

Kapitel 1

Einleitung

Globale Veränderungen des Klimas durch anthropogene Veränderungen sind heute ebenso unbestritten, wie die gesundheitliche Bedenklichkeit lokaler Schadstoffemissionen. Es steht fest, dass Aerosole in der Atmosphäre eine wichtige Rolle spielen. Sie beeinflussen einerseits die Gesamtstrahlungsbilanz der Erde über ihre optischen Eigenschaften, ein Einfluss, der über die Mie-Theorie verstanden ist. Damit stellen Aerosole einen direkten Faktor im Wärmehaushalt der Erde dar, welcher in Prognosen zur künftigen globalen Temperaturentwicklung berücksichtigt werden muss. Andererseits können an der Oberfläche oder im Inneren von Aerosolen chemische Reaktionen stattfinden. Am Beispiel der Chemie, die zur Zerstörung des stratosphärischen Ozons führt, wird die Bedeutung heterogener chemischer Reaktionen für die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre deutlich. Aus dieser Zusammensetzung ergeben sich weitere Effekte, welche die Biosphäre und den Strahlungshaushalt beeinflussen. Welche heterogenen Reaktionen tatsächlich in einem relevanten Ausmaß stattfinden, ist eine noch weitgehend unbeantwortete Frage.

Um diese Frage zu beantworten, bedarf es einer komplexen Modellierung der atmosphärischen Dynamik und Chemie. Große Fortschritte ergeben sich hier durch die Berechnungen von Höchstleistungsrechenzentren. Die Qualität einer Modellierung hängt von einer möglichst genauen Kenntnis der Randbedingungen ab. Dies bedeutet, dass Energie- und Stoffeinträge in die Atmosphäre durch quantitative Feldmessungen bestimmt werden müssen. Außerdem bedarf es der Feldmessungen, um die Vorhersagen der Modelle zu überprüfen, so dass die Modelle selbst optimiert werden können.

Neben den Randbedingungen fließen in diese Modelle mikrophysikalische und chemische Eigenschaften der Atmosphäre ein. Dies sind u.a. Reaktionskonstanten, Raten für Stoff- und Energietransport, sowie die optischen Eigenschaften. Die Bestimmung dieser Parameter ist die Domäne der Laboruntersuchungen. Das Zusammenspiel der 3 Säulen der Atmosphärenphysik wird in Abbildung 1.1 verdeutlicht.

Zum Verständnis atmosphärisch relevanter Prozesse, an denen Aerosolpartikel beteiligt sind, haben sich Laboruntersuchungen an einzelnen, levitier-

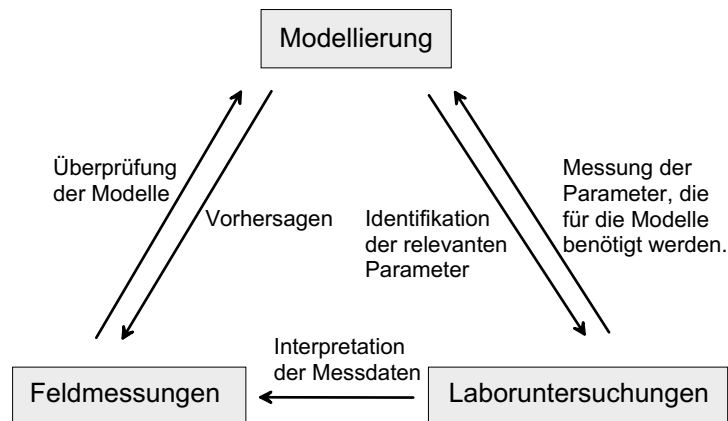


Abbildung 1.1: Die drei Säulen der Atmosphärenphysik und ihre wechselseitige Beziehung.

ten Mikropartikeln in einer entsprechend regulierten Atmosphäre etabliert. Durch die Levitation werden Effekte durch Wandkontakte ausgeschlossen. Dies ist besonders interessant, wenn metastabile Zustände wie Unterkühlung und Übersättigung untersucht werden sollen.

Im Laborexperiment können alle relevanten Einflüsse wie Temperatur, Zusammensetzung und Größe der Aerosolpartikel kontrolliert werden.

