
Charakterisierung von Verschmutzungsaerosolen bezüglich der mikrophysikalischen Eigenschaften in Europa und Asien während der EMeRGe-Kampagne

Jennifer Wolf



München 2022

Charakterisierung von Verschmutzungsaerosolen bezüglich der mikrophysikalischen Eigenschaften in Europa und Asien während der EMeRGe-Kampagne

Jennifer Wolf

Dissertation
an der Fakultät für Physik
der Ludwig-Maximilians-Universität
München

vorgelegt von
Jennifer Wolf
aus Hanau

München, den 10.11.2022

Erstgutachter:

Prof. Dr. Markus Rapp

Zweitgutachter:

Prof. Dr. Christiane Voigt

Tag der mündlichen Prüfung:

26.01.2023

Zusammenfassung

Die Prozesse von anthropogenen Aerosolen und ihr Beitrag zur anthropogenen Erwärmung sind immer noch mit großen Unsicherheiten verbunden. Um diese Unsicherheiten zu minimieren, sind gezielte Messungen zur Charakterisierung der Verschmutzungsaerosole nötig, welche dann für die Validierung und Verbesserung der Parametrisierungen in den Modellen herangezogen werden können. Die Abhängigkeit der mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften in Bezug auf die Quellregionen, aber auch der Einfluss der Alterung und des Transports auf die Größenverteilungen sind wichtige offene Fragen. Vor allem für die Untersuchung der Transportprozesse sind Messungen auf großen Skalen und auf einer gewissen Höhe nötig, sodass Bodenmessstationen nicht dafür geeignet sind diese Messungen durchzuführen. Dies ist der Grund für die Durchführung der EMeRGe-Kampagne (Effect of Megacities on the Transport and Transformation of Pollutants on the Regional to Global Scales) mit dem Forschungsflugzeug HALO in Europa im Sommer 2017 und in Südostasien im Frühling 2018, bei welcher die Abgasfahnen von Megacities beprobt wurden. Mit dem „Aerosol Measuring System“ (AMETYST) wurden während dieser Kampagne die Gesamtanzahlkonzentration der Aerosolpartikel im Größenbereich von 10 nm bis 3 µm, die Anzahlkonzentration in verschiedenen Größenkanälen und die Absorptionskoeffizienten für drei verschiedene Wellenlängen gemessen. Da AMETYST bisher nicht vollständig charakterisiert wurde, war es nötig zunächst eine umfassende Charakterisierung und Kalibrierung vor der Datenauswertung durchzuführen, damit mögliche Fehlerquellen berücksichtigt und wenn möglich korrigiert werden können.

Für die Beantwortung der Frage, in wie fern sich die mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften bei unterschiedlichen Quellregionen unterscheiden, wurden die Messungen in den Abgasfahnen der beiden Megacities London und Manila herangezogen. Ein Vergleich der Gesamtanzahlkonzentrationen ergab keinen signifikanten Unterschied zwischen den beiden Städten, jedoch waren die Größenverteilungen von der Beprobung der Abgasfahne von Manila signifikant hin zu größeren Partikeldurchmessern verschoben und die Absorptionskoeffizienten waren deutlich höher. Es wurden also durchaus wesentliche Unterschiede zwischen den beiden Quellregionen Europa und Südostasien hinsichtlich der mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften gemessen.

Wie sich die Transport- und Alterungsprozesse auf die mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften auswirken, wurde durch Messungen an der Westküste von Taiwan untersucht. Dort konnten sowohl lokale Emissionen als auch ferntransportierte Emissionen, wie etwa vom asiatischen Festland, vermessen werden. Bei den lokalen Emissionen konnten im Mittel eine höhere Gesamtanzahlkonzentration als bei den transportierten Emissionen gemessen werden, aber beim Vergleich der Größenverteilungen der beiden Emissionstypen gab es keinen signifikanten Unterschied. Dies liegt daran, dass die lokale Verweildauer der Luftmassen länger war als erwartet, sodass die transportierten Emissionen teilweise jünger waren. Eine Unterscheidung nur anhand der Quelle war damit nicht möglich. Aber die Alterungsprozesse, welche meist für ein Anwachsen der Partikel sorgen, konnten beim Vergleich der jungen und alten Emissionen in den Größenverteilungen nachgewiesen werden.

Die hier vorgestellten Messungen der mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften von Megacities und an der Westküste von Taiwan helfen anthropogene Emissionsquellen besser zu verstehen und die Transport- und Alterungsprozesse von Aerosolpartikeln zu quantifizieren. Die Datenbasis zur Validierung und Verbesserung der Modellparametrisierungen wird dadurch erhöht.

Abstract

The processes governing the properties of anthropogenic aerosols are still associated with large uncertainties. To minimize these uncertainties, targeted measurements are required to characterize the pollution aerosols, which can then be used to validate and improve the parametrizations in models which assess their climate impact. The dependence of the microphysical aerosol properties in relation to the source regions, but also the influence of aging and transport on the aerosol size distributions are important open questions. Especially for the investigation of the transport processes, measurements on large scales and at a certain height are necessary, therefore ground measurements are not suitable for these measurements. This was the scientific motive for carrying out the EMeRGe campaign (Effect of Megacities on the Transport and Transformation of Pollutants on the Regional to Global Scales) with the research aircraft HALO in Europe in summer 2017 and in Southeast Asia in spring 2018 to measure the pollution plumes from megacities with more than 10 million inhabitants. During this campaign the “Aerosol Measurement System” (AMETYST) measured the total number concentration of aerosol particles in the range from 10 nm to 3 μm , the number concentration in different size channels and the absorption coefficients for three different wavelengths. Since AMETYST has not yet been fully characterized, it was necessary to carry out a comprehensive characterization and calibration before data evaluation so that sources of error can be taken into account and, if possible, corrected.

To answer the question to what extent the microphysical aerosol properties differ with regard to different source regions, the measurements of the pollution plumes from the megacities London and Manila were studied in detail. A comparison of the total number concentrations revealed no significant difference between the two cities, however, the size distributions from the Manila pollution plume were significantly shifted towards larger particle diameters and the absorption coefficients were also increased. Thus, clear differences in the microphysical aerosol properties regarding different source regions in Europe and Southeast Asia have been measured.

How transport and aging affect the microphysical aerosol properties was investigated by measurements along the west coast of Taiwan. In this measurement area both local emissions and transported emissions from the Asian mainland could be probed. The total aerosol number concentrations from the local emissions were higher on average while the number size distributions were quite similar. This was due to the longer residence time of local emissions, such that the transported emissions were partly younger than the local ones. Because of that a difference based solely on the source of the aerosols could not be determined. But when comparing the number size distributions of young local with old transported emissions, the processes of aging were clearly detected by an increase in the particle diameter.

These measurements of the microphysical aerosol properties near megacities and on the west coast of Taiwan help to improve our knowledge of anthropogenic aerosol emission and quantify the processes of transport and aging. Therefore, the database to validate and improve the model parametrizations is increased by this work.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	Grundlagen von Aerosolen	2
1.2	Motivation	3
1.2.1	Auswirkungen von Aerosolen	3
1.2.2	Hotspots von Aerosolen	6
1.3	Bisherige Messungen in Ballungsräumen	9
1.4	EMeRGe: Effect of Megacities on the Transport and Transformation of Pollutants on the Regional to Global Scales	14
1.4.1	EMeRGe-EU	16
1.4.2	EMeRGe-Asien	17
1.5	Ziel dieser Arbeit	17
1.6	Externe Daten	19
2	Methodik	21
2.1	HALO-Instrumentierung	21
2.1.1	BAHAMAS	21
2.1.2	Aerosolmessungen mit dem HASI-Einlass	22
2.1.3	AMETYST	23
2.2	Auswertung und Fehlerbetrachtung	30
2.2.1	Auswertung der zu untersuchenden DMA-Zeitspannen	31
2.2.2	Transferfunktion	34
2.2.3	Mehrfachladungen	38
2.2.4	Konzentrationsverluste durch Druckabnahme	41
2.2.5	Kanalbreiten der Optischen Partikelzähler	47
2.2.6	Korrektur der gemessenen Absorptionskoeffizienten am PSAP	52
2.2.7	Rohrleitungsverluste	55
2.3	Berechnung der Größenverteilungen	59
2.4	HYSPLIT-Trajektorien	59
3	Ergebnisse	63
3.1	Charakterisierung von Verschmutzungsaerosolen nahe der Megacities London und Manila	63
3.1.1	London	63
3.1.2	Manila	68

3.1.3	Vergleich der beiden Megacitys.....	72
3.2	Untersuchung der Änderung in den Aerosoleigenschaften durch Transport und Alterung an der Westküste von Taiwan	77
3.2.1	Transport	79
3.2.2	Alterung.....	83
4	Diskussion	87
4.1	Datenqualität der Absorptionskoeffizienten.....	87
4.2	Unterschiede zwischen London und Manila	87
4.3	Einfluss von Hintergrundaerosolen	90
4.3.1	Biomass Burning nahe Manila	90
4.3.2	Sonstige Einflüsse nahe London	91
4.4	Hintergrundmessungen von Manila.....	93
4.5	Einordnung in die Literatur	98
5	Fazit und Ausblick	103
5.1	Fazit	103
5.2	Ausblick.....	105
6	Anhang.....	i
6.1	Rohrleitungsverluste der restlichen CPCs und des OPCs	i
6.2	Herkunft der Luftmassen von den Zuflüssen von Manila	iii
6.3	Zeitlicher Verlauf der Anzahlkonzentrationen für die Flüge an der Westküste von Taiwan	iv
6.4	Gesamtanzahlkonzentrationen in den ausgewerteten Zeitspannen	viii
6.4.1	London und Manila	viii
6.4.2	Taiwan.....	ix
6.5	HYSPLIT Trajektorien	xii
6.5.1	London und Manila	xii
6.5.2	Lokale und transportierte Emissionen an der Westküste von Taiwan	xiii
7	Verzeichnis der Abkürzungen und Symbole.....	xvii
8	Abbildungsverzeichnis.....	xxv
9	Tabellenverzeichnis.....	xxxv
10	Quellenverzeichnis	xxxvii
11	Danksagung	xliv

1 Einleitung

Aerosole, also luftgetragene Partikel, sind auf der ganzen Welt omnipräsent, können sich jedoch in ihrer Anzahlkonzentration je nach Region aufgrund der natürlichen und anthropogenen Quellen um mehrere Größenordnungen unterscheiden. Auch anderen Eigenschaften wie Größe, Form und die chemische Zusammensetzung sind sehr variabel. Die globale Verteilung der Aerosole wird durch den Transport derselbigen stark beeinflusst, sodass sie losgelöst von ihren Quellen sein können und so auch andere Regionen beeinflussen. Dies ist in Abbildung 1 zu sehen, in der die globale Verteilung von vier Aerosoltypen durch eine Simulation des GEOS-5 Modells (Goddard Earth Observing System Model, Version 5) dargestellt ist. Staub wird in Rot dargestellt, Seesalz in Blau, Rauch in Grün und Sulfat-Aerosole, welche hauptsächlich von Vulkanen und von Ballungsgebieten verursacht werden (Seinfeld und Pandis 2016), in Weiß.

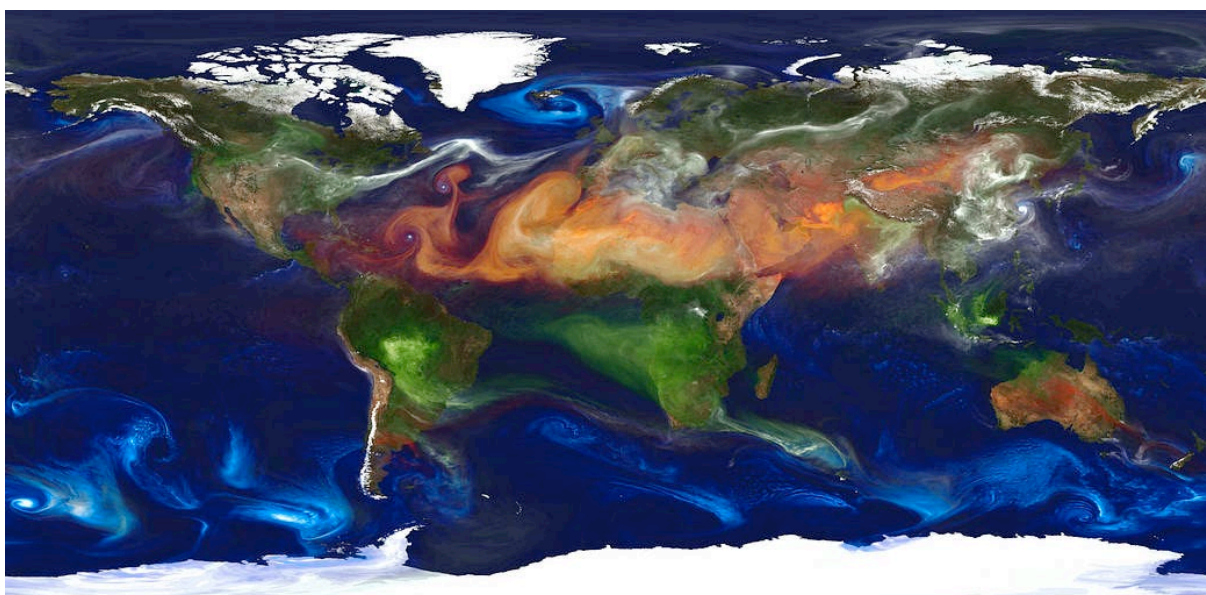


Abbildung 1: Globale Verteilung von Aerosolen von NASA/Goddard (2012). Rot steht dabei für Staub, Blau für Seesalz, Grün für Rauch und Weiß für Sulfat-Aerosole.

Im Zuge der voranschreitenden Klimaerwärmung spielen Aerosole ebenfalls eine große Rolle, da sie als Ganzes gesehen einen kühlenden Effekt auf den Strahlungshaushalt der Erde haben (Myhre et al. 2013; Forster et al. 2021). Einzelne Aerosoltypen, allem voran Black Carbon (BC), welches oft anthropogen durch die Verbrennung von fossilen Brennstoffen entsteht, haben jedoch einen erwärmenden Effekt auf das Klima (Myhre et al. 2013). Die Abschätzungen des Einflusses auf den Strahlungshaushalt der verschiedenen Aerosoltypen sind jedoch auch heutzutage noch mit großen Unsicherheiten verbunden, da die große Anzahl an unterschiedlichen Aerosoltypen mit vielen verschiedenen Prozessen einhergehen, die noch nicht vollständig verstanden sind. Die global sehr unterschiedliche Verteilung und die Transportprozesse erschweren dieses Verständnis zusätzlich. Aber auch die anthropogenen

Aerosolhotspots tragen zu diesen Unsicherheiten bei, da sie meist zu klein sind, als dass sie in den globalen Modellen mit einer Auflösung von meist 100 km auf 100 km gut genug aufgelöst werden können (Kunkel et al. 2013; Andrés Hernández et al. 2022 und die Referenzen hierin). So finden die Emissionen und Prozesse der Verschmutzungsaerosole aus diesen anthropogenen Hotspots oft auf subskaliger Ebene statt, sodass diese in den Modellen auf Annahmen beruhend implementiert werden müssen. Zur Reduktion dieser Unsicherheiten sind gezielte Messungen nötig, welche die Aerosolpartikel aus den anthropogenen Aerosolhotspots charakterisieren und dann für die Modell-Evaluierung und Verbesserung herangezogen werden können.

1.1 Grundlagen von Aerosolen

Aerosol ist eine Dispersion von festen oder flüssigen Schwebeteilchen in einem Gas, welche sowohl natürlichen als auch anthropogenen Ursprungs sein können. Generell wird zwischen primär und sekundär gebildeten Aerosolen unterschieden. Primäre Aerosole werden direkt in die Atmosphäre eingetragen, wie etwa Seesalz, Pollen, Vulkanstaub oder aber auch der Abrieb von Autoreifen. Sekundäre Aerosole entstehen erst in der Atmosphäre durch chemische Reaktionen von Gasen, durch welche eine Partikelneubildung stattfindet.

Während ihrem Verbleib in der Atmosphäre unterliegen Aerosole Transformations- und Transportprozessen, welche meist ein Anwachsen der Partikel zur Folge haben. Dies sind zum einen das Anwachsen der Partikel durch Koagulation, wenn also Partikel aufeinandertreffen und sich so anhäufen, und zum anderen durch Kondensation, wenn sich also eine Flüssigkeit an bereits vorhandenen Partikel anlagert. Durch Niederschläge oder durch Absinken werden Aerosole wieder aus der Atmosphäre entfernt. Ersteres wird nasse Deposition und zweiteres wird trockene Deposition genannt. Typische Verweildauern von Aerosolen in der Troposphäre sind dabei zwischen einem und 10 Tagen (Boucher et al. 2013).

Aerosole werden in vier verschiedenen Moden bezüglich ihrer Partikelgrößen unterteilt (Seinfeld und Pandis 2016). Dies sind im Bereich der kleinsten Partikel bis etwa 10 nm die Nukleationsmode, von 10 nm bis 100 nm die Aitkenmode, von 100 nm bis 2.5 μm die Akkumulationsmode und oberhalb einer Partikelgröße von 2.5 μm die Grobmode (Abbildung 2). Die Nukleationsmode besteht dabei aus den frisch geformten sekundären Aerosolen, welche jedoch schnell wieder mit größeren Partikeln koagulieren, sodass die Partikel dieser Mode schnell nach ihrer Entstehung wieder verschwinden. Und auch die Aerosolpartikel der Grobmode werden aufgrund ihres Gewichts und der damit einhergehenden höheren Absinkrate meist schnell aus der Atmosphäre entfernt (trockene Deposition). Die Aerosolpartikel der Aitken- und Akkumulationsmode sinken wesentlich langsamer ab und wachsen während ihrer Verweildauer in der Atmosphäre durch Koagulation und Kondensation auch nicht so schnell an, als dass dies stattfinden würde, sondern werden meist durch die nasse Deposition in Form von Niederschlägen aus der Atmosphäre entfernt. Aus diesem Grund weisen die Partikel dieser beiden Moden meist eine längere Verweildauer in der Atmosphäre auf, als die der anderen beiden (Seinfeld und Pandis 2016).

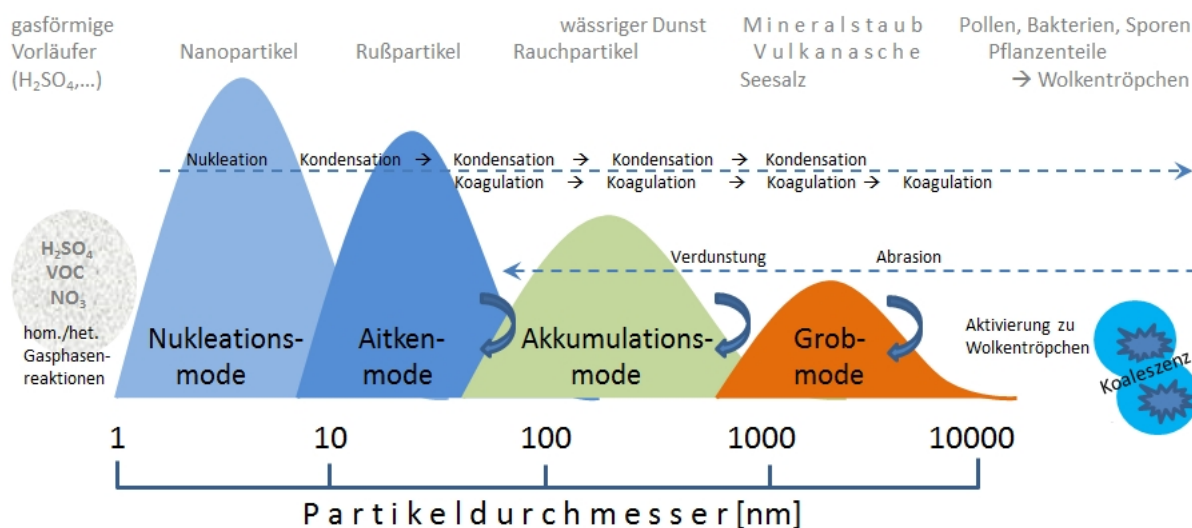


Abbildung 2: Einteilung von Aerosolen in die vier verschiedenen Moden anhand ihres Partikeldurchmessers. Außerdem aufgetragen sind die Transformationsprozesse mit den gestrichelten Pfeilen. In der obersten Zeile sind beispielhafte Partikeltypen für die jeweilige Größe angegeben (DWD 2022).

Der größte Anteil der Gesamtanzahl der Aerosolpartikel ist in der Nukleations- und Aitkenmode zu finden, deren Aerosolpartikel jedoch durch ihre geringe Größe nur einen sehr geringen Anteil der Gesamtmasse ausmachen. Stattdessen ist der Großteil der Gesamtmasse in der Akkumulationsmode und der Grobmode zu verzeichnen, obwohl dort weniger Partikel vorhanden sind. Oft werden deswegen auch die Nukleations- und Aitkenmode als ultrafeine Partikel mit einem Partikeldurchmesser <100 nm zusammengefasst. Wird noch die Akkumulationsmode mit hinzugenommen, so werden alle Aerosolpartikel mit einem Durchmesser <2.5 μm betrachtet, welche als feine Partikel bezeichnet werden. Diese feinen Partikel enthalten somit fast die komplette Gesamtanzahl der Aerosolpartikel, aber im Gegensatz zu den ultrafeinen Partikeln auch einen Großteil der Gesamtmasse. Der Rest der Gesamtmasse ist dann bei den groben Partikeln der Grobmode mit Partikeldurchmessern >2.5 μm zu verzeichnen (Seinfeld und Pandis 2016).

1.2 Motivation

1.2.1 Auswirkungen von Aerosolen

Aerosole leisten einen bedeutenden Beitrag zu unserem Klima, da sie sich direkt auf den Strahlungshaushalt der Erde auswirken können. Dabei können sie, je nach Streu- und Absorptionseigenschaften der verschiedenen Aerosoltypen, entweder einen positiven oder aber auch einen negativen Effekt haben. Streuende Aerosolpartikel haben insgesamt eher einen kühlenden, also negativen Effekt auf den Strahlungsantrieb, da durch die Streuung an den Aerosolpartikeln weniger solare Strahlung die Erdoberfläche erreicht. Absorbierende Aerosolpartikel dagegen erwärmen die Atmosphäre auf lange Sicht, obwohl durch diese ebenfalls zunächst weniger solare Strahlung die Erdoberfläche erreicht und es so an der Erdoberfläche zu einer Abkühlung kommen kann. Da sich jedoch die absorbierende

Aerosolschicht in Folge der Absorption erwärmt, ergibt sich durch die atmosphärische Zirkulation eine Erwärmung der Atmosphäre und damit ein positiver Effekt auf den Strahlungshaushalt (Boucher et al. 2013).

Neben diesem direkten Effekt von Aerosolpartikeln auf den Strahlungshaushalt durch Streuung und Absorption, gibt es noch den indirekten Effekt. Dieser beschreibt den Einfluss von Aerosolpartikeln, welche als Wolkenkondensationskeime aktiviert werden, auf die Wolkenbildung und deren Eigenschaften. Ein wichtiger Effekt, der auf die meisten Wolken zutrifft, ist dabei der sogenannten Twomey- oder Wolken-Albedo-Effekt (Boucher et al. 2013; Charlson et al. 1992; Minikin et al. 2012; Twomey 1977). Dieser beschreibt, dass wenn sich mehr Aerosolpartikel innerhalb einer Wolke befinden, die Tröpfchen kleiner sind und die Wolke dadurch heller wirkt. Die Wolke besitzt dadurch also eine höhere Wolkenalbedo im Vergleich zu einer Wolke mit weniger Aerosolpartikeln. Durch diese erhöhte Wolkenalbedo wird mehr solare Einstrahlung reflektiert, sodass dies in einem negativen Effekt auf den Strahlungshaushalt resultiert. Im Gegensatz dazu stehen beispielsweise die Kondensstreifen von Flugzeugen oder die durch Kondensstreifen induzierten Cirrus-Wolken, welche insgesamt eher einen erwärmenden Effekt auf den Strahlungshaushalt haben (Myhre et al. 2013).

Der Strahlungsantrieb von verschiedenen Aerosoltypen und von einigen Treibhausgasen sind in Abbildung 3a) zusammengefasst und deren Auswirkungen auf die mittlere globale Oberflächentemperatur (Global Mean Surface Air Temperature (GSAT)) in Abbildung 3b). Der Anteil der direkten und indirekten Effekte der verschiedenen Aerosoltypen sind dabei mit der hell- und dunkelvioletten Farbe gekennzeichnet, wobei der Einfluss von Kondensstreifen beim indirekten Effekt nicht berücksichtigt wurde (Szopa et al. 2021).

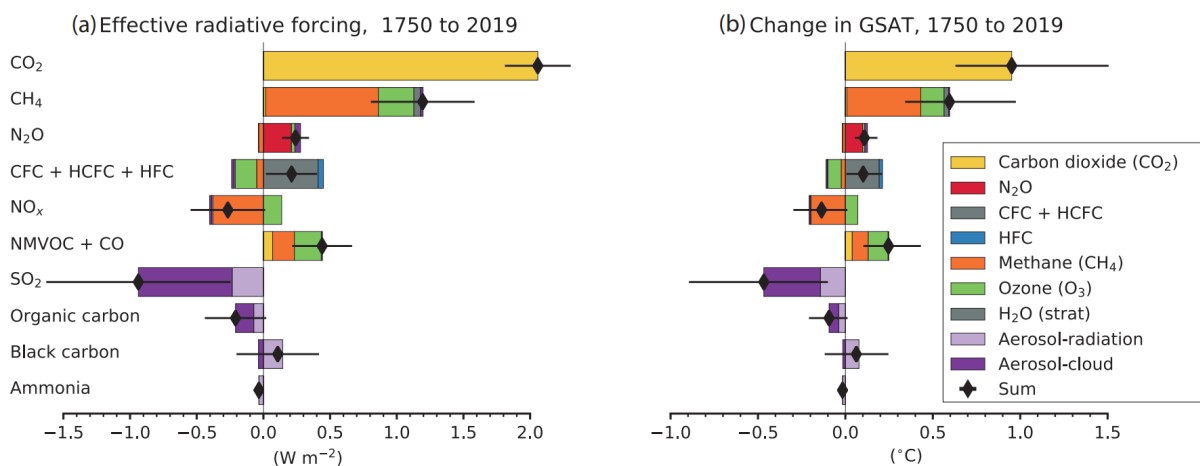


Abbildung 3: Strahlungsantrieb von verschiedenen Aerosoltypen und Treibhausgasen für die Zeitspanne von 1750-2019 in a) und die Änderungen bezüglich der mittleren globalen Oberflächentemperatur (Global Mean Surface Air Temperature (GSAT)) in b), entnommen von Szopa et al. (2021) und basierend auf den Daten von Thornhill et al. (2021). Die Fehlerbalken entsprechen jeweils einem Vertrauensintervall von 5-95 %. Der direkte Effekt der Aerosolpartikel ist durch die hellviolette Farbe gekennzeichnet und der indirekte Effekt durch die dunkelviolette Farbe.

Aerosolpartikel als Ganzes weisen einen kühlenden Effekt auf den Strahlungshaushalt auf (Forster et al. 2021). Aus diesem Grund sticht der erwärmende Effekt des Black Carbons (BC) in Abbildung 3 besonders hervor. Der Großteil der Black Carbon Konzentration, welche diesen positiven Effekt hervorruft, geht dabei auf die Verbrennung von fossilen Brennstoffen zurück und ist damit weitgehend anthropogenen Ursprungs (Myhre et al. 2013).

Eine weitere Auffälligkeit in Abbildung 3 sind die großen Unsicherheiten. So reicht beispielsweise der Balken der Unsicherheit bei Black Carbon, sowohl in den negativen, als auch in den positiven Bereich hinein. Dies liegt darin begründet, dass die Auswirkungen von Aerosolen auf das Klima noch nicht vollständig verstanden sind, da die große Anzahl an verschiedenen Aerosoltypen und die damit verbundenen vielen verschiedenen Prozesse das Verständnis über die Klimawirkung der einzelnen Aerosoltypen erschweren. Vor allem wenn diese Prozesse, wie es bei den anthropogenen Hotspots der Fall ist, auf subskaliger Ebene ablaufen und daher in den Modellen parametrisiert werden müssen (Kunkel et al. 2013; Andrés Hernández et al. 2022 und die Referenzen hierin).

Aerosole haben weiterhin teils große Auswirkungen auf die Transportsicherheit. Denn neben einer Sichtweitenreduzierung aufgrund der Luftverschmutzung (Seinfeld und Pandis 2016), welche sich auf die ganze Verkehrsinfrastruktur auswirken kann, können Aerosolpartikel wie Mineralstaub und Vulkanasche im Luftverkehr direkte Schäden an den Rotorblättern von Flugzeugturbinen verursachen, welche zu einer verringerten Lebensdauer oder Ausfall dieser Komponenten führen können (Hamed et al. 2006 und die Referenzen hierin). So wurde beispielsweise nach dem Vulkanausbruch des Eyjafjallajökull 2010 auf Island ein Großteil des Luftverkehrs über Europa eingestellt, um mögliche Schäden an den Flugzeugen zu vermeiden (Weinzierl et al. 2012). Zur Abschätzung dieser Risiken werden ebenfalls Modelle herangezogen, wobei auch hier die subskaligen Prozesse durch Annahmen implementiert sind, sodass Beobachtungsdaten zur Validierung der Modelle und zur Verbesserung der Annahmen benötigt werden.

Neben dem Einfluss von Aerosolen auf das Klima und die Transportsicherheit, beschäftigen sich andere Studien außerdem mit den Auswirkungen von Aerosolen auf unsere Gesundheit. Die Weltgesundheitsorganisation (World Health Organisation (WHO)) schätzt die Anzahl der Todesfälle, welche auf die Verschmutzung der Umgebungsluft durch Aerosole zurückzuführen sind, auf etwa 3 Millionen im Jahr 2012, wobei 6 % auf Kinder unter 5 Jahren entfielen (World Health Organisation 2016). Todesursachen sind dabei beispielsweise akute Infektionen der unteren Atemwege, Schlaganfälle, Herzinfarkte oder Lungenkrebs. Feine Partikel mit Durchmessern $<2.5 \mu\text{m}$ haben laut Ibalid-Mulli et al. (2002) dabei einen unmittelbaren Einfluss auf die Sterblichkeit, wohingegen ultrafeine Partikel ($<100 \text{ nm}$) meist einen verzögerten Effekt aufweisen. Denn ultrafeine Partikel können sich durch ihre geringere Größe tiefer in der Lunge, bis hin zu den Lungenbläschen, ablagern und sogar die Zellwände der Lunge passieren, sodass sie in andere Organe gelangen, wo sie beispielsweise Entzündungen hervorrufen können (Groma et al. 2022).

1.2.2 Hotspots von Aerosolen

Vor allem in Aerosolhotspots sind die Auswirkungen auf die Transportsicherheit und die Gesundheit aufgrund der hohen Anzahlkonzentrationen von teils über $100\,000\text{ cm}^{-3}$, im Vergleich zu sonst einigen hundert pro Kubikzentimeter (Pöschl 2005), besonders ausgeprägt. Mit Hilfe von Satellitendaten ist es am einfachsten diese globalen Aerosolhotspots zu bestimmen. So wurden in der Arbeit von van Donkelaar et al. (2015) mit Hilfe von mehreren Satellitendaten die Massenkonzentration der feinen Partikel ($\text{PM}_{2.5}$) für die Zeitspanne von 2001 bis 2010 abgeleitet und mit Messungen von Bodenstationen verknüpft. Anhand dieser Daten wurde dann eine globale Karte erstellt, welche Rückschlüsse auf die Aerosolhotspots zulässt, zu sehen in der oberen Karte von Abbildung 4. In dieser Karte sind neben dem Südosten Asiens und dem Norden Indiens, vor allem die Sahara in Afrika, die Wüste Gobi im Westen Chinas und die arabische Halbinsel, welche ebenfalls ein großes Wüstengebiet ist, aufgrund ihrer hohen Staubkonzentrationen als natürliche Aerosolhotspots zu erkennen.

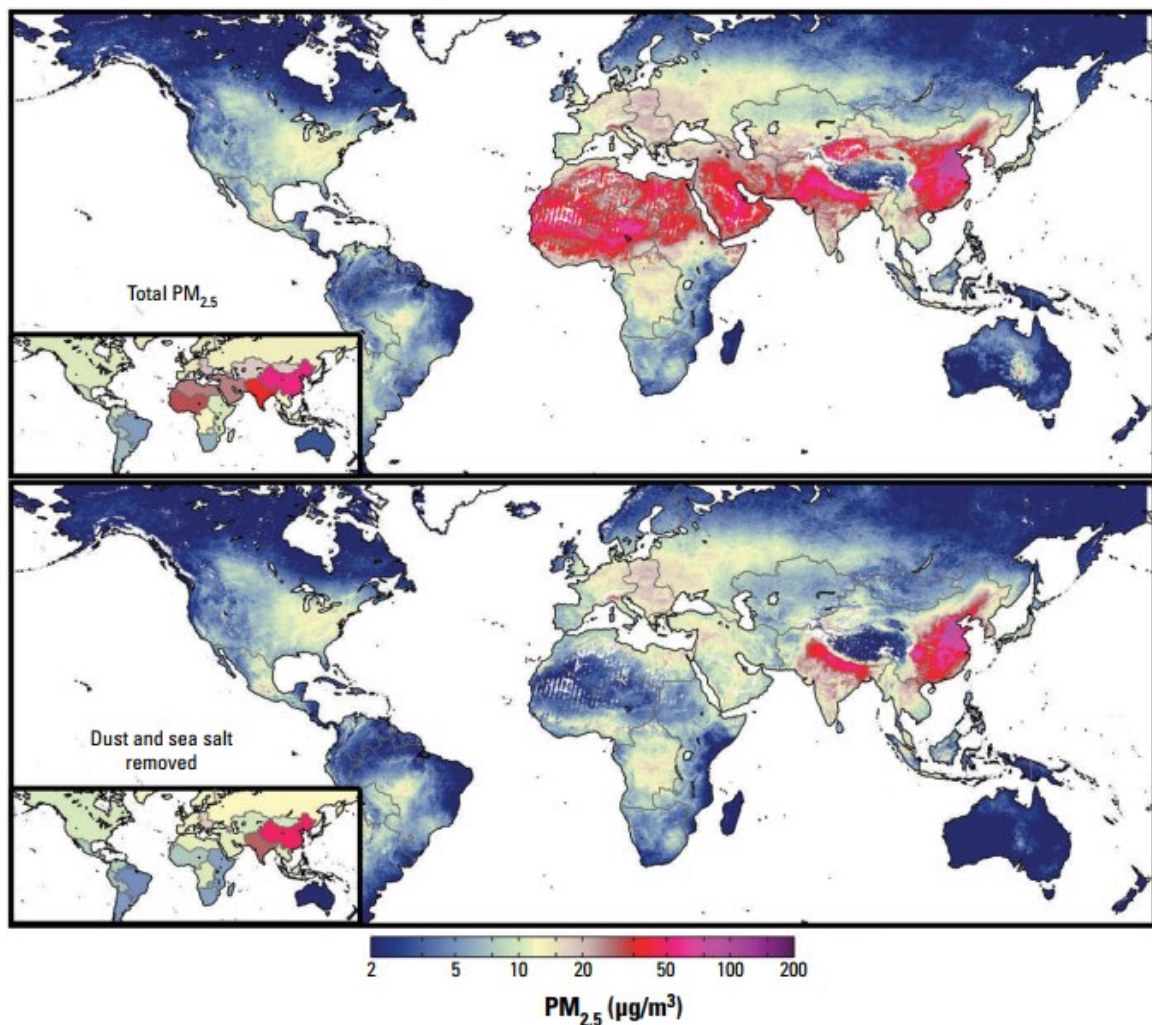


Abbildung 4: Globale Gesamtmassenverteilung der feinen Partikel ($\text{PM}_{2.5}$) in der oberen Karte und in der unteren Karte unter Ausschluss von Staub und Seesalz für die Zeitspanne von 2001-2010 (van Donkelaar et al. 2015).

Doch wie in den vorherigen Kapiteln beschrieben, sind die Unsicherheiten bezüglich der Auswirkungen von Aerosolen auf das Klima vor allem in anthropogenen Aerosolhotspots sehr groß, da deren Emissionen und Prozesse auf subskaliger Ebene ablaufen und daher in den Modellen parametrisiert werden müssen. Um nun speziell die Gebiete der anthropogenen Aerosolhotspots zu ermitteln, in welchen Messungen für die Validierung und Verbesserung der Modelle getätigt werden sollten, haben van Donkelaar et al. (2015) die Aerosolzusammensetzung in ihre Analyse miteinbezogen, sodass Staub und Seesalz als Teil der feinen Partikel ausgeschlossen werden konnten und so die Wüsten als natürliche Aerosolhotspots wegfallen (untere Karte Abbildung 4).

Neben dem Südosten von Asien und dem Norden von Indien, welche eine hohe Massenkonzentration an feinen Partikeln aufweisen, ist auch in der Po-Ebene in Italien eine erhöhte Konzentration zu verzeichnen, sodass diese Gebiete als anthropogene Aerosolhotspot einzuordnen sind. Typische anthropogene Aerosolquellen sind dabei zum Beispiel der Verkehr, die Industrie und Feuer zum Heizen und Kochen (World Meteorological Organization 2012).

Ballungsgebiete

Bereits im Jahr 2018 lebten etwa 55 % der Weltbevölkerung in urbanen Gebieten und dieser Trend der zunehmenden Urbanisierung soll sich laut Prognosen auch noch in Zukunft fortsetzen, sodass für das Jahr 2050 bereits 68 % vorhergesagt werden (United Nations 2019b). Aus diesem Grund ist die Reduktion der Unsicherheiten in Bezug auf die Auswirkungen und die Prozesse von Verschmutzungsaerosolen in diesen anthropogenen Hotspots essenziell.

Die Prognose zur Entwicklung der einzelnen Lebensräume der Weltbevölkerung gemessen an deren Einwohneranzahl ist in Abbildung 5 aufgetragen. So werden die ländlichen Gebiete, welche in Orange dargestellt sind, in den nächsten Jahren wohl abnehmen, wohingegen alle anderen Lebensräume wachsen oder zumindest gleichbleibend sind. Auch die Sparte der urbanen Gebiete mit mehr als 10 Millionen Einwohnern, dargestellt in Dunkelblau, kann einen Zuwachs verzeichnen. Diese urbanen Ballungsgebiete werden auch Megacities genannt und sind derzeit vor allem in Asien zu finden (United Nations 2019a). Waren es 2018 weltweit noch 33 Megacities, erwarten die United Nations (2019b) aufgrund der Urbanisierung im Jahr 2050 noch einmal 10 Megacities mehr, insgesamt dann also 43. Die weltweite Verteilung der größten urbanen Ballungsgebiete mit mindestens 500.000 Einwohnern ist für das Jahr 2018 in Abbildung 6 dargestellt. Die Urbanisierung der einzelnen Länder ist ebenfalls durch die blaue Farbskala angegeben.

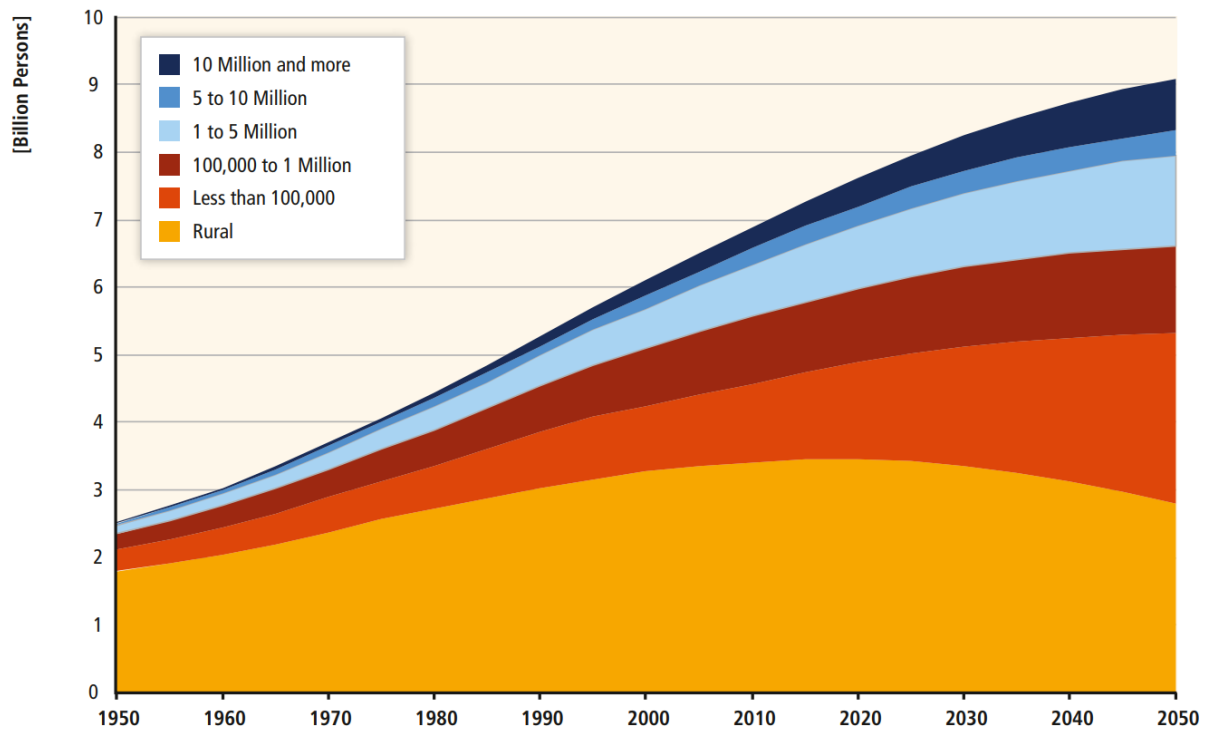


Abbildung 5: Entwicklung der Lebensräume der Weltbevölkerung mit historischen Daten von 1950-2010 und der Vorhersage bis 2050 (Seto et al. 2014).

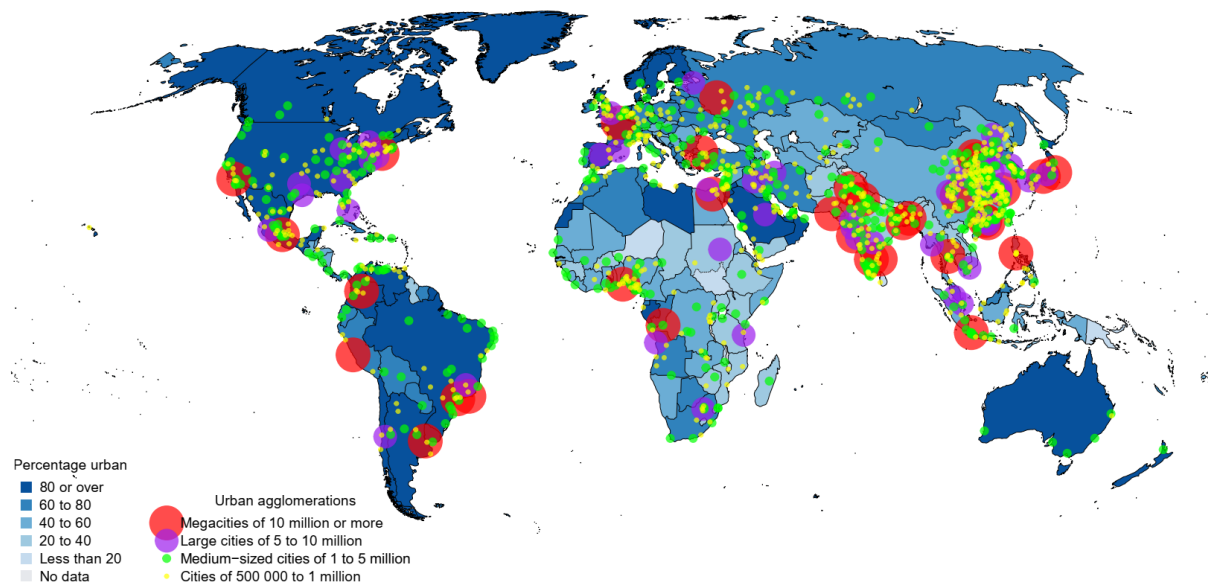


Abbildung 6: Die größten Ballungsgebiete weltweit im Jahr 2018, dargestellt durch die Punkte mit verschiedener Farbe und Größe je nach Einwohnerzahl, und die Urbanisierung der einzelnen Länder dargestellt durch die blaue Einfärbung, welche den entsprechenden Prozentbereichen entsprechen (United Nations 2019a).

Die meisten Megacitys mit mehr als 10 Millionen Einwohnern, gekennzeichnet durch die großen roten Punkte, befinden sich in Südostasien und Indien. Aber auch Europa, welches im Jahr 2018 nur eine Megacity aufweist (Paris, Frankreich), weist insgesamt eine hohe Dichte an urbanen Ballungsgebieten mit mindestens einer Millionen Einwohnern auf. In Amerika, sowohl in Nord- als auch Südamerika, befinden sich die größeren Ballungsgebiete oft in Küstennähe und weniger im Landesinneren, obwohl in den jeweiligen Ländern meist über 80 % der Bevölkerung in urbanen Gebieten leben. Auch in Afrika liegen die meisten größeren Ballungsgebiete nahe der Küste, jedoch ist hier die Urbanisierung der einzelnen Länder im Allgemeinen wesentlich niedriger. In Australien gibt es trotz einer allgemein hohen Prozentzahl von über 80 % der Bevölkerung, welche in urbanen Gebieten wohnt, nur wenige größere Ballungsräume mit mindestens 500 000 Einwohner und die wenigen, die es gibt, weisen nicht mehr als 5 Millionen Einwohner auf.

Trotz der zunehmenden Urbanisierung waren die anthropogenen Emissionen in Europa im Jahr 2015 im Vergleich zum Jahr 1980 niedriger und diese Reduktion der Emissionen soll sich laut Modellvorhersagen bis 2050 fortsetzen. Zurückzuführen ist dies auf die in Europa eingeführten Richtlinien zur Luftreinhaltung. In Südostasien und Indien dagegen ist im Vergleich von 1980 zu 2015 ein deutlicher Anstieg der anthropogenen Emissionen zu verzeichnen. Je nach Szenario des Vorhersagemodells soll sich dieser Anstieg auch bis 2050 fortsetzen (Feng et al. 2020).

