

## 2 Einleitung

Die Meldung der kontinuierlichen Abnahme des Ozongehaltes in der winterlichen antarktischen Stratosphäre durch Farman et al. (1985) kam überraschend. So sollten doch gerade im Winter die chemischen Reaktionen, die zu einem Abbau des Ozons führen können, besonders langsam ablaufen. Das Phänomen des Ozonabbaues war mit chemischen Reaktionen, bei denen nur Gase beteiligt sind, nicht erklärbar. Auf der Oberfläche von Wolkentropfen können jedoch manche Reaktionen sehr viel effizienter ablaufen. Bei diesen heterogenen chemischen Reaktionen wird aus Chlorverbindungen molekulares Chlor freigesetzt, das zu einem massiven photochemischen Ozonabbau im Frühjahr führt, wenn die Sonne in den polaren Gebieten wieder scheint. Auch wenn diese Prozesse schon recht bald erkannt wurden, stellt ihre Untersuchung und Beschreibung eine große Herausforderung an die Forschung dar. In einem ersten Schritt muß herausgefunden werden, aus welchen Substanzen die stratosphärischen Wolken bestehen, wann sie entstehen und durch welche Prozesse die Wolkentropfen gefrieren können. Gefrorene Tropfen können sich in ihren Eigenschaften bei heterogenen chemischen Reaktionen von flüssigen Tropfen unterscheiden. In einem zweiten Schritt müssen Untersuchungsmethoden entwickelt werden, um die chemischen Prozesse auf den Wolkenteilchen in Laboruntersuchungen nachzuvollziehen. Erst dann kann die Rolle der stratosphärischen Wolken vollständig in Modelle einbezogen werden, die das Ausmaß der Zerstörung des Ozons zu beschreiben vermögen. Heute zeigen Messungen, daß der Ozonabbau in der arktischen Stratosphäre ähnliche Ausmaße annimmt wie 1985 in der Antarktis, als Farman et al. die Ozonzerstörung entdeckten.

Daher haben wir uns entschlossen, ein Experiment aufzubauen, um die physikalischen und chemischen Eigenschaften von Wolkentropfen zu untersuchen. Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit Experimenten zu dem Gefrierprozeß in Tropfen, wie sie in stratosphärischen Wolken vermutet werden. Diese Untersuchungen sollten nicht nur aufklären, wann und auf welche Weise die Wolkentropfen gefrieren, sondern auch im Vergleich mit Messungen in der Stratosphäre herausfinden, aus welchen Zusammensetzungen die Wolken bestehen. Diesem Ziel sind wir ein gutes Stück näher gekommen. Dazu haben wir eine neue Untersuchungsmethode entwickelt, die die Beobachtung von Tropfen unter stratosphärischen Verhältnissen über lange Zeiträume hinweg ermöglicht. Der Gefrierprozeß in Wolkentropfen unterscheidet sich wesentlich von Flüssigkeiten in einem Gefäß, da die Gefäßwände leicht das Gefrieren der Flüssigkeit einleiten können. Wolkentropfen aus reinem Wasser gefrieren daher erst

bei etwa  $-37^{\circ}\text{C}$ . Um Tropfen freischwebend über lange Zeit beobachten zu können, werden sie leicht geladen und können dann in einer Quadrupolfalle gefangen werden. Diese Falle befindet sich in einer Klimakammer, in der stratosphärische Verhältnisse von Temperatur und Druck realisiert werden können. Eine spezielle Spritze erzeugt die Tropfen aus der Flüssigkeit, die untersucht werden soll. Während die Klimakammer auf stratosphärische Temperaturen abgekühlt ist, können die Tropfen in die Falle injiziert werden. Die Analyse der Lichtstreuung am Tröpfchen ermöglichen es, selbst kleine Gewichtsänderungen des Tropfens zu detektieren, seine Größe zu messen und den Brechungsindex der Flüssigkeit zu bestimmen. Darüber hinaus kann festgestellt werden, wann der Tropfen gefriert und wie lange der Gefrierprozeß andauert.

Zuerst haben wir untersucht, welchen Einfluß die Ladung der Tropfen auf das Verdampfen hat. Hohe Ladungsdichten können das Verdampfen der Tropfen unterbinden oder führen zu einer Instabilität der Tropfen. Bei Ladungsdichten, die für die Speicherung in der Falle notwendig sind, konnte aber keine Veränderung bei dem Gefrierprozeß und der Verdampfungsgeschwindigkeit beobachtet werden. Daher nehmen wir an, daß sich unsere Messungen auf Wolkentropfen übertragen lassen. Stratosphärische Wolken können in hohem Maße Schwefelsäure enthalten. Daher wurde untersucht, wie der Gehalt an Schwefelsäure die Temperatur erniedrigt, bei der der Gefrierprozeß einsetzt. Bei tiefen Temperaturen, die in der winterlichen Stratosphäre erreicht werden, kann auch in hohem Maße Salpetersäure in die Wolkentropfen aufgenommen werden. In der Stratosphäre werden dann Wolken sowohl aus flüssigen als auch gefrorenen Tropfen beobachtet. Um den Prozeß zu verstehen, der zum Gefrieren dieser Wolkentropfen führt, haben wir Tropfen aus Schwefelsäure, Salpetersäure und Wasser untersucht. Einige Wolkentropfen tragen auch Verunreinigungen in sich, die das Gefrieren einleiten können. Diese Prozesse wurden im Experiment erforscht, in dem in die flüssigen Tropfen kleine Eiskristalle eingebracht wurden. Ein solches heterogenes Gefrieren kann erklären, warum Wolken gefrieren können, auch wenn ein homogenes Gefrieren von reinen Flüssigkeiten in den Tropfen nicht möglich ist.

Das Ergebnis dieser Experimente im Zusammenhang mit den Beobachtungen an stratosphärischen Wolken zeigt, unter welchen Umständen die Wolken gefrieren können und aus welchen Zusammensetzungen sie in ihrer flüssigen wie festen Phase bestehen können.