In der Arbeitsgruppe Wöste wurden in den vergangenen Jahren zahlreiche Untersuchungen an einzelnen, elektrodynamisch levitierten Mikropartikeln durchgeführt. Die schwach geladenen Mikropartikel können dabei unter atmosphärisch realistischen Bedingungen über Tage ortsfest gespeichert werden. Die bisherige Untersuchungsmethode war die Mie-Streuung. Für sphärische Partikel läßt sich aus der Analyse der Winkelverteilung von gestreutem Laserlicht Größe und Brechungsindex zeitaufgelöst bestimmen. Auf diese Weise konnte der Gefrierprozess unterkühlter Mikrotropfen, sowie die Gasaufnahme in Mikropartikel quantitativ verfolgt werden.

Heterogene chemische Reaktionen sind mit dieser Methode jedoch nicht zugänglich. Diese lassen sich im Prinzip in Echtzeit und zerstörungsfrei durch optische Techniken wie Infrarot- und Raman-Spektroskopie untersuchen. Beide Ansätze werden seit kurzer Zeit in der Arbeitsgruppe Wöster verfolgt. Eine besondere Herausforderung ist dabei die geringe Stoffmenge und die Kugelgestalt der Probe.

Im Rahmen dieser Arbeit werden die Möglichkeiten und Grenzen der Infrarotspektroskopie an einzelnen Mikropartikeln erkundet. Neben der klassischen Transmissionsspektroskopie wurde eine Variante der optothermischen Spektroskopie zur Untersuchung einzelner Mikropartikel entwickelt. Diese Methode wurde dann auch auf den sichtbaren Spektralbereich angewendet.

Die Arbeit beginnt demnach mit der Vorstellung der Theorien, die zu einem Verständnis der im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Methoden und den daraus resultierenden Spektren von Mikropartikeln notwendig sind. In Ka-

pitel 2 wird ein Überblick über das Forschungsgebiet der atmosphärischen Aerosole im Hinblick auf Laborexperimente gegeben.

Im Kapitel 3 wird die Mie-Theorie dargestellt und eigene Berechnungen der Feldverteilung im Innern des Mikrotropfens diskutiert. Über die Mie-Theorie ist es prinzipiell möglich, die Spektren der Mikrotropfen exakt zu berechnen. Begrenzt wird diese Möglichkeit jedoch dadurch, dass der komplexe Brechungsindex (bzw. die komplexe dielektrische Funktion) in diesem Wellenlängenbereich nur für wenige Systeme tabelliert vorliegt.

In Kapitel 4 wird das Prinzip der Wirkungsspektroskopie, eines indirekten Nachweises der Absorption, vorgestellt. Die notwendigen theoretischen Grundlagen der Erwärmung des Tropfens und der anschließenden Größenänderung werden dargestellt.

In Kapitel 5 wird der experimentelle Aufbau beschrieben, dabei wird in Abschnitt 5.1 kurz die Theorie der elektrodynamischen Falle eingeführt.

In Kapitel 6 werden die Ergebnisse der Transmissionspektroskopie an Tropfen vorgestellt. Die Spektren werden mit theoretischen Berechnungen verglichen und interpretiert. Die Anwendungsmöglichkeiten des Messverfahrens werden diskutiert. In Kapitel 7 werden die Ergebnisse der Wirkungsspektroskopie bei Anregung mit infraroter Strahlung und in Kapitel 8 die Ergebnisse dieser Methode bei Anregung im sichtbaren Bereich des elektromagnetischen Spektrums angegeben. Für beide Experimente lässt sich die Absorption über die Wirkungsspektroskopie nachweisen. In Kapitel 9 wird mit den erzielten Ergebnissen die Empfindlichkeit und die Anwendungsbereiche der Methode ausgelotet. In Kapitel 10 sind die Untersuchungen an Mikropartikeln aus einer kolloidalen Goldlösung zusammengefasst. Hier beschreibe ich insbesondere einen neuen Effekt der Wechselwirkung von Gold-Nanopartikeln mit gepulster Laserstrahlung.