1.3 Bisherige Messungen in Ballungsräumen

Es wurden schon viele Messreihen und -kampagnen in den großen urbanen Ballungsgebieten der Welt durchgeführt, um aus den abgeleiteten Informationen eine Verbesserung der Parametrisierungen in den Modellen bezüglich der Prozesse und Eigenschaften von anthropogenen Aerosolen zu erzielen. So fanden in Europa beispielsweise Messungen in London während der Kampagne REPARTEE (Regents Park and Tower Environmental Experiment) an drei verschiedenen Messstandorten in London statt (Beddows et al. 2009; Harrison et al. 2011; Harrison et al. 2012). Zum einen an einer Stelle im Regents Park, dann auf dem Fernsehturm BT Tower und an der vielbefahrenen Marylebone Road, sodass unterschiedliche Quellen innerhalb der Stadt hinsichtlich ihrer physikalischen und chemischen Aerosoleigenschaften miteinander verglichen werden konnten. Die Anzahlkonzentrationen an der Marylebone Road waren wesentlich höher und bei kleineren Partikeldurchmessern zu finden im Vergleich zu den zwei anderen Standorten, welche eher den städtischen Hintergrund beproben.

Rodriguez et al. (2007) haben dagegen Messungen aus einem Park am Russel Square in London mit Messungen aus Mailand und Barcelona verglichen, deren Messstandorte ebenfalls den urbanen Hintergrund der jeweiligen Stadt vermessen haben. Ausgewählt wurden diese drei Städte deswegen, weil in London sich die Luftmassen aufgrund der meteorologischen Einflüsse schnell austauschen, in Mailand aufgrund der niedrigen Windgeschwindigkeiten und vermehrten Inversionswetterlagen es öfters zu ausgeprägten Anstiegen von

Verschmutzungs-aerosolen kommt und es in Barcelona aufgrund der lokalen meteorologischen Parameter eine hohe Hintergrundkonzentration von Aerosolpartikeln gibt. Die gemessenen Größenverteilungen der drei Städte hatten zwar alle einen ähnlichen Verlauf, jedoch waren die gemessenen Anzahlkonzentrationen in Mailand höher als in Barcelona und diese höher als in London.

In Mailand wurden außerdem von Lonati und Giugliano (2006) Messungen an vier Messstandorten mit unterschiedlichen Einflüssen bezüglich des Verkehrs über mehrere Jahre hinweg ausgewertet. Dabei wurden die verschiedenen Größenverteilungen in Hinblick auf die Anzahl, die Oberfläche und das Volumen verglichen. Der Verlauf der jeweiligen Größenverteilungen war ähnlich, aber je nach Verkehrsaufkommen unterschiedlich stark ausgeprägt. Der Tagesverlauf der Größenverteilungen und der Anzahlkonzentrationen für einen Messstandort wurde für die kalte und warme Jahreszeit von Lonati et al. (2011) verglichen. Dabei waren die Anzahlkonzentrationen im Winter generell höher als im Sommer, wobei bei beiden Jahreszeiten die höchste Konzentration zwischen 8:00 Uhr und 10:00 Uhr morgens zu verzeichnen war. An den Wochentagen wurden im Vergleich zum Wochenende höhere Konzentrationen aufgrund des Berufsverkehrs vermessen und die Größenverteilungen wurden von kleineren Partikeln dominiert.

Auch in der Megacity Paris fanden schon mehrere Messungen statt, unter anderem die großangelegte Messkampagne MEGAPOLI (Megacities: Emissions, urban, regional and Global Atmospheric pollution and climate effects, and integrated tools for assessment and mitigation), welche in zwei Kampagnenphasen unterteilt war, wovon eine im Sommer und eine im Winter stattfand (Freutel et al. 2013; Freney et al. 2014; von der Weiden-Reinmüller et al. 2014a; von der Weiden-Reinmüller et al. 2014b). Während dieser Kampagne wurden an drei verschiedenen Standorten in der Stadt, aber auch auf mobilen Plattformen wie diversen Messfahrzeugen und einem Flugzeug, Messungen getätigt. Die Aerosolanzahlkonzentrationen bei den Emissionsmessungen der Stadt waren im Vergleich zu Hintergrundmessungen immer stark erhöht, wobei die Konzentrationen im Winter allgemein höher waren als im Sommer. Bei den Größenverteilungen im Sommer waren zwei Maxima zu verzeichnen, während im Winter nur noch das bei den größeren Partikeldurchmessern ausgeprägt war (von der Weiden-Reinmüller et al. 2014b).

In Asien wurden ebenfalls Messreihen und -kampagnen in diversen Megacities und großen Ballungsräumen durchgeführt. So fand in Peking auf dem Campus der Universität eine zweijährige Messreihe zur Beprobung der Größenverteilungen statt (Wehner et al. 2004; Wu et al. 2008). Während dieser Zeitspanne wurden besonderer Ereignisse wie Staubevents, bei denen sich die Größenverteilungen hin zu größeren Partikeldurchmessern hin verschoben haben, oder Partikelneubildungen, bei denen die Nukleationsmode einen großen Anstieg der Konzentrationen verzeichnete, beobachtet (Wehner et al. 2004). Aber auch die Tagesläufe und die saisonalen und wöchentlichen Variationen wurden näher untersucht, wobei auch hier erhöhte Konzentrationen und in den Größenverteilungen eine Verschiebung hin zu größeren Partikeldurchmessern im Winter im Vergleich zum Sommer zu verzeichnen waren (Wu et al. 2008).

In Tokio wurde eine 10-tägige Messreihe von Kuwata und Kondo (2008) ausgewertet, wobei der Fokus hier auf den volatilen und nicht-volatilen Partikeln und deren Anteil an den gemessenen Größenverteilungen lag. Volatile Partikel sind dabei Partikel, die sich durch das Durchlaufen einer Heizstrecke verflüchtigen, während nicht-volatile Partikel vorhanden bleiben. Außerdem wurden in Tokyo im Zuge der Kampagne IMPACT (Integrated Measurement Program for Aerosol and Oxidant Chemistry in Tokyo) Aerosolpartikel und deren Vorläufer vermessen (Kondo et al. 2010). Ziele waren dabei die Charakterisierung der zeitlichen und räumlichen Veränderungen von Aerosolpartikeln hinsichtlich ihrer Zusammensetzung und ihrer physikalischen Eigenschaften, wobei ein Fokus dieser Messungen speziell auf Black Carbon (BC) lag. Bei der Massenkonzentration für Partikel $<1 \mu\text{m}$ konnten über die verschiedenen Jahreszeiten hinweg keine signifikanten Unterschiede ausgemacht werden.

Auch auf den Philippinen fand in der Hauptstadt Manila eine Messkampagne namens MACE (Manila Aerosol Characterization Experiment) statt, für welche Messungen an einer Straße mit insgesamt sechs Fahrspuren für beide Richtungen durchgeführt wurden (Kecorius et al. 2017). Der Fokus dieser Kampagne lag dabei auf der Charakterisierung der physikalischen Eigenschaften von verkehrsbedingten nicht-volatilen Kohlenstoffpartikeln. Deren Konzentrationen erreichten während der morgentlichen Rushhour Werte, die mindestens dreifach erhöht waren im Vergleich zu westlichen Ländern (Kecorius et al. 2017).

Auch die zwei großen Flussdeltas in China wurden schon mehrfach beprobt. So wurde im Yangtzedelta rund um Shanghai vor allem der Fokus auf Partikelneubildungsereignisse gelegt und die Änderung der Anzahlkonzentrationen und Größenverteilungen im zeitlichen Verlauf oder bei verschiedenen klassifizierten Luftmassen, wie beispielsweise lokalen oder maritim beeinflussten (Gao et al. 2009; Du et al. 2012; Wang et al. 2014; Qi et al. 2015). Teilweise wurden die Messungen auch noch mit Hintergrundmessungen von ländlichen Messstandorten verglichen (Wang et al. 2014). Bei Messungen nahe Nanjing verzeichneten Qi et al. (2015) für die Akkumulationsmode die höchsten Anzahlkonzentrationen während der Vermessung von Luftmassen, welche von den Städten des Yangtzedeltas beeinflusst wurden, aber auch gleichzeitig die niedrigsten Anzahlkonzentrationen für die Nukleationsmode. Ebenfalls an diesem Messstandort wurden für den Frühling und Sommer ein häufigeres Auftreten von Partikelneubildungsereignisse als an jedem anderen Messstandort in China nachgewiesen (Qi et al. 2015).

Im Perlflussdelta rund um Hongkong und Guangzhou fand die Kampagne namens PRIDE-PRD2004 (Program of Integrated Experiments of Air Quality over Pearl River Delta 2004) statt, welche Bodenmessungen und auch Messungen mit einem Flugzeug umfasste (Andreae et al. 2008; Liu et al. 2008a; Liu et al. 2008b; Wang et al. 2008; Zhang et al. 2008). Die Bodenmessungen wurden dabei in der Megacity Guangzhou selbst und einem ländlichen Standort im Perlflussdelta durchgeführt. Das Ziel dieser Kampagne war es, das Verständnis der Strahlungsprozesse und der chemischen Prozesse zu verbessern, indem die Luftverschmutzung umfassend charakterisiert wurde (Zhang et al. 2008). Das Ausmaß der Verschmutzungsaerosole ist durch die Streu- und Absorptionskoeffizienten und der Massenkonzentration der feinen Partikel widerspiegelt. Deren Werte, welche am

Messstandort in Guangzhou während dieser Kampagne gemessen wurden, gehören mit zu den höchsten jemals gemessenen Werten weltweit (Andreae et al. 2008).

In Amerika gab es ebenfalls schon mehrere Messungen und -kampagnen in großen Ballungsräumen und Megacitys. So fanden in der einwohnerreichsten Megacity Nordamerikas, Mexikostadt, schon mehrere größere Kampagnen statt, wie zum Beispiel MCMA-2003 (Mexico City Metropolitan Area 2003 (Molina et al. 2007)) und eine Kampagne namens MILAGRO (Megacity Initiative: Local and Global Research Observations (Molina et al. 2010)). Die MCMA-2003-Kampagne hatte dabei das Ziel, dass die Aerosolzusammensetzung in Verbindung mit den Quellen der Vorläufergase der sekundären Aerosole betrachtet wird. Bei der MILAGRO-Kampagne ging es um die Auswirkungen der Abgasfahne von Mexikostadt auf die regionale aber auch globale Luftqualität und auf das Klima, weswegen bei dieser Kampagne auch Messungen mit verschiedenen Forschungsflugzeugen durchgeführt wurden. Die vermessenen Massenkonzentrationen im urbanen Messgebiet von MILAGRO waren während der Kampagne etwa doppelt so hoch wie die der umliegenden ländlichen Gebiete (Molina et al. 2010). Auch in einigen Großstädten der USA wurden bereits Aerosolmessungen durchgeführt, wie beispielsweise im Großraum von Los Angeles. So wurde unter anderem der Einfluss des Verkehrs auf die Größenverteilungen der ultrafeinen Partikel durch Messungen in unterschiedlicher Entfernung zur Straße quantifiziert (Zhu et al. 2002). Auch die abnehmende Anzahlkonzentration mit zunehmender Entfernung zur Straße wurde dabei vermessen. In einer anderen Studie von Hughes et al. (1998) wurden ebenfalls die ultrafeinen Partikel untersucht. Dabei lag der Fokus auf der Anzahl- und Massenkonzentration, der Größenverteilung und der chemischen Zusammensetzung, wobei Sulfat-Aerosole nur einen geringen Anteil an der Aerosolzusammensetzung hatten, dafür aber fast die Hälfte der Zusammensetzung von organischen Komponenten dominiert wurde. Hersey et al. (2011) werteten im Großraum von Los Angeles die 1-2 Stunden gealterten urbanen Luftmassen von Los Angeles bezüglich der Größenverteilungen und der chemischen Zusammensetzung aus. Auch hier wurden bei der Aerosolzusammensetzung der größte Anteil bei den organischen Aerosolpartikeln gefunden. Außerdem wurden die verschiedenen Bildungsmechanismen, etwa die der nächtlichen Nitratproduktion, welche bei sehr hohen Ozon-Werten stattfand, untersucht.

Und auch in Australiens Großstädten gab es Aerosolmessungen, wie etwa in Brisbane (Morawska et al. 1999). Dabei wurden die Moden der Aerosolpartikel charakterisiert und wie sich diese durch verschieden beeinflusste Luftmassen ändern. So ergaben sich in den Anzahlgrößenverteilungen teils große Unterschiede bei den verschiedenen untersuchten Luftmassen, aber die Massen- und Volumengrößenverteilungen waren stets ähnlich zueinander.

Eine globale Zusammenfassung der Größenverteilungen von urbanen Aerosolen aus Bodenmessungen für jeden Kontinent geben Wu und Boor (2021).

Die meisten Aerosolmessungen in den genannten Ballungsgebieten sind reine Bodenmessungen, obwohl solche Aerosolhotspots nicht nur Auswirkungen auf den Ballungsraum selbst haben, sondern auch auf deren Umgebung bis hin zu Auswirkungen auf globaler Skala. Denn durch den Verbleib der Aerosole in der Atmosphäre von bis zu 10

Tagen (Boucher et al. 2013) können diese teils weit von ihrem Ursprungsort weg transportiert werden. Kunkel et al. (2012) fanden heraus, dass Partikel mit einem Durchmesser $\leq 1 \mu\text{m}$ zu 50 % erst nach einer zurückgelegten Distanz von 1000 km durch Deposition aus der Atmosphäre entfernt werden. Bei Partikel $\leq 2.5 \mu\text{m}$ sind dies immer noch 46 %.

Um diese transportierten Aerosole zu beproben sind reine Bodenmessungen daher nicht sonderlich geeignet. Dafür werden flugzeuggetragene Messungen benötigt, die jedoch wesentlich seltener und zeitlich begrenzter durchführbar sind als Bodenmessungen. Kampagnen, welche eine Unterstützung von flugzeuggetragenen Messungen hatten, sind von den oben genannten nur die PRIDE-Kampagne im Perflussdelta (Wang et al. 2008), die MILAGRO-Kampagne im Großraum Mexikostadt (Molina et al. 2010) und die MEGAPOLI-Kampagne im Großraum Paris (Freney et al. 2014). Die Flugzeugmessungen dieser Kampagnen deckten jedoch meist nur die nähere Umgebung der zu untersuchenden Region ab, nicht aber die Ausmaße, welche für den Aerosoltransport möglich wären.

Flugzeugmessungen auf einer noch größeren Skala waren im Westpazifik rund um Japan die Kampagnen TRACE-P (Transport and Chemical Evolution over the Pacific) und ACE-Asia (Asian Pacific Regional Aerosol Characterization Experiment), welche sich auf Partikelneubildungen vor der Küste von Asien fokussierten (McNaughton et al. 2004). Dabei wurden nicht unbedingt, die Abgasfahnen von den dortigen Megacities beprobt, auch wenn diese einen Einfluss auf die Partikelneubildung hatten. Denn diese wurde meist beobachtet, wenn die Schwefeldioxid-Konzentration (SO_2) einen bestimmten Wert überstieg, wobei entweder Vulkane oder Ballungsgebiete hauptsächlich als Quellen für SO_2 dienen (Seinfeld und Pandis 2016). Eine andere Flugmesskampagne, welche ebenfalls im Westpazifik rund um Japan stattfand, ist PACE-7 (Pacific Atmospheric Chemistry Experiment (Zaizen et al. 2004)). Bei dieser ging es vor allem um die vertikale Verteilung der Aerosole und der Anzahlkonzentration in den verschiedenen Moden.

Der Transport von Aerosolen aus Megacities und die Änderung der Aerosoleigenschaften während dieses Transports wurden bisher nur unzureichend auf globaler Skala charakterisiert. Vor allem in Europa sind großangelegte Flugmesskampagnen zur Beprobung von Aerosolpartikeln aus Abgasfahnen von Ballungsgebieten eine Seltenheit. Und auch in Südostasien haben die stattgefundenen Flugmesskampagnen meist einen anderen Fokus, wie der bereits erwähnten Partikelneubildung (McNaughton et al. 2004) oder der vertikalen Verteilung der Aerosole (Zaizen et al. 2004). Da sich laut Prognosen die anthropogenen Emissionen, wie bereits in Kapitel 1.2.2 beschrieben, in Europa aufgrund der eingeführten Richtlinien zur Luftreinhaltung weiter verringern werden, während sie in Südostasien weiter ansteigen könnten (Feng et al. 2020), bilden diese zwei Regionen interessante Messgebiete, um die derzeitigen Einflüsse des Transports und der Transformation der Verschmutzungsaerosole während dieses Transports zu untersuchen.

Dies ist der Hintergrund für die Planung der Kampagne namens EMERGe (Effect of Megacities on the Transport and Transformation of Pollutants on the Regional to Global Scales) in Europa und Südostasien, welche im nächsten Kapitel beschrieben wird, und deren Auswertung sich diese Arbeit widmet.

1.4 EMeRGe: Effect of Megacities on the Transport and Transformation of Pollutants on the Regional to Global Scales

Die EMeRGe-Kampagne, welche von der Universität Bremen koordiniert wurde und deren Akronym für „Effect of Megacities on the Transport and Transformation of Pollutants on the Regional to Global Scales“ steht, befasst sich mit der Fragestellung, in wie fern anthropogene Verschmutzungen verursacht durch Megacities in Europa und Südostasien transportiert werden und wie sie sich dabei verändern (Universität Bremen 2022). Dies wurde sowohl auf der regionalen Skala von einigen hundert Kilometern, als auch auf der globalen Skala mit mehreren tausend Kilometern untersucht. Dabei war die Kampagne zweigeteilt in einen Europa-Abschnitt, welcher im Sommer 2017 stattfand, und in einen Asien-Abschnitt, welcher im Frühling 2018 durchgeführt wurde. Die Ziele der Messkampagne waren im Einzelnen die Identifizierung von Emissionscharakteristika in den Abgasfahnen von Ballungsräumen in Europa und Südostasien, die Charakterisierung der chemischen Prozesse, welche in den Abgasfahnen stattfanden und die Klärung wie bedeutend Ballungsräume als Ursache für die Luftverschmutzung sind (Andrés Hernández et al. 2022). Aus diesen Zielen ergaben sich wiederum verschiedene Fragestellungen, welche durch die Kampagne beantwortet werden sollten und die im Übersichtspaper von Andrés Hernández et al. (2022) aufgeführt sind. So ging es beispielsweise um die Beantwortung der Frage, wie groß der Einfluss von Biomass Burning und Staubaussbrüchen auf die Photochemie in den Abgasfahnen der untersuchten Megacities ist (Andrés Hernández et al. 2022).

Für die großräumigen Messgebiete der Kampagne wurde das High Altitude and Long Range Forschungsflugzeug (HALO) des DLR eingesetzt. Bei diesem handelt es sich um eine umgebaute Gulfstream G550, mit welcher es möglich ist, bei Bedarf auf Höhen von 15 km zu fliegen und Distanzen von bis zu 9000 km zurückzulegen (HALO-SPP 1294). Durch die große Traglast von HALO von bis zu 3 Tonnen war es möglich, mit diversen Messgeräten die Abgasfahnen der verschiedenen Ballungszentren in Europa und Südostasien zu beproben. Zum einem mit Instrumenten zur Detektion von Spurengasen, wie beispielsweise Kohlenstoffmonoxid (CO), Methan (CH₄) oder Ozon (O₃), als auch mit verschiedenen Messgeräten zur Detektion von Aerosolpartikeln und deren chemischen, als auch physikalischen und optischen Eigenschaften. So wurde ein Massenspektrometer genutzt, um die chemische Zusammensetzung der Aerosolpartikel zu bestimmen, mehrere Partikelzähler zur Messung der Anzahlkonzentrationen in verschiedenen Größenbereichen und Photometer, um zwischen Black Carbon (BC) und anderen Aerosolpartikeln zu unterscheiden. In dem hier auszuwertenden Messgerät AMETYST, welches in Kapitel 2.1.3 näher beschrieben wird und für „Aerosol Measurement System“ steht, waren sowohl mehrere Partikelzähler als auch ein Rußphotometer zur Bestimmung der Absorptionskoeffizienten der Aerosolpartikel verbaut. Eine Auflistung aller Messgeräte, welche auf HALO in Betrieb waren, ist im Übersichtspaper von Andrés Hernández et al. (2022) zu finden. Ebenfalls im Übersichtspaper wird die Flugplanung zur Beprobung der Abgasfahnen dargelegt, welche sich vereinfacht so darstellte, dass unterhalb von 3000 m geflogen wurde, da sich laut den Vorhersagen die Abgasfahnen der zu beprobenden Ballungszentren dort befinden würden, und Wolkendurchgänge aufgrund

möglicher technischer Probleme mit einigen Messinstrumenten vermieden wurden. Des Weiteren wurden die Messungen mit Bodenmessungen koordiniert.

Obwohl es das Ziel ist Abgasfahnen von Ballungsgebieten zu vermessen, können Feuer im Umland ebenfalls einen gewissen Einfluss auf die Messungen haben, sodass in Abbildung 7 die Feuerkarten erstellt mit FIRMS - Fire Information for Resource Management System (2022) für das jeweilige Messgebiet und den jeweiligen Messzeitraum dargestellt ist. Aus diesen Karten wird ersichtlich, dass der mögliche Einfluss von Feuern während EMERGe-Asien größer als in Europa ist.

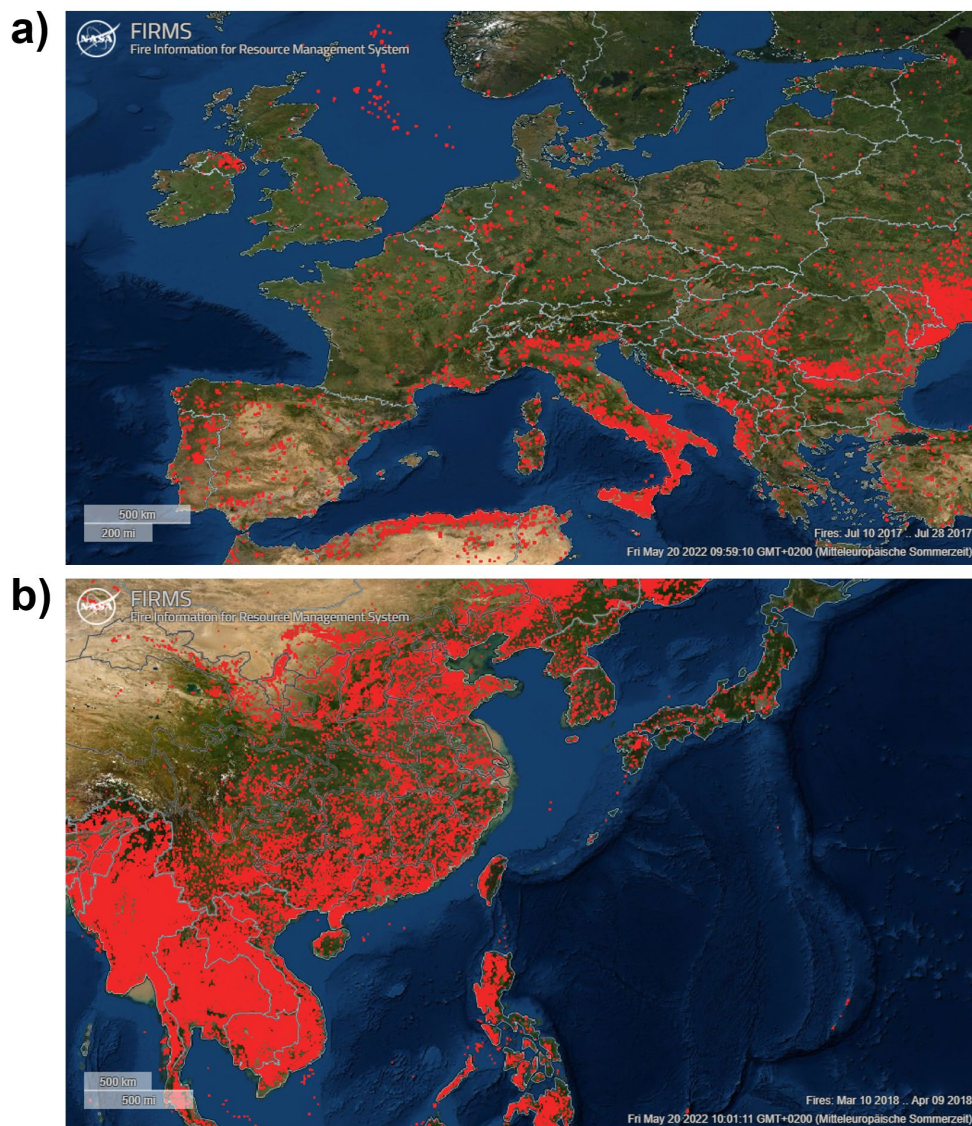


Abbildung 7: Feuerkarten für den kompletten Messzeitraum von EMERGe-EU (a) und von EMERGe-Asien (b) (FIRMS - Fire Information for Resource Management System 2022).

1.4.1 EMeRGe-EU

Der Europa-Teil der EMeRGe-Kampagne fand vom 10. bis 28. Juli 2017 statt. Das Forschungsflugzeug HALO war dabei in Deutschland am DLR-Standort in Oberpfaffenhofen stationiert und von dort aus wurden dann diverse Ballungsgebiete in Europa beprobt. Die Hauptziele waren dabei London, Barcelona, Rom, die Po-Ebene, die BeNeLux-Staaten, bestehend aus Belgien, den Niederlanden und Luxemburg, und das Rhein/Ruhr-Gebiet in Deutschland. Die einzelnen Flugrouten zur Untersuchung der genannten Städte und Gebiete sind in Abbildung 8 dargestellt und verteilen sich auf insgesamt 7 Messflüge und 53 Flugstunden, beginnend mit Flug 3, da die Nummerierung der Flüge nicht erst mit den Missionsflügen beginnt, sondern auch Testflüge beinhaltet.

Eine genauere Beschreibung der einzelnen Flüge vom Europa-Teil der EMeRGe-Kampagne, inklusive der meteorologischen Vorhersagen, können im Übersichtspaper von Andrés Hernández et al. (2022) nachgelesen werden, sofern sie nicht später in dieser Arbeit Erwähnung finden.

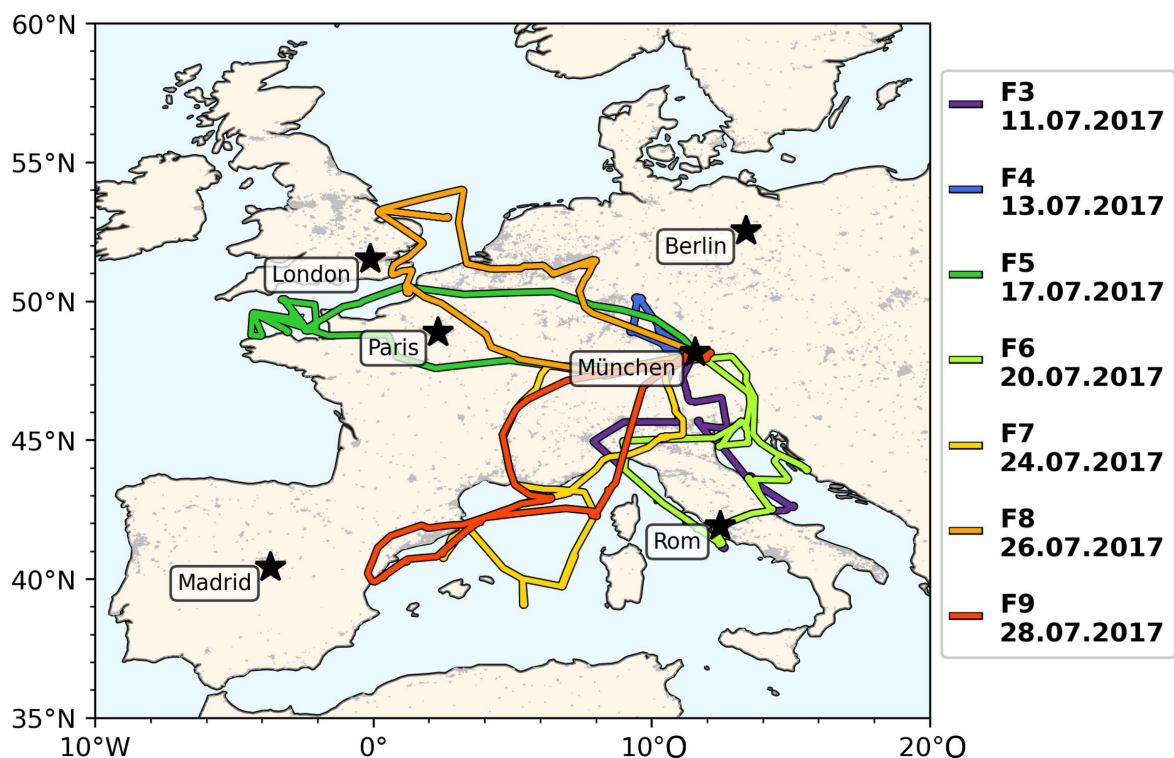


Abbildung 8: Die Flugrouten von EMeRGe-EU auf einer Karte dargestellt, welche die Urbanisierung durch graue Cluster auf der hellbeigen Landfläche abbildet.

1.4.2 EMeRGe-Asien

Bei dem Asien-Teil der EMeRGe-Kampagne, welcher vom 10. März bis zum 9. April 2018 stattfand und 127 Flugstunden umfasste, war HALO in Tainan auf Taiwan stationiert, um dann die Abgasfahnen des chinesischen Festlandes, Japans, Taiwans und der Philippinen zu beproben. Um zum gewünschten Einsatzort zu gelangen waren jeweils zwei Transferflüge von Deutschland aus notwendig. Einmal von Oberpfaffenhofen nach Dubai und der zweite von Dubai nach Bangkok. Der erste Missionsflug im Messgebiet war somit Flug 3 und startete noch in Bangkok und beprobte auf dem Flug nach Tainan erstmals die Abgasfahne der Philippinen. Beim letzten Missionsflug im Messgebiet wurde noch einmal die Westküste von Taiwan beprobt, bevor für die beiden Transferflüge wieder nach Bangkok geflogen wurde. In Abbildung 9 sind alle Flugrouten der 12 Missionsflüge im Messgebiet dargestellt, wobei durch Überlappungen, wenn beispielsweise eine Flugroute mehrfach geflogen wurde, nicht alle Flugabschnitte ersichtlich sind.

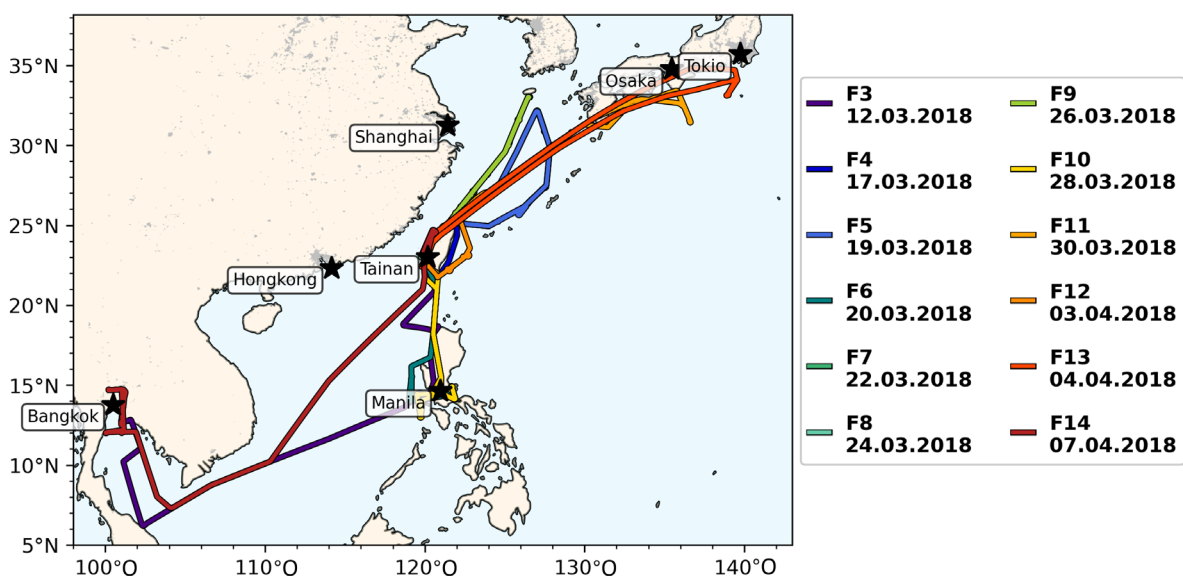


Abbildung 9: Die Flugrouten von EMeRGe-Asien, ausgenommen die Transferflüge von und nach Oberpfaffenhofen, abgebildet auf einer Karte, die die Urbanisierung durch graue Cluster auf der hellbeigen Landfläche widerspiegelt.

1.5 Ziel dieser Arbeit

Das Ziel dieser Arbeit ist die Charakterisierung der Verschmutzungsaerosole in den Abgasfahnen von Megacitys, wozu die Aerosolmessungen von der EMeRGe-Kampagne in Europa und Südostasien mit dem „Aerosol Measurement System“ (AMETYST) ausgewertet wurden. Da AMETYST noch nie vollständig charakterisiert wurde, ist es nötig dieses zunächst umfassend zu charakterisieren und zu kalibrieren, damit mögliche Fehlerquellen quantifiziert und im besten Fall korrigiert werden können.

Durch die Charakterisierung der Verschmutzungsaerosole in den Abgasfahnen der Megacitys sollen folgende Fragen in dieser Arbeit beantwortet werden, welche auch einen Aspekt der Motivation zur Durchführung der EMeRGe-Kampagne widerspiegeln:

Frage 1: Gibt es Unterschiede in den mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften bei unterschiedlichen Quellregionen?

Frage 2: Unterscheiden sich die mikrophysikalischen Eigenschaften von lokalen und transportierten Aerosolpartikeln und was ist der Einfluss von Transport und Alterung?

Europa und Asien unterschieden sich vor allem in Bezug auf die Klimatologie, dem Ausbau der Infrastrukturen und den bestehenden Richtlinien zur Luftreinhaltung. All diese Unterschiede könnten Auswirkungen auf die mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften haben. Zur Beantwortung der ersten Frage wurden deswegen eine europäische und eine asiatische Megacity ausgewählt, welche sich bezüglich der Einwohneranzahl und der registrierten Fahrzeuge ähneln, sodass eine gute Vergleichbarkeit gegeben ist. Für Europa ist dies London (Großbritannien) und für Asien Manila (Philippinen). Für das Jahr 2018 wies die Metropolregion London mit 14.26 Millionen Einwohnern (Eurostat letztes Update 7.7.2020) in etwa genauso viele Einwohner auf wie die Metropolregion Manila mit 13.48 Millionen (United Nations 2019b). Und auch die registrierten Fahrzeuge im selben Jahr waren mit 3.05 Millionen Fahrzeugen in der City of London (Department of Transport September 2020) und 2.79 Millionen in der Metropolregion Manila (Land Transportation Office 27.01.2020) vergleichbar. Da beide Städte außerdem relativ isoliert liegen, also ohne größere Emissionsquellen in der näheren Umgebung, und während der EMeRGe-Kampagne mit einer ähnlichen Strategie zweifach beprobt wurden, eignen sich diese beiden Megacitys sehr gut zur Beantwortung der Fragestellung, ob es Unterschiede in den mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften bei diesen zwei verschiedenen Quellregionen gibt.

Die zweite Frage betrifft den Einfluss des Transports und der Alterung auf die mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften. Denn durch die stattfindenden Transport- und Transformationsprozesse der Koagulation und der Kondensation würde, wie in Kapitel 1.1 beschrieben, ein Anwachsen der Aerosolpartikel während ihrem Verbleib in der Atmosphäre vermutet werden, welches sich in den Größenverteilungen widerspiegeln sollte. Im Idealfall sollte so eine Unterscheidung zwischen jüngeren Aerosolpartikeln lokalen Ursprungs und älteren herantransportierten Aerosolpartikeln möglich sein. Diese mögliche Unterscheidung anhand der mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften könnte dann in Zukunft die Grundlage bilden, um zu eruieren, ob bestimmte lokale Restriktionen überhaupt greifen würden oder ob die Luftqualität hauptsächlich durch herantransportierte Luftmassen beeinflusst wird. Zur Charakterisierung der Aerosoleigenschaften von transportierten und lokalen Emissionen wurde gezielt die Westküste von Taiwan auf jedem Flug von EMeRGe-Asien ausführlich

beprobt, sodass eine ausreichend hohe Statistik vorliegt. Außerdem ist Taiwan durch die Insellage isoliert genug, damit die transportierten Luftmassen gut von den lokalen Emissionen zu unterscheiden sein sollten.

1.6 Externe Daten

Für die Überprüfung des Einflusses der beiden Megacities London und Manila auf die vermessenen Luftmassen oder die Klassifizierung der Luftmassen an der Westküste von Taiwan in lokale und transportierte Emissionen wurde das „Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory“-Modell, kurz HYSPLIT, genutzt um Rückwärtstrajektorien zu erstellen (Stein et al. 2015). Dieses wurde zum einen als Webinterface vom Air Resources Laboratory (ARL 2022) bereitgestellt, als auch von Robert Baumann in einem eigen entwickelten Interface am DLR Institut für Physik der Atmosphäre (IPA). Eine genauere Beschreibung zur Nutzung dieses Modells im Zuge dieser Arbeit wird in Kapitel 2.4 gegeben.

Für die Interpretation der gemessenen Aerosoldaten mit AMETYST wurden des Weiteren Daten von anderen Messgeräten von EMERGE-Teilnehmern herangezogen. Dies waren die chemische Aerosolzusammensetzung, welche mit dem C-ToF-AMS (Compact Time-of-Flight Aerosol Mass Spectrometer) von Katharina Kaiser (MPIC) gemessen wurde und aus welcher sich das Verhältnis von f_{44}/f_{43} ergibt. Dieses Verhältnis, welches sich aus den Massenladung Verhältnissen m/z 44 und m/z 43, jeweils in Bezug auf das gemessene organische Gesamtsignal ergibt, kann zur Abschätzung der Alterung der vermessenen Aerosolpartikel herangezogen werden (Ng et al. 2010; Schulz et al. 2018). Außerdem wurde die Black Carbon (BC) Massenkonzentration gemessen mit einem SP2 (Single Particle Soot Photometer) von Bruna Holanda (MPIC) genutzt, genauso wie die Messungen von Ozon (O_3) und Kohlenstoffmonoxid (CO) durch Hans Schlager (DLR-IPA) mittels des Messgeräts AMTEX (Atmospheric Trace Experiment) und die Messungen von Methan (CH_4) mit einem Messgerät der Firma Picarro von Theresa Klausner (DLR-IPA). Als letztes wurde noch die Klassifizierung über das Vorhandensein von Benzol (BEN) und Acetonitril (ACN) von Eric Förster (KIT), abgeleitet aus den Messungen mit dem HKMS (HALO Karlsruhe Mass Spectrometer), verwendet. Anhand dieser Klassifizierung ist es möglich eine Aussage dahingehend zu treffen, ob die vermessenen Luftmassen von anthropogenen Emissionen oder Biomass Burning beeinflusst wurden (Förster et al. 2022).

2 Methodik

2.1 HALO-Instrumentierung

Wie in Kapitel 1.3 beschrieben, wurden während der EMeRGe-Kampagne verschiedene Messgeräte auf HALO betrieben. In diesem Unterkapitel werden nun diejenigen, deren Daten für diese Arbeit hauptsächlich genutzt wurden, näher erläutert. Zum einen ist dies das Messsystem von HALO selbst, kurz BAHAMAS, welches meteorologische Parameter, aber auch Flugzeugpositionsdaten aufzeichnet. Durch den speziell konstruierten Aerosoleinlass HASI sind isokinetische Aerosolmessungen bis $3\ \mu\text{m}$ möglich, wobei die Anströmung des Einlasses bei Kurven oder Sink- und Steigflügen beachtet werden sollte. Zum Schluss wird noch das Aerosolmesssystem AMETYST beschrieben, mit welchem die Gesamtanzahlkonzentration der Aerosolpartikel im Größenbereich von $10\ \text{nm}$ bis $3\ \mu\text{m}$, aber auch die Anzahlkonzentration in spezifischen Größenkanälen gemessen werden können. Außerdem ist es mit AMETYST möglich den Absorptionskoeffizienten für drei verschiedene Wellenlängen zu ermitteln.

2.1.1 BAHAMAS

Auf dem Forschungsflugzeug HALO ist das „Basic HALO Measurement and Sensor System“ (BAHAMAS) im Einsatz (Andreae et al. 2018). Dieses Messsystem zeichnet unter anderem meteorologische Parameter auf, welche außerhalb der Flugzeugatmosphäre mittels Sensoren an einem Nasenmast gemessen werden. Dazu zählen der Druck, die Temperatur, die Luftfeuchtigkeit und die Windgeschwindigkeit und -richtung. In Abbildung 10 ist ein Bild von HALO zu sehen, bei welchem der Nasenmast und der Aerosoleinlass namens HASI, welcher im nächsten Kapitel beschrieben wird, gekennzeichnet sind. BAHAMAS erfasst jedoch nicht nur meteorologische Parameter, sondern auch die Flugzeugpositions- und Lagedaten von HALO. Für eine einheitliche Zeit der diversen Messgeräte in HALO ist außerdem ein eigener Zeitserver mitverbaut (Andreae et al. 2018; Mallaun et al. 2015).



Abbildung 10: HALO mit seinen diversen Außenkonfigurationen. Speziell gekennzeichnet sind hierbei der Nasenmast und der HASI Einlass (HALO-SPP 1294). Ebenfalls zu erkennen sind die verschiedenen Einlässe für die Spurengasmessungen und die Flügelstationen, wobei letztere bei EMERGe nicht im Einsatz waren.

2.1.2 Aerosolmessungen mit dem HASI-Einlass

Auf dem Dach des Flugzeugrumpfes von HALO sind mehrere Einlässe für die verschiedenen Messgeräte montiert. Für die Beprobung von Aerosolpartikeln ist dies der Einlass genannt HASI, welcher in Abbildung 11 gekennzeichnet wurde. HASI steht hierbei für „HALO Aerosol Submicrometer Inlet“ und ist ein isokinetisch designer Einlass mit 4 vorwärts gerichteten Probenleitungen mit denen Aerosolmessungen bis zu einem Partikeldurchmesser von etwa $3 \mu\text{m}$ durchgeführt werden können (Andreae et al. 2018).

Da in Kurven und bei zu steilen Sink- und Steigflügen von HALO der Einlass jedoch nicht optimal angeströmt wird und sich so Aerosolpartikel bestimmter Größenbereiche in den Probenleitungen an- oder abreichern (Hinds 1999; Kulkarni et al. 2011), wurde aus diesem Grund das Hauptaugenmerk der Auswertung auf Zeitspannen gelegt, die folgende Kriterien erfüllen und welche in dieser Arbeit als Messleg bezeichnet werden:

- Die Sink-/Steigrate liegt unterhalb von 200 ft min^{-1}
- Die Flughöhe beträgt mindestens 200 m
- Der Rollwinkel des Flugzeugs ist geringer als 7°
- Die Zeitspanne ist mindestens 120 Sekunden lang

In Abbildung 11 sind die sich so ergebenden Ausschlusskriterien bildlich dargestellt, wobei kurzzeitige Abweichungen von bis zu 10 Sekunden in der Definition des Messlegs geduldet werden. So kann es sein, dass die Sink- oder Steigrate beispielsweise für 5 Sekunden oberhalb des Wertes von 200 ft min^{-1} liegt, ohne dass das Messleg unterbrochen wird.

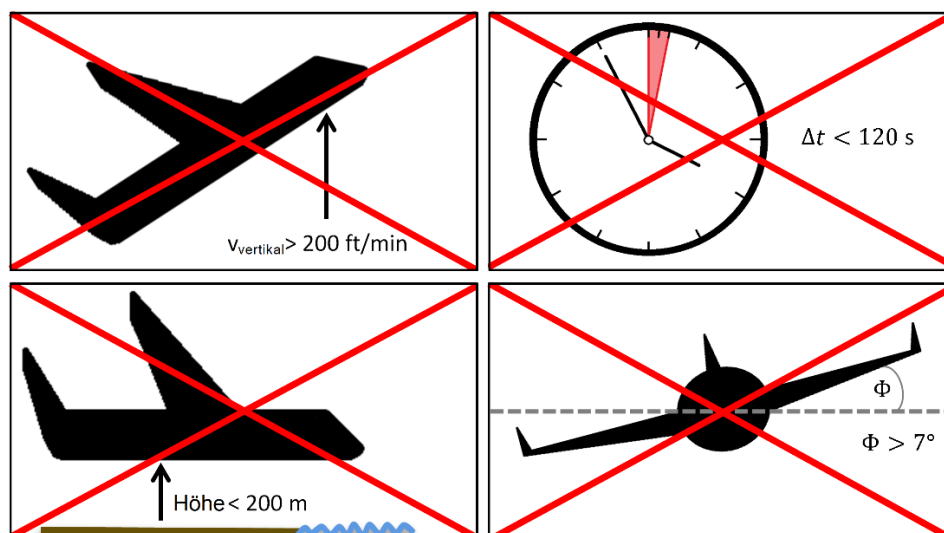


Abbildung 11: Definition eines Messlegs dargestellt durch die verschiedenen Ausschlusskriterien. Ausgeschlossen werden Zeitspannen bei denen die Sink- oder Steigrate oberhalb von 200 ft min^{-1} liegt (oben links), die Zeitdauer weniger als 120 Sekunden beträgt (oben rechts), die Mindesthöhe von 200 Meter über Grund unterschritten wird (unten links) oder der Rollwinkel des Flugzeugs mehr als 7° ist (unten rechts).

