen, chemisch aufgelöst
- Zeitreihen und relative Anteile der Massenkonze
- Einzelpartikel-Spektren
- Größenbereich: ca. 40 nm 1 μm
- Quantitative Messung von Konzentrationen
- Zeitreihen
- Größenverteilungen
- Auch Einzelpartikelanalyse möglich
- Weitere Auftrennung der Organik durch mathematische Nachanalyse möglich

Turbomolekularpumpe

Analog-Digital-

Wandler

Verdampfer (ca. 600°C)

Elektronenstoß, 70 eV

Ionenguelle

Turbomolekularpumpe

Optische Detektion

PC

HV Pulser

Zeitgeber

Vorverstärker

Gepulste Extraktion

Chemische Zusammensetzung – Aerosolmassenspektrometer