2.1.3 AMETYST

Das „Aerosol Measurement System“, kurz AMETYST, detektiert verschiedene mikrophysikalischen Eigenschaften von Aerosolpartikeln. Die abgedeckten Parameter sind hierbei die Gesamtanzahlkonzentration für Partikeldurchmesser von 10 nm bis $3 \text{ }\mu\text{m}$, die Anzahlkonzentrationen gemessen in spezifischen Größenkanälen und der Absorptionskoeffizient bei drei verschiedenen Wellenlängen. Um Druck- und Temperatureffekte aufgrund der atmosphärischen Schichtung herauszurechnen wurden die gemessenen Anzahlkonzentrationen stets auf Standardbedingungen ($p_0 = 1013.25 \text{ hPa}$ und $T_0 = 273.15 \text{ K}$) umgerechnet und durch STP (Standard Temperature and Pressure) gekennzeichnet. Für die Detektion der verschiedenen Parameter sind mehrere unterschiedliche kommerzielle Messgeräte im Inneren vom AMETYST verbaut, welche für den Zweck der Flugzeugmessungen individuell vom Hersteller in Absprache mit dem DLR angepasst wurden, da diese im Normalfall nicht auf Unterdruckmessungen, wie sie im Flugzeug getätigt werden, ausgelegt sind. Die einzelnen Instrumente werden in den folgenden Unterkapiteln näher erläutert.

Zur Verbindung der einzelnen Geräte mit dem Einlass am AMETYST wurden meist Edelstahlrohre mit einem Außendurchmesser von $\frac{1}{4}$ Zoll (6.35 mm) und einem Innendurchmesser von 4.6 mm verwendet. Die Frontansicht von AMETYST ist in Abbildung 12a) zu erkennen, während in 12b) die Seitenansicht mit einer vereinfachten Verrohrung dargestellt ist, um die Lage der Geräte in AMETYST zu kennzeichnen. Ein genauere Gaslaufplan bis hin zu den detektierenden Geräten ist in Abbildung 13 zu sehen. Nach den Messinstrumenten folgen noch diverse Massenflussregler (Mass Flow Controller (MFC)), welche die einzelnen Flüsse kontrollieren, und die Pumpe. Schlussendlich führen alle Rohrleitungen in die Abgasleitung des Flugzeugs. Außerdem sind die Bypass-Leitungen nach

den Flowsplittern SPL3 und SPL4 eingezeichnet. Diese werden benötigt, um einen konstanten Fluss am HASI-Einlass zu gewährleisten, dessen Flusssteuerung ebenfalls im AMETYST untergebracht ist. Über diese werden die Flüsse der verschiedenen Probenleitungen von HASI geregelt, welche abhängig von der Fluggeschwindigkeit sind, und Informationen über die Flüsse anderer Messgeräte, welche an HASI angeschlossen sind, ausgegeben.

Wie in den Abbildungen 12 und 13 ebenfalls zu erkennen, gibt es eingebaute Thermodenuder (TD). Diese sind Heizelemente, welche die beprobte Luft stark aufheizen, sodass die volatilen Partikel verdampft werden (Wehner et al. 2002). Mit diesen Thermodenudern wäre es daher möglich, das Verhältnis von volatilen zu nicht-volatilen Partikeln zu bestimmen. Bei der EMERGe-Kampagne waren sie jedoch nicht im Einsatz.

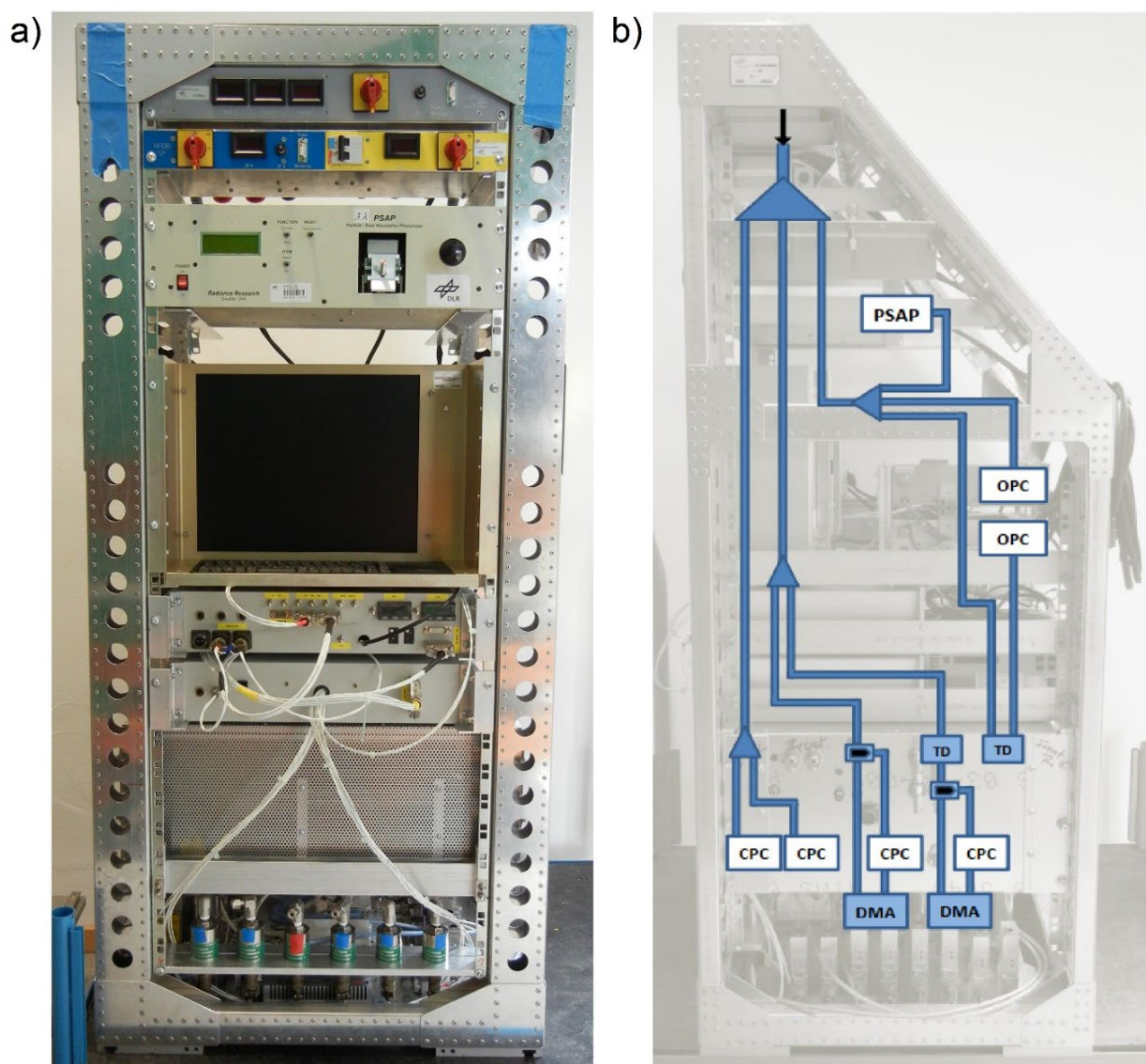


Abbildung 12: Ein Foto vom AMETYST in der Frontansicht ist in a) zu sehen. Von oben nach unten ist die Einheit zur Stromversorgung mit den roten Schaltern, gefolgt vom PSAP-Einschub und dem Bildschirm mit Tastatur zu sehen. Nach dem Einschub mit dem Rechner, folgt der CPC-Einschub, welcher von vorne hinter einem Gitter verborgen ist. Im unteren Teil befinden sich dann noch die Hauptpumpe, die DMAs und die MFCs. In b) ist eine vereinfachte schematische Verrohrung der einzelnen Geräte im AMETYST dargestellt, wobei der Aerosoleinlass vom AMETYST mit einem schwarzen Pfeil markiert ist. Die CPCs, die OPCs und das PSAP sind als detektierende Geräte weiß hinterlegt, wohingegen die Thermodenuder (TD) und die DMAs blau hinterlegt sind. Vor den zwei CPCs, welche mit einem DMA verbunden sind, befinden sich außerdem jeweils ein Dreivehgehn.

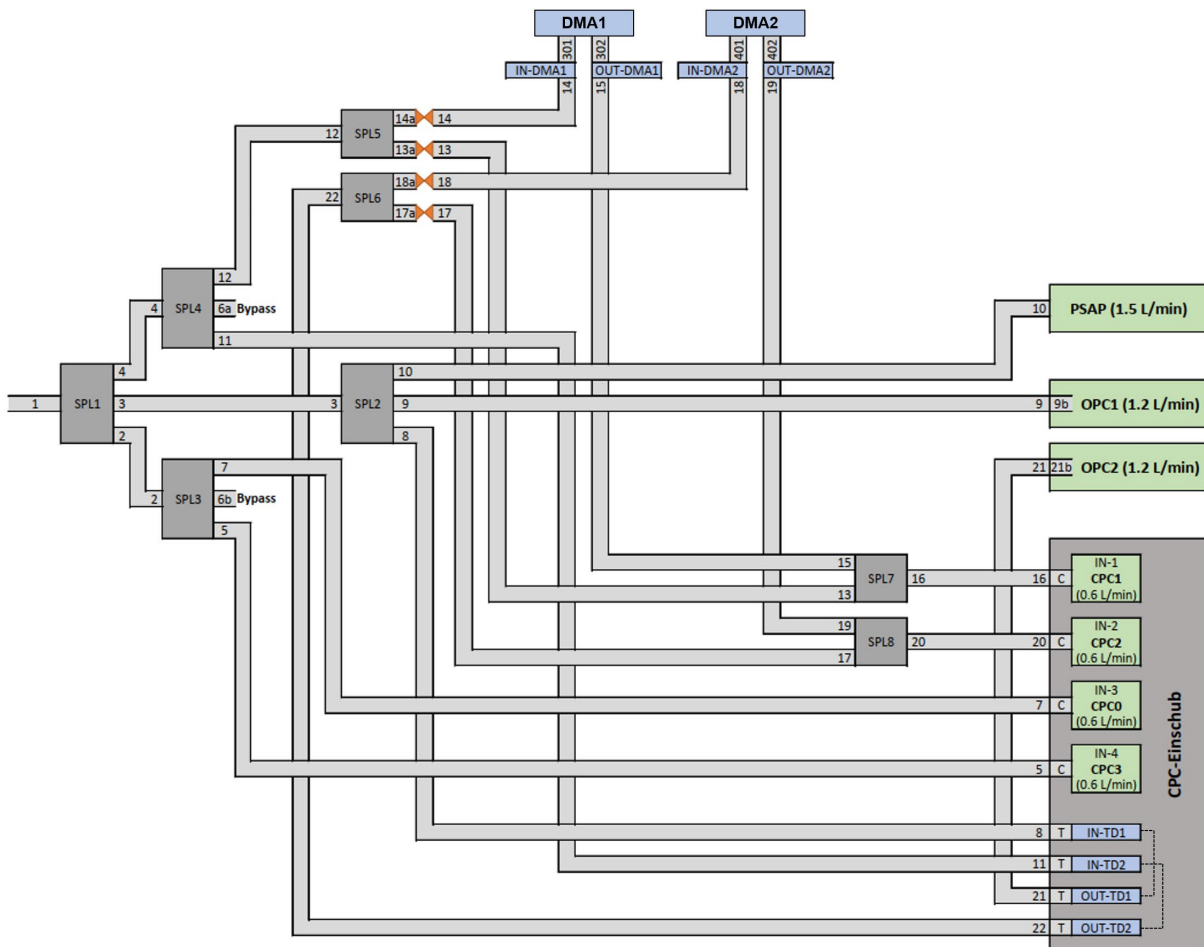


Abbildung 13: Gaslaufplan vom AMETYST vom Einlass bis zu den detektierenden Geräten (grün) mit dazugehöriger Nummerierung der Rohrleitungen. Die Flowsplitter sind in einem dunkleren grau gehalten, genau wie der CPC-Einschub. Die Ein- und Ausgänge der zu durchströmenden Geräte (DMAs und Thermodenuder) und die DMAs selbst sind in blau gehalten und die Dreiwegehähne in orange.

Condensation Particle Counter - CPC

Zum Messen der Partikelanzahlkonzentration sind in AMETYST vier Kondensationskernzähler (Condensation Particle Counter (CPC)) der Firma GRIMM Aerosol Technik aus Ainring, Deutschland verbaut. Die Geräte mit der genauen Bezeichnung GRIMM Sky-CPC 5.410 wurden in Zusammenarbeit mit dem Hersteller so weit modifiziert, dass ein Einsatz im Flugzeug problemlos möglich ist. Für eine Kennzeichnung der einzelnen CPCs wurden diese durchnummeriert, wie bereits im Gaslaufplan in Abbildung 13 ersichtlich (CPC0, CPC1, CPC2 und CPC3).

Partikel kleiner als 100 nm sind zu klein, als dass sie durch direkte optische Messungen mit sichtbarem Licht nachgewiesen werden könnten (Minikin et al. 2012). Wenn die Partikel jedoch eine mit einer geeigneten Substanz übersättigte Umgebung passieren, können sie aufgrund der Kondensation von der Substanz an den Partikeln auf eine optisch detektierbare Größe anwachsen. Im Fall der hier vorgestellten CPCs wird Butanol für ein Anwachsen der Partikel genutzt.

Dieses wird zunächst durch die beheizte Saturatorkammer aus dem umliegenden Filz verdampft. Gelangt es danach in den gekühlten Kondensator wird dadurch eine Übersättigung des Butanols erzeugt, welche für das Anwachsen der Partikel benötigt wird. Das Butanol kondensiert nun an den einzelnen Partikeln, welche den CPC mit 0.6 L min^{-1} passieren, bis diese eine optisch detektierbare Größe erreichen. Anschließend werden die Partikel in der Optik des CPCs von einem Laser detektiert, indem das Streulicht von einer Photodiode erfasst wird. Schematisch dargestellt ist dieser Ablauf innerhalb des CPCs in Abbildung 14.

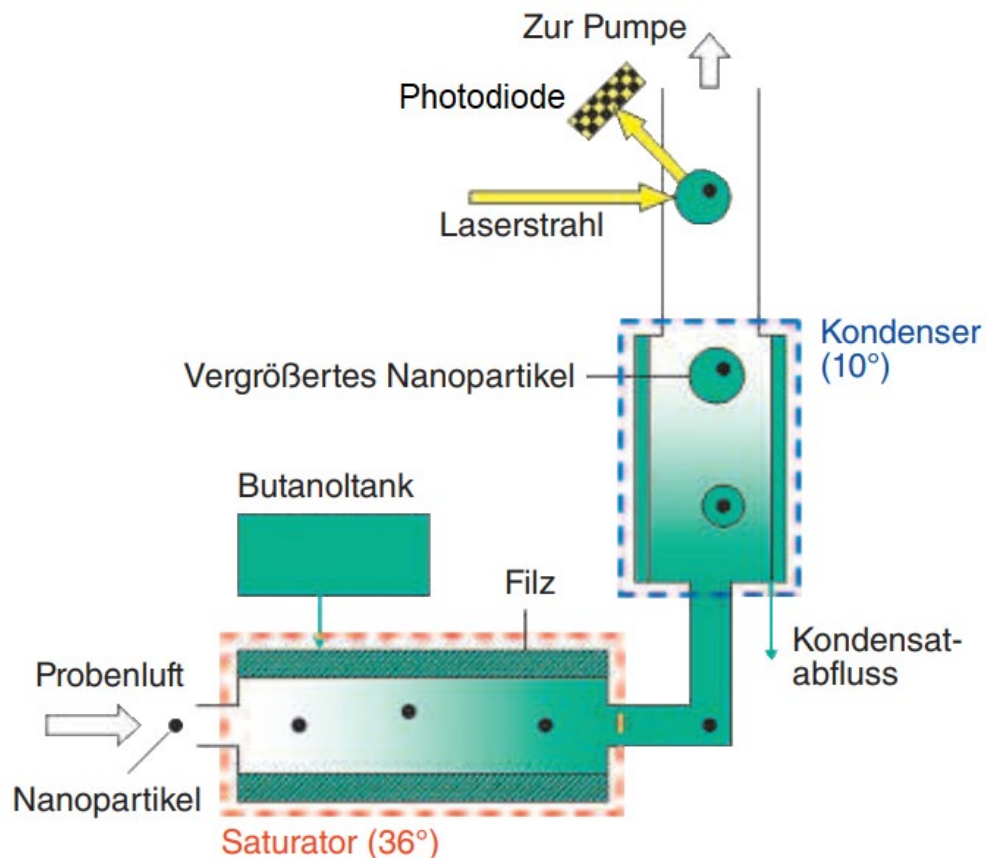


Abbildung 14: Schematischer Aufbau eines CPCs aus der Broschüre für die stationären Kondensationskernzähler der Modellreihe 5.410 – 5.421 von GRIMM Aerosol Technik (2012).

In dieser Arbeit wurde der CPC3, welcher die Gesamtanzahlkonzentration misst, und der CPC1 in Verbindung mit einem DMA ausgewertet, da beim CPC2 der andere DMA, mit welchem dieser verbunden ist, eine Undichtigkeit aufwies und der CPC0 bei EMerGe-Asien aufgrund eines Lecks abgeklemmt war.

Durch das Einstellen der Saturator- und Kondensatortemperatur ist die Kontrolle über die Butanolsättigung und -kondensation gegeben, welche mit dem Cut-off des CPCs zusammenhängt (Mertes et al. 1995). Bei einer konstanten Saturatortemperatur von 36 °C wie bei den hier verwendeten CPCs, wird über die Kondensatortemperatur der Grad der Übersättigung bestimmt. Je niedriger die Temperatur am Kondensator, desto höher die Übersättigung und desto kleinere Partikel können auf eine detektierbare Größe anwachsen. Der CPC3, welcher die Gesamtanzahlkonzentration misst, wies eine Kondensatortemperatur

von 16 °C auf, sodass der Cut-Off bei einem Partikeldurchmesser von etwa 10 nm lag. Beim CPC1 betrug die Temperatur am Kondensator nur 10 °C. Der nominelle Cut-Off lag damit bei 4 nm, sodass in Verbindung mit dem DMA schon die bestmögliche Effizienz zur Detektion von 10 nm erreicht wurde.

Differential Mobility Analyzer - DMA

Mit einem differentiellen Mobilitätsanalysator (Differential Mobility Analyzer (DMA)) ist es möglich aus den eingehenden polydispersen Aerosolpartikeln Partikel einer elektrischen Mobilität zu selektieren, die ja nach Ladungszustand des Partikels einer Partikelgröße entspricht (Knutson und Whitby 1975). Dafür werden die Partikel im Probenfluss zunächst in einen geladenen Zustand gebracht in dem sie einer bekannten Ladungsverteilung ausgesetzt werden. Im Falle von AMETYST, bei welchem ein „GRIMM Vienna type M-DMA“ der Firma GRIMM Aerosol Technik aus Ainring, Deutschland verbaut ist, geschieht dies durch eine Americium-241 (^{241}Am) Quelle. Die geladenen Partikel gelangen nun in den zylindrisch aufgebauten DMA. Dieser besteht im Falle von AMETYST aus einer negativ geladenen Elektrode als Außenhülle und einer positiv geladenen Elektrode im Inneren. Die angelegte Spannung an der Innenelektrode kann dabei variiert werden, sodass die Stärke des elektrischen Feldes im Inneren des DMAs eingestellt werden kann. Um diese Innenelektrode herum wird ein Schleierluftstrom in den DMA eingeleitet, der für eine laminare Strömung sorgt.

Die negativen Partikel werden von der positiv geladenen Innenelektrode des DMAs angezogen. Kleine Partikel besitzen dabei eine höhere elektrische Mobilität, was ihre Bewegungsfähigkeit im elektrischen Feld beschreibt und deren Formel in Kapitel 2.2.2 aufgeführt ist, und bewegen sich daher schneller auf die innere Elektrode zu und lagern sich dort ab. Größere Partikel dagegen besitzen eine kleinere elektrische Mobilität und bewegen sich aus diesem Grund langsamer auf die Mitte des DMAs zu, sodass sie meist am Ende des DMAs sedimentieren. Am unteren Ende der Innenelektrode befindet sich ein schmaler Ringspalt, den einige wenige Partikel mit derselben elektrischen Mobilität passieren können. Dabei hängt die angelegte Spannung mit der elektrischen Mobilität der Partikel, die den DMA passieren können, zusammen. Dargestellt ist dieses Funktionsprinzip in Abbildung 15.

Durch einen DMA ist es daher, wie schon beschrieben, möglich von den eingehenden polydispersen Aerosolpartikeln Partikel mit einer bestimmten elektrischen Mobilität zu selektieren. Diese elektrische Mobilität entspricht bei einer Einfachladung der Partikel einem ganz gewissen Partikeldurchmesser. Die Variation der Spannung erfolgt über die Eingabe des zu messenden Partikeldurchmessers, wenn eine Einfachladung angenommen wird. Intern wird dieser Durchmesser dann in eine Spannung umgerechnet und eingestellt.

Die Schleierluft, welche ins System eingebracht wird, wird nach dem DMA gefiltert und wiederverwendet, sodass der eingehende Fluss der Schleierluft auch stets dem ausgehenden Fluss der Schleierluft entspricht.

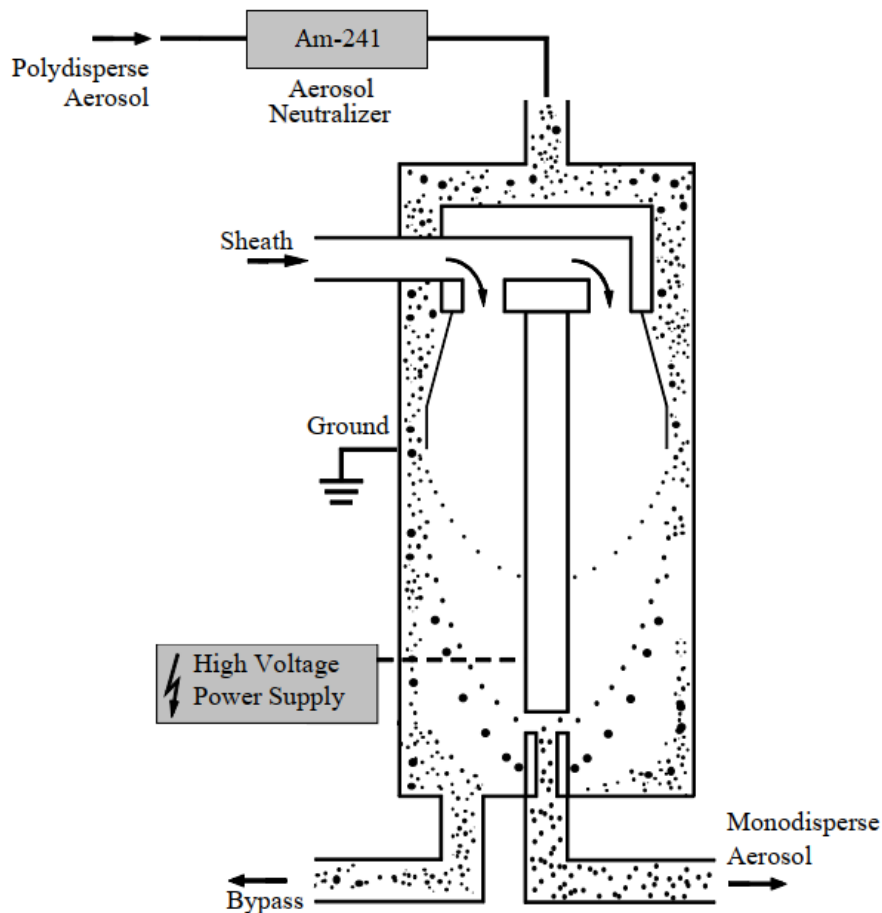


Abbildung 15: Schematischer Aufbau eines DMAs, modifiziert aus der Gebrauchsanleitung des Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) der Firma TSI Incorporated (2002).

Während der EMERGe-Kampagne lief der DMA im sogenannten Stepping-Modus. Dies bedeutet, dass der eingestellte Partikeldurchmesser und damit die angelegte Spannung sich nach einem gewissen Zeitintervall in einer zuvor festgelegten Reihenfolge ändert. So wurden bei der EMERGe-Kampagne sieben verschiedene Partikeldurchmesser für je 30 Sekunden beprobt. Diese waren wie folgt:

10 nm, 14 nm, 40 nm, 58 nm, 100 nm, 150 nm, 300 nm

Optical Particle Counter - OPC

In AMETYST sind zwei optische Partikelzähler (Optical Particle Counter (OPC)) von GRIMM Aerosol Technik aus Ainring, Deutschland mit der Modelbezeichnung 1.129 Sky-OPC verbaut.

Mit einem OPC ist es möglich Partikel ab 250 nm direkt, also ohne vorheriges Anwachsen, zu detektieren. Dafür passieren die Partikel in der Optik des OPCs einen gebündelten Laserstrahl und das an den Partikeln gestreute Licht wird dann durch einen Spiegel zum Detektor fokussiert. Zu sehen ist dieses Prinzip in Abbildung 16.

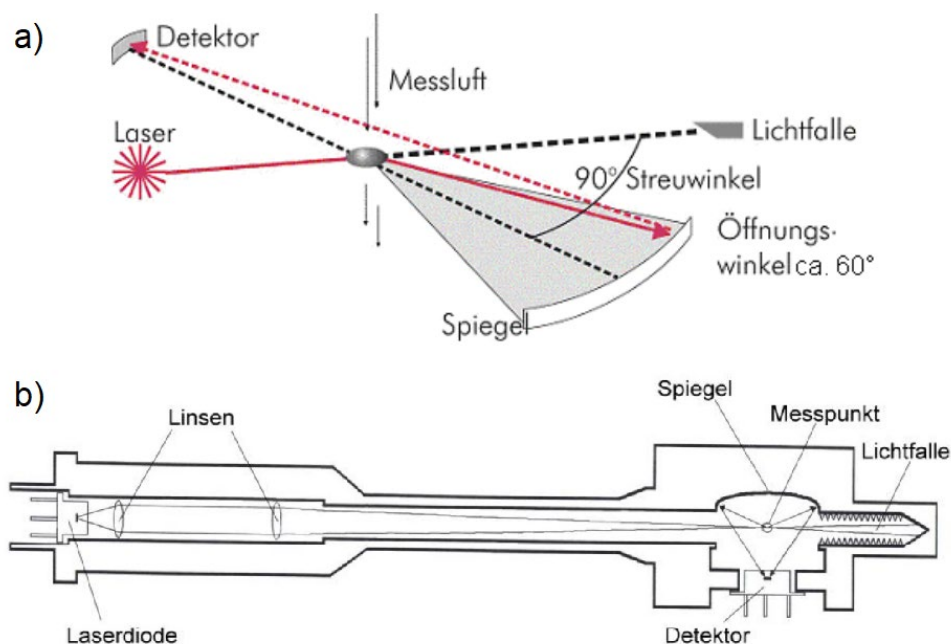


Abbildung 16: In a) ist das Messprinzip eines OPCs dargestellt, wobei der Probenluftstrom von oben nach unten strömt. In b) ist die komplette Messzelle des OPCs dargestellt, sodass ersichtlich ist, wie der Laser von Linsen gebündelt und auf den Messpunkt fokussiert wird. Die Probenluft strömt dabei in die Blattebene hinein. Beide Graphiken wurden aus der Bedienungsanleitung von GRIMM Aerosol Technik (2007) für den Sky-OPC Modell 1.129 übernommen.

Anders als beim CPC werden beim OPC die detektierten Partikel anhand des Streulichtsignals in verschiedene Größenkanäle eingeordnet. Die Summe aus diesen einzelnen Kanälen ergibt dann die Gesamtanzahlkonzentration im Messbereich des OPCs von 250 nm bis 3 μm .

Diese Einteilung ist möglich, da die Partikelgröße proportional zur Intensität des Streulichts ist und andere mögliche Einflussfaktoren durch die Bauweise des OPCs minimiert wurden.

Particle Soot/Absorption Photometer - PSAP

Ebenfalls im AMETYST verbaut, ist ein Absorptionsphotometer (Particle Soot/Absorption Photometer (PSAP)) der Firma Radiance Research, Seattle, USA. Dieses Gerät ermittelt den Absorptionskoeffizienten mittels einer Filtermessung bei drei verschiedenen Wellenlängen (blau: 470 nm, grün: 522 nm, rot: 660 nm).

Dafür wird die Probenluft durch einen Membranfilter geleitet, auf welchem sich die Partikel ablagern. Mit der Zeit wird dieser Filter daher immer undurchlässiger für das Licht bei den drei Wellenlängen. Die Transmission der einzelnen Wellenlängen durch den Filter nimmt also ab. Zur Quantifizierung dieser Abnahme der Transmission ist es nötig, den Probenfilter mit einem Referenzfilter zu vergleichen, für welchen die bereits gefilterte Probenluft verwendet wird. Zu erkennen ist dieses Schema in Abbildung 17.

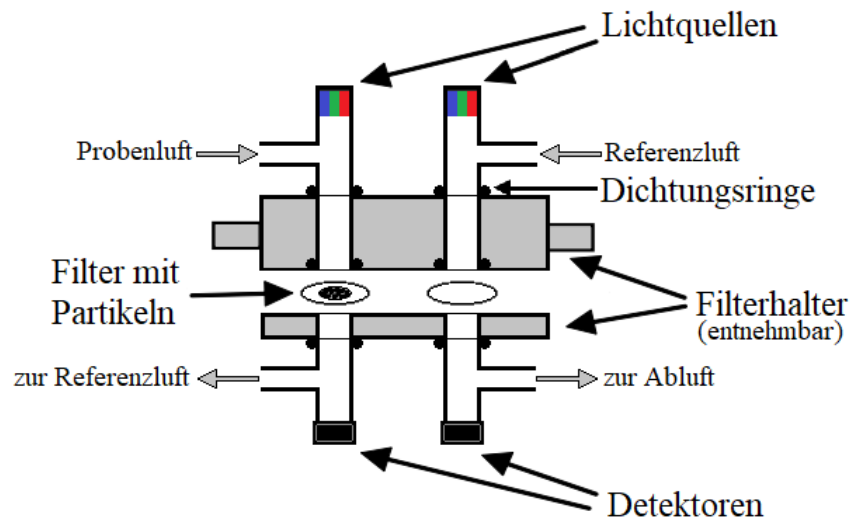


Abbildung 17: Aufbau des optischen Blocks vom PSAP mit dem Probenfilter links und dem Referenzfilter rechts. Adaptiert von der Bedienungsanleitung für das 3λ -PSAP von Radiance Research (Rom version 2.03), von Bond et al. (1999) und von der Dissertation von Markus Fiebig (2001).

Intern berechnet das PSAP nun aus den einzelnen Transmissionen die dazugehörigen Absorptionskoeffizienten b_{abs} für die verschiedenen Wellenlängen mit Hilfe des Lambert Beer'schen Gesetzes (Weingartner et al. 2003).

$$b_{abs} = \frac{A_{spot}}{V_{PSAP}} \ln \left(\frac{T_{r_{t-\Delta t}}}{T_r} \right) \quad (2.1)$$

Dabei beschreibt A_{spot} die Fläche des Messbereichs auf dem Filter, V_{PSAP} das Luftvolumen, das während der Zeitspanne Δt den Filter passiert hat, und $T_{t-\Delta t}$ und T_t die Transmission des Filters vor der Zeitspanne Δt und danach.

2.2 Auswertung und Fehlerbetrachtung

Da alle Messsysteme fehlerbehaftet sind, unter anderem schon durch die bauliche Konstruktion, ist es notwendig, die möglichen Fehlerquellen zu lokalisieren und so gut wie möglich durch entsprechende Korrekturen zu berücksichtigen. Dabei wird zwischen statistischen Fehlern und systematischen Fehlern unterschieden. Der statistischen Fehler entsteht, wenn es positive und negative Abweichungen um den korrekten Messwert gibt. Dieser kann durch mehrmaliges Wiederholen der Messung oder einem längeren Messzeitraum minimiert werden. Aus diesem Grund wurden beispielsweise die einzelnen Partikelgrößen beim zuvor beschriebenen Stepping-Modus des DMAs für jeweils 30 Sekunden beprobt, statt für einen kürzeren Zeitraum. Der systematische Fehler entsteht durch Fehlerquellen, welche dafür sorgen, dass der gemessene Wert immer zu hoch oder aber immer zu niedrig ist im Vergleich zum wirklichen Wert. So sind unter anderem die gemessenen

Anzahlkonzentrationen der Partikel mit einem Partikeldurchmesser <100 nm stets zu niedrig, da ein gewisser Partikelverlust in den Rohrleitungen stattfindet.

In den folgenden Unterkapiteln werden die bekannten Fehlerquellen und deren Korrekturen vorgestellt, welche sich durch die Charakterisierung und Kalibrierung von AMETYST, welche erstmals in solch einem umfassenden Ausmaß durchgeführt wurde, ergaben.

2.2.1 Auswertung der zu untersuchenden DMA-Zeitspannen

Aufgrund des Stepping-Modus, in welchem der DMA in Kombination mit dem CPC1 betrieben wird, erfordert die Auswertung eine spezielle Herangehensweise. Da die sieben verschieden eingestellten Partikeldurchmesser nacheinander für jeweils 30 Sekunden gemessen werden, ist es notwendig zur Auswertung aller Partikeldurchmesser eine Zeitspanne von etwa dreieinhalb Minuten zu betrachten. Durch die hohe Geschwindigkeit von HALO kann es vorkommen, dass sich die Luftmassen und deren Ursprung innerhalb dieser dreieinhalb Minuten verändern. Aus diesem Grund ist bei der Auswahl der zu untersuchenden Zeitspannen wichtig darauf zu achten, dass sich die Gesamtanzahlkonzentration, gemessen mit dem CPC3, nicht signifikant ändert. Denn durch diese Konstanz kann die Annahme getroffen werden, dass die Luftmassen miteinander vergleichbar sind, da sie eventuell von denselben Quellen beeinflusst wurden und sich die Größenverteilungen daher ebenfalls ähneln.

Für eine beispielhafte Auswertung des DMAs wird im Folgenden ein Flug von EMeRGe-Europa verwendet. Bei diesem wurden die Luftmassen über dem Ärmelkanal beprobt, um die Abgasfahne von London zu vermessen. In Abbildung 18a) ist der zeitliche Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration gemessen mit dem OPC und der Druckhöhe für den ganzen Flug und in 18b) dann nur noch für das Messleg mit der Nummer 10 dargestellt. Diese Messlegs sind, wie in Kapitel 2.1.2 beschrieben, Flugphasen bei denen der HASI-Einlass ideal angeströmt wurde. Es wurde also weder eine Kurve geflogen, noch fand ein Sink- oder Steigflug statt. In der Abbildung ist außerdem die Zeitspanne, welche nun für den DMA exemplarisch ausgewertet wird, durch einen farbigen Balken gekennzeichnet. Fehlende Daten im Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration sind auf eine Fehlfunktionen der Datenerfassung des CPCs zurückzuführen.

Wie in der farblich hervorgehobenen Zeitspanne für die DMA-Auswertung in 18b) zu erkennen, ist die Gesamtanzahlkonzentration gemessen mit dem CPC3 annähernd konstant. Und auch die Anzahlkonzentration gemessen mit dem OPC1 variiert nicht sehr stark. Denn auch wenn der OPC erst Partikel ab etwa 250 nm misst, während mit dem DMA meist Partikelgrößen unterhalb dieses Durchmessers beprobt werden, kann die Anzahlkonzentration gemessen mit dem OPC als weiterer Indikator zur Einschätzung, ob die Luftmassen vergleichbar sind, genutzt werden. Zur Auswertung der gewählten Zeitspanne wird nun die Anzahlkonzentration, welche am CPC1 gemessen wurde, die Spannung am DMA und der eingestellte Partikeldurchmesser betrachtet. Dargestellt ist dies in Abbildung 19.

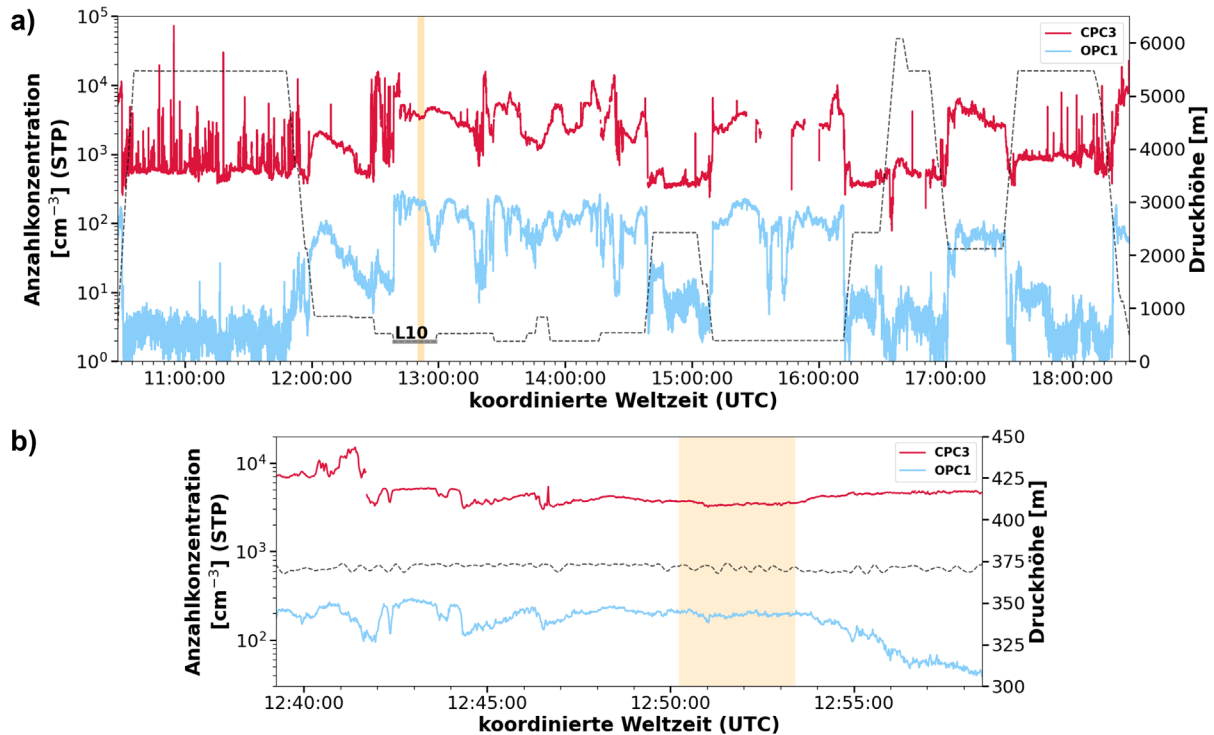


Abbildung 18: In a) ist der gesamte Flug 5 von EMeRGe-Europa vom 17.07.2017 mit dem Ziel der Beprobung der Abgasfahne von London im Ärmelkanal dargestellt, wobei die Gesamtanzahlkonzentration gemessen mit dem CPC3 in Rot dargestellt ist und die Anzahlkonzentration gemessen mit dem OPC1 im Bereich von 250 nm bis 3 μm in Blau. Die gestrichelte Linie ist die Druckhöhe auf welcher geflogen wurde und welche auf der rechten y-Achse dargestellt ist. Der beigefarbene markierte Bereich entspricht der Zeitspanne, in welcher der DMA ausgewertet wurde. Eine vergrößerte Ansicht von Messleg 10, welches ebenfalls in a) markiert wurde, ist in b) dargestellt.

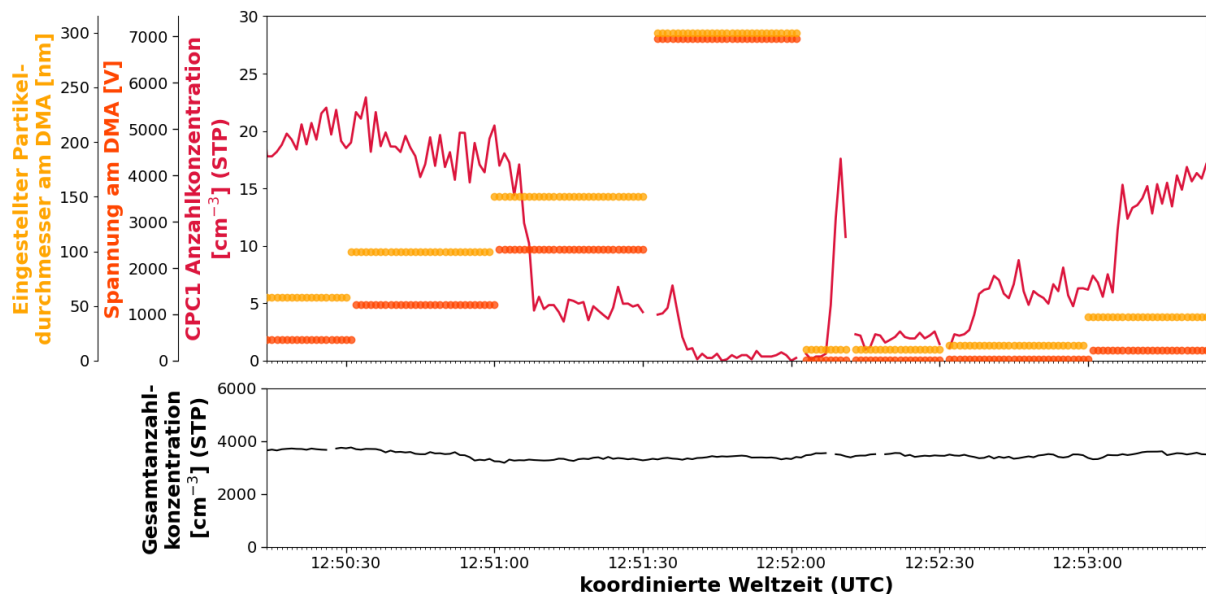


Abbildung 19: Zeitreihe der mit dem DMA auszuwertenden Zeitspanne bezüglich der Anzahlkonzentration gemessen am CPC1, der eingestellten Spannung am DMA und dem eingestellten Partikeldurchmesser im oberen Graph und der Gesamtanzahlkonzentration im unteren Graph. Der zu erkennende Peak in der CPC1 Anzahlkonzentration ist ein Artefakt, welches durch die Umstellung der Spannung bei einem neuen Scandurchlauf des DMAs vom größten auf den kleinsten Durchmesser entsteht.

Es gibt einen leichten Versatz von meist nur einer Sekunde zwischen dem neuen Einstellen eines Partikeldurchmessers und der Veränderung der Spannung am DMA, welche durch die Reaktionszeit der Geräte verursacht wird. Viel wichtiger ist jedoch der größere Versatz zwischen dem Umstellen der Spannung und der Änderung in der Konzentration, welche dann vom CPC1 vermessen wird. Dies ist begründet durch die Rohrleitung, welche etwa 80 cm lang ist und sich zwischen dem DMA und dem detektierenden CPC1 befindet. Aus diesem Grund brauchen die Partikel mit einem neuen Partikeldurchmesser eine gewisse Zeitspanne um den detektierenden CPC1 zu erreichen. Bei der Umstellung von einem Partikeldurchmesser von 300 nm auf 10 nm entsteht außerdem ein Peak. Dies war bei fast allen untersuchten Zeitspannen zu beobachten. Manchmal war dieser stärker ausgeprägt und manchmal schwächer. Aufgrund dieses Peaks und dem Zeitversatz bis die neu eingestellte Partikelgröße den CPC1 erreicht, wurden ausgehend von der Spannung die ersten 10 Sekunden einer jeden Partikelgröße nicht in die Auswertung einbezogen. Der Anfang der zu untersuchenden Zeitspanne muss dahingehend angepasst werden und für den letzten Partikeldurchmesser, welcher innerhalb der Zeitspanne vermessen wird, ist es wichtig so viele Datenpunkte wie möglich zu erhalten, damit eine ausreichende Statistik gewährleistet wird und der statistische Fehler minimiert werden kann. Für die Datenpunkte, welche nach der Bereinigung der Daten übrigbleiben, wurden dann die Mittelwerte der jeweiligen Partikeldurchmesser gebildet, welche in Abbildung 20 dargestellt sind.

Da die eingestellten Partikeldurchmesser streng genommen Größenkanäle sind, deren Breite von den Flussverhältnissen im DMA abhängen, werden im nächsten Kapitel die Kanalgrenzen mittels der Transferfunktionen bestimmt, in welchem dann die berechneten Mittelwerte gelten.

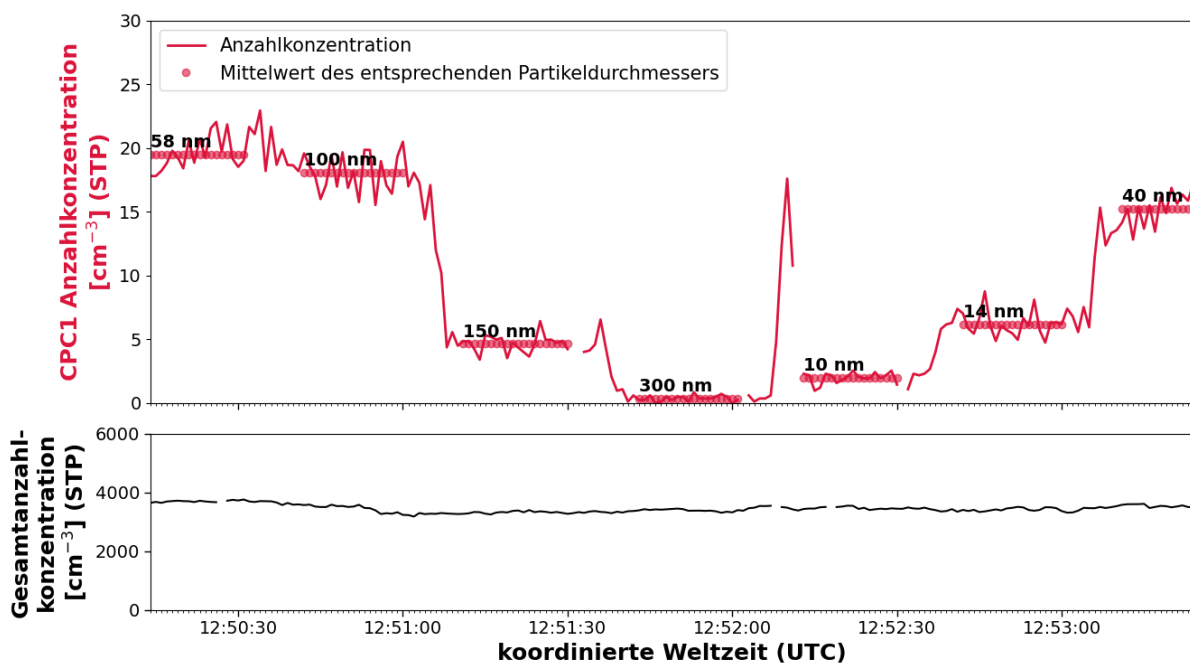


Abbildung 20: Mit dem DMA ausgewertete Zeitreihe mit der Kennzeichnung der Mittelwerte bei dem jeweiligen eingestellten Partikeldurchmesser.

2.2.2 Transferfunktion

Über das Verhältnis des Schleierluftstroms zum Probenluftstrom ist es möglich, die Breite der Größenkanäle um die eingestellten Partikeldurchmesser des DMAs zu beeinflussen. Je größer das Verhältnis desto kleiner ist der Messbereich. Ein kleinerer Messbereich bedeutet jedoch auch eine niedrigere Zählrate, sodass das Flussverhältnis an die jeweilige Anwendung angepasst werden sollte. Während im Labor oft mit Verhältnissen von 10:1 Messungen durchgeführt werden, wird aufgrund der nicht zu beeinflussenden Anzahlkonzentration bei Flugzeugmessungen meist ein kleineres Verhältnis gewählt, damit eine ausreichende Zählrate erreicht wird. Bei der EMERGe-Kampagne belief sich der Probenluftstrom auf 0.6 L min^{-1} und der Schleierluftstrom variierte mit der Flughöhe, da hier kein Massenflussregler (MFC) verbaut war. Im Allgemeinen wurde aber ein Verhältnis von etwas über 4:1 erreicht.

Zur Bestimmung der Breite der Größenkanäle wird die Formel 2.2 für die diffuse Transferfunktion Ω_d für den DMA von Stolzenburg und McMurry (2008) zu Grunde gelegt. Diese wird, wenn nicht anders angegeben, mit Hilfe der Formeln von Stolzenburg und McMurry (2008) und derer, die in der ISO 15900:2009(E) aufgeführt werden, gelöst.

$$\Omega_d(\tilde{Z}_p, \zeta, \xi, \sigma_d) = \frac{\sigma_d}{\sqrt{2}\zeta(1-\xi)} \left[\varepsilon \left(\frac{\tilde{Z}_p - (1+\zeta)}{\sqrt{2}\sigma_d} \right) + \varepsilon \left(\frac{\tilde{Z}_p - (1-\zeta)}{\sqrt{2}\sigma_d} \right) - \varepsilon \left(\frac{\tilde{Z}_p - (1+\zeta\xi)}{\sqrt{2}\sigma_d} \right) - \varepsilon \left(\frac{\tilde{Z}_p - (1-\zeta\xi)}{\sqrt{2}\sigma_d} \right) \right] \quad (2.2)$$

Dabei gilt:

$$\zeta = \frac{Q_{ao} + Q_{ai}}{Q_{so} + Q_{si}} \quad (2.3)$$

$$\xi = \frac{Q_{ao} - Q_{ai}}{Q_{ao} + Q_{ai}} \quad (2.4)$$

Q_{ai} und Q_{ao} sind hierbei der ein- und ausgehende Probenluftstrom und Q_{si} und Q_{so} der ein- und ausgehende Schleierluftstrom im DMA.

Da bei dem hier verbauten DMA der eingehende Schleierluftstrom jedoch stets dem ausgehenden Schleierluftstrom entspricht und dies folglich auch für den Probenluftstrom gilt, wird $\xi = 0$ und die Formel 2.3 vereinfacht sich zu dem Verhältnis vom Probenluftstrom Q_a zum Schleierluftstrom Q_s :

$$\zeta = \frac{Q_a}{Q_s} \quad (2.5)$$

Für Formel 2.2 ergibt sich dadurch ebenfalls eine Vereinfachung:

$$\Omega_d(\tilde{Z}_p, \zeta, \sigma_d) = \frac{\sigma_d}{\sqrt{2}\zeta} \left[\varepsilon \left(\frac{\tilde{Z}_p - (1+\zeta)}{\sqrt{2}\sigma_d} \right) + \varepsilon \left(\frac{\tilde{Z}_p - (1-\zeta)}{\sqrt{2}\sigma_d} \right) - 2\varepsilon \left(\frac{\tilde{Z}_p - 1}{\sqrt{2}\sigma_d} \right) \right] \quad (2.6)$$

Der relative Fehler ε ist durch folgende Formel definiert, welche die Fehlerfunktion $\text{erf}(x)$ enthält:

$$\varepsilon(x) = x \cdot \operatorname{erf}(x) + \frac{\exp[-x^2]}{\sqrt{\pi}} \quad (2.7)$$

Zur Lösung von Formel 2.6 wird des Weiteren die folgende Formel zur Berechnung der dimensionslosen Mobilität \tilde{Z}_p benötigt:

$$\tilde{Z}_p = \frac{Z_e \cdot 2\pi\Delta\varphi}{Q_s} \quad (2.8)$$

Diese setzt sich wiederum aus dem Schleierluftstrom Q_s und der Formel zur Berechnung der elektrischen Flussänderung vom Probenlufteingang zum Probenluftausgang $\Delta\varphi$ zusammen:

$$\Delta\varphi = \frac{L \cdot U}{\ln\left(\frac{R_2}{R_1}\right)} \quad (2.9)$$

Dabei steht L für die aktive Länge des DMAs, welche in diesem Fall 8.8 cm beträgt, R_1 und R_2 sind der Radius der Innenelektrode des DMAs (2.6 cm) und der Radius der Außenhülle (4.0 cm) und U ist die angelegte Spannung am DMA.

Außerdem wird die Formel zur Berechnung der elektrischen Mobilität Z_e als Funktion des Partikeldurchmessers D_p benötigt, in welche die Ladungszahl der Partikel n , die Elementarladung e , die dynamische Viskosität vom Gas η und der Verschiebungskorrekturfaktor S_c eingehen.

$$Z_e(D_p) = \frac{ne}{3\pi\eta D_p} S_c \quad (2.10)$$

Für die Ladungszahl gilt $n = 1$ unter der Annahme, dass es sich um einfach geladene Partikel handelt. Die Elementarladung ist mit $e = 1.60217733 \cdot 10^{-19}$ C eine Konstante und der Partikeldurchmesser ist die Eingangsgröße, die vorgegeben wird, sodass noch die Formeln für die dynamische Viskosität des Gases η und die des Verschiebungskorrekturfaktors S_c benötigt werden:

$$\eta = \eta_0 \left(\frac{T}{T_{20}}\right)^{\frac{3}{2}} \left(\frac{T_{20}+S}{T+S}\right) \quad (2.11)$$

$$S_c = 1 + Kn \left[A + B \cdot \exp\left[-\frac{C}{Kn}\right] \right] \quad (2.12)$$

Die Knudsen-Zahl Kn , welche in Formel 2.12 gebraucht wird, kann wie folgt berechnet werden:

$$Kn = \frac{2l}{D_p} \quad (2.13)$$

Wobei bei dieser noch die mittlere freie Weglänge der Gasmoleküle l berechnet werden muss:

$$l = l_0 \left(\frac{T}{T_{20}} \right)^2 \left(\frac{p_0}{p} \right) \left(\frac{T_{20} + S}{T + S} \right) \quad (2.14)$$

Neben dem Druck p und der Temperatur T im DMA gehen in die Formeln 2.11, 2.12 und 2.14 noch verschiedene Konstanten von Kim et al. (2005) ein. Aufgeführt sind diese in Tabelle 1.

Tabelle 1: Benötigte Konstanten zur Berechnung der diffusen Transferfunktion (Kim et al. 2005).

Konstanten	Wert
T_{20}	296.15 K
p_0	1013 hPa
η_0	$1.8325 \cdot 10^{-5} \text{ kg ms}^{-1}$
l_0	$6.730 \cdot 10^{-8} \text{ m}$
S	110.4 K
A	1.165
B	0.483
C	0.997

Der einzige Parameter, der nun noch für die Lösung von Formel 2.6 benötigt wird, ist der dimensionslose Diffusionsparameter des DMAs σ_d .

$$\sigma_d = \sqrt{G_{DMA} \tilde{D}} \quad (2.15)$$

Zur Berechnung der dimensionslosen Partikel-Diffusität \tilde{D} werden der Schleierluftstrom Q_s , die aktive Länge des DMAs L und außerdem noch der Diffusionsparameter D (Hinds 1999), welcher in Formel 2.17 berechnet wird, benötigt.

$$\tilde{D} = \frac{4\pi L D}{2Q_s} \quad (2.16)$$

$$D = \frac{k_B T_{20} S C}{3\pi \eta D_p} \quad (2.17)$$

Formel 2.17 wird auch als Stokes-Einstein-Gleichung bezeichnet und wird mit den genannten Konstanten aus Tabelle 1 und der Boltzmann-Konstanten $k_B = 1.38064852 \cdot 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$ berechnet.

Der dimensionslose geometrische Faktor G_{DMA} aus Formel 2.15, welcher die Geometrie und den Fluss des DMAs beschreibt, wurde in der Dissertation von Mark Richard Stolzenburg (1988) näher betrachtet.

$$G_{DMA} = 4 \frac{(1+\zeta)^2}{1-\gamma} \cdot [I_\gamma + (2(1+\zeta)\kappa)^{-2}] \quad (2.18)$$

Zur Bestimmung dieser Gleichung müssen wieder die Formeln verschiedener Parameter eingesetzt werden. Dies sind ζ aus Formel 2.3 und γ , I_γ und κ , deren Formeln nun aufgeführt werden (Stolzenburg 1988).

$$\gamma = \left(\frac{R_1}{R_2}\right)^2 \quad (2.19)$$

$$I_\gamma = \frac{1}{2}(1 + \gamma) \quad (2.20)$$

$$\kappa = \frac{LR_2}{(R_2^2 - R_1^2)} \quad (2.21)$$

Mit Hilfe der Formel 2.5 und den Formeln von 2.7 bis 2.21 ist es nun möglich, die diffuse Transferfunktion Ω_d anhand der Formel 2.6 für die verschiedenen Spannungen am DMA zu lösen. Graphisch dargestellt ist dies in Abbildung 21 für das Beispiel aus Kapitel 2.2.1 für die einzelnen Größenkanäle im Bereich von 5 nm bis 400 nm.

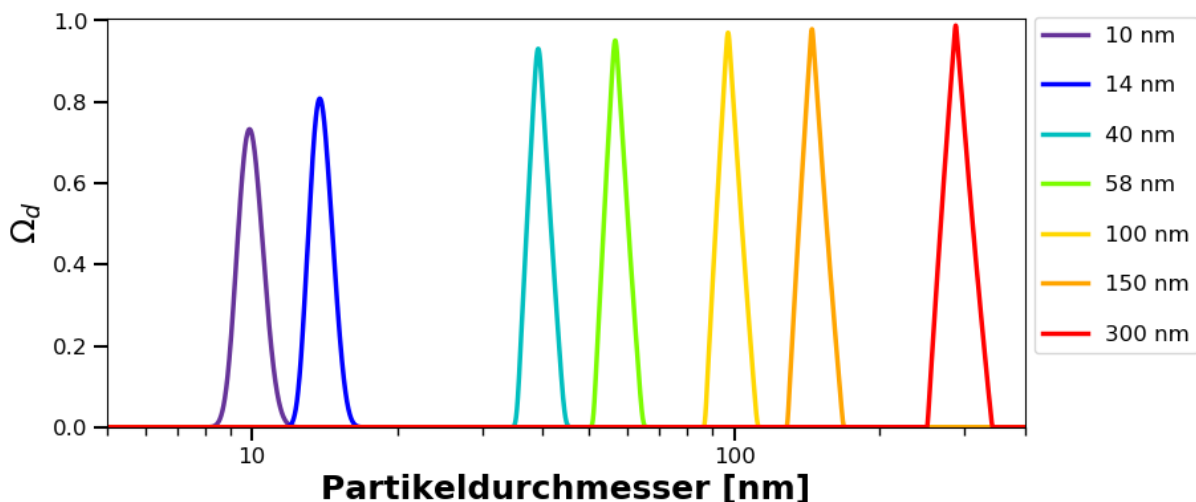


Abbildung 21: Die diffuse Transferfunktion Ω_d für die einzelnen Größenkanäle, farblich markiert, gemessen mit dem DMA aufgetragen gegen den Partikeldurchmesser. Mit Hilfe eines schwarzen Punkts sind die eingestellten Partikeldurchmesser auf der Kurve der diffusen Transferfunktion eingezeichnet.

Für die Bestimmung der Grenzen dieser Größenkanäle wurden die diffusen Transferfunktionen normiert und dann als untere Grenze das 16. Perzentil und für die obere Grenze das 84. Perzentil ausgewählt, da dies bei einer Normalverteilung einer Abweichung von einer Standardabweichung um den Median entspricht, welcher ebenso bestimmt wurde.

Da sich der Druck und in gewissem Maße auch der Schleierluftstrom mit der Flughöhe ändert, muss die Spannung der Innenelektrode des DMA zur Aufrechterhaltung der zu messenden Partikelgröße im Flug fortwährend angepasst werden. Aus diesem Grund ist es notwendig für jede ausgewertete Zeitspanne die Grenzen der Größenkanäle einzeln zu bestimmen. So gelten die Mediane und die Grenzen der Größenkanäle, welche in Tabelle 2 dargestellt sind, nur für die Zeitspanne, welche als Beispiel in Kapitel 2.2.1 aufgeführt wurde.

Tabelle 2: Beispiel für die Grenzen der Größenkanäle von den eingestellten Partikeldurchmessern und den dazugehörigen Medianen für eine ausgewertete Zeitspanne.

Eingestellter Partikeldurchmesser [nm]	16. Perzentil [nm]	Median [nm]	84. Perzentil [nm]
10	9.39	9.95	10.58
14	13.20	13.91	14.72
40	37.60	39.47	41.63
100	92.89	97.81	103.59
150	138.33	146.13	155.37

2.2.3 Mehrfachladungen

Durch die Americium-241-Quelle des DMAs werden die Partikel einer bekannten Boltzmann-Verteilung folgend aufgeladen. Dabei treten neben den einfach geladenen Partikeln auch ein gewisser Anteil an mehrfach geladenen Partikeln auf. Da ein DMA aber, wie in Kapitel 2.1.3 beschrieben, nicht Partikel einer Größe, sondern Partikel mit einer elektrischen Mobilität misst, ist es nötig die Konzentration hinsichtlich der Partikel zu korrigieren, die aufgrund einer Mehrfachladung dieselbe elektrische Mobilität haben, wie die Partikel mit nur einer Ladung. Denn nur diese entsprechen der zuvor eingestellten Partikelgröße. Die Partikel mit einer Mehrfachladung sind hinsichtlich des Partikeldurchmessers größer. Für die eingestellten Partikeldurchmesser während der EMERGe-Kampagne sind die verschiedenen Partikelgrößen je nach Anzahl der Ladungen in Tabelle 3 aufgeführt.

Tabelle 3: Die eingestellten Partikelgrößen aufgetragen gegen die möglichen Partikeldurchmesser durch Einfach- und Mehrfachladungen.

Eingestellte Größe [µm]	Partikeldurchmesser bei...		
	1-facher Ladung	2-facher Ladung	3-facher Ladung
0.010	0.010	0.0142	0.0175
0.014	0.014	0.02	0.0246
0.040	0.040	0.0581	0.0727
0.058	0.058	0.0855	0.1082
0.100	0.100	0.1525	0.1987
0.150	0.150	0.2377	0.3188
0.300	0.300	0.5147	0.7233

Hierbei ist egal, ob die Partikel positiv oder negativ geladen sind. Allein die Anzahl der Ladungen ist bei der Berechnung der Durchmesser von Nöten.

Für Partikel mit bis zu zwei Ladungen kann folgende vereinfachte Annahme aus der ISO 15900:2009(E) zur Berechnung der Wahrscheinlichkeit für eine Mehrfachladung f_n verwendet werden:

$$\log[f_n(D_p)] = \sum_{i=0}^5 a_i(n)(\log[D_p])^i \quad (2.22)$$

Die Werte für den Koeffizienten a_i sind für die einzelnen Ladungen, sowohl positiv als auch negativ, in Tabelle 4 aufgeführt.

Tabelle 4: Koeffizienten a_i für die Korrektur der Mehrfachladungen sowohl bei positiven Ladungen als auch bei negativen Ladungen n der Partikel (Wiedensohler 1988).

i	$a_i(n)$				
	$n = -2$	$n = -1$	$n = 0$	$n = 1$	$n = 2$
0	-26.3328	-2.3197	-0.0003	-2.3484	-44.4756
1	35.9044	0.6175	-0.1014	0.6044	79.3772
2	-21.4608	0.6201	0.3073	0.4800	-62.8900
3	7.0867	-0.1105	-0.3372	0.0013	26.4492
4	-1.3088	-0.1260	0.1023	-0.1544	-5.7480
5	0.1051	0.0297	-0.0105	0.0320	0.5059

Die Berechnung der Wahrscheinlichkeit für Partikel mit drei Ladungen oder mehr wird bei Wiedensohler (1988) durch die folgende Formel beschrieben:

$$f(n) = \frac{e}{\sqrt{4\pi^2 \varepsilon_0 D_p k_B T}} \cdot \exp\left(\frac{-\left[n - \frac{2\pi\varepsilon_0 D_p k_B T}{e^2} \ln\left(\frac{N_+ Z_+}{N_- Z_-}\right)\right]^2}{\frac{2\pi\varepsilon_0 D_p k_B T}{e^2}}\right) \quad (2.23)$$

mit

ε_0	elektrische Feldkonstante	$8.854187817620 \cdot 10^{-12} \text{ As Vm}^{-1}$
k_B	Boltzmann-Konstante	$1.38064852 \cdot 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$
e	Elementarladung	$1.60217733 \cdot 10^{-19} \text{ C}$
D_p	Partikeldurchmesser	
T	Temperatur	
n	Ladungsanzahl des Partikels	
$N_{+/-}$	Ionenanzahl	
$Z_{+/-}$	Ionenmobilität	

Unter der Annahme, dass die Anzahl der negativen Ionen, gleich der Anzahl der positiven Ionen ist, ergibt sich, dass $\frac{N_+}{N_-} = 1$ gilt. Weiterhin kann angenommen werden, dass $\frac{Z_+}{Z_-} = 0.875$

gilt, sodass sich $\ln\left(\frac{N_{+Z+}}{N_{-Z-}}\right)$ zu $\ln(0.875)$ vereinfacht (Wiedensohler et al. 1986; ISO 15900:2009(E)).

Da die DMAs, welche im AMETYST verbaut sind, eine positive Innenelektrode besitzen, können nur negative geladene Partikel die DMAs passieren. Aus diesem Grund wurden zunächst mit Hilfe von Formel 2.22 die Wahrscheinlichkeiten f_n für $n = -1$ und $n = -2$ berechnet, dargestellt in Tabelle 5.

Tabelle 5: Wahrscheinlichkeiten f_n für eine Einfach- und Zweifachladung der einzelnen Partikeldurchmesser.

Partikeldurchmesser [nm]	$f_1 (n = -1)$	$f_2 (n = -2)$
10	0.0514	9.8583e-07
14	0.0754	1.7622e-05
40	0.1951	5.4192e-03
58	0.2397	1.7504e-02
100	0.2793	5.6079e-02
150	0.2790	9.5379e-02
300	0.2298	1.4500e-01

Wie zu erkennen, liegt die Wahrscheinlichkeit für einfach geladene Partikel im Bereich von 5 % bis 28 %. Bei zweifach geladenen Partikeln reduziert sich die Wahrscheinlichkeit schon drastisch und bei 300 nm werden höchstens noch 14 % erreicht. Je nach Luftdruck können jedoch nur Partikel bis 150 nm den DMA ohne größere Verluste passieren, sodass nur bis zu dieser Größe eine Korrektur sinnvoll erscheint. Für Partikel mit drei oder mehr Ladungen verringern sich die Wahrscheinlichkeiten, welche durch eine Formel von Wiedensohler (1988) berechnet werden können, immer weiter. Aus diesem Grund wurden in dieser Arbeit nur die zweifach geladenen Partikel bei den Messungen von EMeRGe korrigiert, während die Partikel mit drei oder noch mehr Ladungen nicht berücksichtigt wurden.

Um nun die gemessene Partikelkonzentration in Hinsicht auf die Doppelladung zu korrigieren wird folgende Formel mit der zuvor berechnenden Wahrscheinlichkeit f_n verwendet:

$$N(D_{p1}) = \frac{N_{measured}(D_{p1}) - N_{measured}(D_{p2}) \cdot \left(\frac{f_2(D_{p2})}{f_1(D_{p2})}\right)}{f_1(D_{p1})} \quad (2.24)$$

Diese Berechnung ergibt sich aus der Formel von Good et al. (2010) :

$$N(D_{p1}) = \frac{N_{measured}(D_{p1}) - N_{double}(D_{p1})}{f_1(D_{p1})} \quad (2.25)$$

wobei D_{p1} für den eingestellten Durchmesser von Partikeln mit einfacher Ladung steht, $N(D_{p1})$ für die zu berechnende Partikelkonzentration bei dem Durchmesser D_{p1} , $N_{measured}(D_{p1})$ für die gemessene Konzentration beim Durchmesser D_{p1} , $f_1(D_{p1})$ für die

Wahrscheinlichkeit für eine einfache Ladung beim Durchmesser D_{p1} und $N_{double}(D_{p1})$ für die Konzentration der zweifach geladenen Partikel bei eingestelltem Durchmesser D_{p1} . Letztere kann durch die ISO 27891:2015(E) wie folgt berechnet werden:

$$N_{double}(D_{p1}) = N_{measured}(D_{p2}) \cdot \frac{f_2(D_{p2})}{f_1(D_{p2})} \quad (2.26)$$

Dabei steht D_{p2} für den eingestellten Durchmesser der Partikel, der dem Partikeldurchmesser bei einer Doppelladung mit eingestelltem Durchmesser D_{p1} entspricht. Beispielhaft gilt daher:

$$N_{double}(40 \text{ nm}) = N_{measured}(58 \text{ nm}) \cdot \frac{f_2(58 \text{ nm})}{f_1(58 \text{ nm})} \quad (2.27)$$

Anhand der Formel 2.27 kann nun die Konzentration der Partikel mit einer Doppelladung und dem somit größeren Durchmesser von 58 nm berechnet werden, obwohl der eingestellte Durchmesser nur 40 nm beträgt.

Bei 10 nm, 14 nm und 150 nm wurde die Doppelladung nicht berücksichtigt, da bei Partikeln unter 20 nm diese vernachlässigbar sind (Wiedensohler 1988) und bei 150 nm davon ausgegangen werden kann, dass die doppelgeladenen Partikel mit einem Durchmesser von 238 nm den DMA nicht mehr passieren können.

2.2.4 Konzentrationsverluste durch Druckabnahme

Die meisten kommerziellen Geräte zur Partikelanzahlbestimmung können nur in einem Druckbereich nahe dem Normaldruck ($\sim 1013.25 \text{ hPa}$) messen und sind daher ohne vorherige Modifikationen nicht für Flugzeugmessungen geeignet. Die Messgeräte des Instituts für Physik der Atmosphäre sind daher in Zusammenarbeit mit den Herstellern so modifiziert worden, dass sie auch bei niedrigerem Druck messen können. Jedoch weisen die Instrumente trotzdem eine gewisse Abhängigkeit in Bezug auf den Druck auf. So nimmt die Zähleffizienz der verwendeten CPCs ab, sobald der Druck niedriger wird (Bundke et al. 2015; Hermann und Wiedensohler 2001). Zur Quantifizierung dieser Zähleffizienzabnahme wurde im Labor ein Versuchsaufbau aufgebaut, bei welchem es möglich ist im Unterdruck zu messen und welcher in Abbildung 22 schematisch dargestellt ist.

Gemessen wurde mit Natriumchlorid (NaCl), welches im Rohofen auf $700 \text{ }^\circ\text{C}$ erhitzt wurde. Die vier verschiedenen CPCs des AMETYST wurden gegen ein Faraday-Cup Elektrometer (FCE) getestet, welches als Referenzgerät diente (McMurry 2000). Das Verhältnis vom Schleierluftstrom zum Probenluftstrom beim Labor-DMA wurde auf $20:2 \text{ L min}^{-1}$ eingestellt, wobei der Probenluftstrom dem des FCEs entspricht. Da die CPCs jeweils mit knapp 0.6 L min^{-1} betrieben werden und so zusammen einen Gesamtfluss von fast 2.4 L min^{-1} haben, ist dieser Fluss mit dem des FCE vergleichbar. Aus diesem Grund wurde auch der MFC, welcher in der Rohrleitung mit der Pumpe zur Abluft führt auf 2 L min^{-1} eingestellt. So wird

gewährleistet, dass die Anzahlkonzentration sich gleichmäßig auf die verschiedenen Messgeräte aufteilt und diese daher miteinander verglichen werden können.

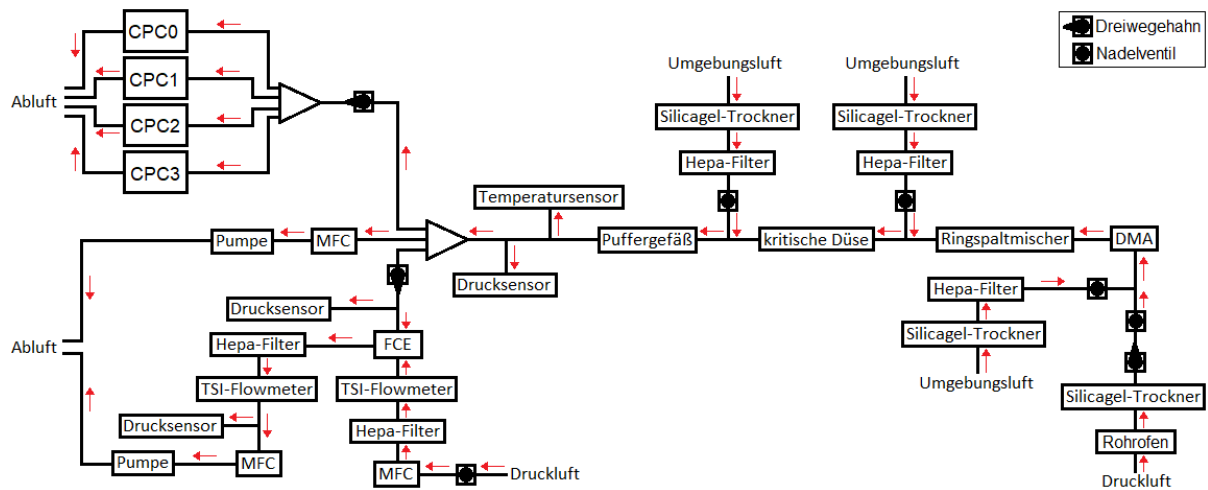


Abbildung 22: Schematischer Versuchsaufbau zur Unterdruckmessung mit den CPCs. Die roten Pfeile kennzeichnen die Flussrichtung.

Die Druckstufen auf denen gemessen wurden waren 863 hPa, 732 hPa, 506 hPa, 347 hPa, 248 hPa, 200 hPa und 160 hPa. Die Partikeldurchmesser, welche auf jeder Druckstufe betrachtet worden sind, waren:

10 nm, 14.2 nm, 20 nm, 29 nm, 40 nm, 60 nm, 90 nm, 112 nm und 132 nm

Diese Größen wurden deswegen ausgewählt, da die jeweils nächste Größe dem Partikeldurchmesser entspricht, welcher dieselbe elektrische Mobilität aufweist wie die vorangegangene Größe, wenn das Partikel doppelt statt nur einfach geladen ist. Die 112 nm sind jedoch nicht Teil dieses Musters, sondern gehen noch eine Stufe höher, sodass dieser Durchmesser der elektrischen Mobilität von 60 nm entspricht, wenn das Partikel dreifach geladen ist. Zusammengefasst ist dies in Tabelle 6.

Da die Abnahme der Zähleffizienz ein Faktor für alle Größen darstellt, wurde nur der Partikeldurchmesser von 60 nm ausgewertet, da sich dort ungefähr das Maximum der Verteilung, erzeugt aus dem NaCl, befand und so eine genügend hohe Zähleffizienz für die Statistik erreicht werden konnte.

Die anderen Partikelgrößen werden jedoch noch für die Korrektur der Konzentration gemessen mit dem FCE benötigt, da dieses keine Partikel detektiert, sondern die Anzahl aller Ladungen. Für einen Vergleich mit einem CPC müssen daher die Mehrfachladungen berücksichtigt und korrigiert werden.

Tabelle 6: Die eingestellten Partikelgrößen aufgetragen gegen die möglichen Partikeldurchmesser durch Einfach- und Mehrfachladungen für die Kalibrierung der CPCs im Unterdruck, damit die Korrektur der Konzentrationsabnahme durch die Druckabnahme während des Fluges möglich ist.

Eingestellter Partikeldurchmesser (1-fache Ladung) [μm]	Partikeldurchmesser bei...	
	2-facher Ladung	3-facher Ladung
0.010	0.0142	0.0175
0.0142	0.0203	0.0250
0.020	0.0286	0.0354
0.029	0.0418	0.0519
0.040	0.0581	0.0727
0.060	0.0885	0.1123
0.090	0.1361	0.1762
0.112	0.1725	0.2264
0.132	0.2064	0.2742

Anhand der ISO 27891:2015(E) und der Annahme, dass für die Detektionseffizienz $\eta_{FCE} = 1$ gilt, da das FCE als Referenzmessgerät verwendet wurde, muss die Konzentration des FCEs durch folgende Formel angepasst werden:

$$\begin{aligned} C_N &= C_{n1} + C_{n2} + C_{n3} \\ &= N_{FCE} \end{aligned} \quad (2.28)$$

Die gemessene Gesamtkonzentration C_N setzt sich aus den einzelnen Konzentrationen der Partikel mit der unterschiedlichen Anzahl an Ladungen zusammen. So steht C_{n1} für die Konzentration der Partikel mit einer Einfachladung, C_{n2} für die Konzentration der Partikel mit einer Zweifachladung und C_{n3} für die Konzentration der Partikel mit einer Dreifachladung. In Summe ergibt sich aus den einzelnen Konzentrationen daher die Anzahl der gemessenen Ladungen mit dem FCE (N_{FCE}).

Die Konzentrationen von den Mehrfachladungen lassen sich mit Hilfe der Formeln aus der ISO 27891:2015(E) berechnen:

$$C_{n2} = N_{measured}(D_{p2}) \cdot \frac{f_2(D_{p2})}{f_1(D_{p2})} \quad (2.29)$$

$$C_{n3} = N_{measured}(D_{p3}) \cdot \frac{f_3(D_{p3})}{f_1(D_{p3})} \quad (2.30)$$

Unter Anwendung der Formeln 2.29 und 2.30 auf Formel 2.28 ergibt sich nun für die noch unbekannte Konzentration der einfach geladenen Partikel C_{n1} :

$$C_{n1} = N_{measured}(D_{p1}) - 2C_{n2} - 3C_{n3} \quad (2.31)$$

$$C_{n1} = N_{measured}(D_{p1}) - 2 \cdot N_{measured}(D_{p2}) \frac{f_2(D_{p2})}{f_1(D_{p2})} - 3 \cdot N_{measured}(D_{p3}) \frac{f_3(D_{p3})}{f_1(D_{p3})} \quad (2.32)$$

f_1 , f_2 und f_3 stehen hierbei für die Wahrscheinlichkeiten für eine Einfach-, Zweifach- oder Dreifachladung für den jeweils eingestellten Durchmesser D_p . Diese Werte wurden mit den Formeln 2.22 und 2.23, wie in Kapitel 2.2.3 beschrieben, berechnet und sind in Tabelle 7 aufgeführt.

Tabelle 7: Wahrscheinlichkeiten f für eine Einfach-, Zweifach- und Dreifachladung der eingestellten Partikeldurchmesser.

Partikeldurchmesser [nm]	$f_1 (n = -1)$	$f_2 (n = -2)$	$f_3 (n = -3)$
10	0.0514	9.8583e-07	2.5525e-24
14.2	0.0766	1.9635e-05	2.5298e-17
20	0.1096	2.0046e-04	1.6287e-12
29	0.1536	1.4391e-03	6.9384e-09
40	0.1951	5.4192e-03	1.0928e-06
60	0.2432	1.9157e-02	8.7596e-05
90	0.2750	4.6790e-02	1.5202e-03
112	0.2819	6.6729e-02	4.5247e-03
132	0.2820	8.2836e-02	8.7651e-03

Für die Korrektur der Konzentration gemessen mit dem FCE gilt nun für den eingestellten Durchmesser von 60 nm laut Formel 2.32:

$$C_{n1} = N_{FCE}(60 \text{ nm}) - 2 \cdot N_{FCE}(90 \text{ nm}) \frac{f_2(90 \text{ nm})}{f_1(90 \text{ nm})} - 3 \cdot N_{FCE}(112 \text{ nm}) \frac{f_3(112 \text{ nm})}{f_1(112 \text{ nm})} \\ = N_{FCE_{corr}} \quad (2.33)$$

Anhand der nun berechneten Konzentration für einfach geladene Partikel gemessen mit dem FCE $N_{FCE_{corr}}$, kann ein Verhältnis mit dem ursprünglichen Wert gebildet werden. Durch die Mittelung dieses Wertes über alle gemessenen Druckstufen hinweg erhält man einen Wert von 0.9324.

Für die Zähleffizienz Eff wurde nun die jeweilige mittlere Konzentration gemessen an den verschiedenen CPCs über die verschiedenen Druckstufen hinweg durch die korrigierte Konzentration des FCEs geteilt.

$$Eff = \frac{N_{CPC}}{N_{FCE_{corr}}} \quad (2.34)$$

Die Daten der Zählereffizienzen auf den verschiedenen Druckstufen wurden dann durch die Python-Implementation „emcee“ (Foreman-Mackey et al. 2013), welche die Markow-Chain-Monte-Carlo Methode von Goodman und Weare (2010) beschreibt, unter Annahme des Modells in Formel 2.35 gefittet. Ein Vorteil gegenüber der Methode des Least-Square-Fits ist, dass die Markow-Chain-Monte-Carlo Methode auch ein Maß für die Unsicherheit dieser Anpassung liefert.

$$Eff(p) = x_1 - x_2 \cdot \exp\left[\frac{-x_3 \cdot p}{p_h}\right] \quad (2.35)$$

Die zu bestimmenden Parameter sind x_1 , x_2 und x_3 . p_h ist der Druck in der jeweiligen CPC-Messkammer bei der höchsten Druckstufe, welche kalibriert wurde. Somit gilt für den CPC0 $p_h = 850$ hPa, für den CPC1 $p_h = 849$ hPa, für den CPC2 $p_h = 855$ hPa und für den CPC3 $p_h = 848$ hPa.

In Abbildung 23 sind alle Ergebnisse der emcee-Implementierung für alle CPCs dargestellt. Die einzelnen grauen Linien kennzeichnen dabei die einzelnen Anpassungsversuche und die rote Linie kennzeichnet die Lösung, bei welcher der Abstand zu den Messpunkten insgesamt am geringsten ist.

Zusammengefasst sind die Lösungen in Abbildung 24. Dort sind zusätzlich die Grenzen des 16 % und des 84 % Quartils angegeben, welche ebenfalls durch die EMCEE-Methode ausgegeben werden können und die in etwa der Abweichung um $1-\sigma$ von Median bei einer Lognormal-Verteilung entsprechen.

Für die einzelnen CPCs ergeben sich folgende Parameter für Formel 2.35, mit welchen es nun möglich ist, die gemessenen Konzentrationen bezüglich der druckabhängigen Effizienz zu korrigieren:

CPC0:	$x_1 = 0.96449$	$x_2 = 0.41861$	$x_3 = 3.89897$
CPC1:	$x_1 = 0.97742$	$x_2 = 0.48560$	$x_3 = 7.64474$
CPC2:	$x_1 = 0.96376$	$x_2 = 0.38323$	$x_3 = 5.82864$
CPC3:	$x_1 = 0.94566$	$x_2 = 1.24329$	$x_3 = 9.07439$

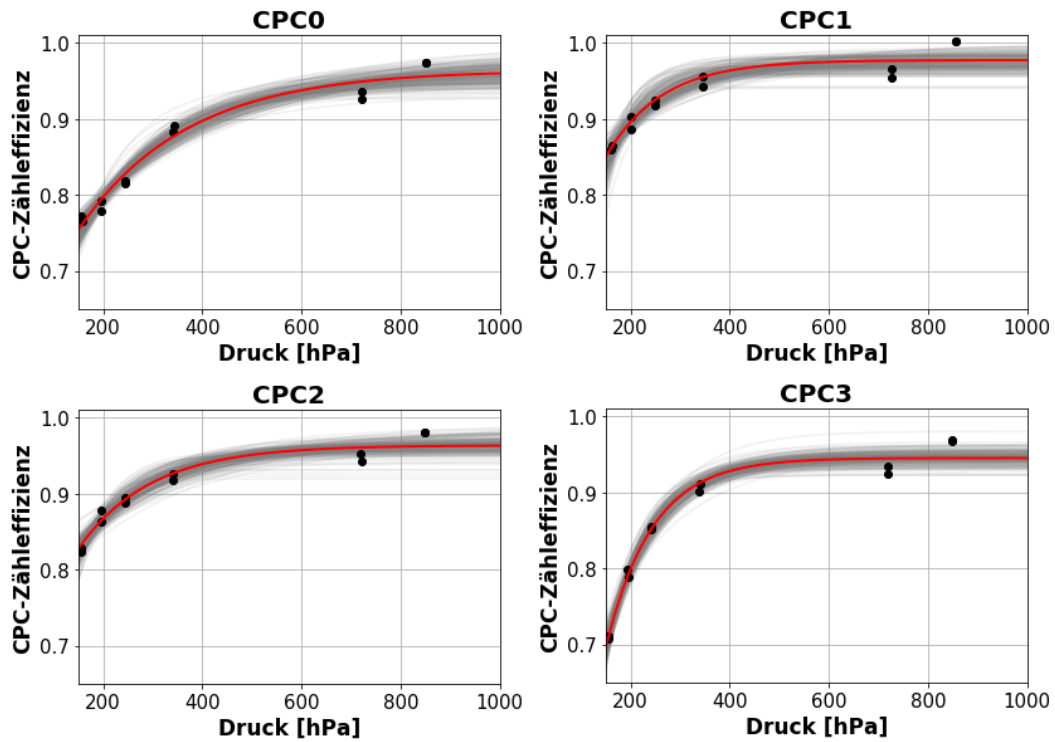


Abbildung 23: Anpassungen durch die emcee-Methode für die einzelnen CPCs. Die Datenpunkte der Kalibrierung sind als schwarze Punkte dargestellt, wohingegen alle möglichen Anpassungsversuche durch die grauen Linien gekennzeichnet sind und die finale Anpassung, welche am besten passt, durch die rote Linie.

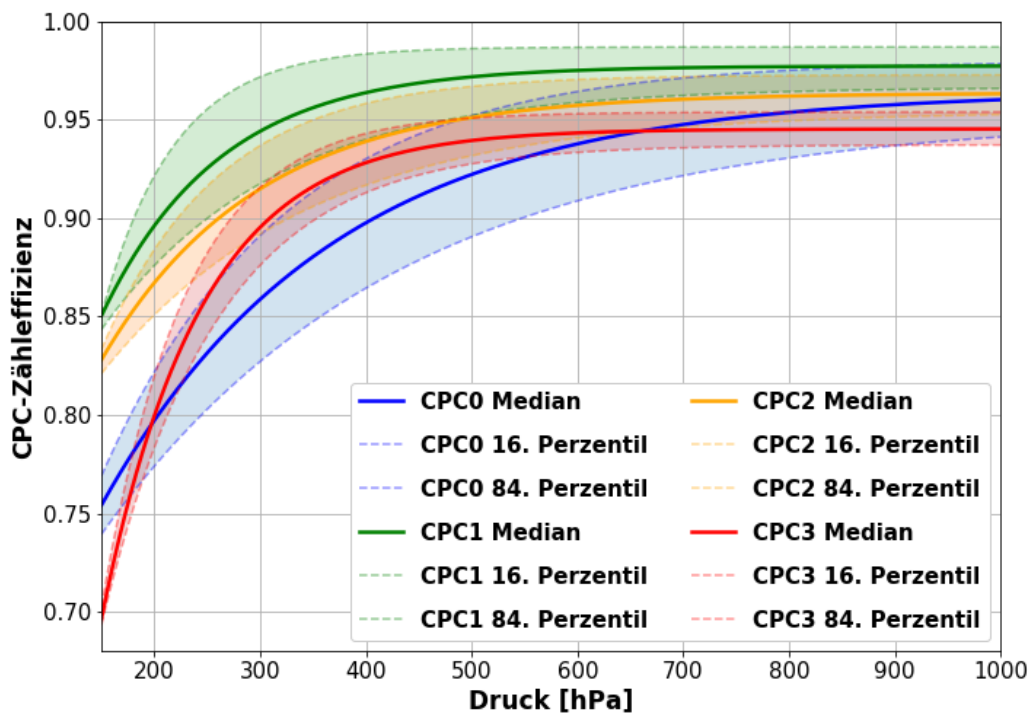


Abbildung 24: Dargestellt ist die druckabhängige Effizienz der verschiedenen CPCs. Die gestrichelten Linien kennzeichnen die 16. und 84. Perzentile aller Anpassungsversuche, welche in etwa einer $1\text{-}\sigma$ Abweichung entspricht, und die durchgängigen Linien kennzeichnen den Median als beste Anpassung der Effizienz der einzelnen CPCs.

2.2.5 Kanalbreiten der Optischen Partikelzähler

Die Kanalbreiten der Optischen Partikel Zähler (OPC) werden zwar vom Hersteller Grimm Aerosol Technik nominell angegeben, die wirklichen Kanalgrenzen können jedoch von diesen Angaben abweichen. Aus diesem Grund ist es sinnvoll, eine Kalibrierung der OPC-Kanäle durchzuführen. Hierfür ist die Angabe der sogenannten AD-Counts an den Kanalgrenzen notwendig, welche in den Kalibrierzertifikaten des Herstellers angegeben werden. Am besten wird das Kalibrierzertifikat gewählt, welches kurz vor der Kalibrierung der Kanalgrenzen ausgestellt worden ist. Da sowohl bei EMERGe-EU als auch bei EMERGe-Asien dieselben baugleichen OPCs verbaut und im Einsatz waren, wurde nur eine Kalibrierung der Kanalgrenzen für beide Kampagnenabschnitte mit monodispersen Partikelgrößenstandards aus Polystyrol (PSL-Partikel) am 01. August 2017 durchgeführt.

Die PSL-Partikel, welche für die Kalibrierung verwendet wurden, hatten einen angegebenen Partikeldurchmesser von 269 nm, 300 nm, 400 nm, 565 nm, 600 nm und 903 nm. Da 269 nm jedoch sehr nahe an der Nachweisgrenze liegt, wurde diese PSL-Partikelgröße zunächst vernachlässigt.

Für die Bestimmung der Kanalgrenzen ist zunächst die Kenntnis über den Streuquerschnitt notwendig, der nach der Mie-Theorie (Mie 1908) im OPC mit seiner charakteristischen Geometrie berechnet werden kann. Die berechneten Werte des Streuquerschnitts für dieses OPC-Modell wurden von Adrian Walser übernommen (Walser et al. 2017). In Abbildung 25 ist die Mie-Kurve, also die Streuquerschnitte aufgetragen gegen die Partikeldurchmesser, dargestellt. Zusätzlich sind die genutzten PSL-Partikelgrößen auf dieser Kurve markiert worden.

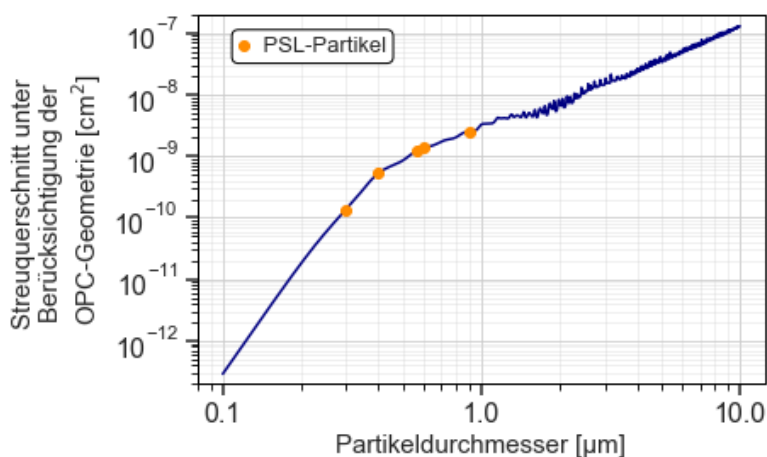


Abbildung 25: Der Streuquerschnitt für die Streugeometrie im SkyOPC aufgetragen gegen den Partikeldurchmesser von 0,1 μm bis 10 μm . In orange sind die genutzten PSL-Partikelgrößen dargestellt.

Bei der Kalibrierung der Kanalbreiten des OPCs ist es nötig, für einen eindeutigen Peak der verschiedenen PSL-Größen zunächst den möglichen Hintergrund der Messungen abzuziehen. Vor allem bei den größeren Partikeln ist es möglich, auf Grund von Verunreinigungen des

Wassers, in welchem die PSL-Partikel gelöst werden, einen zweiten Peak bei einem kleineren Durchmesser, meist direkt im ersten Kanal, zu erkennen. Für die Korrektur wird eine Exponentialfunktion durch diesen Peak in den kleinen Kanälen gelegt und diese dann vom Rest abgezogen. Die sich daraus ergebenden Histogramme für die verschiedenen PSL-Partikelgrößen sind in Abbildung 26 in der rechten Spalte dargestellt, während die ursprünglichen Histogramme in der linken Spalte zu sehen sind.

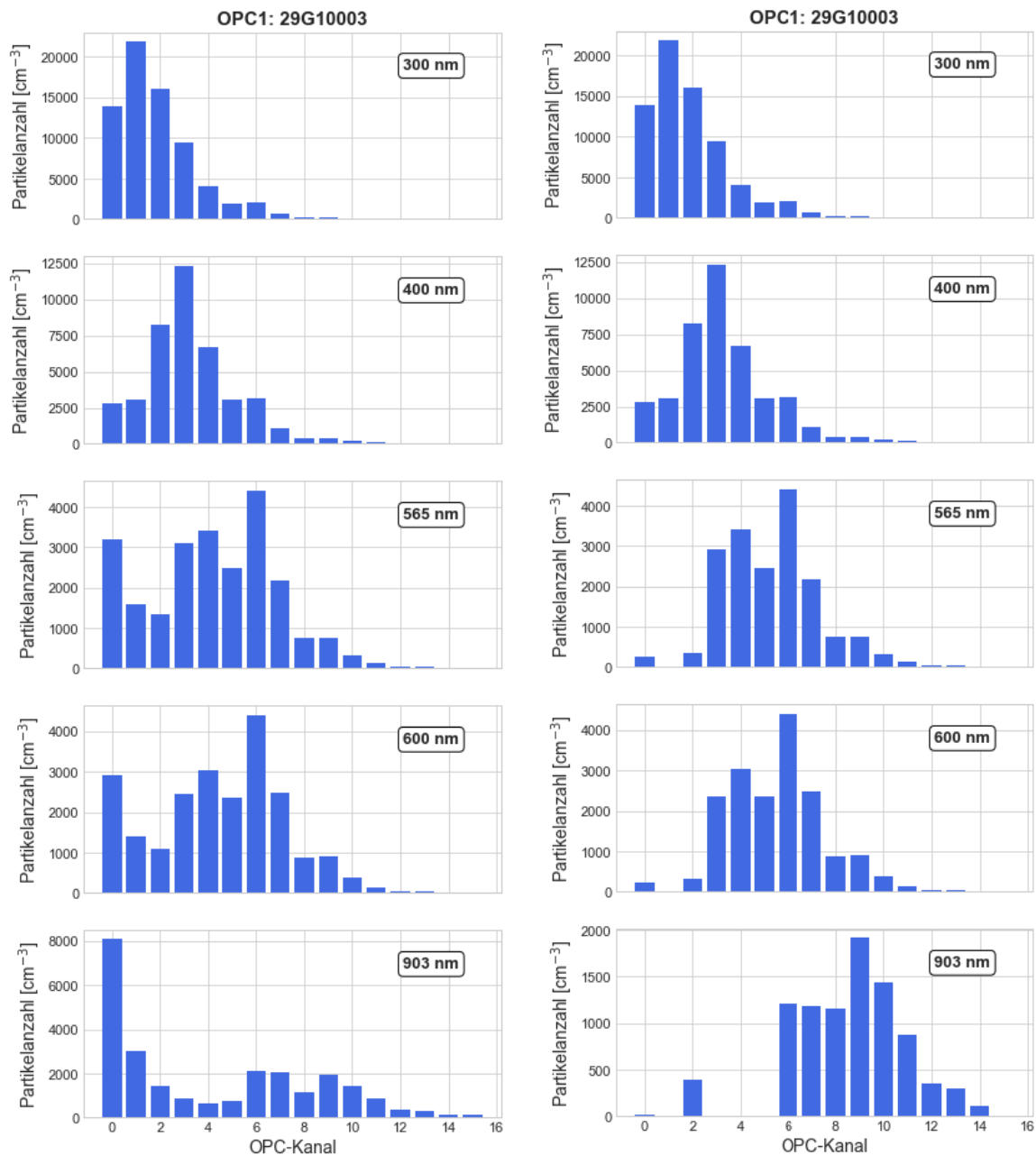


Abbildung 26: In der linken Spalte sind die Anzahlkonzentrationen gemessen in den einzelnen OPC-Kanälen unkorrigiert aufgetragen, wohingegen in der rechten Spalte der Hintergrund, verursacht vom Wasser, herauskorrigiert wurde.

Mit den nun bereinigten Peaks ist es möglich eine Anpassung durch eine lineare Regression zu machen, um eine Startnäherung der sechs nötigen Parameter zu erhalten. Diese sind im Einzelnen die Unsicherheit des Instruments b , hier „blur“ genannt, die zwei Koeffizienten „slope“ (m) und „intercept“ (c), welche sich aus dem linearen Fit zwischen der Streuamplitude und dem Streuquerschnitt ergeben, den Koeffizienten α und β , welche zum einen den Verstärkungsfaktor zwischen den zwei Verstärkerstufen im OPC beschreibt und zum anderen den Offset zwischen diesen beiden Stufen, und der absoluten Gaußschen Varianz (var) der Zählraten in den einzelnen Kanälen. Diese erste Abschätzung der Parameter kann dann verwendet werden, um als Startwert für die Markow-Chain-Monte-Carlo Methode (MCMC) zu dienen. Die Abhängigkeiten der Unsicherheiten der einzelnen oben genannten Parameter können dann im sogenannten Corner-Plot abgelesen werden (Abbildung 27). Je ausgeprägter die einzelnen Peaks sind, desto besser sind die jeweiligen Parameter bestimmt.

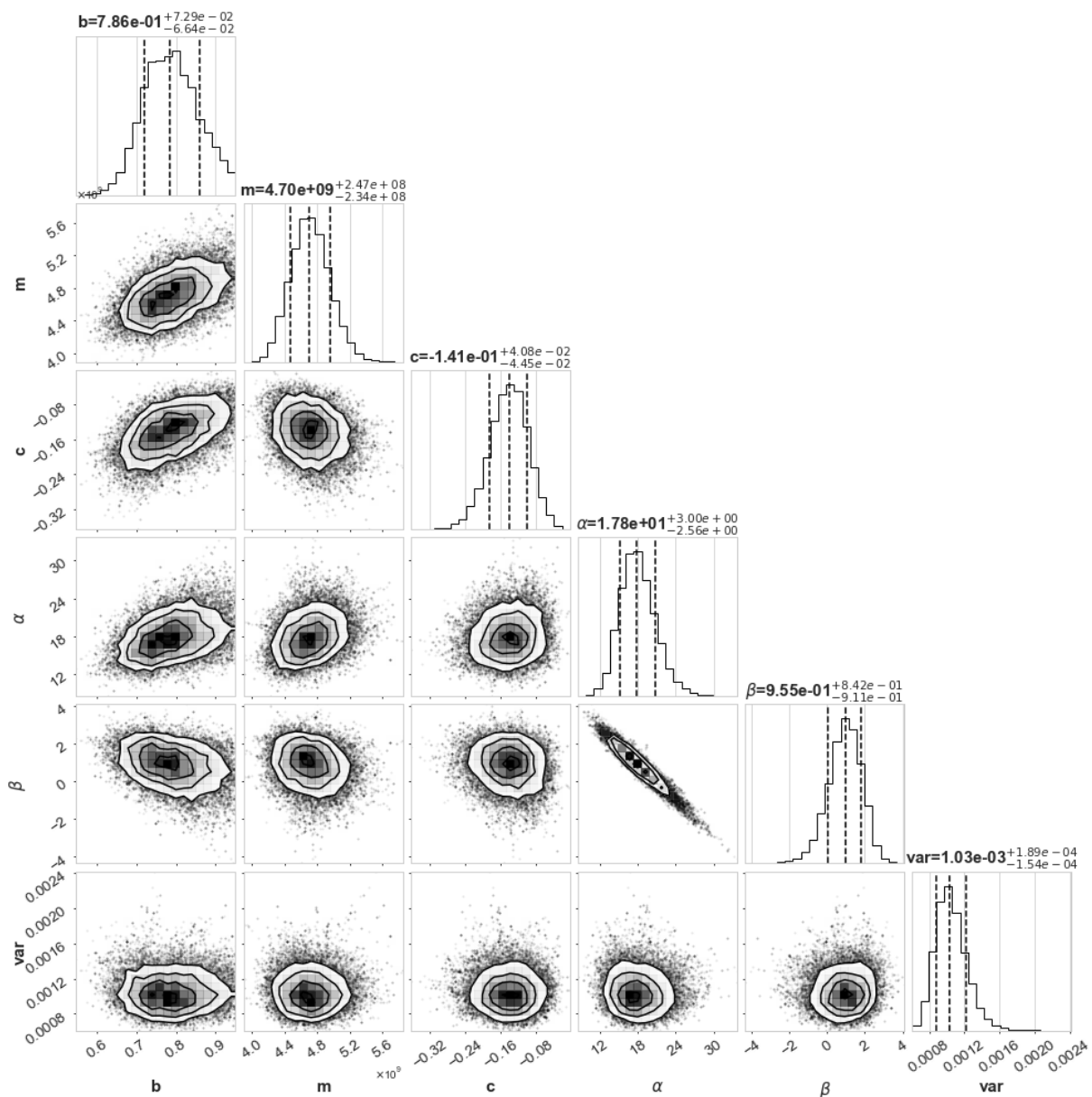


Abbildung 27: Ergebnis der kalibrierten Parameter des OPCs mit der Seriennummer 29G1003 durch die Markow-Chain-Monte-Carlo Methode. Die gestrichelten Linien in den Histogrammen kennzeichnen den Median und das 16. und 84. Perzentil. Der Wert des Medians und die Abstände zu den Perzentilen für die jeweiligen Parameter sind oberhalb der Histogramme angegeben.

In Abbildung 28 wird nun das Modell mit den gemessenen Histogrammen der einzelnen PSL-Partikelgrößen verglichen, sowohl mit den Parametern aus der Startnäherung in der linken Spalte, als auch mit den kalibrierten Parametern durch die MCMC-Methode in der rechten Spalte. Wie zu erkennen, ist das Modell mit den Parametern der Startnäherung bei den kleineren Partikelgrößen teils weit von den Messungen entfernt. Mit den kalibrierten Parametern ist das Modell insgesamt näher an den Messungen, sodass eine Verbesserung im Vergleich zur Startnäherung erzielt werden konnte.

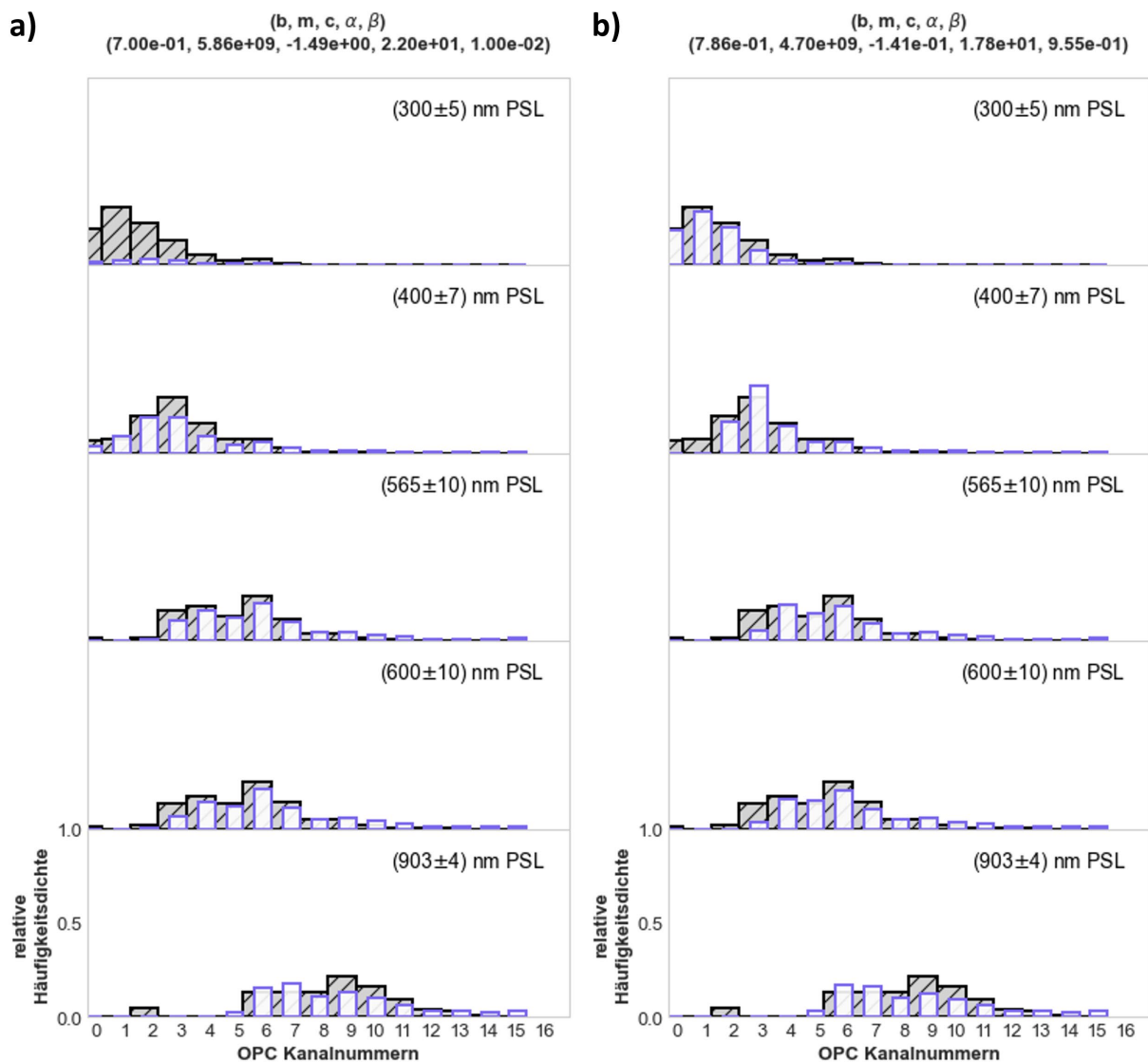


Abbildung 28: Vergleich zwischen den modellierten (blau) und gemessenen (grau) Histogrammen. In a) mit den Parametern aus der Startnäherung und in b) mit den kalibrierten Parametern von der MCMC-Methode.

Mit den kalibrierten Parametern können nun die Transferfunktionen der einzelnen Kanäle berechnet werden. Die einzelnen Transferfunktionen wurden gegen den Partikeldurchmesser aufgetragen und sind in Abbildung 29a) dargestellt. Wie zu erkennen überlappen sich die Transferfunktionen teils sehr stark. Es ist daher möglich, dass ein Partikel mit einem bestimmten Durchmesser in mehrere Kanäle eingeteilt werden könnte. Zur Bestimmung der

Grenzen der Größenkanäle wurden die Wahrscheinlichkeiten, die sich aus der Transferfunktionen ergeben, normiert und kumulativ aufgetragen, zu sehen in 29b).

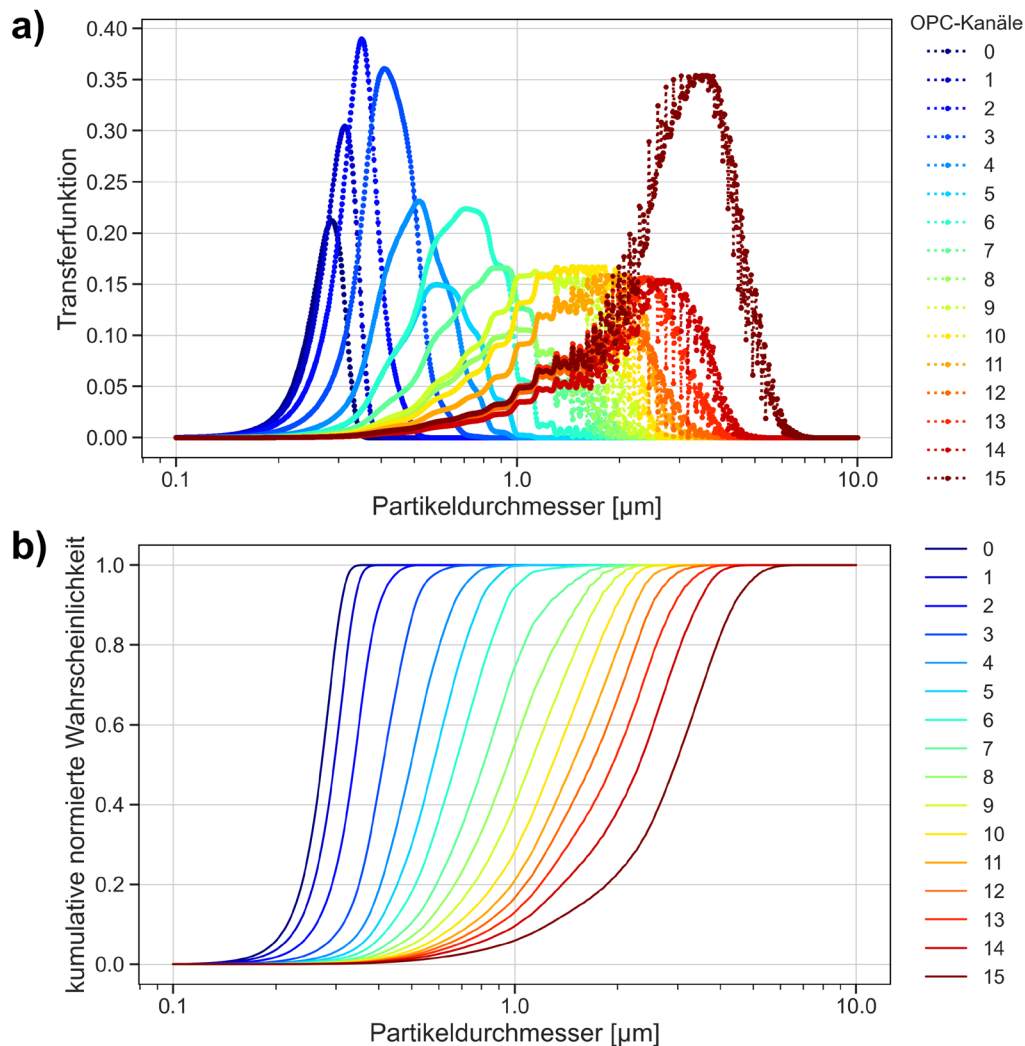


Abbildung 29: In a) sind die Wahrscheinlichkeiten der Transferfunktionen für die verschiedenen OPC-Kanäle gegen den Partikeldurchmesser aufgetragen und in b) sind diese normiert worden und kumulativ aufgetragen.

Anhand der kumulierten und normierten Wahrscheinlichkeit ist es möglich den Median der einzelnen Größenkanäle zu bestimmen, welcher dem Partikeldurchmesser bei einer Wahrscheinlichkeit von 50 % entspricht. Aufgrund der Tatsache, dass bei den DMA-Messungen keine aufeinanderfolgenden Größenkanäle gemessen werden, sondern einzelne Durchmesser, deren Messbereich durch die beschriebenen Transferfunktionen in Kapitel 2.2.2 bestimmt wurden, werden bei der weiteren Auswertung der OPC-Daten ebenfalls das 16. und 84. Perzentil als Kanalgrenze verwendet. Die kalibrierten Partikeldurchmesser der Mediane wurden genutzt, um die Konzentrationen der einzelnen Kanäle bezüglich der Rohrleitungsverluste zu korrigieren, deren Korrektur in Kapitel 2.2.7 näher erläutert werden. Die Werte der Kanalgrenzen und der ermittelte Median sind zusammen mit der Herstellerangabe der unteren Kanalgrenze zum Vergleich in Tabelle 8 aufgeführt.

Tabelle 8: Angaben der unteren Grenze des Herstellers und die kalibrierten Werte für die Mediane und die oberen und unteren Grenzen der einzelnen Größenkanäle vom OPC (Seriennummer: 29G10003).

Bin	Untere Grenze des Herstellers [μm]	Untere Grenze [μm] (16. Perzentil)	Median [μm]	Obere Grenze [μm] (84. Perzentil)
0	0.250	0.2307	0.2721	0.3027
1	0.280	0.2493	0.2962	0.3304
2	0.300	0.2820	0.3383	0.3854
3	0.350	0.3385	0.4112	0.4900
4	0.400	0.3905	0.4967	0.6240
5	0.450	0.4325	0.5773	0.7405
6	0.500	0.4847	0.6702	0.8813
7	0.580	0.5565	0.8106	1.1145
8	0.650	0.6222	0.9539	1.3956
9	0.700	0.7002	1.1099	1.6042
10	0.800	0.8001	1.2904	1.8491
11	1.000	0.8956	1.4731	2.1065
12	1.300	0.9866	1.6762	2.3613
13	1.600	1.0856	1.9322	2.7105
14	2.000	1.2404	2.3139	3.1953
15	2.500	1.6284	2.9533	4.0695

2.2.6 Korrektur der gemessenen Absorptionskoeffizienten am PSAP

Wie in Kapitel 2.1.3 erwähnt, berechnet das PSAP intern selbst einen Wert für den Absorptionskoeffizienten b_{abs} für jede Wellenlänge. Da sich auf dem Filter aber nicht nur absorbierende, sondern auch streuende Partikel ablagern können, welche ebenfalls die Transmission des Filters reduzieren, ist es nötig, den jeweiligen Absorptionskoeffizienten σ_{abs} unter Berücksichtigung des Streukoeffizienten neu zu berechnen. Hierfür wird nach Virkkula et al. (2005) und Virkkula (2010) vorgegangen, indem folgende Formel gelöst wird:

$$\sigma_{abs} = (k_0 + k_1(h_0 + h_1\omega_0) \ln(Tr))\sigma_0 - s\sigma_{streu} \quad (2.36)$$

mit

$k_0, k_1, h_0,$ und h_1	Konstanten für die jeweiligen Wellenlängen (Virkkula 2010)
ω_0	einfache Streualbedo
Tr	durchschnittliche Transmission des Lichts durch den Filter
σ_0	Unkorrigierter Absorptionskoeffizient
s	Streukorrekturfaktor (Virkkula 2010)
σ_{streu}	Streukoeffizient

Der unkorrigierte Absorptionskoeffizient σ_0 zur Lösung der Formel 2.36 wird wie der intern berechnete Absorptionskoeffizient b_{abs} über das Lambert Beer'sche Gesetz bestimmt. Dabei geht jedoch der korrigierte Wert für das Volumen $V_{PSAP_{corr}}$ ein und es wird die Fläche verwendet, welche durch die nachgemessene Spotgröße auf dem Filter $A_{spot_{corr}}$ neu berechnet wurde.

$$\sigma_0 = \frac{A_{spot_{corr}}}{V_{PSAP_{corr}}} \ln \left(\frac{T\tau_{t-\Delta t}}{T\tau_t} \right) \quad (2.37)$$

Zur Berechnung des korrigierten Volumens $V_{PSAP_{corr}}$ muss zunächst der gemessene Massenfluss vom PSAP $Q_{PSAP_{mass}}$ mittels dem Einlassdruck $p_{Einlass}$ und dem Standarddruck $p_0 = 1013.25$ hPa in einen Volumenfluss umgewandelt werden und wird dann durch eine Flusskalibrierung korrigiert.

$$Q_{PSAP_{corr}} = 0.8703 \cdot \left(Q_{PSAP_{mass}} \frac{p_0}{p_{Einlass}} \right) - 0.0738 \quad (2.38)$$

Für die korrigierte Fläche $A_{spot_{corr}}$ wurde der Durchmesser des Filterspots (4.65 mm) mittels eines Filters der EMeRGe-Kampagne vom Asien-Teil ausgemessen, welcher aufgrund der starken Verschmutzung in dieser Region eine sehr gut zu erkennende Grenze des Spots aufwies (Abbildung 30).



Abbildung 30: Filter des PSAPs vom 28.03.2018 während EMeRGe-Asien. Links der Filter mit der Ablagerung des Aerosols und rechts der Referenzfilter.

Die einfache Streualbedo ω_0 , welche ebenfalls zur Berechnung von Formel 2.36 benötigt wird, ist gegeben durch das Verhältnis vom Streukoeffizient σ_{streu} zur Summe des Absorptionskoeffizienten σ_{abs} mit dem Streukoeffizienten σ_{streu} .

$$\omega_0 = \frac{\sigma_{streu}}{\sigma_{abs} + \sigma_{streu}} \quad (2.39)$$

Da auch hier der Wert des noch zu ermittelnden Absorptionskoeffizienten σ_{abs} eingeht, wird für die Streualbedo ω_0 zunächst ein Wert von 1 angenommen und Formel 2.36 berechnet. Anschließend wird in die Formel 2.39 das Ergebnis für den Absorptionskoeffizienten σ_{abs} eingesetzt und ein neuer Wert für die einfache Streualbedo ω_0 berechnet. Diese Iteration wird einige Male wiederholt, bis die beiden Parameter konvergieren. Der ebenfalls in beide Formeln eingehende Streukoeffizient σ_{streu} wird zuvor mittels der OPCs-Daten unter Annahme der Mie-Theorie für homogene Partikel nach Bohren und Huffman (1983) berechnet.

Mit den neu berechneten Absorptionskoeffizienten σ_{abs} für jede der drei Wellenlängen des PSAPs ist es nun möglich, den Absorptions-Ångström-Exponenten \dot{A}_{abs} zu berechnen, welcher zur Charakterisierung der Lichtabsorption bei verschiedenen Wellenlängen genutzt wird. Denn neben Black Carbon (BC), welches bei jeder Wellenlänge stark absorbierende Eigenschaften hat, gibt es andere Aerosoltypen, welche beispielsweise stärker im blauen Spektrum als im roten absorbieren, sodass der Absorptions-Ångström-Exponent darüber Auskunft geben kann, welcher Aerosoltyp hauptsächlich vorliegt (Bond et al. 2013). Zur Berechnung des Absorptions-Ångström-Exponenten nach Formel 2.40 werden daher die Absorptionskoeffizienten der blauen und roten Wellenlänge benötigt.

$$\dot{A}_{abs} = -\frac{\ln\left(\frac{\sigma_{absblau}}{\sigma_{absrot}}\right)}{\ln\left(\frac{\lambda_{blau}}{\lambda_{rot}}\right)} \quad (2.40)$$

Durch das starke Rauschen des PSAPs ist es nötig für die Fehlerabschätzung des Absorptions-Ångström-Exponenten eine Fehlerbetrachtung durchzuführen. Hierzu wird eine Gaußsche Fehlerfortpflanzung betrachtet.

$$\varepsilon_{\dot{A}_{abs}} = \sqrt{\left(\frac{\delta}{\delta\sigma_{absblau}} \cdot \varepsilon_{absblau}\right)^2 + \left(\frac{\delta}{\delta\sigma_{absrot}} \cdot \varepsilon_{absrot}\right)^2} \quad (2.41)$$

Die Fehler der beiden Wellenlängen $\varepsilon_{absblau}$ und ε_{absrot} sind die Standardabweichungen der intern berechneten Absorptionskoeffizienten $b_{absblau}$ und b_{absrot} , da davon ausgegangen werden kann, dass dieses starke Rauschen sich auch in der Transmission widerspiegelt, würden mehr Nachkommastellen vom PSAP ausgegeben werden. Dies ist der Grund, warum es nicht möglich ist von den neu berechneten Absorptionskoeffizienten σ_{abs} einen Fehler zu ermitteln.

Für die Gaußsche Fehlerfortpflanzung werden auch die Ableitungen der neu berechneten Absorptionskoeffizienten σ_{abs} benötigt.

$$\frac{\delta}{\delta\sigma_{absblau}} = \frac{-1}{\sigma_{absblau} \log\left(\frac{\lambda_{blau}}{\lambda_{rot}}\right)} \quad (2.42)$$

$$\frac{\delta}{\delta\sigma_{absrot}} = \frac{1}{\sigma_{absrot} \log\left(\frac{\lambda_{blau}}{\lambda_{rot}}\right)} \quad (2.43)$$

Werden nun die Formeln 2.42 und 2.43 in die Formel 2.41 eingesetzt, lautet die Formel zur Berechnung des Fehlers für den Absorptions-Ångström-Exponent wie folgt:

$$\varepsilon_{\dot{A}_{abs}} = \sqrt{\left(\frac{-1}{\sigma_{absblau} \log\left(\frac{\lambda_{blau}}{\lambda_{rot}}\right)} \cdot \varepsilon_{abs.blau}\right)^2 + \left(\frac{1}{\sigma_{absrot} \log\left(\frac{\lambda_{blau}}{\lambda_{rot}}\right)} \cdot \varepsilon_{abs.rot}\right)^2} \quad (2.44)$$

Für eine Abschätzung der Signifikanz der berechneten Absorptionskoeffizienten und auch des daraus resultierenden Absorptions-Ångström-Exponenten wurde mit dem PSAP eine Nullmessung durchgeführt. Die dort vermessene Streuung der unkorrigierten Absorptionskoeffizienten wurde als Detektionslimit festgelegt und dient so als Grundlage zur Abschätzung der Signifikanz.

2.2.7 Rohrleitungsverluste

Durch die Rohrleitungen, welche vom Einlass zu den detektierenden Geräten führen, ist immer ein gewisser Verlust von Partikeln zu verzeichnen. Kleine Partikel <100 nm diffundieren in den Rohrleitungen, sodass diese für die Messung verloren gehen, wohingegen große Partikel >1 μm an den Rohrleitungswänden sedimentieren, da sie durch ihre Trägheit nicht in der Lage sind den Kurven bis hin zu den Messinstrumenten zu folgen (Hinds 1999).

Nimmt der Druck ab vergrößern sich diese Verluste in den Rohrleitungen noch. Aus diesem Grund wurde mit Hilfe des modifizierten Particle Loss Calculators (von der Weiden et al. 2009), welcher vom Max-Planck-Institut für Chemie in Mainz zur Verfügung gestellt wurde, für jeden CPC und den auszuwertenden OPC1 die Transmissions-Effizienz auf verschiedenen Druckstufen berechnet. Da neben dem Druck in der Messkammer auch die Temperatur und bei den CPCs noch der Fluss durch den Bypass des AMETYST eine Rolle spielen können, wurden diese Größen auf jeder Druckstufe variiert. Die einzelnen CPCs und der OPC1 wurden aufgrund ihrer individuellen Rohrleitungslänge hierfür alle einzeln betrachtet.

Ziel dieser Berechnungen ist es, für jeden CPC und den OPC1 des AMETYSTs eine Parametrisierung zu ermitteln, welche es möglich macht, die Transmissions-Effizienz und damit den Partikelverlust der verschiedenen Partikeldurchmesser bei den einzelnen Messgeräten direkt und ohne den Umweg über den Particle Loss Calculator zu berechnen. Denn da sich die einzelnen Rohrleitungslängen und der Innenrohrdurchmesser von 4.6 mm nicht verändern, können diese als feste Größe angenommen werden und der Zeitaufwand zur Berechnung der Partikelverluste so verringert werden.

Da die Vorgehensweise zur Parametrisierung der Rohrleitungsverluste für die einzelnen Messgeräte gleich ist, wird diese hier für den CPC1 erläutert, während für die anderen Messgeräte die Ergebnisse im Anhang 6.1 aufgeführt werden. Zunächst wird die reine Druckabhängigkeit der Transmissions-Effizienz für den CPC1 mit einer angenommenen Aerosoldichte (ρ) von 1.8 g cm^{-3} berechnet (Abbildung 31). Dieser Wert wurde gewählt, da er eine gute Annahme für die Aerosoldichte von Black Carbon (BC) ist, welches durch die Verbrennung von Diesel entsteht und daher in den Abgasfahnen der Megacitys zu finden ist (Bond et al. 2013 und die Refrenzen hierin). Der Fluss durch den Bypass und die Temperatur wurden hierbei konstant belassen. Da die Diffusionsverluste stark vom Druck abhängen, wirkt sich eine Druckänderung, wie in Abbildung 31 zu sehen, vor allem auf die Partikel mit einem Durchmesser <100 nm aus.

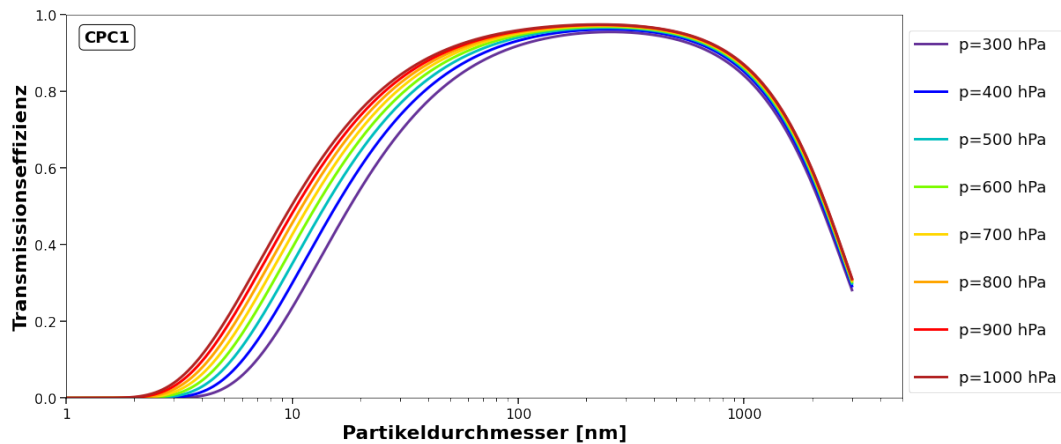


Abbildung 31: Transmissionseffizienz berechnet durch den Particle Loss Calculator beispielhaft für den CPC1 für verschiedene Druckstufen. Für die Temperatur und den Fluss durch die Rohrleitung F4 werden die Mittelwerte $T=30.2\text{ °C}$ und $F4=2.2\text{ L min}^{-1}$ verwendet.

Anschließend wurden die anderen Parameter innerhalb der einzelnen Druckstufen variiert, wie in Abbildung 32 für den CPC1 bei 500 hPa zu erkennen ist. Die Temperatur rangierte zwischen 25 °C und 35 °C mit einem Mittelwert von ungefähr 30 °C . Der Bypass-Fluss des AMETYST wirkte sich beim CPC1 und CPC2 auf den Fluss in Rohrleitung Nummer 4 (F4) des Verrohrungsplans (Abbildung 13) aus und beim CPC3 auf den Fluss in Rohrleitung Nummer 2 (F2), wobei $F4=F2$ gilt. Dies sind die Flüsse durch die jeweiligen Rohrleitungen vor den Flowsplittern, welche zum Bypass führen. Durch die Variation des Bypass-Flusses rangierte F4 bzw. F2 in einem Bereich von etwa 1.75 L min^{-1} bis 3.5 L min^{-1} mit einem Mittelwert bei ungefähr 2.2 L min^{-1} . Die Änderungen der Transmissions-Effizienz auf einer Druckstufe durch die Variation der Temperatur und des Bypass-Flusses sind so gering, dass sie für die Parametrisierung als vernachlässigbar eingestuft wurden. Dasselbe gilt für die zwei anderen CPCs und den OPC1, welcher jedoch nicht vom Fluss durch den Bypass abhängt und bei dem daher nur die Temperatur variiert wurde. Zusätzlich wurde beim OPC1 jedoch neben der Aerosoldichte von 1.8 g cm^{-3} noch eine Aerosoldichte von 2.6 g cm^{-3} angenommen und parametrisiert. Diese größere Aerosoldichte ist typisch für Staub (Weinzierl et al. 2017), welcher durch die größere Spannweite des OPCs im Vergleich zum DMA in den größeren Kanälen detektiert werden kann.

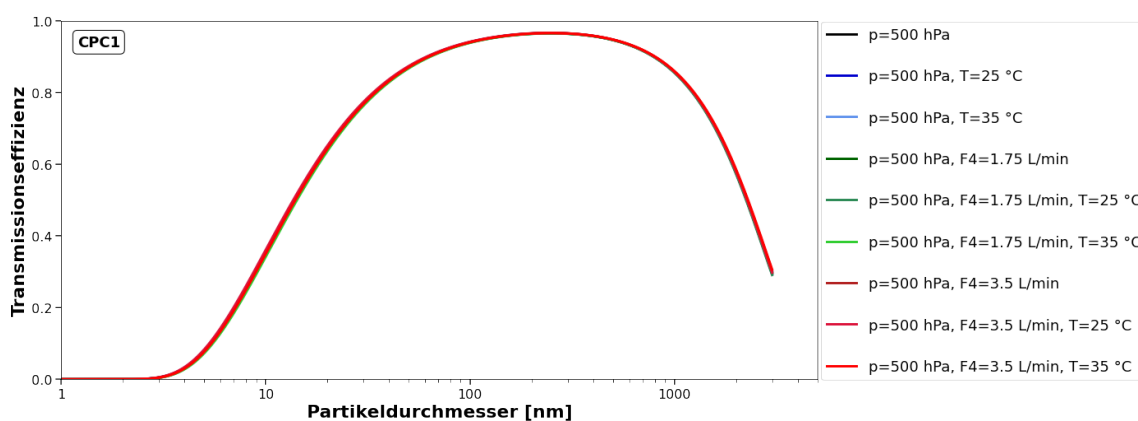


Abbildung 32: Transmissionseffizienz auf der Druckstufe 500 hPa mit allen Variationen der Temperatur und des Flusses F4. Wenn keine andere Temperatur oder Fluss angegeben sind, wurde der Mittelwert dieser beiden Parameter verwendet.

Die Funktionen der Transmissions-Effizienz (TE), welche die Kurve beschreiben, setzen sich zusammen aus Exponentialfunktionen zur Basis e und Potenzfunktionen. Die Gleichung, die in diesem Fall genutzt wurde, wird beschrieben durch:

$$TE(D_p) = x_4 \cdot \exp\left[\frac{-x_5}{x_6 \cdot D_p^{x_7}}\right] - \frac{x_8 \cdot D_p^{x_9}}{x_{10}} \quad (2.45)$$

wobei $x_4, x_5, x_6, x_7, x_8, x_9$ und x_{10} Parameter sind und für D_p die Partikelgrößen eingesetzt werden. Wird diese Gleichung nun für die einzelnen Druckstufen gelöst, ist zu erkennen, dass Parameter x_6 die größte Gewichtung zufällt. Aus diesem Grund ist es möglich für alle anderen Parameter einen festen Wert anzunehmen und nur noch den Parameter x_6 mithilfe des Drucks in der Messkammer zu berechnen. Die Formel 2.45 vereinfacht sich für die einzelnen CPCs und den OPC mit den verschiedenen Aerosoldichten daher zu:

$$\text{CPC1} \quad TE_{CPC1}(D_p) = 1.02 \cdot \exp\left[\frac{-1}{x_6 \cdot D_p^{1.21}}\right] - \frac{0.000105 \cdot D_p^{1.21}}{2.45} \quad (2.46)$$

$$\text{CPC2} \quad TE_{CPC2}(D_p) = 1.028 \cdot \exp\left[\frac{-1}{x_6 \cdot D_p^{1.2}}\right] - \frac{0.000105 \cdot D_p^{1.2}}{1.8} \quad (2.47)$$

$$\text{CPC3} \quad TE_{CPC3}(D_p) = 1.0 \cdot \exp\left[\frac{-1}{x_6 \cdot D_p^{1.36}}\right] - \frac{0.000105 \cdot D_p^{1.4}}{26.0} \quad (2.48)$$

$$\text{OPC} \quad TE_{OPC_{1.8}}(D_p) = 0.996 \cdot \exp\left[\frac{-1}{x_6 \cdot D_p^{1.35}}\right] - \frac{1.5 \cdot 10^{-8} \cdot D_p^{2.29}}{4.8} \quad (2.49)$$

$(\rho = 1.8 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3})$

$$\text{OPC} \quad TE_{OPC_{2.6}}(D_p) = 0.994 \cdot \exp\left[\frac{-1}{x_6 \cdot D_p^{1.42}}\right] - \frac{1.21 \cdot 10^{-8} \cdot D_p^{2.28}}{1.74} \quad (2.50)$$

$(\rho = 2.6 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3})$

Werden die einzelnen Parameter x_6 der verschiedenen Druckstufen zusammen dargestellt, wie in Abbildung 33 für den CPC1, ist zu erkennen, dass es einen Zusammenhang zwischen dem Parameter x_6 und dem Druck p gibt, welcher durch folgende Formel beschrieben werden kann:

$$x_6(p) = x_{11} \cdot p^{x_{12}} - x_{13} \quad (2.51)$$

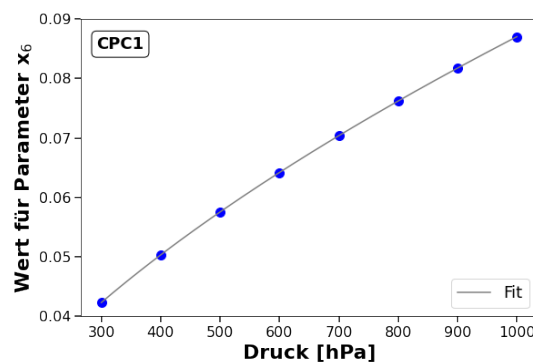


Abbildung 33: Die blauen Datenpunkte des Parameters x_6 für die verschiedenen Druckstufen aufgetragen. Die graue Linie entspricht der Anpassung durch Formel 2.51.

Für die einzelnen CPCs und den OPC nehmen die Parameter x_{11} , x_{12} und x_{13} dann folgende Werte in der Formel 2.51 an:

$$\text{CPC1} \quad x_{6_{CPC1}}(p) = 0.00156021 \cdot p^{0.58455423} - 0.00145822 \quad (2.52)$$

$$\text{CPC2} \quad x_{6_{CPC2}}(p) = 0.00132574 \cdot p^{0.5697856} - 0.00184644 \quad (2.53)$$

$$\text{CPC3} \quad x_{6_{CPC3}}(p) = 0.00206792174 \cdot p^{0.675839136} - 0.000439603787 \quad (2.54)$$

$$\text{OPC} \quad x_{6_{OPC_{1.8}}}(p) = 0.00286989 \cdot p^{0.6843549} + 0.00278097 \quad (2.55)$$

$(\rho = 1.8 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3})$

$$\text{OPC} \quad x_{6_{OPC_{2.6}}}(p) = 0.00221094 \cdot p^{0.71308895} + 0.00092979 \quad (2.56)$$

$(\rho = 2.6 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3})$

Anhand dieser Formeln ist es nun möglich für einen Druck, welcher in dem jeweiligen CPC oder dem OPC gemessen wurde, den Parameter x_6 zu bestimmen, mit welchem anschließend die jeweilige Formel von 2.46 bis 2.50 zur Berechnung der Transmissions-Effizienz für Partikeldurchmesser bis 3 μm gelöst werden können.

Der Fehler der Parametrisierung im Vergleich zum Particle Loss Calculator liegt in einem Bereich von unter 5 %. Da auch der Modellfehler des Particle Loss Calculators im Vergleich zu Beobachtungsdaten in diesem Bereich rangiert (von der Weiden et al. 2009), ist die hier vorgestellte Parametrisierung eine gute Methode, um die Partikelverluste in den Rohrleitungen zu den einzelnen Messgeräten nur mit Hilfe des Drucks zu berechnen. Die Parametrisierung ist zusammen mit den Berechnungen des Particle Loss Calculators für alle untersuchten Druckstufen von CPC1 in Abbildung 34 dargestellt.

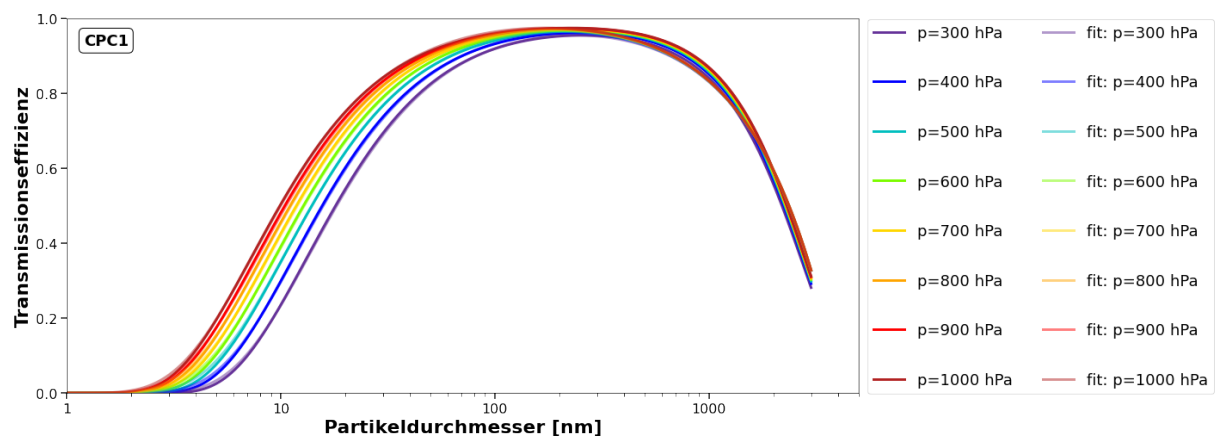


Abbildung 34: Transmissionseffizienzen vom CPC1 auf den verschiedenen Druckstufen berechnet durch den Particle Loss Calculator mit den jeweils dazugehörigen Parametrisierungen in den helleren Farben.

2.3 Berechnung der Größenverteilungen

Wurden die gemessenen Konzentrationen in den einzelnen Größenkanälen des DMAs und des OPCs bezüglich der aufgeführten Fehlerquellen korrigiert, ist es nun möglich, aus der Kombination der Daten eine Größenverteilung über den gesamten Messbereich von 10 nm bis 3 μm zu erstellen. Die einzelnen korrigierten Konzentrationen C_n werden dafür auf logarithmischen Kanalbreiten normiert, sodass eine Anzahlgrößenverteilung $dN/d \ln(D_p)$ entsteht, indem sie durch den natürlichen Logarithmus des Quotienten von oberer zu unterer Kanalgrenze geteilt werden. So ergibt sich allgemein folgende Formel (TSI Incorporated 2012):

$$dN/d \ln(D_p) = \frac{C_n}{\ln\left(\frac{\text{Kanalgrenze}_{\text{oben}}}{\text{Kanalgrenze}_{\text{unten}}}\right)} \quad (2.57)$$

Diese Anzahlgrößenverteilung wird dann für den Median des jeweiligen Größenkanals aufgetragen, wobei die Länge der Fehlerbalken gegeben sind durch die Grenzen des Größenkanals in der einen Richtung und durch die Standardabweichung der mittleren Anzahlkonzentration, welche ebenfalls durch die oben genannte Formel umgerechnet worden ist, in der anderen Richtung.

Zur Beschreibung der Größenverteilung lässt sich der Mediandurchmesser über die gesamte Größenverteilung hinweggesehen berechnen, der sogenannte Count Median Diameter (CMD). Dafür wird die Anzahlkonzentration des jeweiligen Größenkanals C_n mit dem Logarithmus des Mediandurchmesser dieses Größenkanals D_{n_median} multipliziert. Aus allen Größenkanälen wird daraus die Summe gebildet und durch die Summe der Anzahlkonzentrationen über alle Größenkanäle geteilt. Dieses Ergebnis wird dann als Exponent zur Basis 10 eingesetzt, wie in Formel 2.58 zu sehen ist.

$$CMD = 10^{\frac{\sum(C_n \log_{10}(D_{n_median}))}{\sum C_n}} \quad (2.58)$$

2.4 HYSPLIT-Trajektorien

Das “Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory”-Modell, kurz HYSPLIT, von der Nationalen Ozean- und Atmosphärenbehörde der USA (National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA)) ist eines der meist genutzten Transport- und Dispersionsmodelle in der Atmosphärenwissenschaft (Stein et al. 2015). Ein wichtiger Bestandteil ist die Berechnung von Rückwärtstrajektorien, welche auch in dieser Arbeit verwendet wurden. Eine genauere Beschreibung des HYSPLIT-Modells ist in der überarbeiteten Version (April 2020) von Draxler und Hess (1997) oder von Stein et al. (2015) zu finden. Neben dem Webinterface von HYSPLIT, welches „Real-Time Environmental Applications and Display System“ (READY) heißt und vom Air Resources Laboratory (ARL) des NOAA zur Verfügung gestellt wird (ARL 2022; Rolph et al. 2017), gibt es auch noch ein

Interface von HYSPLIT, welches am DLR Institut für Physik der Atmosphäre von Robert Baumann bereit gestellt und stetig weiterentwickelt wird. Beide Varianten wurden für unterschiedliche Zwecke in dieser Arbeit verwendet.

Zum einen wurde das HYSPLIT-Modell dafür verwendet, um den Kontakt mit einer bestimmten Region, in diesem Fall den Kontakt zu den Megacitys London und Manila, zu bestätigen und zum anderen um die Herkunft der Luftmasse zu ermitteln, ohne dass diese einer bestimmten Quellregion entsprechen muss, wie bei den Luftmassen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.

Für die Bestätigung des Kontakts mit London und Manila in den ausgewählten Zeitspannen, wurde das Webinterface von HYSPLIT verwendet, um von einem Startpunkt in der Mitte der zu untersuchenden Zeitspanne mehrere Rückwärtstrajektorien zu starten. Die Daten für die meteorologischen Parameter, welche hierbei verwendet wurden, waren Reanalyse-Daten, um ein möglichst genaues Ergebnis zu erhalten, da es eben keine Vorhersagedaten sind, sondern Nachbereiten. Ob der Kontakt mit einer der Megacitys bestätigt werden konnte hing von den Laufbahnen der Ensemble-Rückwärtstrajektorien ab, aber auch davon, ob diese mit der Zeit für diesen Startpunkt konstant blieben. Denn das Webinterface bietet nur eine zeitliche Auflösung von einer Stunde an, sodass für die zu untersuchenden Zeitspannen meist zwei Zeitpunkte mit einer Stunde Unterschied betrachtet werden musste. Verändern sich die Trajektorien über diese Stunde hinweg nicht stark, kann davon ausgegangen werden, dass bei einer Zeitspanne, welche zwischen diesen beiden Zeitpunkten liegt, die Trajektorien ebenfalls so verlaufen.

Für die Ermittlung der Luftmassenherkunft an der Westküste Taiwans wurde das HYSPLIT-Interface von Robert Baumann (DLR-IPA) verwendet. Dieses nutzt als Datengrundlage für die meteorologischen Parameter die Daten des Europäischen Zentrums für mittelfristige Wettervorhersagen (European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF)). Bei dieser Verwendung von HYSPLIT wurde für jede einzelne Sekunde entlang der Flugroute der ausgewählten Zeitspanne eine Rückwärtstrajektorie gestartet, welche 144 Stunden, also 6 Tage, zurückreicht. Da Aerosole meist nach etwa einer Woche (Boucher et al. 2013) und Sulfat-Aerosole und BC im Durchschnitt bereits nach etwas mehr als fünf Tagen (Liu et al. 2009) durch Deposition aus der Atmosphäre entfernt werden, wäre die Betrachtung einer noch länger zurückreichenden Zeitspanne nicht mehr zielführend, da die Aerosole wahrscheinlich nicht mehr am Messort ankommen oder die Konzentration zu gering wäre.

Die Aerosolpartikel, welche am Messort vermessen wurden, wurden aus der planetaren Grenzschicht (Planetary Boundary Layer (PBL)) eingetragen, wenn die Trajektorie der Luftmasse die Höhe der PBL unterschreitet. Um die Herkunft der Aerosole also bestimmen zu können wurde eben dieser Kontakt zur Grenzschicht explizit untersucht, indem die Punkte der Rückwärtstrajektorien betrachtet wurden, bei der die Höhe der Luftmasse über Grund (Above ground level (AGL)) die der PBL unterschritt. Anhand dieses Kontakts mit der PBL war eine Klassifizierung der Luftmassen in lokale und herantransportierte Emissionen möglich. Dargestellt ist dies in Abbildung 35a) für den Fall einer so identifizierten lokalen Luftmasse im Vergleich zu Abbildung 35b), wo eine so deklarierte transportierte Luftmasse vermessen wurde.

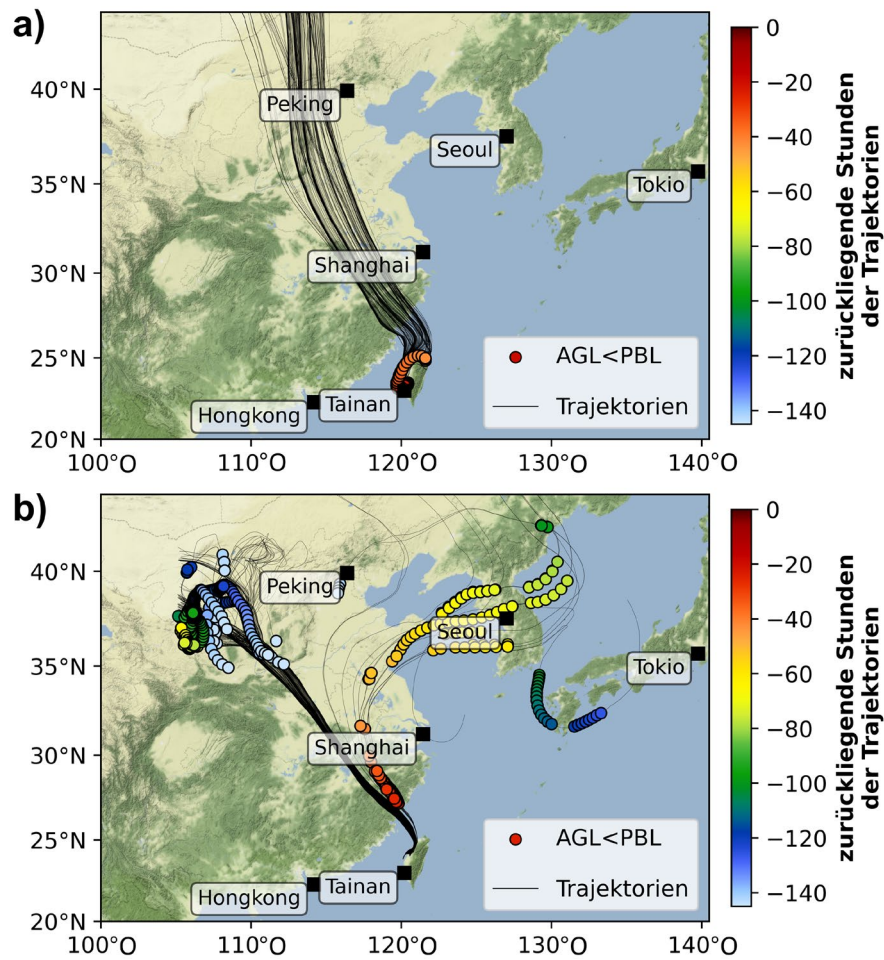


Abbildung 35: Rückwärtstrajektorien von HYSPLIT mit Kontakt zur PBL, welcher anhand der zurückliegenden Zeit der Trajektorien farbcodiert ist. In a) ist so eine lokale Luftmasse identifiziert worden, da der Kontakt mit der PBL, gekennzeichnet durch die farbcodierten Punkte, nur über Taiwan stattfand, während bei b) eine transportierte Luftmasse vermessen worden ist, welche nur über dem asiatischen Kontinent Kontakt mit der PBL hatte.

3 Ergebnisse

3.1 Charakterisierung von Verschmutzungsaerosolen nahe der Megacitys London und Manila

Für einen Vergleich der mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften von einer europäischen mit einer asiatischen Megacity wurde London (Großbritannien) und Manila (Philippinen) ausgewählt, da sie sich, wie in Kapitel 1.3 beschrieben, bezüglich der Einwohneranzahl und der registrierten Fahrzeuge ähneln. Außerdem liegen die beiden Städte relativ isoliert und wurden zweifach während der EMeRGe-Kampagne intensiv mit einer ähnlichen Strategie beprobt. Die Flüge in den jeweiligen Regionen werden in den nächsten zwei Unterkapiteln vorgestellt, bevor in Kapitel 3.1.3 der Vergleich zwischen den beiden Regionen gezogen wird, um die Frage zu beantworten, ob es Unterschiede in den mikrophysikalischen Eigenschaften der Aerosolpartikel aus den Abgasfahnen einer europäischen und einer asiatischen Megacity gibt. Die jeweils angegebenen Anzahlkonzentrationen in diesem Kapitel sind dabei immer auf Standardbedingungen umgerechnet.

3.1.1 London

Die Abgasfahne von London wurde während zwei Flügen der EMeRGe-EU Kampagne beprobt. Zum einen während des Fluges F5 am 17.07.2017, bei welchem sich laut den Vorhersagemodellen zur Flugplanung die Abgasfahne von London im Ärmelkanal ausgebreitet hat, und zum anderem während des Fluges F8 am 26.07.2017, bei welchem die Abgasfahne stattdessen in Richtung Nordsee gezogen ist. Im Folgenden werden diese zwei Flüge zur Beprobung der Abgasfahne von London zur Vereinfachung als erster und zweiter London-Flug deklariert.

Die Flugrouten der beiden Flüge sind in Abbildung 36 dargestellt, wobei die gemessene Gesamtanzahlkonzentration entlang des Flugweges als Farbcodierung aufgetragen ist. Der zeitliche Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration im Größenbereich von 10 nm bis 3 μm ist außerdem mit der Anzahlkonzentration gemessen mit dem OPC im Bereich von 250 nm bis 3 μm und der Druckhöhe, auf welcher HALO geflogen ist, für die beiden London-Flüge in Abbildung 37 zu sehen. Ebenfalls in Abbildung 37 eingezeichnet sind die ausgesuchten Zeitspannen, dargestellt durch die vertikalen Balken, für welche der DMA, wie in Kapitel 2.2.1 beschrieben, ausgewertet wurde. Die Auswahl für diese erfolgte aufgrund der benötigten konstanten Gesamtanzahlkonzentration, welche im Vergleich zum Hintergrund deutlich erhöht ist und so erste Rückschlüsse auf den Einfluss der Megacity im jeweiligen Messgebiet gibt. Kontrolliert wurde dieser Einfluss anschließend noch mittels HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien, wie in Kapitel 2.4 beschrieben, und welche in Anhang 6.5.1 dargestellt sind.

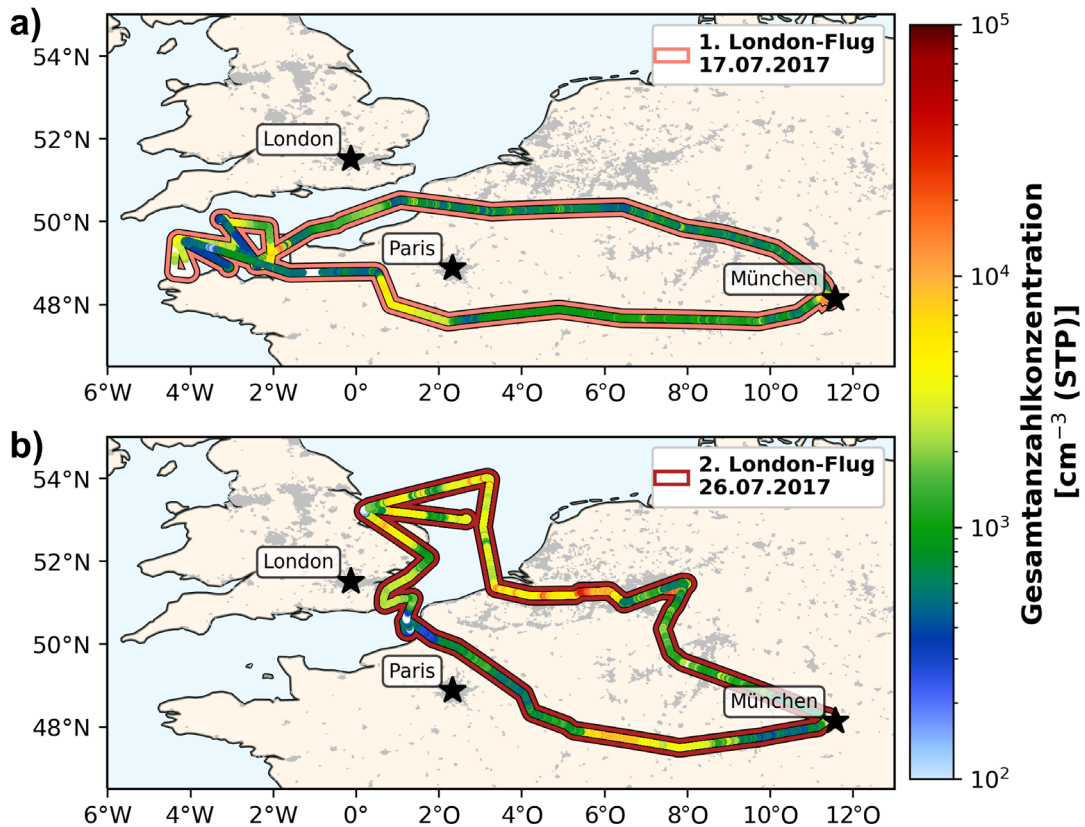


Abbildung 36: Flugrouten vom ersten (a) und zweiten (b) London-Flug auf einer urbanen Karte aufgetragen mit der Gesamtanzahlkonzentration als Farbcodierung.

Beim ersten London-Flug wurde über die Route nördlich von Paris der Ärmelkanal angefliegen. Während dieser Flugphase auf über 5000 m wurden einzelne kurze Peaks, also Anstiege für einige wenige Sekunden, in der Gesamtanzahlkonzentration vermessen, welche einen Spitzenwert von fast $80\,000\ \text{cm}^{-3}$ erreichten. Ansonsten war meist eine Konzentration von etwa $600\ \text{cm}^{-3}$ zu verzeichnen, gekennzeichnet durch die dunkelgrüne fast blaue Farbe in Abbildung 36a). Diese zeitlich sehr begrenzten Erhöhungen können beispielsweise durch die Abgasfahnen von Flugzeugen, welche zuvor in diesem Gebiet geflogen sind, verursacht werden. Die Anzahlkonzentration der größeren Partikeln, welche durch den OPC gemessen wurden, rangierten während dieser Flugphase die ganze Zeit im einstelligen Bereich und war damit mit am niedrigsten während des ganzen Fluges.

Mit Erreichen des Ärmelkanals um etwa 12:00 UTC wurde die Flughöhe auf unter 1000 m verringert und die Gesamtanzahlkonzentration stieg auf etwa $2000\ \text{cm}^{-3}$ an. Während der Beprobung des Ärmelkanals in westliche Richtung wurden dann Werte von teils $6000\ \text{cm}^{-3}$ oder mehr vermessen, welche auch über einen längeren Zeitraum konstant hoch blieben, anders als die kurzen Peaks aus der vorherigen Flugphase. Gut zu erkennen ist dies an der gelblichen Färbung der Farbcodierung in Abbildung 36a). Und auch die Anzahlkonzentration der Partikel mit einem Durchmesser ab 250 nm lag im Ärmelkanal bei teilweise über $100\ \text{cm}^{-3}$ und ist somit um etwa zwei Größenordnungen erhöht. Diese erhöhten Konzentrationen wurden zwischen 12:00 UTC und 14:35 UTC auf mehreren Flughöhen unterhalb von 1000 m vermessen. Zwischen 14:40 UTC und 15:05 UTC wurde der Ärmelkanal auf einer höheren Druckhöhe von über 2000 m beprobt und die Gesamtanzahlkonzentration sank auf Werte von

etwa 400 cm^{-3} , während die Anzahlkonzentration ab 250 nm meist noch über 10 cm^{-3} lag. Sobald die Druckhöhe ab 15:10 UTC wieder nur noch bei etwa 400 m lag, stieg die Gesamtanzahlkonzentrationen wieder an auf Werte von über 2000 cm^{-3} . Während dieser Flugphase von 15:10 UTC bis 16:10 UTC sind zwei Lücken mit fehlenden Daten in der Gesamtkonzentration in Abbildung 37a), aber auch in Abbildung 36a) durch die weiße Einfärbung bei der westlichsten Kurve im Ärmelkanal vor dem französischen Festland, zu erkennen. Der erste Datenpunkt, der nach dem Fehlen der Daten wieder gemessen wurde, war, wie in Abbildung 37a) zu erkennen, meist wesentlich niedriger als die nachfolgenden, sodass dieser nicht realistisch scheint, sondern auf das fehlerhafte Verhalten des Messgeräts zurückzuführen ist.

Um 16:10 UTC wurde die Beprobung der Abgasfahne im Ärmelkanal beendet und wieder Richtung Basis in Oberpfaffenhofen geflogen. Dabei wurde die Abgasfahne von Paris südwestlich der Stadt auf einer Druckhöhe von etwa 2000 m beprobt. Der Anstieg in der Gesamtanzahlkonzentration auf etwa 5000 cm^{-3} ist dabei von 17:00 UTC bis 17:25 UTC in Abbildung 37a), aber auch in Abbildung 36a) durch die gelbliche Färbung gut zu erkennen. Und auch die Anzahlkonzentration ab 250 nm stieg während der Beprobung der Abgasfahne von Paris auf bis zu 90 cm^{-3} an (Abbildung 37a)). Nach dieser niedrigeren Flughöhe wurde bis zur Landung in Oberpfaffenhofen wieder niedrigere Konzentrationen auf einer höheren Druckhöhe gemessen, bevor während des Sinkflugs ab 18:20 UTC die Konzentrationen, wie in Abbildung 37a) zu erkennen, wieder anstiegen.

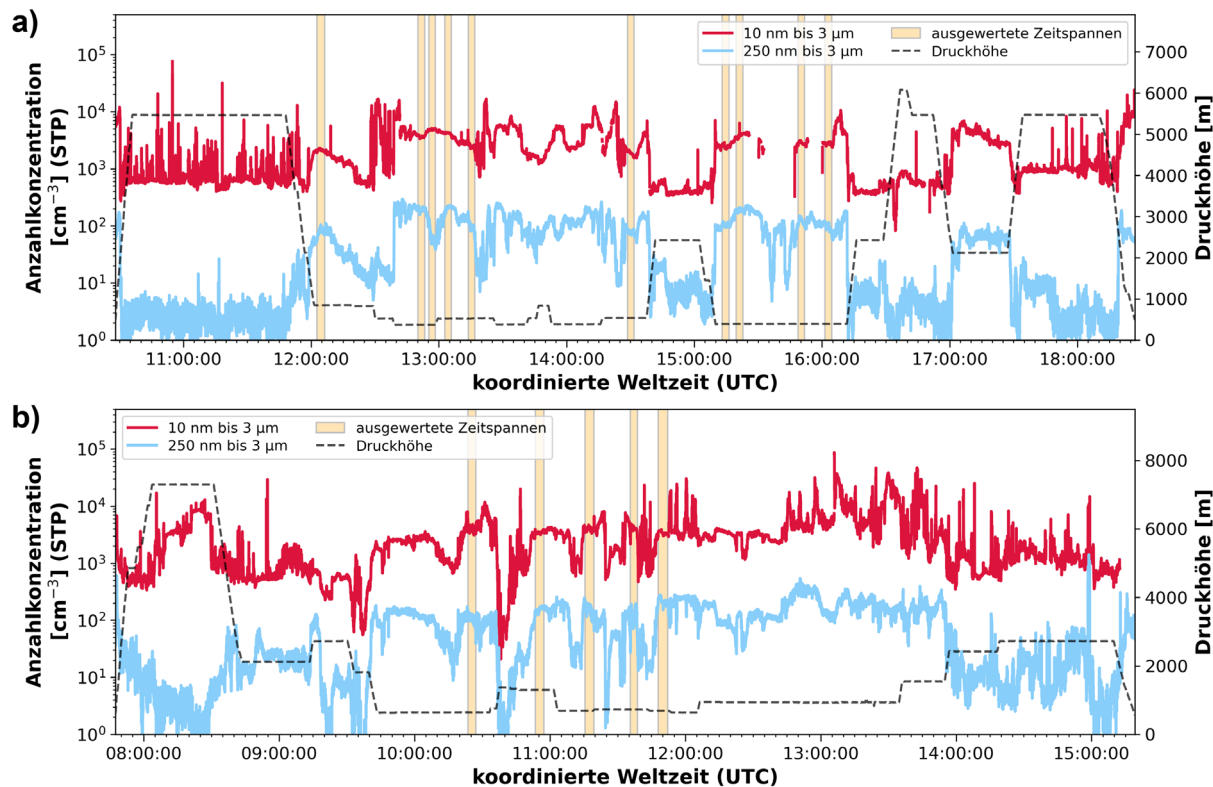


Abbildung 37: Zeitlicher Verlauf der Anzahlkonzentrationen für das Gesamtaerosol in rot und für den Bereich von 250 nm bis $3 \mu\text{m}$ in blau für den ersten London-Flug in a) und den zweiten London-Flug in b). Außerdem ist auf der zweiten y-Achse die jeweilige Druckhöhe angegeben, auf welcher geflogen wurde. Die vertikalen Balken markieren die jeweiligen ausgewerteten Zeitspannen mit Einfluss von London.

Der zweite London-Flug startete Richtung Frankreich und hat am Anfang von 8:15 UTC bis 8:30 UTC auf einer Druckhöhe von über 7000 m eine erhöhte Gesamtanzahlkonzentration von über 8000 cm^{-3} mit einzelnen Erhöhungen bis fast 12.000 cm^{-3} vermessen. Diese sind anhand der gelblichen Färbung der Farbcodierung auch gut in Abbildung 36b) zu erkennen. Bei der Anzahlkonzentration ab einem Durchmesser von 250 nm ist dieser Anstieg jedoch nicht zu verzeichnen. Stattdessen ist in diesem Zeitraum sogar ein Absinken der Anzahlkonzentration zu erkennen (Abbildung 37b)). Die Erhöhung der Gesamtanzahlkonzentration ist daher nur auf Aerosolpartikel mit einem Durchmesser $<250 \text{ nm}$ zurückzuführen.

Auf der folgenden Druckhöhe von etwa 2100 m war die Gesamtanzahlkonzentration am Anfang zumeist bei 600 cm^{-3} mit einigen kürzeren Peaks, wobei der höchste eine Gesamtanzahlkonzentration von fast 30.000 cm^{-3} erreichte. Gegen Ende dieser Flugphase auf 2100 m stieg die Gesamtanzahlkonzentration dann auf über 1000 cm^{-3} an. Anschließend sank die Gesamtanzahlkonzentration bis zum Erreichen des Ärmelkanals bis auf einem Wert von nur noch 62 cm^{-3} . Dies ist gut in Abbildung 36b) zu erkennen, wo die Grünfärbung sich zunächst hin zum Blauen verändert und dann kurz nach dem Verlassen des Festlands von Frankreich sogar bis ins Weiße, was die Gesamtanzahlkonzentrationen unterhalb von 100 cm^{-3} widerspiegelt und diesmal nicht auf eine Fehlfunktion des Messgeräts zurückzuführen ist, wie beim ersten London-Flug.

Auf einer Druckhöhe von etwa 650 m wurde kurzzeitig über Südostengland geflogen und dann an der Küste Ostenglands entlang, bevor ab 10:20 UTC diese Region überflogen wurde. Wurden am Anfang dieser Flugphase noch Gesamtanzahlkonzentrationen von 3000 cm^{-3} erreicht, sank diese zum Ende der Beprobung der Küste Ostenglands hin wieder ab auf bis zu 700 cm^{-3} , um dann auf noch höhere Konzentrationen bis hin zu 11.000 cm^{-3} beim Überflug von Ostengland anzusteigen. Bei der anschließenden scharfen Kurve mit einer Änderung der Druckhöhe um Richtung Osten auf die Nordsee hinauszufiegen, brachen die Konzentrationen stark ein auf einen Tiefstwert von 54 cm^{-3} , wie im zeitlichen Verlauf (Abbildung 37b)), aber auch wegen der weißen Farbe in der Farbcodierung entlang der Flugroute (Abbildung 36b)) zu erkennen ist. Dies verdeutlicht auch noch einmal, dass die Aerosolkonzentrationen nur bei einer idealen Anströmung des HASI-Einlasses vollkommen verlässlich sind.

Bei der anschließenden Beprobung der Abgasfahne Londons in der Nordsee bis 12:05 UTC wurden Erhöhungen in der Gesamtanzahlkonzentration meist zwischen 3000 cm^{-3} und 7000 cm^{-3} mit Höchstwerten von etwa 10.000 cm^{-3} vermessen. Einzelne Peaks oberhalb von 15.000 cm^{-3} wurden vor allem gegen Ende der Beprobung der Abgasfahne von London verzeichnet. Zwischen den Erhöhungen der Gesamtanzahlkonzentration, welche gut anhand ihrer gelblichen Färbung bei der Farbcodierung in Abbildung 36b) nordwestlich von London zu erkennen sind, wurde meist nur eine Gesamtanzahlkonzentration von 700 cm^{-3} bis 1000 cm^{-3} gemessen. Die Anzahlkonzentration ab 250 nm geht meist mit der Gesamtanzahlkonzentration einher, sodass der Anstieg nicht nur auf die kleinen Partikeldurchmesser beschränkt ist.

Auf dem Rückflug über die Nordsee Richtung europäisches Festland wurden Gesamtanzahlkonzentrationen zwischen 2000 cm^{-3} und 3000 cm^{-3} vermessen. Mit der

Ankunft über dem Festland der BeNeLux-Staaten um 12:45 UTC stieg die Gesamtanzahlkonzentration dann auf Werte von über 10.000 cm^{-3} an und verzeichnete den Peak mit der höchsten Gesamtanzahlkonzentration mit fast 88.000 cm^{-3} um 13:06 UTC. Auch die Beprobung des Rhein-Ruhr Gebiets in Deutschland ab 13:20 UTC wies noch sehr hohe Gesamtanzahlkonzentrationen über 10.000 cm^{-3} auf, die mit zunehmender Druckhöhe jedoch auf 1000 cm^{-3} bis 2000 cm^{-3} absanken. Beim Sinkflug zur Landung in Oberpfaffenhofen fiel dann wieder der CPC aus, sodass keine Daten zur Gesamtanzahlkonzentration mehr gemessen wurden. Jedoch ist wieder in der Anzahlkonzentration ab 250 nm , gemessen mit dem OPC, ein Anstieg bis zur Landung zu verzeichnen.

Die Messorte der 15 ausgewerteten Zeitspannen von beiden London-Flügen, welche sich für die Charakterisierung der Abgasfahne von London ergaben und in den zeitlichen Verläufen von Abbildung 37 gekennzeichnet wurden, sind in Abbildung 38a) eingezeichnet und befinden sich im Durchschnitt 275 km von London entfernt.

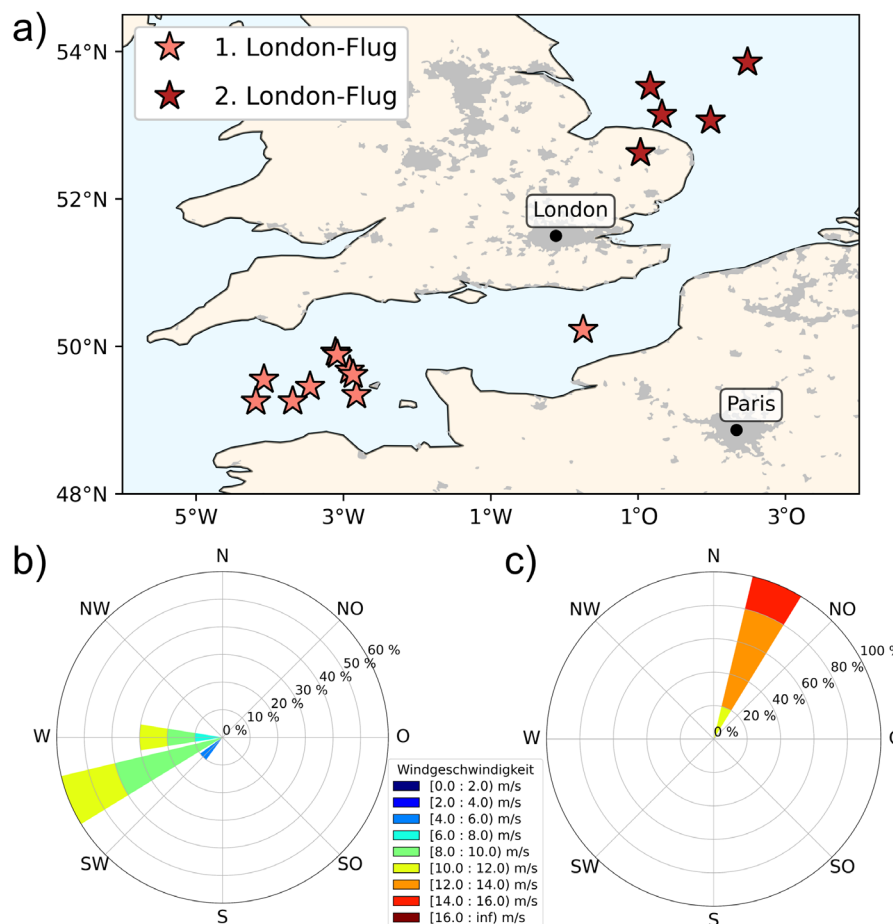


Abbildung 38: Messorte der ausgewerteten Zeitspannen auf einer urbanen Karte in a) und in b) und c) die Zugrichtung der vermessenen Aerosolmassen mit der dazugehörigen Windgeschwindigkeit als Farbcodierung für den ersten London-Flug (b) und den zweiten London-Flug (c).

Anhand der Windrichtungen und der mittleren Windgeschwindigkeiten während der ausgewerteten Zeitspannen wurden außerdem Windrosen erstellt, welche die Zugrichtung der vermessenen Aerosolmassen anzeigen und in Abbildung 38b) für den ersten London-Flug und

in Abbildung 38c) für den zweiten London-Flug dargestellt sind. Diese Windrosen belegen die Notwendigkeit zur Wahl zwei verschiedener Messgebiete zur Beprobung der Abgasfahne von London. Aufgrund eines Wechsels in der Windrichtung wurde die Abgasfahne von London beim ersten London-Flug im Ärmelkanal und beim zweiten London-Flug über der Nordsee vermessen. Außerdem lassen sich anhand Farbcodierungen bezüglich der Windgeschwindigkeit bei den Windrosen erkennen, dass beim ersten London-Flug die Windgeschwindigkeit noch zwischen 4 m s^{-1} und 12 m s^{-1} rangierte, während sie beim zweiten London-Flug bis zu einem Bereich von 16 m s^{-1} reichte.

3.1.2 Manila

Manila wurde ebenso wie London nach dem Transferflug, welcher erstmals die Abgasfahne von Manila beprobte, zweifach intensiv beprobt. Die Ausbreitung der Abgasfahne von Manila war dabei laut den Vorhersagemodellen, welche zur Flugplanung zu Rate gezogen wurden, stets westlich der Stadt. Insgesamt gibt es also drei Flüge, welche nach der EMERGE-Asien Klassifizierung (Abbildung 9) die Flüge F3 vom 12.03.2018, F6 vom 20.03.2018 und F10 vom 28.03.2018 sind, in diesem Abschnitt jedoch, ebenso wie die London-Flüge, vereinfacht als erster, zweiter und dritter Manila-Flug betitelt werden. Die Flugrouten dieser drei Flüge sind in Abbildung 39 dargestellt, welche die gemessene Gesamtanzahlkonzentration wieder als Farbcodierung aufweisen.

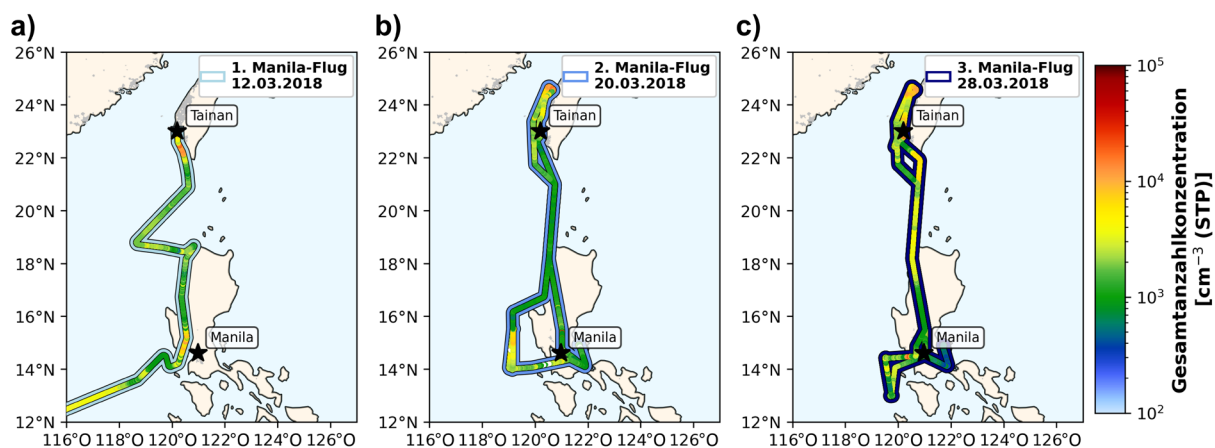


Abbildung 39: Flugrouten der drei Manila-Flüge auf einer urbanen Karte aufgetragen mit der Gesamtanzahlkonzentration als Farbcodierung.

Der zeitliche Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration von 10 nm bis $3 \mu\text{m}$ und der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis $3 \mu\text{m}$ sind zusammen mit der Druckhöhe in Abbildung 40 aufgetragen. Wie im zeitlichen Verlauf der London-Flüge in Abbildung 37 sind auch hier die ausgewählten Zeitspannen, für welche die DMA-Messungen ausgewertet wurden und die die Abgasfahne von Manila beprobten, durch vertikale Balken gekennzeichnet. Der Einfluss der Megacity wurde wie auch schon bei den London-Flügen mittels HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien kontrolliert, welche in Anhang 6.5.1 aufgeführt sind.

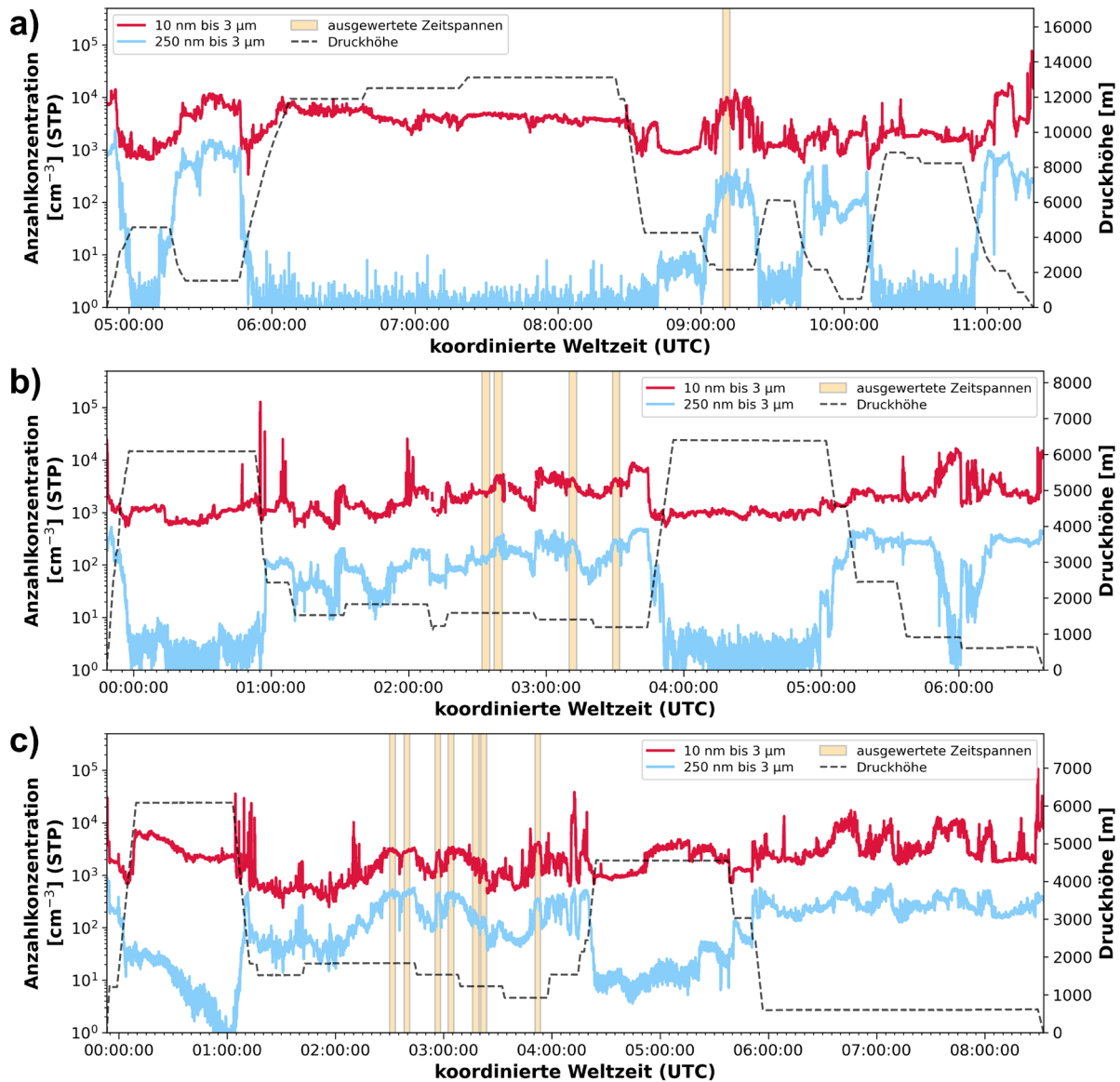


Abbildung 40: Zeitlicher Verlauf der Anzahlkonzentration für das Gesamtaerosol in rot und für den Bereich von 250 nm bis 3 µm in blau für den ersten Manila Flug im oberen Graphen, für den zweiten Manila-Flug im mittleren Graphen und für den dritten Manila-Flug im unteren Graphen. Außerdem ist auf der zweiten y-Achse jeweils die Druckhöhe, auf welcher geflogen wurde, aufgezeichnet. Die vertikalen Balken in orange markieren die ausgewerteten Zeitspannen, in welchen die Abgasfahne von Manila vermessen wurde.

Da es sich bei dem ersten Manila-Flug noch um einen Transferflug handelt, bei welchem in Bangkok gestartet wurde, wurde zunächst auf einer sehr hohen Druckhöhe von über 12.000 m geflogen auf welcher eine Gesamtanzahlkonzentration von etwa 3000 cm⁻³ vermessen wurde, wohingegen sich die Anzahlkonzentration ab 250 nm meist zwischen 0 cm⁻³ und 2 cm⁻³ bewegte. Die Abnahme der Druckhöhe von 8:25 UTC bis 8:35 UTC auf 4250 m kennzeichnet das Erreichen des philippinischen Luftraums. Nach einem kurzen Anstieg der Gesamtanzahlkonzentration auf etwa 3000 cm⁻³, während diese beim Sinkflug zunächst zurückgegangen ist, sank die Gesamtanzahlkonzentration auf Werte von circa 900 cm⁻³. Mit Abnahme der Gesamtanzahlkonzentration stieg dagegen die Anzahlkonzentration ab 250 nm auf Werte über 5 cm⁻³. Auf einer noch niedrigeren Druckhöhe von etwa 2150 m stieg sowohl die Gesamtanzahlkonzentration auf über 6000 cm⁻³, als auch die Anzahlkonzentration ab

250 nm auf teilweise über 200 cm^{-3} an. Die Erhöhung der Gesamtanzahlkonzentration ist in Abbildung 39a) westlich der philippinischen Hauptstadt Manila anhand der gelben und orangenen Färbung der Farbcodierung gut zu erkennen. Anschließend wurde auf einer höheren Druckhöhe von 6000 m entlang der philippinischen Küste nach Norden geflogen, wobei die Nordspitze noch einmal auf eine niedrigeren Druckhöhe knapp unter 500 m beprobt wurde, bei welcher hauptsächlich die Anzahlkonzentration ab 250 nm anstieg, die Gesamtanzahlkonzentration im Vergleich zur vorherigen niedrigen Druckhöhe jedoch nicht so stark. Anschließend wurde auf einer Druckhöhe von über 8000 m nach Tainan geflogen, welches auf der EMERGe-Asien Kampagne als Basis diente.

Beim zweiten Manila-Flug wurde Manila direkt von Tainan aus angefliegen. Die Gesamtanzahlkonzentrationen auf dem Transferflug dorthin auf einer Druckhöhe von etwa 6000 m rangierte zwischen 600 cm^{-3} und 1800 cm^{-3} . Während dem Sinkflug um 0:55 UTC befand sich HALO über den Philippinen in der Region Central Luzon nördlich der Metropolregion von Manila und die Gesamtanzahlkonzentration wies einige hohe Peaks bis fast $130\,000 \text{ cm}^{-3}$ auf. Dies waren gleichzeitig die höchsten Konzentrationen, die auf diesem Flug vermessen wurden. Wegen der nicht idealen Anströmung des HASI-Einlasses beim Sinkflug sind diese hohen Konzentrationen jedoch eventuell auf Partikelablagerungen in den Rohrleitungen zurückzuführen, sodass diesen nicht vollständig vertraut werden sollte. Auf den darauffolgenden niedrigeren Druckhöhen unterhalb von 2000 m wurde zunächst die Küste östlich der Megacity von circa 1:20 UTC bis 1:45 UTC beprobt. Die Gesamtanzahlkonzentration reichte dabei meist von 500 cm^{-3} bis 1500 cm^{-3} , wobei kurz vor der Kurve im Norden mit einem Anstieg der Druckhöhe um 1:30 UTC auch höhere Gesamtanzahlkonzentrationen von 3300 cm^{-3} erreicht wurden. Ab etwa 2:30 UTC wurde dann die Abgasfahne von Manila vor der Westküste der Philippinen beprobt. Die Gesamtanzahlkonzentration betrug dabei konstant über 2000 cm^{-3} , sehr oft sogar 3000 cm^{-3} und höher. Spitzenwerte waren bei über 6000 cm^{-3} zu verzeichnen. Diese Erhöhung der Gesamtanzahlkonzentration ist auch in Abbildung 39b) anhand der gelblichen bis teils orangenen Färbung der Farbcodierung vor der Westküste von Manila zu erkennen. Die Anzahlkonzentration ab 250 nm wies während der Beprobung der Philippinen auf den Druckhöhen unterhalb von 2000 m meist einen sehr ähnlichen Verlauf auf, sodass die Erhöhungen nicht nur auf die Aerosolpartikel mit einem Durchmesser $<250 \text{ nm}$ zurückzuführen ist. Ab 3:45 UTC wurde auf einer hohen Druckhöhe von über 6000 m wieder Richtung Taiwan geflogen, wo am Ende des Fluges noch die Westküste beprobt wurde. Die Gesamtanzahlkonzentration reichte dabei bis fast $17\,000 \text{ cm}^{-3}$ bei gleichzeitigem Einbruch der ansonsten konstant hohen Anzahlkonzentration ab 250 nm.

Der dritte Manila-Flug weist in den Grundzügen einen ähnlichen Flugplan wie der zweite Manila-Flug auf, welches gut in Abbildung 39b) und c) zu erkennen ist. Auch bei diesem wurde Manila direkt nach dem Start in Tainan auf einer hohen Druckhöhe von knapp über 6000 m angefliegen. Sowohl die Gesamtanzahlkonzentration, als auch die Anzahlkonzentration ab 250 nm war am Anfang dieser Flugphase erhöht, sank jedoch stetig weiter ab. Wurden zu Beginn der hohen Druckhöhe noch eine Gesamtanzahlkonzentration von 6000 cm^{-3} vermessen, waren es am Ende nur noch 2200 cm^{-3} . Bei der Anzahlkonzentration ab 250 nm war die Abnahme jedoch noch höher als der Faktor 3. So

wurden hier am Anfang noch Konzentrationen über 20 cm^{-3} gemessen, gegen Ende der Flugphase auf der hohen Druckhöhe jedoch nur noch Werte zwischen 0 cm^{-3} und 2 cm^{-3} . Nach Verringern der Druckhöhe auf unter 2000 m wurde wie beim zweiten Flug zunächst die Ostküste von Manila zwischen 1:30 UTC und 1:55 UTC beprobt. Die Gesamtanzahlkonzentration stieg wie beim zweiten Flug bei der Kurve für die Beprobung der gleichen Strecke auf einer höheren Druckhöhe kurzzeitig an, rangierte aber ansonsten meist bei niedrigen Werten zwischen 300 cm^{-3} und 600 cm^{-3} . Die Beprobung der Abgasfahne von Manila vor der Westküste der Philippinen fand dann von etwa 2:30 UTC bis 4:00 UTC statt. In dieser Region wurden Erhöhungen der Gesamtanzahlkonzentration von bis zu 4000 cm^{-3} verzeichnet, welche anhand ihrer gelben Färbung der Farbcodierung auch gut in Abbildung 39c) ersichtlich sind. Ohne diese Anstiege der Gesamtanzahlkonzentration lag diese bei Werten unter 1000 cm^{-3} . Nach den Messungen vor der Westküste wurde auf einer Druckhöhe von 4500 m wieder Richtung Taiwan geflogen, wo vor der Landung in Tainan auf einer Druckhöhe von knapp 600 m noch einmal die Westküste von Taiwan beprobt wurde, wobei die Gesamtanzahlkonzentration dort über 2000 cm^{-3} rangierte mit Höchstwerten zwischen $10\,000 \text{ cm}^{-3}$ und $17\,000 \text{ cm}^{-3}$.

Die Messorte der 12 ausgewerteten Zeitspannen der drei Manila-Flüge sind in Abbildung 41a) auf einer urbanen Karte dargestellt. Die durchschnittliche Entfernung der Messorte zum Stadtzentrum von Manila beträgt 173 km . Die Windrichtung und die mittlere Windgeschwindigkeit der einzelnen Zeitspannen mit Einfluss von Manila sind als Windrosen mit der Zugrichtung der Luftmassen in Abbildung 41b) aufgetragen. Es ist zu erkennen, dass kein größerer Windrichtungswechsel bei sehr niedrigen Windgeschwindigkeiten von unter 4 m s^{-1} stattfand, sodass die Abgasfahne von Manila, wie auch in a) zu erkennen, stets westlich der Stadt vermessen werden konnte.

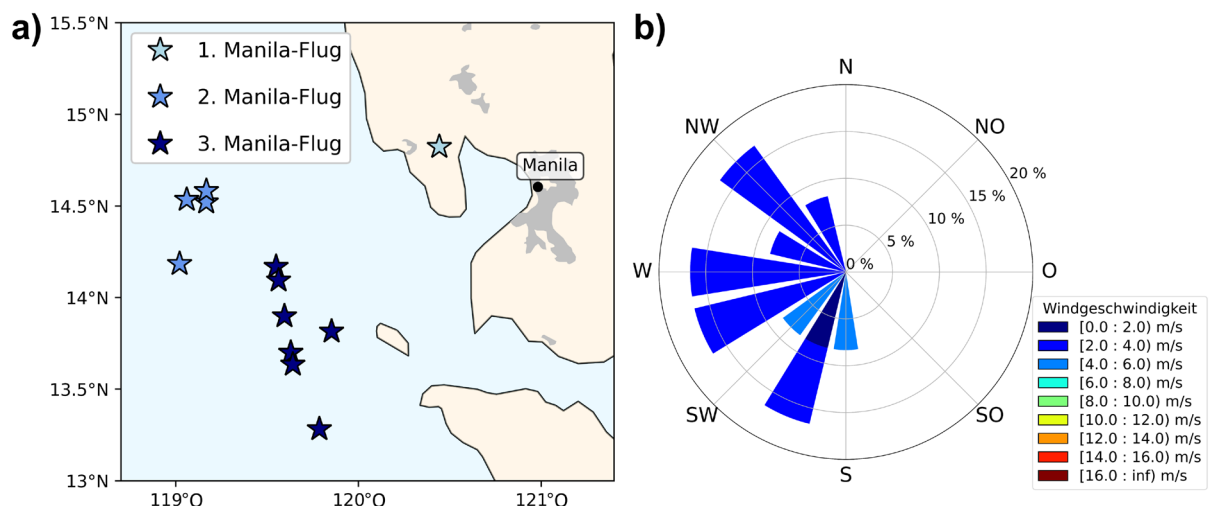


Abbildung 41: In a) sind die Messorte der ausgewerteten Zeitspannen, welche die Abgasfahne von Manila beprobten, durch blaue Sterne auf einer urbanen Karte gekennzeichnet. Eine Windrose, welche die Zugrichtung der vermessenen Aerosolmassen mit Einfluss von Manila mit der dazugehörigen Windgeschwindigkeit als Farbcodierung wiedergibt, ist für alle drei Manila-Flüge in b) dargestellt.

3.1.3 Vergleich der beiden Megacitys

Die Beprobung der Abgasfahnen von London und Manila erfolgte mit ähnlichen Strategien, jedoch liegen die Messorte der ausgewerteten Zeitspannen bei den London-Flügen mit 275 km weiter vom Stadtzentrum entfernt, als die 173 km bei den Manila-Flügen. Auch bei den Windgeschwindigkeiten, die während den ausgewerteten Zeitspannen gemessen wurden, waren Unterschiede zwischen London und Manila zu erkennen. Bei den Zeitspannen der London-Flüge war die Windgeschwindigkeit stets über 4 m s^{-1} mit Höchstwerten bis 16 m s^{-1} . Bei den Zeitspannen der Manila-Flüge waren jedoch alle gemessenen Windgeschwindigkeiten unterhalb von 4 m s^{-1} . Sehr gut ist dies anhand der Farbcodierungen der Windrosen in den Abbildung 38b) und c) für die beiden London-Flüge und in Abbildung 41b) für die Manila-Flüge zu sehen. Und auch die Druckhöhen, auf welchen die Abgasfahnen von London und Manila beprobt wurden, unterscheiden sich, zu sehen in Abbildung 42, für welche die Druckhöhen in Schritten von je 200 m unterteilt für die Zeitspannen von London und Manila aufgetragen sind. So wurde die Abgasfahne von Manila in so gut wie allen Fällen auf einer höheren Druckhöhe als die der Megacity London vermessen.

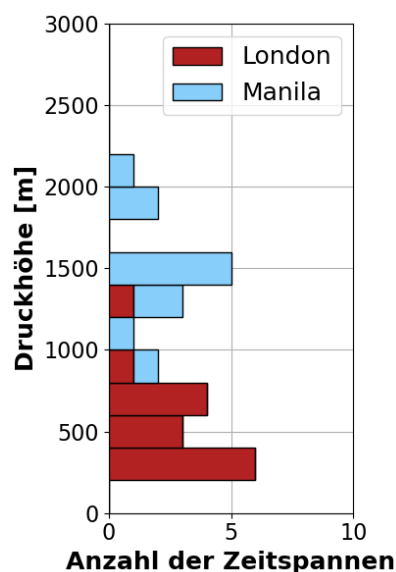


Abbildung 42: Die Druckhöhe der ausgewerteten Zeitspannen von der Beprobung der Abgasfahnen von London und Manila, eingeteilt in Höhenschritte von je 200 m.

Die Gesamtanzahlkonzentrationen der ausgewerteten Zeitspannen nahe London rangierte von 2223.45 cm^{-3} bis 5032.87 cm^{-3} mit einem Mittelwert von 3459.18 cm^{-3} . Die Gesamtanzahlkonzentration bei den Zeitspannen, welche die Abgasfahne von Manila beprobten, wiesen Werte zwischen 1283.66 cm^{-3} und 7957.49 cm^{-3} auf und waren damit weiter gestreut, als die bei den London-Flügen. Der Mittelwert der Gesamtanzahlkonzentration ist jedoch mit 3457.70 cm^{-3} fast identisch mit dem der Zeitspannen der London-Flüge. Eine genauere Aufschlüsselung der Gesamtanzahlkonzentrationen für die einzelnen Zeitspannen ist in Tabelle 11 in Anhang 6.4.1 aufgeführt.

Wie in Kapitel 2.3 beschrieben, wurden nun die Anzahlkonzentrationen in den einzelnen Größenkanälen der ausgewerteten Zeitspannen mit dem Einfluss einer der beiden Megacitys genutzt, um eine Größenverteilung zu erstellen. Dies ist in Abbildung 43 dargestellt, wobei die farbliche Einteilung der einzelnen Flüge denen von Abbildung 36, 38a), 39 und 41a) entspricht.

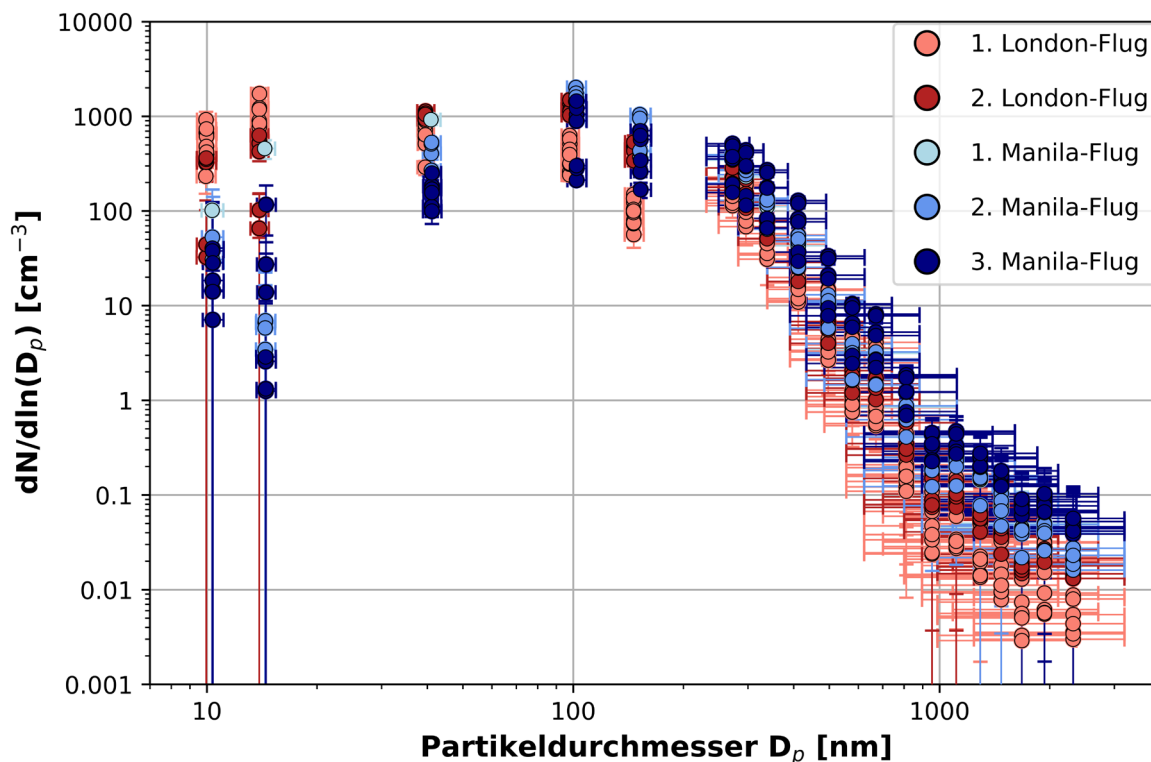


Abbildung 43: Größenverteilungen der einzelnen Zeitspannen mit farblicher Einteilung der einzelnen Flüge nahe London und Manila. Der Fehlerbalken in x-Richtung kennzeichnet die Kanalbreite und der in y-Richtung die Standardabweichung der logarithmisch normalverteilten Anzahlkonzentration über die Zeitspanne hinweg.

Es ist ein deutlicher Unterschied zwischen den Größenverteilungen der Abgasfahne von London und Manila ersichtlich. Bei Manila gibt es eine niedrigere Konzentration der kleinen Partikel unter 100 nm im Gegensatz zu London. Bei den größeren Partikeldurchmessern >100 nm verhält es sich gerade anders herum. Dort ist die Konzentration bei den London-Zeitspannen niedriger als bei denen der Manila-Zeitspannen. Für eine noch bessere Darstellung dieser Unterschiede in den Größenverteilungen von den Abgasfahnen von London und Manila wurden in Abbildung 44 Boxplots aus den einzelnen Zeitspannen gebildet. Außerdem sind dort noch die Count Median Diameters (CMD) eingezeichnet, wie in Kapitel 2.3 bestimmt. So liegt dieser bei der Beprobung der Abgasfahne von London bei 64.0 ± 23.8 nm und bei der von Manila bei 178.0 ± 37.5 nm. Die signifikante Verschiebung hin zu größeren Partikeln in der Abgasfahne von Manila ist dadurch klar ersichtlich. Auch zu erkennen ist, dass die jeweils niedrigeren Boxen meist eine größere vertikale Ausdehnung aufweisen, die Konzentrationen also in diesem Größenkanals jeweils breiter gestreut sind.

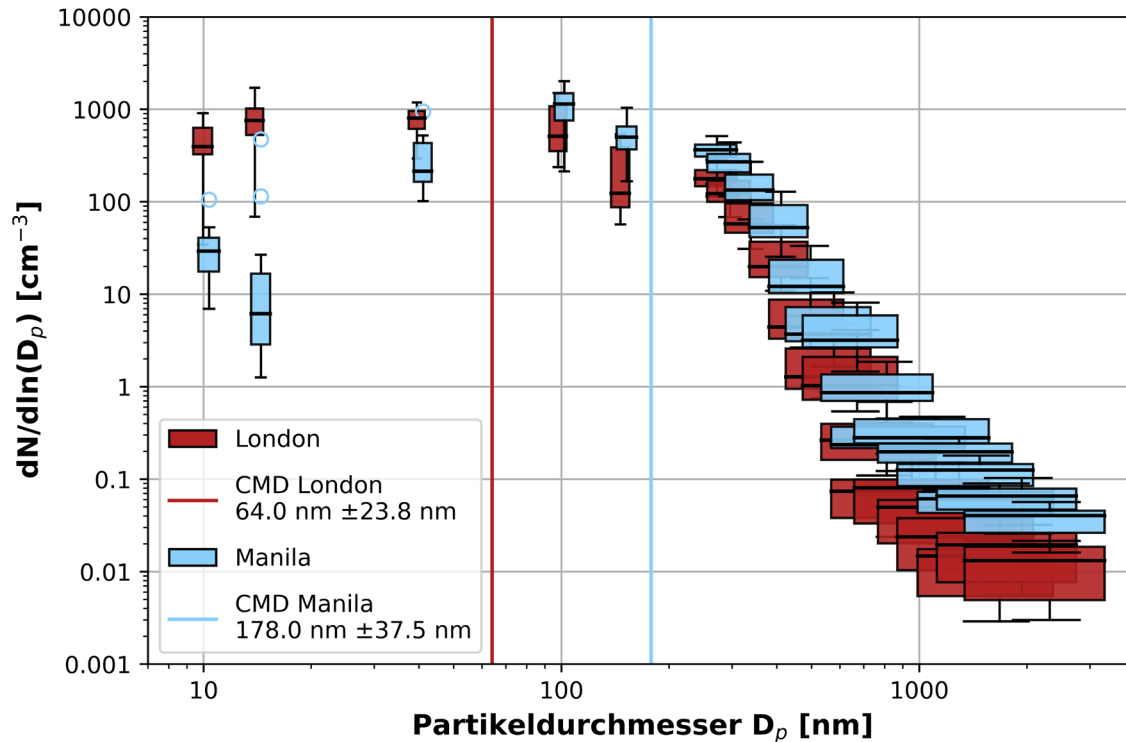


Abbildung 44: Boxplots der Größenverteilungen aus den Zeitspannen, welche die Abgasfahne von London beziehungsweise Manila beprobt haben. Die Box umfasst dabei die Werte vom ersten bis zum dritten Quartil, die Linien innerhalb der Boxen geben den Median an, die Fehlerbalken das 1.5-fache des Interquartilsabstandes und die leeren Kreise sind Ausreißer, die noch außerhalb der Fehlerbalken liegen. Die Breite der Box sind durch die Grenzen des jeweiligen Größenkanals bestimmt. Außerdem sind noch die Count Median Diameters (CMD) durch vertikale Linien eingezeichnet, deren Werte mit Standardabweichung in der Legende zu finden sind.

Neben der Größenverteilung und der Anzahlkonzentration ist eine weitere Charakterisierung der Abgasfahnen von London und Manila durch die PSAP-Messungen der Absorptionskoeffizienten möglich. Diese sind für die verschiedenen Zeitspannen in Abbildung 45 dargestellt. Die Nomenklatur der Zeitspannen, die auf der x-Achse aufgetragen wurde, setzt sich dabei so zusammen, dass der Buchstabe für die Fallstudie steht, also L für London oder M für Manila, die erste Zahl für den Flug im jeweiligen Messgebiet und die letzte Zahl gibt die ausgewertete Zeitspanne des zuvor genannten Fluges an. Wie zu erkennen, rangierten die Absorptionskoeffizienten bei London nahe der Nachweisgrenze, da sie alle insgesamt sehr niedrig sind, sodass diese nicht immer signifikant gegenüber der Nullmessung des PSAPs waren. Gekennzeichnet ist dies durch die orangenen und roten Balken, wobei rot für nicht signifikant steht und orange zumindest eine 1σ -Signifikanz aufweist. Die Absorptionskoeffizienten nahe Manila sind alle signifikant und liegen teils deutlich höher als die nahe London. Dies bedeutet, dass mehr absorbierende Aerosolpartikel, wie Ruß, in der Abgasfahne von Manila vorhanden sind und sich die Aerosolzusammensetzung im Vergleich zu London unterscheidet.

Wegen der Streuung des PSAPs können die unkorrigierten Absorptionskoeffizienten, aus welchen der Fehler berechnet wird, auch negative Werte annehmen. Da Werte unter 0 jedoch unrealistisch sind, wurden die Graphen stets nur bis zu diesem Minimum aufgetragen. Die Datenqualität der Absorptionskoeffizienten wird in Kapitel 4.1 näher betrachtet.

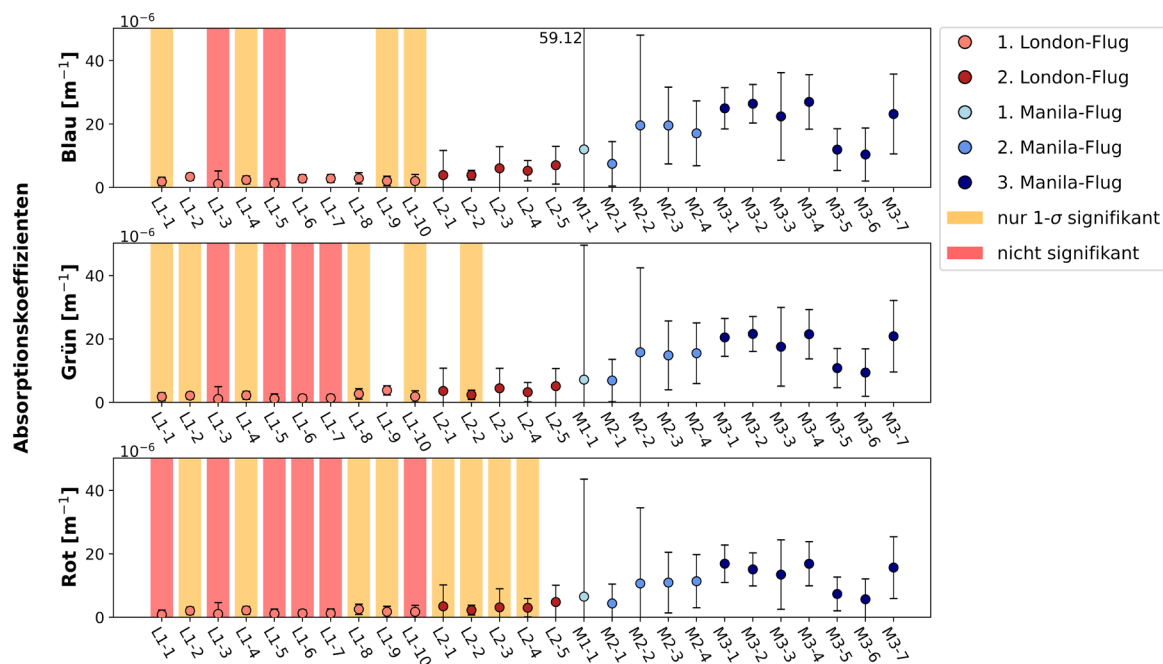


Abbildung 45: Absorptionskoeffizienten aller gemessener Wellenlängen mit dem PSAP für die einzelnen Zeitspannen nahe London und Manila. Die Farbe der Punkte entsprechen denen der London- und Manila-Flüge aus den vorigen Abbildungen und die Fehlerbalken geben die Standardabweichung der PSAP-Messungen wieder, wobei das Ende des Fehlerbalkens, welcher über die Skala hinausreicht, durch den Wert neben dem entsprechenden Fehlerbalken gekennzeichnet ist. Die vertikalen Balken in Orange und Rot geben die Signifikanz der gemessenen Absorptionskoeffizienten an. Orange steht dabei für eine 1σ -Signifikanz, die zumindest erreicht wurde, Rot hingegen ist gar nicht signifikant. Die anderen Zeitspannen ohne einen orangenen oder roten Balken weisen also mindestens eine 2σ -Signifikanz auf.

Da zur Berechnung des Absorptions-Ångström-Exponenten der Absorptionskoeffizient der roten Wellenlänge verwendet wird, werden in Abbildung 46 nur diejenigen Absorptions-Ångström-Exponenten der verschiedenen Zeitspannen dargestellt, welche beim Absorptionskoeffizienten im roten Wellenlängenbereich eine 2σ -Signifikanz aufweisen. Ebenfalls in der Abbildung ist die Einteilung des Absorptions-Ångström-Exponenten von Bond et al. (2013), welche angibt, welche Werte für welchen dominanten Aerosoltyp typisch sind. Unterteilt wird dabei in Organisches Aerosol, Staub und Black Carbon (BC).

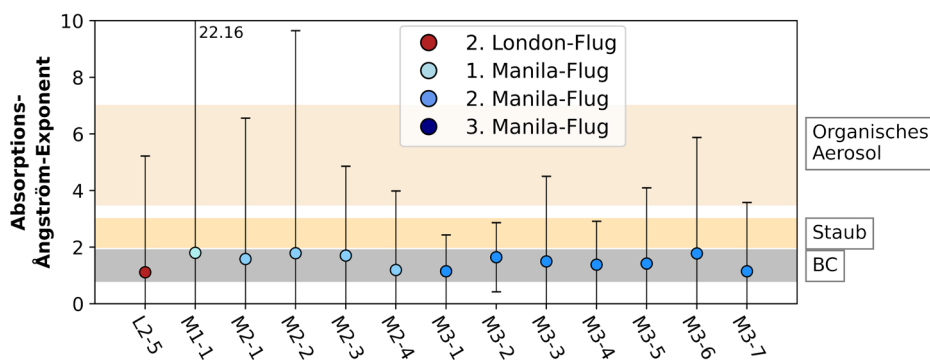


Abbildung 46: Absorptions-Ångström-Exponenten der Zeitspannen, bei denen der Absorptionskoeffizient im roten Wellenlängenbereich signifikant ist. Die Fehler wurden, wie in Kapitel 2.2.6 beschrieben, berechnet und als Fehlerbalken eingezeichnet. Das Ende des Fehlerbalkens, welcher über die betrachtete Skala hinausreicht, ist durch den Wert neben dem entsprechenden Fehlerbalken angezeigt. Die Einteilung in Organisches Aerosol, Staub und Black Carbon wurde aus Bond et al. (2013) entnommen.

Anhand der Abbildung 46 ist zu erkennen, dass alle Absorptions-Ångström-Exponenten im Bereich liegen, der typisch für Black Carbon ist. Es ist jedoch auch zu erkennen, dass die Fehlerbalken insgesamt sehr ausgedehnt sind und sich teilweise über alle definierten Einteilungen von Bond et al. (2013) erstrecken, sodass dem Wert des Absorptions-Ångström-Exponenten wenig Aussagekraft zugestanden wird.

Ebenso verhält es sich mit der Mass Absorption Cross Section (MAC), welche mit Hilfe der Black Carbon Massenkonzentration vom MPIC berechnet werden kann, indem der Quotient aus dem korrigierten Absorptionskoeffizienten der roten Wellenlänge σ_{rot} und der BC-Massenkonzentration BC_m gebildet wird (Bond et al. 2013).

$$MAC = \frac{\sigma_{rot}}{BC_m} \quad (2.59)$$

Die Werte von der MAC sind für die Zeitspannen mit einem signifikanten Wert für den Absorptionskoeffizienten der roten Wellenlänge in Abbildung 47 dargestellt. Wie auch hier zu erkennen sind die Fehlerbalken, welche ebenfalls mittels einer Gaußschen Fehlerfortpflanzung berechnet worden sind, teils sehr ausgedehnt. So ist der größte Fehlerbalken bei Zeitspanne M1-1 zu finden, bei welcher die MAC $12.6 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ beträgt und der berechnete Fehler bei $\pm 71.8 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ liegt. Negative Werte sind jedoch sowohl hier als auch beim Absorptions-Ångström-Exponent nicht realistisch und entstehen durch die Streuung der unkorrigierten Absorptionskoeffizienten vom PSAP, welche zur Fehlerberechnung herangezogen werden. Trotz der großen Fehlerbalken liegen die Mittelwerte der MAC in der Größenordnung, welche nach Bond et al. (2013) zu erwarten ist.

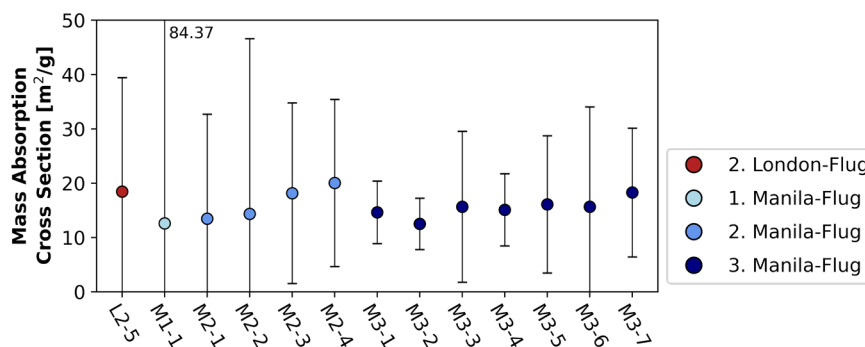


Abbildung 47: Darstellung der Mass Absorption Cross Section (MAC) für alle Zeitspannen, bei denen der Absorptionskoeffizient der roten Wellenlänge signifikant ist. Die Fehlerbalken wurden mittels einer Gaußschen Fehlerfortpflanzung ermittelt und das Ende des Fehlerbalkens, welches über die Skala hinausreicht, wurde auch hier durch den Wert neben dem entsprechenden Fehlerbalken gekennzeichnet.

3.2 Untersuchung der Änderung in den Aerosoleigenschaften durch Transport und Alterung an der Westküste von Taiwan

Die Westküste von Taiwan wurde bei EMeRGe-Asien ab dem vierten Flug bei jedem einzelnen Flug beprobt. All diese Flüge sind, mit der gemessenen Gesamtanzahlkonzentration als Farbcodierung entlang der Flugrouten, in Abbildung 48 dargestellt. Anhand dieser Farbcodierung ist zu erkennen, dass die Gesamtanzahlkonzentration an der Westküste von Taiwan in einem großen Bereich von mehreren Größenordnungen variierte. Teilweise konnten sogar Werte von über $100\,000\text{ cm}^{-3}$ vermessen werden.

Entlang der Westküste sind aufgrund der Topographie Taiwans, mit einer hohen Bergkette entlang der Ostküste, die meisten urbanen Gebiete Taiwans zu verzeichnen, wie es auf der urbanen Karte in Abbildung 49 zu erkennen ist. Auch eines der leistungsstärksten Kohlekraftwerke weltweit befindet sich in dieser Region. Doch auch an der Küste Chinas befinden sich einige große urbane Gebiete, wie das Yangtzedelta rund um Shanghai und das Perlflussdelta rund um Hongkong, welche Hotspots für anthropogene Aerosole sind und je nach Windrichtung leicht Einfluss auf Taiwan haben können. Aufgrund der Insellage von Taiwan sollten sich die lokal verursachten Emissionen gut von denen, welche herantransportiert wurden, unterscheiden. Diese mögliche Unterscheidung beruht auf der Annahme, dass die transportierten Luftmassen aufgrund des längeren Transportwegs älter sind und so die mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften durch verschiedene Alterungsprozesse, wie Koagulation, beeinflusst wurden.

Der zeitliche Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration von 10 nm bis $3\text{ }\mu\text{m}$ und der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis $3\text{ }\mu\text{m}$ sind für die einzelnen Flüge an der Westküste von Taiwan in Anhang 6.3 dargestellt. Insgesamt wurden bei diesen elf Flügen 92 Zeitspannen ausgewertet und anhand der HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien, wie in Kapitel 2.4 beschrieben, in lokale, transportierte und gemischte Emissionen unterteilt. Außerdem gibt es Zeitspannen, deren vermessene Luftmasse innerhalb der betrachteten Rückwärtstrajektorien von 144 Stunden keinerlei Kontakt zur planetaren Grenzschicht (PBL) hatten. Die so eingeteilten Zeitspannen sind ebenfalls in den zeitlichen Verläufen im Anhang markiert. Außerdem sind die HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien der lokalen und transportierten Emissionen in Anhang 6.5.2 aufgeführt.

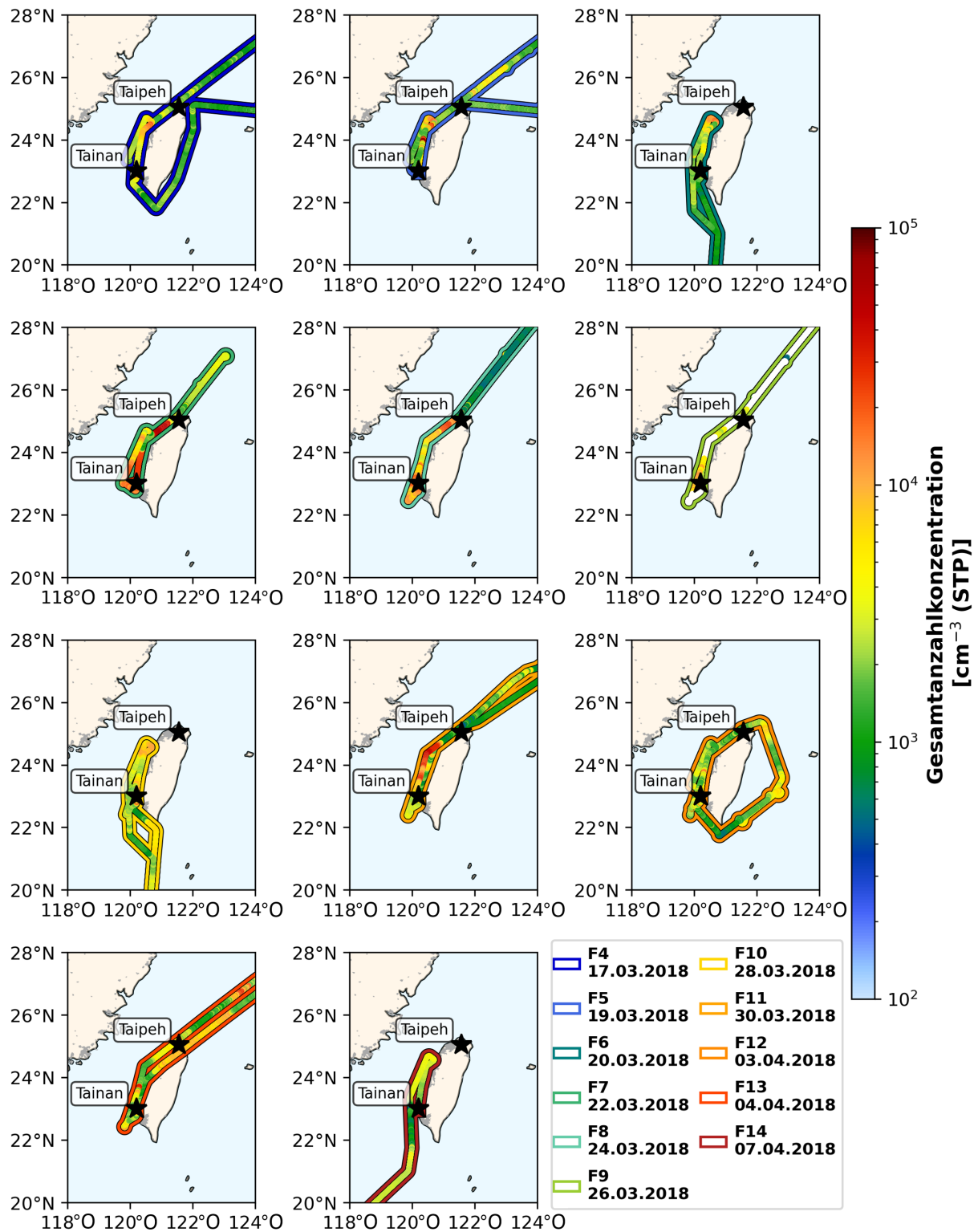


Abbildung 48: Flugrouten der verschiedenen Flüge an der Westküste von Taiwan mit der Gesamtanzahlkonzentration als Farbcodierung.

3.2.1 Transport

In diesem Kapitel werden nun speziell die Zeitspannen mit lokalen und transportierten Emissionen näher untersucht, deren verschiedene Messorte in Abbildung 49 aufgeführt sind und die mittleren Gesamtanzahlkonzentrationen in Tabelle 9. Die Nomenklatur der Zeitspannen folgt dabei dem gleichen Muster wie bei dem Vergleich von London und Manila. Der Buchstabe T steht für die Auswertung der Westküste von Taiwan, die darauffolgende Zahl für den Flug während EMeRGe-Asien und die Zahl nach dem Bindestrich für die Zeitspanne, die während des jeweiligen Fluges untersucht wurde. Da alle Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan ausgewertet wurden, so durchnummeriert wurden und nicht nur die mit lokalen und transportierten Emissionen, sind die Nummern nicht durchgehend in Tabelle 9 und den folgenden Abbildungen. Die Gesamtanzahlkonzentrationen aller untersuchten Zeitspannen, unabhängig des vermessenen Emissionstyps, sind mit der damit verbundenen durchgehenden Nummerierung in Anhang 6.4.2 zu finden.

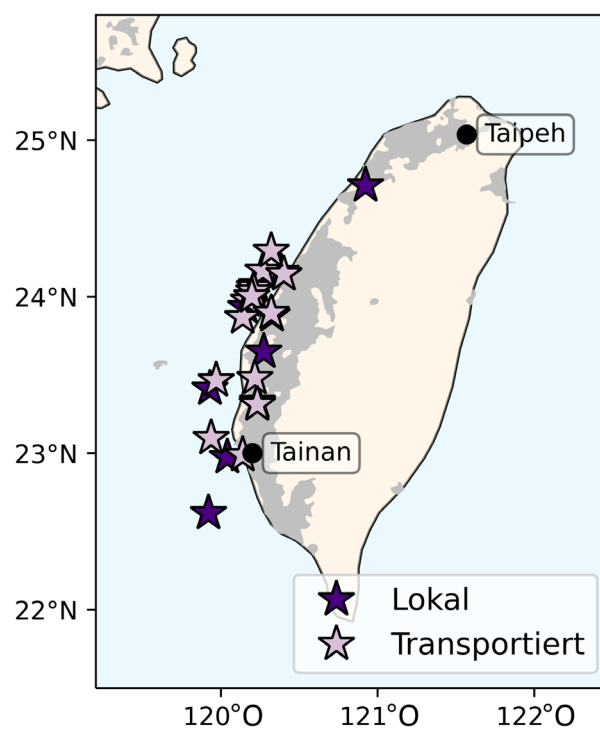


Abbildung 49: Messorte der Zeitspannen mit klassifizierten lokalen und transportierten Emissionen an der Westküste von Taiwan auf einer urbanen Karte dargestellt. Die Klassifizierung erfolgte dabei wie in Kapitel 2.4 beschrieben.

Tabelle 9: Gesamtanzahlkonzentrationen der verschiedenen Zeitspannen, welche für die verschiedenen Flüge an der Westküste von Taiwan vermessen wurden und deren Emissionen mit Hilfe von HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien in lokale (L) und transportierte (T) Emissionen klassifiziert wurden. Die hinterlegten Farben der Emissionstypen stimmen mit denen aus den Abbildungen dieses Kapitels überein.

Fallstudie	EMeRGe-Flugnummer	ausgewertete Zeitspanne	Emission	Gesamtanzahlkonzentration [cm^{-3}]
Taiwan	Asien F4	T4-1	T	1549.39
		T4-4	T	2329.62
	Asien F5	T5-2	L	5713.77
		T5-9	L	1682.09
		T5-10	T	1478.65
	Asien F6	T6-1	T	2276.83
		T6-2	T	2775.64
		T6-4	T	2369.38
	Asien F7	T7-4	L	15 248.21
		T7-8	L	22 376.30
		T7-9	T	9063.17
		T7-10	L	10 850.83
		T7-14	T	5849.89
	Asien F9	T9-1	L	2510.44
		T9-3	L	7621.81
		T9-4	L	4979.49
		T9-5	L	9395.85
	Asien F10	T10-2	T	2163.57
		T10-3	T	1848.98
		T10-5	T	2880.40
		T10-8	L	7280.79
		T10-9	T	2919.10
	Asien F11	T11-4	L	2864.96
	Asien F12	T12-4	L	2682.66
T12-5		T	1725.13	
Asien F14	T14-1	T	1762.75	

Die Gesamtanzahlkonzentration der lokalen Emissionen über die jeweiligen Zeitspannen gemittelt liegt bei $7767.27 \pm 6093.8 \text{ cm}^{-3}$ und ist damit höher als die der transportierten Emissionen, welche im Vergleich bei nur $2928.03 \pm 2073.75 \text{ cm}^{-3}$ liegt. Aus diesem Grunde wurden die einzelnen Größenverteilungen für eine bessere Vergleichbarkeit mit Hilfe der jeweiligen Gesamtanzahlkonzentration normiert und dann als Boxplots der verschiedenen Emissionen in Abbildung 50 zusammengefasst. Dabei gibt es keinen offensichtlichen Unterschied bei den Größenverteilungen der lokalen und transportierten Emissionen. Die Konzentrationen in den einzelnen Größenkanälen der transportierten Emissionen variieren jedoch meist weniger stark, als die der lokalen Emissionen, zu erkennen an der geringeren vertikalen Ausdehnung der Boxen. Aber auch an den Fehlerbalken der lokalen Emissionen ist

dies zu erkennen, die sehr ausgeprägt sind und, vor allem beim Größenkanal von 14 nm, teils mehrere Größenordnungen überspannen. Bei den Count Median Diameters (CMD), welche ebenfalls in Abbildung 50 eingezeichnet sind, ist auch kein signifikanter Unterschied zwischen den beiden Emissionstypen auszumachen. Der CMD der lokalen Emissionen liegt dabei bei 136.4 ± 65.9 nm und der CMD der transportierten Emissionen bei 157.9 ± 54.1 nm.

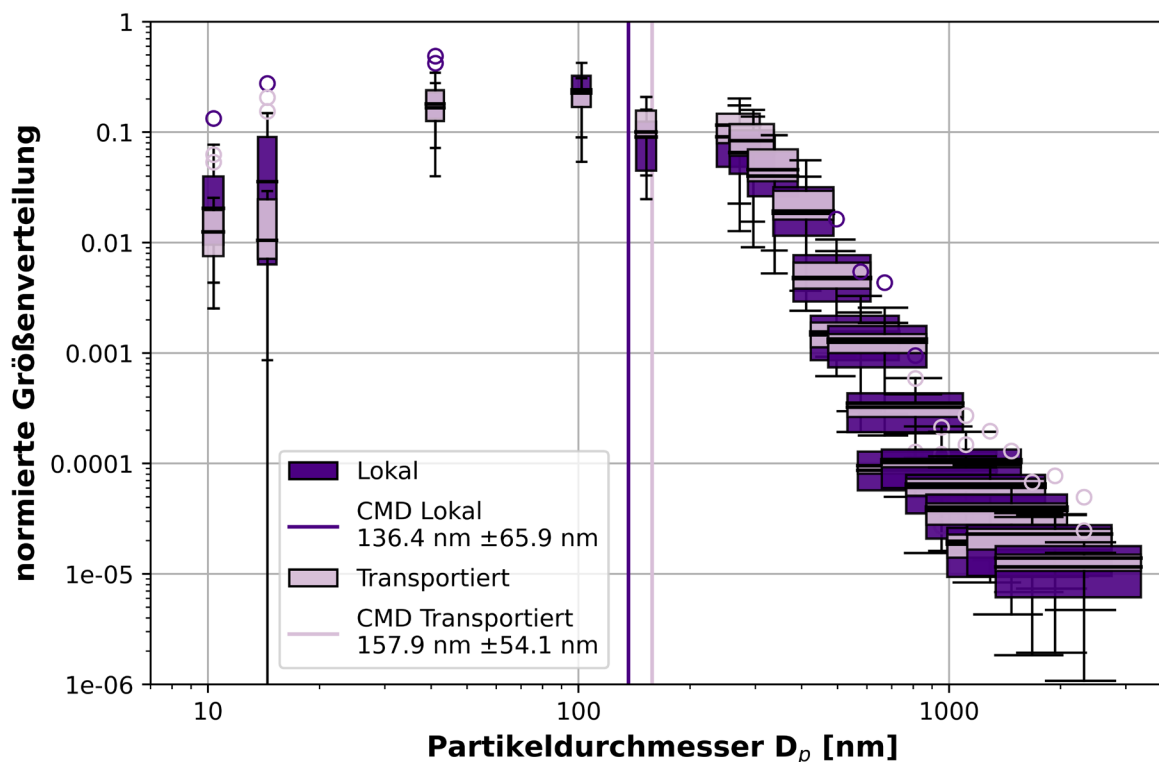


Abbildung 50: Boxplots der normierten Größenverteilungen aus den Zeitspannen, welche als lokale und transportierte Emissionen klassifiziert werden konnten. Die Box umfasst dabei die Werte vom ersten bis zum dritten Quartil, die Linien innerhalb der Boxen geben den Median an, die Fehlerbalken das 1.5-fache des Interquartilsabstandes und die leeren Kreise sind Ausreißer, die noch außerhalb der Fehlerbalken liegen. Außerdem sind noch die Count Median Diameters (CMD) durch vertikale Linien eingezeichnet, deren Werte mit Standardabweichung in der Legende zu finden sind.

Auch der Vergleich der korrigierten Absorptionskoeffizienten der drei Wellenlängen in Abbildung 51 ergibt keinen großen Unterschied zwischen den lokalen und transportierten Emissionen. Bei den lokalen Emissionen liegen die Absorptionskoeffizienten zwar im Durchschnitt ein wenig höher, sind jedoch auch wie bei den transportierten Emissionen sehr weit gestreut mit Werten für die blaue Wellenlänge von $8.7 \cdot 10^{-6} \text{ m}^{-1}$ bis $37.8 \cdot 10^{-6} \text{ m}^{-1}$, im Vergleich zu den transportierten Emissionen, deren Absorptionskoeffizienten der blauen Wellenlänge zwischen $5.1 \cdot 10^{-6} \text{ m}^{-1}$ und $30.1 \cdot 10^{-6} \text{ m}^{-1}$ rangieren, sodass kein signifikanter Unterschied auszumachen ist. Und da bis auf zwei Werte der roten Wellenlänge alle signifikant sind, sollte dies keinen Einfluss auf eine mögliche Unterscheidung der Absorptionskoeffizienten für die verschiedenen Emissionstypen haben. Die Fehlerbalken variieren aufgrund des Rauschens des PSAPs, welches mal mehr mal weniger ausgeprägt ist, sehr stark, wobei die Fehlerbalken bei den transportierten Emissionen meist ein wenig kleiner sind. Die Datenqualität der Absorptionskoeffizienten wird in Kapitel 4.1 näher betrachtet.

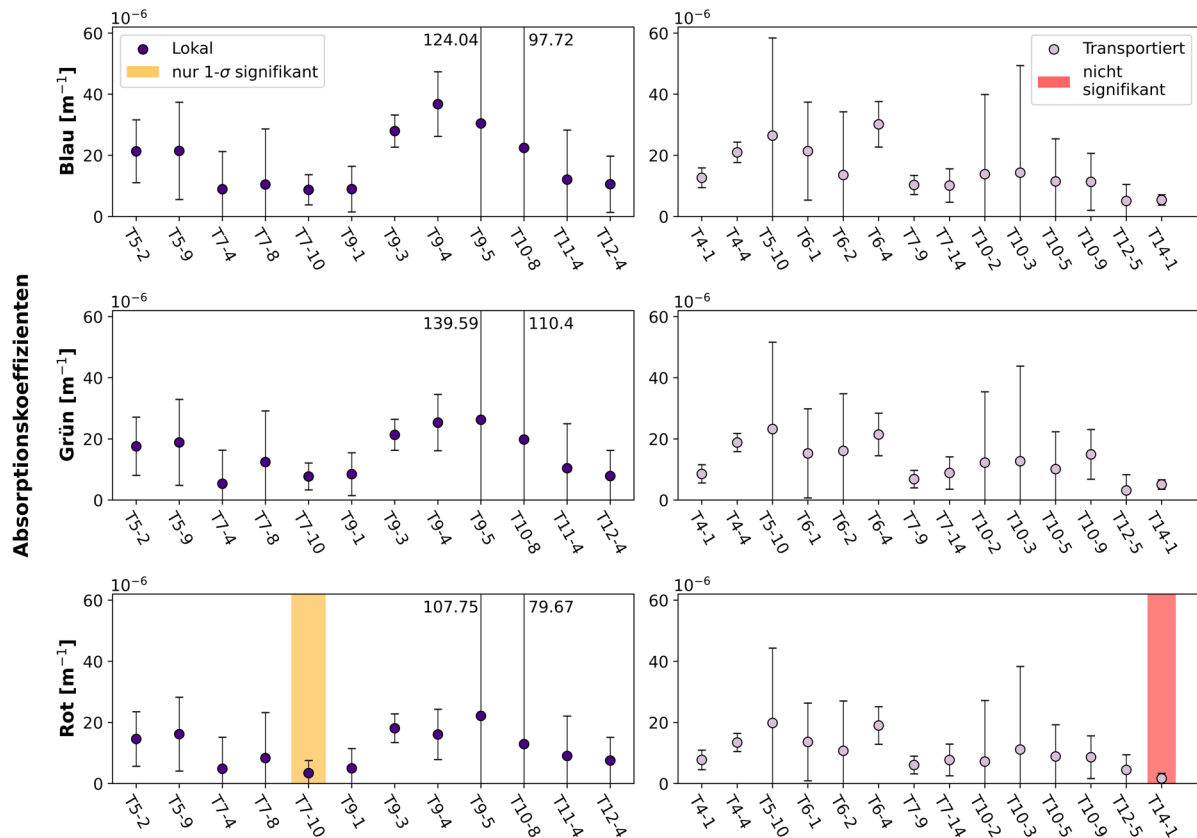


Abbildung 51: Die korrigierten Absorptionskoeffizienten der blauen Wellenlänge in der ersten Zeile, der grünen Wellenlänge in der mittleren Zeile und der roten Wellenlänge in der unteren Zeile für die Zeitspannen mit lokalen Emissionen in der linken Spalte und mit transportierten Emissionen in der rechten Spalte. Die Fehlerbalken sind die Standardabweichungen der unkorrigierten intern vom PSAP berechneten Absorptionskoeffizienten. Die Enden der Fehlerbalken, welche über die gewählte Skala hinausragen sind durch die Werte neben den entsprechenden Fehlerbalken angegeben. Der vertikale orange Balken zeigt außerdem den Absorptionskoeffizienten an, welcher nur eine 1- σ Signifikanz im Vergleich zur PSAP-Nullmessung aufweist.

Bei der Betrachtung der Absorptions-Ångström-Exponenten für die verschiedenen Emissionstypen in Abbildung 52 sind ebenfalls keine großen Unterschiede ersichtlich. Die Mittelwerte liegen meist in der von Bond et al. (2013) klassifizierten Regionen für Black Carbon (BC). Bei den lokalen Emissionen liegt ein Werte aber auch klar im Wertebereich, in welchem Staub der dominierende Aerosoltyp wäre. Es gibt jedoch auch bei beiden Emissionstypen Werte des Absorptions-Ångström-Exponenten, die unterhalb des Bereichs liegen, welcher für BC charakteristisch wäre, und welcher nach Bond et al. (2013) für keinen bestimmten Aerosoltyp definiert ist.

Auch bei der Mass Absorption Cross Section (MAC) in Abbildung 53 variieren die Werte der lokalen und transportierten Emissionen in ähnlichen Wertebereichen zwischen $15 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ und $37 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$, sodass kein Unterschied feststellbar ist. Insgesamt sind die MAC an der Westküste von Taiwan jedoch im Durchschnitt höher, als die von der Beprobung der Abgasfahne von Manila.

Eine Unterscheidung der Luftmassen zwischen lokalen und transportierten Emissionen mit Hilfe der Messungen von AMETYST scheinen anhand dieser Ergebnisse nicht vollständig aufzulösen zu sein.

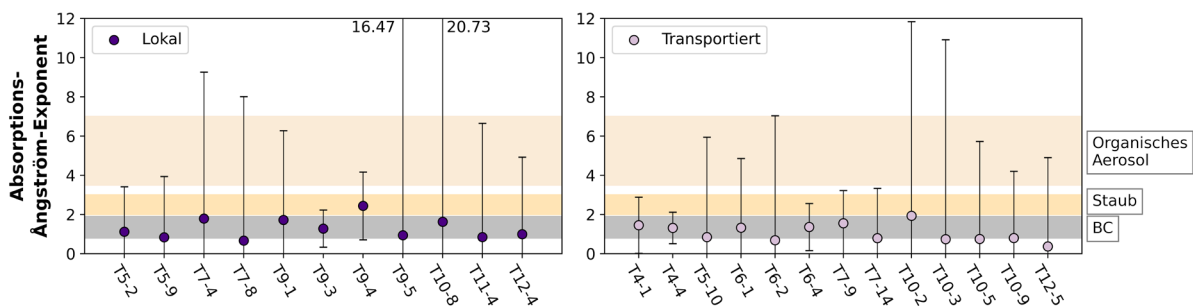


Abbildung 52: Absorptions-Ängström-Exponenten der Zeitspannen mit lokalen Emissionen im linken Graphen und mit transportierten Emissionen im rechten Graphen. Die Fehlerbalken ergeben sich aus der Gaußschen Fehlerfortpflanzung und die Enden der Fehlerbalken, welche über die Skala hinausragen, sind durch die Werte neben den entsprechenden Fehlerbalken gekennzeichnet. Die Einteilung in Organisches Aerosol, Staub und Black Carbon ist wie in Abbildung 46 aus Bond et al. (2013) entnommen.

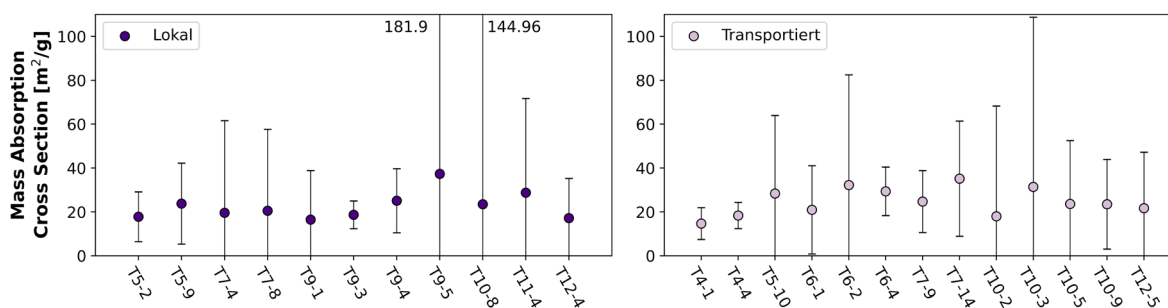


Abbildung 53: Die Mass Absorption Cross Section (MAC) der Zeitspannen mit klassifizierten lokalen Emissionen im linken Graphen und transportierten Emissionen im rechten Graphen. Die Fehlerbalken wurden auch hier durch eine Gaußsche Fehlerfortpflanzung bestimmt und die Enden der Fehlerbalken, welche über die Skala hinausragen, wird auch hier durch die Werte neben den entsprechenden Fehlerbalken gekennzeichnet.

3.2.2 Alterung

Zur Betrachtung des Alters der Aerosolpartikel, welche an der Westküste Taiwans vermessen wurden, wird das Verhältnis von f_{44}/f_{43} , gemessen mit dem Massenspektrometer des MPICs, herangezogen. Dieses setzt sich zusammen aus den Massen-Ladung Verhältnissen m/z 44 und m/z 43, welche dann jeweils ins Verhältnis zu dem organischen Gesamtsignal des Massenspektrometers gesetzt werden (Ng et al. 2010). Anhand dieses Verhältnisses ist es dann möglich eine Aussage bezüglich der Alterung der vermessenen Aerosolpartikel auf einer chemischen Zeitskala zu treffen. Je niedriger das Verhältnis von f_{44}/f_{43} , desto jünger sind die vermessenen Aerosolpartikel (Ng et al. 2010; Schulz et al. 2018).

Anhand dieses Verhältnisses ergibt sich auch der Grund, warum eine Unterscheidung der lokalen und transportierten Emissionen mithilfe der mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften nicht möglich ist. Denn bei der Betrachtung der einzelnen Größenverteilungen der lokalen und transportierten Emissionen, welche mit dem entsprechenden Wert von f_{44}/f_{43} farbcodiert wurden und in Abbildung 54 dargestellt sind, ist zu erkennen, dass einige der transportierten Emissionen jünger sind, als manche der

lokalen Emissionen. Die lokale Verweildauer einer Luftmasse kann somit länger sein als erwartet, sodass die transportierten Emissionen teilweise jünger waren. Dies führt zu der Schlussfolgerung, dass die zugrunde gelegte Annahme, dass transportierte Emissionen stets älter sind und sich deswegen aufgrund der stattgefundenen Alterungsprozesse auf dem Transport von den jüngeren lokalen Emissionen unterscheiden sollte, falsch ist. Auch wenn generell eine Tendenz für jüngere lokale und ältere transportierte Luftmassen in Abbildung 54 abzulesen ist.

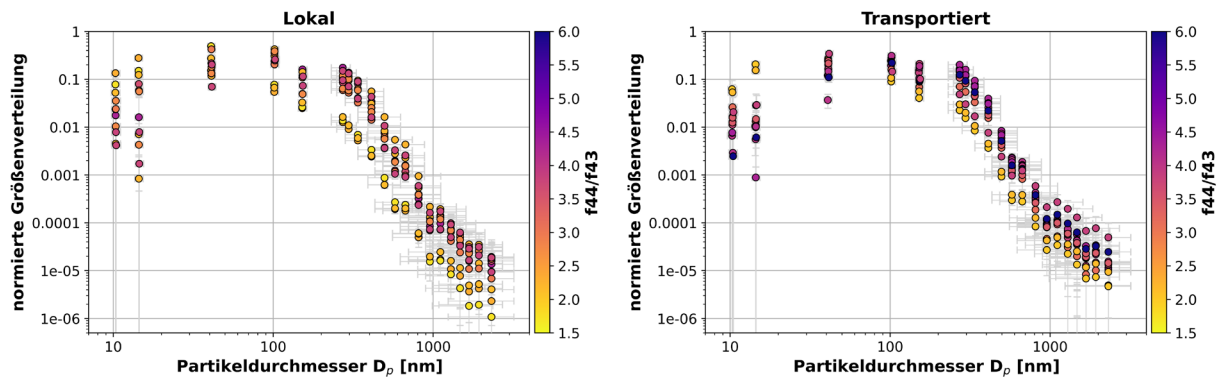


Abbildung 54: Die Größenverteilungen der lokalen Emissionen (linker Graph) und der transportierten Emissionen (rechter Graph) farbcodiert mit dem Verhältnis von f_{44}/f_{43} .

Wird nun die Schnittmenge der lokalen und transportierten Emissionen in Hinsicht auf den Alterungstracer f_{44}/f_{43} vernachlässigt und nur noch die jüngsten lokalen und ältesten transportierten Größenverteilungen miteinander verglichen, ergibt sich Abbildung 55.

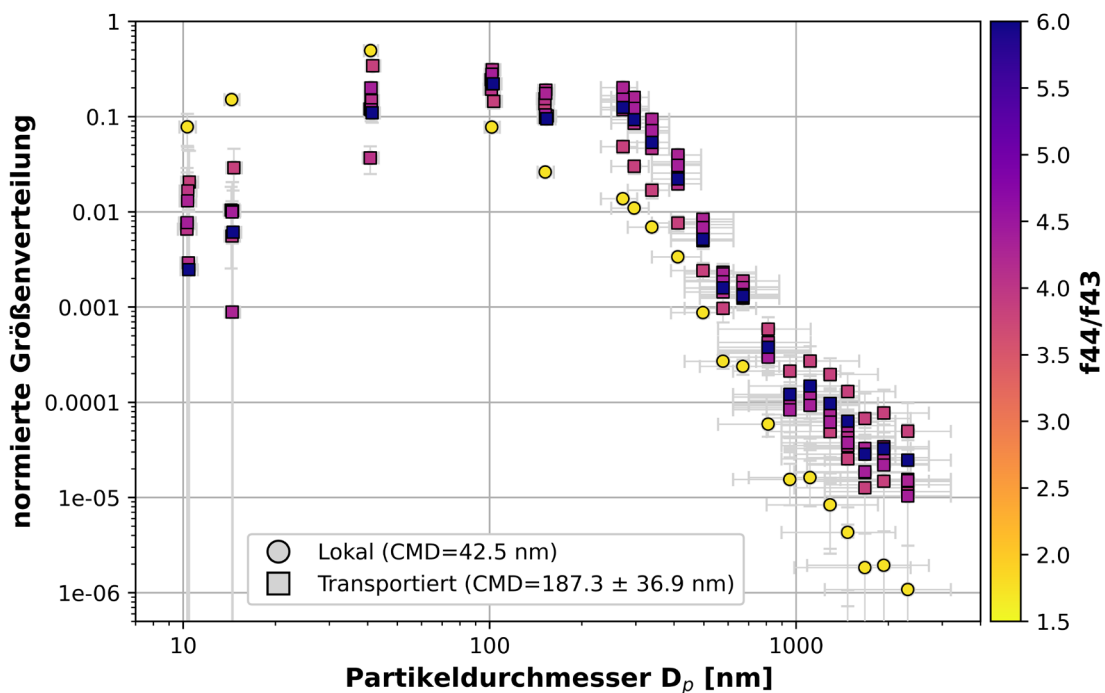


Abbildung 55: Größenverteilungen der lokalen und transportierten Emissionen unter Vernachlässigung der Schnittmenge im Verhältnis von f_{44}/f_{43} , sodass nur die Größenverteilungen der jüngsten lokalen und ältesten transportierten Luftmassen dargestellt werden.

Durch die Vernachlässigung der Schnittmenge in Bezug auf das Verhältnis f_{44}/f_{43} verbleiben eine lokale Luftmasse, die jünger ist als die jüngste transportierte, und acht transportierte, die älter sind als die ältesten lokalen Emissionen. Beim Vergleich der Größenverteilung von der jungen lokalen Emission mit denen der alten transportierten Emissionen, fällt auf, dass die Alterungsprozesse mit Hilfe des AMETYST gut wiedergegeben werden können. So liegen die normierten Konzentrationen der jungen lokalen Luftmasse vor allem in den Größenkanälen von 10 nm und 14 nm mehr als eine Größenordnung oberhalb der Konzentrationen der alten transportierten Emissionen. Bei den Größenkanälen ab einem Partikeldurchmesser von 100 nm weisen jedoch die alten transportierten Emissionen eine höhere normierte Konzentration als die junge lokale Luftmasse auf, wobei die größten Unterschiede bei den Größenkanälen über 1 μm auszumachen sind, wo der Unterschied auch mehr als eine Größenordnung betragen kann. Es ist also eine klare Verschiebung hin zu größeren Partikeldurchmessern auszumachen, die vor allem durch die Alterungsprozess der Koagulation und Kondensation verursacht werden. So liegt auch der Count Median Diameter (CMD) der jungen Luftmasse bei 42.5 nm, während die transportierten Emissionen im Mittel ein CMD von 187.2 nm aufweisen.

4 Diskussion

4.1 Datenqualität der Absorptionskoeffizienten

Wegen der großen Fehlerbalken bei den Absorptionskoeffizienten, welche mit dem PSAP gemessen wurden, ist es sinnvoll die Datenqualität der Absorptionskoeffizienten für die verschiedenen Wellenlängen abzuschätzen. Dafür wurden von allen untersuchten Zeitspannen die Absorptionskoeffizienten gegen die Black Carbon (BC) Massenkonzentration, welche von einem SP2 vom MPIC gemessen wurde, wie in Abbildung 56 ersichtlich, aufgetragen.

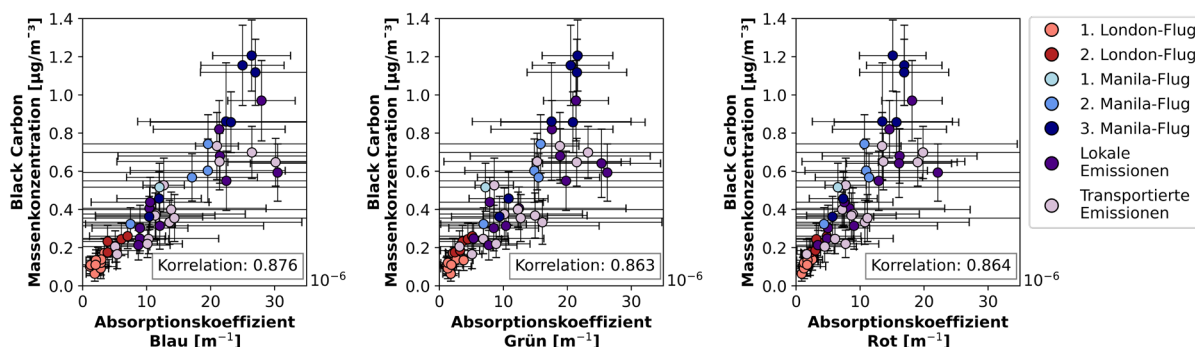


Abbildung 56: Die Absorptionskoeffizienten der verschiedenen Wellenlängen gegen die Black Carbon Massenkonzentration aufgetragen. Die Fehlerbalken entsprechen den jeweiligen Standardabweichungen und die Farben der Datenpunkte stimmen mit den verschiedenen Flügen von London und Manila und den lokalen und transportierten Emissionen der vorherigen Abbildungen überein.

Anhand dieser Korrelationsplots, lässt sich die Aussage treffen, dass die korrigierten Absorptionskoeffizienten gut mit den BC-Massenkonzentrationen einhergehen, da Korrelationen von über 0,86 bei egal welcher Wellenlänge erreicht werden konnten. Die Datenqualität der Absorptionskoeffizienten ist daher ausreichend, um diese als Grundlage für Vergleiche heranzuziehen. Aufgrund der großen Fehlerbalken ist es jedoch sinnvoll in Zukunft ein anderes Gerät oder andere Geräteeinstellungen zu verwenden, um die Fehlerbalken möglichst zu verkleinern.

4.2 Unterschiede zwischen London und Manila

Der Unterschied einer europäischen mit einer asiatischen Megacity ist anhand der Größenverteilungen und der unterschiedlichen Absorptionskoeffizienten, welche in Kapitel 3.1.3 beschrieben wurden, klar ersichtlich. So verschiebt sich der Count Median Diameter (CMD) signifikant hin zu größeren Partikeldurchmessern bei der Beprobung der Abgasfahne von Manila im Vergleich zu der von London und auch die Absorptionskoeffizienten sind deutlich erhöht. Mit Hilfe der Daten von anderen EMeRGe-Teilnehmern wird nun zunächst nach der Ursache für diese Verschiebung hin zu größeren Partikeln in der Abgasfahne von Manila gesucht. Dafür wurden die CO-Konzentration, die Black Carbon

Massenkonzentration, die Ozon-Konzentration und das Verhältnis von f_{44}/f_{43} gegen den Count Median Diameter (CMD) in Abbildung 57 aufgetragen.

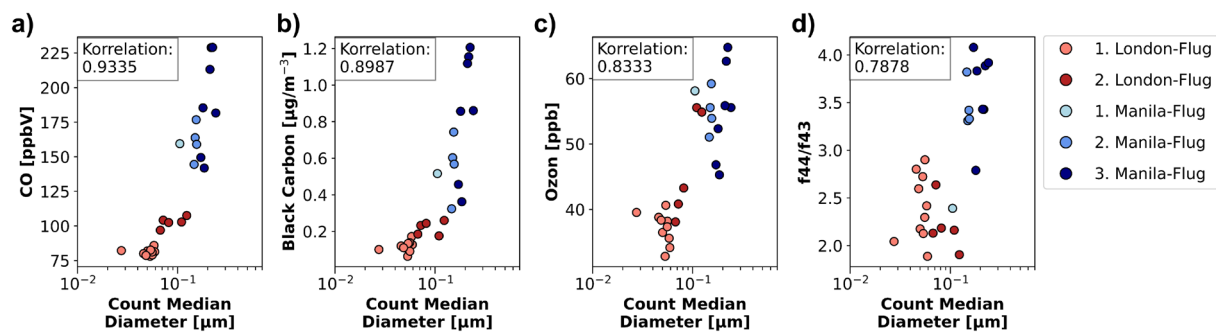


Abbildung 57: Korrelationsplots bei denen die CO-Konzentration (a), die Black Carbon Massenkonzentration (b), die Ozon-Konzentration (c) und das Verhältnis f_{44}/f_{43} (d) gegen den Count Median Diameter aufgetragen sind. Die Farben entsprechen den jeweiligen London und Manila-Flügen und außerdem ist für jeden Parameter die dazugehörige Korrelation mit dem CMD angegeben.

Der erste Parameter, dessen Korrelation mit dem CMD näher betrachtet wurde, ist die CO-Konzentration (Abbildung 57a)). Eine erhöhte CO-Konzentration, wie bei den Manila-Flügen, ist ein Hinweis auf mehr Verbrennungsprozesse, die im Einflussbereich der Aerosolmassen stattfinden, da dies die Hauptquelle von CO ist (Seinfeld und Pandis 2016). In Kombination mit dem zweiten untersuchten Parameter, der Black Carbon Massenkonzentration (Abbildung 57b)), ist auch ersichtlich, dass die Verbrennungen nahe Manila meist unvollständiger waren im Vergleich zu den London-Flügen, sodass mehr Ruß produziert wurde. Dies erklärt auch die erhöhten Absorptionskoeffizienten, welche bei der Beprobung der Abgasfahne von Manila gemessen wurden. Sowohl die erhöhte CO-Konzentration, als auch die erhöhte BC-Massenkonzentration, korreliert mit den größeren CMDs nahe Manila.

Eine Erklärung für die Verschiebung hin zu größeren Partikeldurchmessern nahe Manila im Vergleich zu London könnte daher auf die vermehrten und meist unvollständigeren Verbrennungsprozesse zurückzuführen sein. Denn Rußpartikel agglomerieren oft untereinander und formen so Partikel bis zu einer Größe von einigen Mikrometern, mit denen dann auch Aerosolpartikel mit einem kleineren Durchmesser koagulieren können (Seinfeld und Pandis 2016). Dies führt zu einer geringeren Anzahlkonzentration der kleineren Partikeln und einer größeren Anzahlkonzentration der größeren Partikeln, sodass sich der CMD im Allgemeinen hin zu größeren Partikeldurchmessern verschiebt.

Der dritte Parameter in Abbildung 57c) ist die Ozon-Konzentration, die ebenfalls mit dem CMD korreliert. Eine höhere anthropogene Verschmutzung auf den Philippinen könnte die gemeinsame Ursache für diese Korrelation sein. Denn höhere anthropogene Emissionen haben eine erhöhte Konzentration von troposphärischem Ozon zur Folge (Seinfeld und Pandis 2016). Diese höheren anthropogenen Emissionen sorgen außerdem für mehr Partikel an denen kleinere Aerosolpartikel koagulieren können, sodass sich der CMD hin zu größeren Partikeldurchmessern verschiebt. Die allgemein höhere anthropogene Verschmutzung in Manila im Vergleich zu London, könnte daher ebenfalls eine der Ursachen für die

unterschiedlichen Verläufe in den Größenverteilungen der europäischen und der asiatischen Megacity sein.

Der letzte Parameter, der in Abbildung 57d) als Ursache für die Verschiebung hin zu größeren Partikeldurchmessern bei Manila in Betracht gezogen wurde, ist das Alter der Luftmasse, sodass auch hier das Verhältnis von f_{44}/f_{43} betrachtet wird. Die Abgasfahne von Manila war bei der Beprobung während der EMeRGe-Kampagne meist älter im Vergleich zu der vermessenen Abgasfahne von London. Aus diesem Grund könnte die Annahme getroffen werden, dass die Verschiebung der Größenverteilungen anhand des unterschiedlichen Alters der vermessenen Aerosolpartikel verursacht worden ist. Wird nun jedoch nur ein kleiner Bereich des Verhältnisses von f_{44}/f_{43} betrachtet, kann von einer ähnlichen Alterung der Luftmassen ausgegangen werden. Der ausgewählte Bereich von f_{44}/f_{43} von 2.35 bis 2.8 ist im linken Graphen von Abbildung 58 durch eine graue Schattierung gekennzeichnet. Ansonsten entspricht dieser Graph dem von Abbildung 57d).

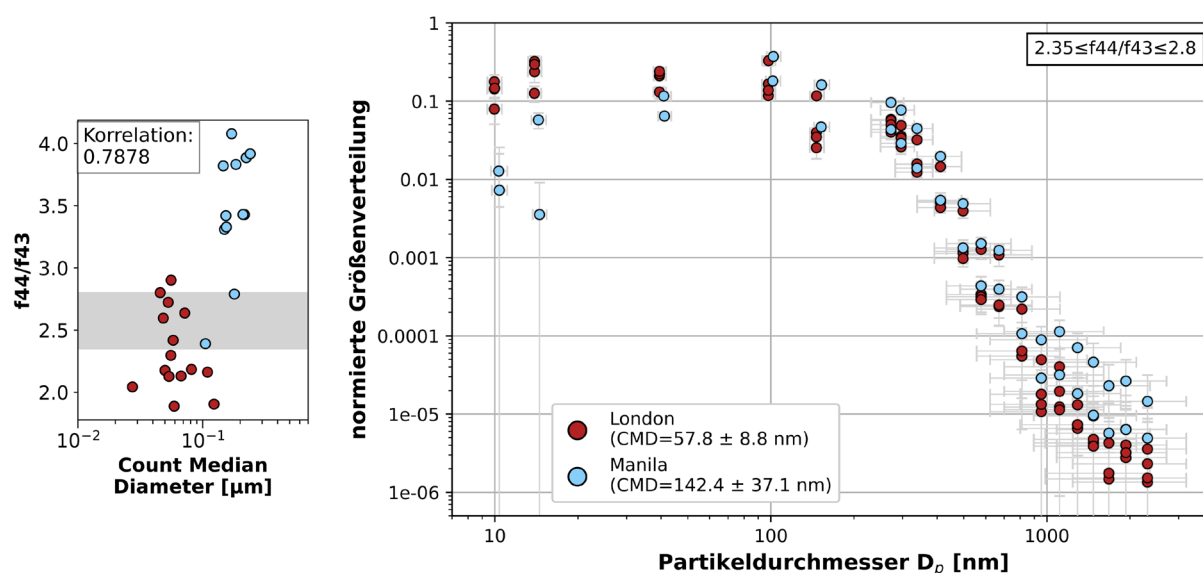


Abbildung 58: Im linken Graph befindet sich der Korrelationsplot vom Count Median Diameter (CMD) gegen das Verhältnis von f_{44}/f_{43} in den Farben der London- und Manila-Flüge. Außerdem ist der Bereich von 2.35 bis 2.8 in grau gekennzeichnet, welcher für den Vergleich der normierten Größenverteilungen bei gleicher Alterung von London und Manila im rechten Graphen herangezogen wurde.

Im rechten Graphen von Abbildung 58 sind die normierten Größenverteilungen der Zeitspannen dargestellt, welche im ausgewählten Bereich des Verhältnisses von f_{44}/f_{43} liegen. Der Unterschied in den Größenverteilungen von der Beprobung der Abgasfahnen von London und Manila ist immer noch erkennbar und auch der CMD ist nahe Manila immer noch signifikant hin zu größeren Partikeldurchmessern verschoben. Durch den Korrelationsplot in Abbildung 57d) konnte zwar der Einfluss der Alterung auf den CMD nachgewiesen werden, jedoch scheint dies nicht der Grund für die signifikante Verschiebung der Größenverteilungen von Manila hin zu größeren Partikeldurchmessern im Vergleich zu London zu sein. Der Grund liegt eher bei den vermehrten Verbrennungen und der allgemein höheren anthropogenen Verschmutzung, welche mit den erhöhten Konzentrationen von CO, Black Carbon und Ozon nachgewiesen wurden.

Ein weiterer möglicher Einfluss auf die Größenverteilungen könnten die meteorologischen Parameter der Temperatur und der Feuchte haben, sodass die unbeeinflusste Außentemperatur von HALO, gemessen mit dem Nasenmast, und das Massenmischungsverhältnis von Wasser betrachtet wurden. Wie sich jedoch herausstellt, liegen die Außentemperaturen alle in einem Bereich zwischen 11 °C und 20 °C, wobei kein Trend bezüglich eines Messgebiets vorliegt. Und auch beim Massenmischungsverhältnis von Wasser unterscheiden sich die beiden Fallstudien nicht signifikant voneinander. Bei der Beprobung der Abgasfahne von London wurde ein Mittelwert von $9.9 \pm 1.0 \text{ g kg}^{-1}$ ermittelt, wohingegen er für die Abgasfahne von Manila bei $10.3 \pm 1.5 \text{ g kg}^{-1}$ lag. Die meteorologischen Parameter der Temperatur und der Feuchte scheinen bei den hier vorgestellten Ergebnissen somit keinen Einfluss auf die Messungen mit AMETYST und die Größenverteilungen im Allgemeinen zu haben. Stattdessen ist aufgrund deren Unabhängigkeit eine gute Vergleichbarkeit zwischen den beiden Fallstudien von London und Manila gegeben.

4.3 Einfluss von Hintergrundaerosolen

4.3.1 Biomass Burning nahe Manila

Die vermehrten Verbrennungsprozesse nahe Manila, welche anhand der Korrelationsplots von CO und BC in Abbildung 57a) und b) ersichtlich wurden, könnten zum Teil auch auf den erhöhten Einfluss von Biomass Burning in Asien zurückzuführen sein. Dieser wurde schon durch die Feuerkarten für die gesamten Kampagnenabschnitte in Abbildung 7 offensichtlich. Für die einzelnen Manila-Flüge wurden nun zur Kontrolle des Einflusses von Biomass Burning die Feuerkarten der einzelnen Flugtage und dem jeweiligen Vortag überprüft. Dies ist in Abbildung 59 dargestellt. Aufgrund der an diesen Tagen dokumentierten Feuer ist ein Einfluss von Biomass Burning sehr wahrscheinlich.

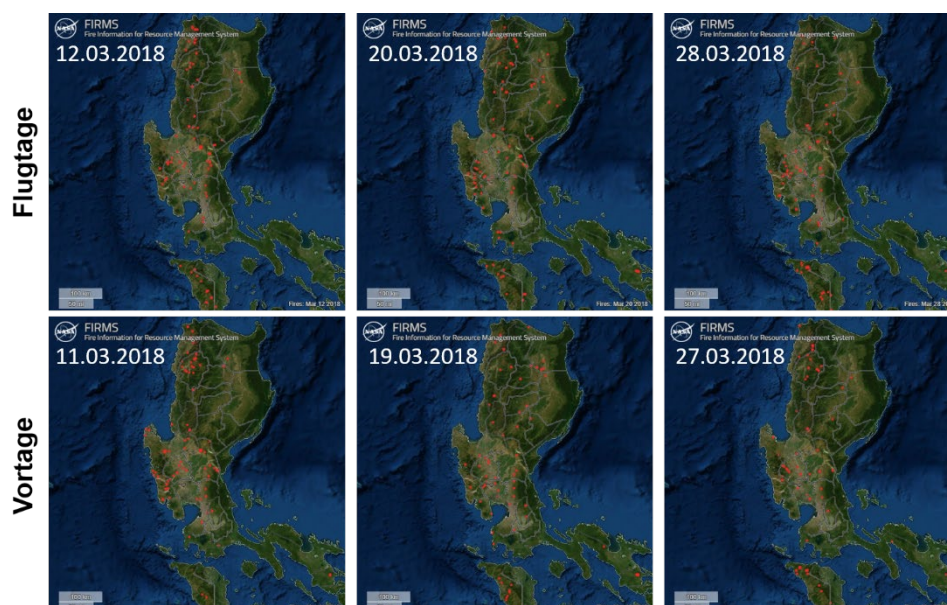


Abbildung 59: Feuerkarten der einzelnen Flugtage der Manila-Flüge in der ersten Zeile und deren Vortage in der zweiten Zeile (FIRMS - Fire Information for Resource Management System 2022).

Mithilfe der Klassifizierung über das Vorhandensein von Acetonitril (ACN) kann der Einfluss von Biomass Burning ebenfalls nachgewiesen werden (Andrés Hernández et al. 2022; Förster et al. 2022). Genau wie eine Aussage bezüglich des Einflusses von anthropogenen Emissionen durch die Klassifizierung über das Vorhandensein von Benzol (BEN) getätigt werden kann. Die sekundlich aufgetragenen Werte von ACN und BEN können bei diesen Klassifizierungen entweder einen Wert von 1 annehmen, wenn Benzol und Acetonitril vorhanden sind, oder 0, wenn die Messungen unterhalb des Detektionslimits liegen. Da die Werte teilweise während der untersuchten Zeitspannen von London und Manila wechselten, wurden die Mittelwerte von ACN und BEN über die einzelnen Zeitspannen genutzt um die Mittelwerte für die kompletten Fallstudien zur Beprobung der Abgasfahnen von London und Manila zu berechnen. Dabei ist anzumerken, dass für den ersten London-Flug keine Daten vorliegen. Da bei der Beprobung der Abgasfahne von Manila die ACN-Klassifizierung bei 0.82 liegt, kann der Einfluss von Biomass Burning, welcher anhand der Feuerkarten in Abbildung 59 schon vermutet wurde, bestätigt werden. Ebenso wie die Abwesenheit von Biomass Burning bei den London-Flügen, da die ACN-Klassifizierung hier 0 beträgt. Der Einfluss von anthropogenen Emissionen kann bei beiden Fallstudien aufgrund der hohen Werte bei der BEN-Klassifizierung bestätigt werden. Für London lag diese bei 0.7 und für Manila bei 1.

4.3.2 Sonstige Einflüsse nahe London

Mit Hinblick auf die Einordnung der hier vorgestellten Ergebnisse in die Literatur, welche in Kapitel 4.5 vorgestellt wird, wurden die Größenverteilungen von der Beprobung der Abgasfahne von London und Manila für alle Flüge, außer dem ersten Manila-Flug, als Boxplots mit einer linearen y-Achse aufgetragen (Abbildung 60). Da der erste Manila-Flug nur eine Zeitspanne umfasst, ist eine Darstellung der Größenverteilung als Boxplot nicht möglich. Stattdessen wurden hierfür die einzelnen Datenpunkte in den verschiedenen Größenkanälen mit den entsprechenden Fehlerbalken aufgetragen.

Diese zusätzliche Darstellung der Größenverteilungen ist für die Einordnung in die Literatur sinnvoll, da veröffentlichte Größenverteilungen teilweise mit einer solch linearen y-Achse dargestellt werden. Dabei liegt der Fokus klar auf dem Maximum der Größenverteilungen, während die Konzentrationen der größeren Partikeldurchmesser nicht mehr gut genug aufgelöst sind um sie miteinander vergleichen zu können. Auch ist in der Literatur oft kein Count Median Diameter (CMD) angegeben, sodass ein Vergleich der Maxima eine gute Grundlage zur Einordnung zu bereits veröffentlichten Messungen ist.

Anhand der Abbildung 60 wird nun aber auch ersichtlich, dass es nicht nur den Unterschied in den Maxima zwischen London und Manila gibt, sondern auch innerhalb der verschiedenen London-Flüge selbst. Im Gegensatz zu der logarithmischen Darstellung der einzelnen Größenverteilungen in Abbildung 43, ist dieser Unterschied durch die lineare Darstellung nun besser erkennbar.

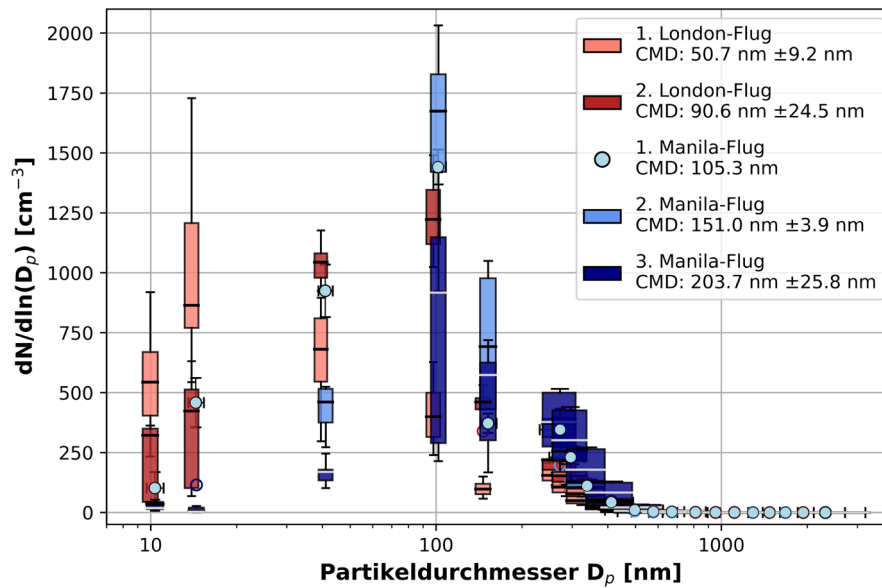


Abbildung 60: Boxplots aus den Größenverteilungen der einzelnen Flüge dargestellt mit einer linearen y-Achse.

Während die Maxima der verschiedenen Manila-Flüge stets im Größenkanal von 100 nm zu verzeichnen sind, unterscheidet sich die Lage der Maxima bei den London-Flügen. So ist das Maximum des ersten London-Flugs im Größenkanal von 14 nm zu finden, wohingegen es beim zweiten London-Flug ebenfalls im Größenkanal von 100 nm liegt. Wird der CMD für die beiden London-Flüge betrachtet so ist auch hier eine signifikante Verschiebung hin zu einem größeren Partikeldurchmesser beim zweiten London-Flug erkennbar, welcher sich nicht mehr signifikant von dem CMD des ersten Manila-Flugs unterscheidet.

Anhand der vorigen Diskussion in Kapitel 4.2 geht hervor, dass die signifikante Verschiebung des zweiten London-Flugs hin zu größeren Partikeldurchmessern im Vergleich zum ersten London-Flug nicht durch einen der bereits oben diskutierten Parameter maßgeblich verursacht worden zu sein scheint. Denn auch wenn die CO-Konzentration beim zweiten London-Flug im Gegensatz zum ersten Flug erhöht ist, ist der Unterschied zwischen den beiden London-Flügen gering im Vergleich zu den Manila-Flügen und vor allem zum ersten Manila-Flug, welcher einen ähnlichen CMD wie der zweite London-Flug aufweist. Da die Temperatur und die Feuchte beide etwas niedriger beim zweiten London-Flug waren, ist die Verschiebung auch nicht aufgrund von gequollenen Partikeln erklärbar. Es scheint daher einen anderen Parameter zu geben, der für die Verschiebung des CMDs beim zweiten London-Flug verantwortlich ist.

Da dieser zweite London-Flug, im Gegensatz zum ersten London-Flug, über der Nordsee stattfand, liegt es nahe, dass die Messungen eventuell von Aerosolemissionen der dortigen Bohrinseln beeinflusst wurden. Da Bohrinseln neben Aerosolpartikeln auch Methan emittieren und keine anderen natürlichen Methanquellen in der Umgebung vorliegen, wird Methan als Tracer für den Einfluss der Bohrinseln auf die Luftmassen verwendet. Die Korrelation von Methan mit dem CMD wurde daher näher untersucht und in Abbildung 61 dargestellt. Außerdem sind in der Karte von Abbildung 61 die Bohrinseln in der Nordsee neben den Markierungen der Messstandorte eingezeichnet.

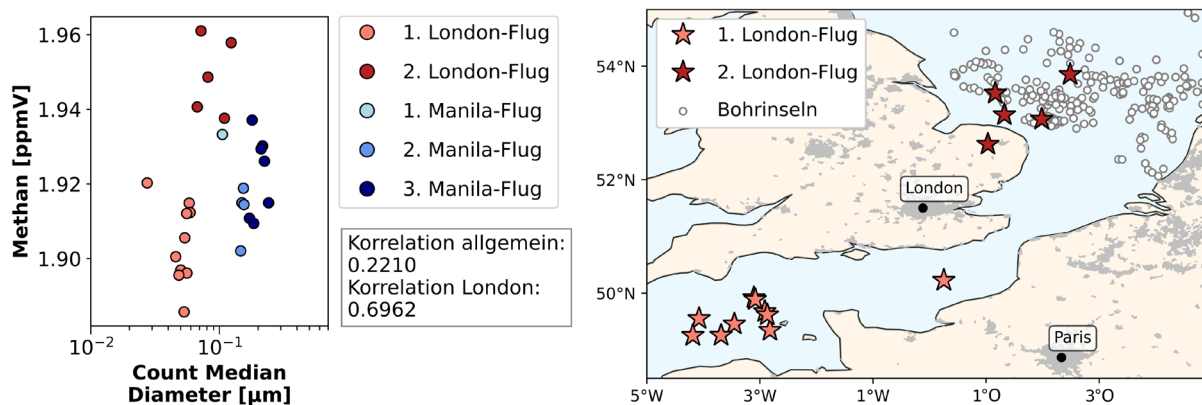


Abbildung 61: Im rechten Graphen der Korrelationsplot vom CMD mit der Methan-Konzentration und in der Karte links die Standorte der Bohrinseln in der Nordsee neben den markierten Messstandorten der ausgewerteten Zeitspannen der beiden London-Flüge.

Wie anhand des Korrelationsplot zu erkennen ist, sind die Methan-Konzentrationen in den ausgewerteten Zeitspannen beim zweiten London-Flug im Gegensatz zum ersten klar erhöht.

Obwohl stets oberhalb der Grenzschicht geflogen wurde, scheint ein möglicher Einfluss der Bohrinseln anhand der Methan-Korrelation auf den ersten Blick also möglich zu sein, da dies eventuell durch Änderungen der planetaren Grenzschichthöhe an den vorangegangenen Tagen verursacht worden sein könnte. Wird jedoch der zeitliche Verlauf der Methan-Konzentration auf dem zweiten London-Flug betrachtet, welche auf einer Karte im Übersichtspaper von EMERGe-Europa von Andrés Hernández et al. (2022) dargestellt wird, ist kein Unterschied zwischen dem Ab- und Zufluss der Bohrinseln erkennbar. Dies würde darauf schließen, dass der Methan-Einfluss nicht von den Bohrinseln verursacht wurde, sondern von einer anderen bisher unbekanntem Quelle, deren Aerosolemissionen dann auch die Größenverteilungen des zweiten London-Flugs beeinflusst haben, sodass die Verschiebung hin zu größeren Partikeldurchmessern stattfand. Da die Erhöhungen in der Methan-Konzentration beim zweiten London-Flug zeitlich mit den Anstiegen der Gesamtanzahlkonzentration der Aerosolpartikel übereinstimmen, könnte die mögliche Quelle auch innerhalb der Megacity zu finden sein. Dagegen spricht, dass beim ersten London-Flug keine erhöhten Methan-Konzentrationen in den untersuchten Zeitspannen festgestellt wurden.

Fest steht, dass es beim zweiten London-Flug eine Quelle gibt, die Methan emittiert und deren Aerosolemissionen der vermeintliche Grund für die Verschiebung hin zu größeren Partikeldurchmessern ist.

4.4 Hintergrundmessungen von Manila

Durch den Unterschied in den mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften bei der Beprobung der Megacities von London und Manila ergibt sich die Frage, ob dieser Unterschied nur für die Megacities gilt oder aber auch für die umliegenden Regionen. Denn da Aerosole, wie schon zu Beginn dieser Arbeit in Abbildung 1 zu sehen, losgelöst von den Quellen sein können, können

die Verschmutzungsaerosole der Stadt auch die umliegenden Regionen beeinflussen oder von diesen selbst beeinflusst werden.

Um zu eruieren, inwiefern die gemessenen Größenverteilungen charakteristisch für die Megacitys sind, wurden von Manila auch Hintergrundmessungen ausgewertet, da dort, wie bereits in Kapitel 3.1.2 beschrieben, beim zweiten und dritten Manila-Flug auch die Ostküste der Philippinen und somit der Zufluss von Manila beprobt wurde. Für London war die Möglichkeit zur Beprobung des Zuflusses nicht gegeben.

Die Messstandorte der insgesamt vier ausgewerteten Zeitspannen, welche die Zuflüsse von Manila beproben, sind zusammen mit denen, welche die Abgasfahne von Manila beproben, in Abbildung 62 aufgeführt.

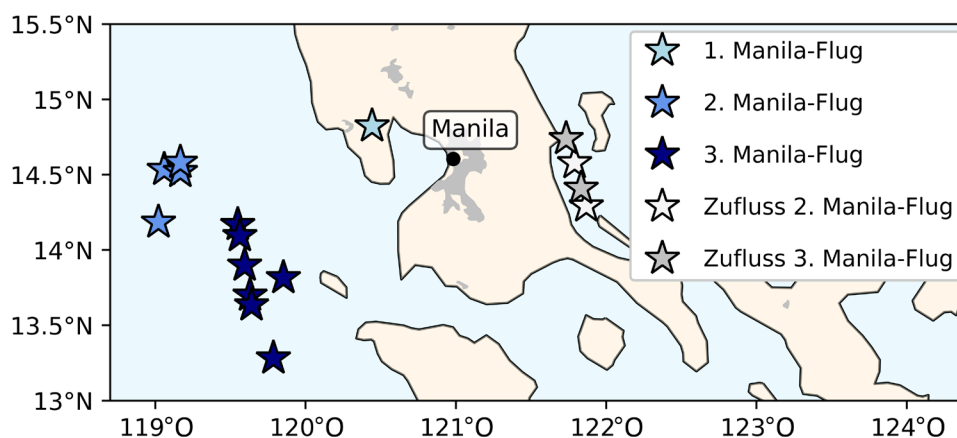


Abbildung 62: Messstandorte von der Beprobung der Zuflüsse von Manila, gekennzeichnet durch die grauen Sterne, und von der Beprobung der Abgasfahne von Manila, gekennzeichnet durch die blauen Sterne.

Die von Manila unabhängige Herkunft der Zuflüsse wurde mittels HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien für jede Sekunde der ausgesuchten Zeitspannen kontrolliert und sind in Anhang 6.2 näher beschrieben.

Die Gesamtanzahlkonzentrationen der vier ausgewerteten Zeitspannen liegen im Mittel bei nur $663.6 \pm 178.3 \text{ cm}^{-3}$ und sind damit fast sechs Mal niedriger als der Durchschnitt bei der Beprobung der Abgasfahne von Manila mit 3457.70 cm^{-3} . Die genaue Aufschlüsselung der Gesamtanzahlkonzentrationen für die einzelnen Zeitspannen der Zuflüsse von Manila ist zusammen mit denen von der Beprobung der Abgasfahnen von London und Manila in Tabelle 11 in Anhang 6.4.1 aufgeführt.

Aufgrund der unterschiedlichen Gesamtanzahlkonzentrationen bei den Zuflüssen und der Abgasfahne von Manila, wurden die Größenverteilungen jeweils mit den dazugehörigen Gesamtanzahlkonzentrationen normiert, sodass ein besserer Vergleich möglich ist. Die so resultierenden normierten Größenverteilungen für die Zuflüsse von Manila und für die Abgasfahne von Manila sind in Abbildung 63 dargestellt. Die Verläufe der verschiedenen Größenverteilungen sind sehr ähnlich zueinander. Meist liegen die Konzentrationen der Zuflüsse in den verschiedenen Größenkanälen innerhalb der Spannweite, welche durch die

Konzentrationen der Abgasfahnen abgedeckt sind. Nur bei den Größenkanälen ab $1\ \mu\text{m}$ ist ein Unterschied zwischen den Größenverteilungen der Zuflüsse und denen von der Abgasfahne erkennbar. Dort sind die Konzentrationen vom Zufluss des dritten Manila-Flugs höher, als die von allen anderen ausgewerteten Zeitspannen, egal ob von der Abgasfahne oder vom Zufluss des zweiten Manila-Flugs. Anhand der Rückwärtstrajektorien könnte es sich um eine gequollene Mode handeln, da die Luftmassen zuvor lange Zeit sehr niedrig über den Ozean gezogen sind.

Der Count Median Diameter (CMD) der Zuflüsse von Manila unterscheidet sich mit $159.7 \pm 35.6\ \text{nm}$ ebenfalls nicht signifikant von dem CMD der Abgasfahne ($177.8 \pm 39.2\ \text{nm}$). Dies lässt den Rückschluss zu, dass der Verlauf der Größenverteilung nicht nur charakteristisch für die Megacity selbst zu sein scheint, sondern auch für die ganze Region. Eventuell, weil die Größenverteilungen der Region im Hintergrund doch von den Abgasfahnen der Megacitys beeinflusst werden.

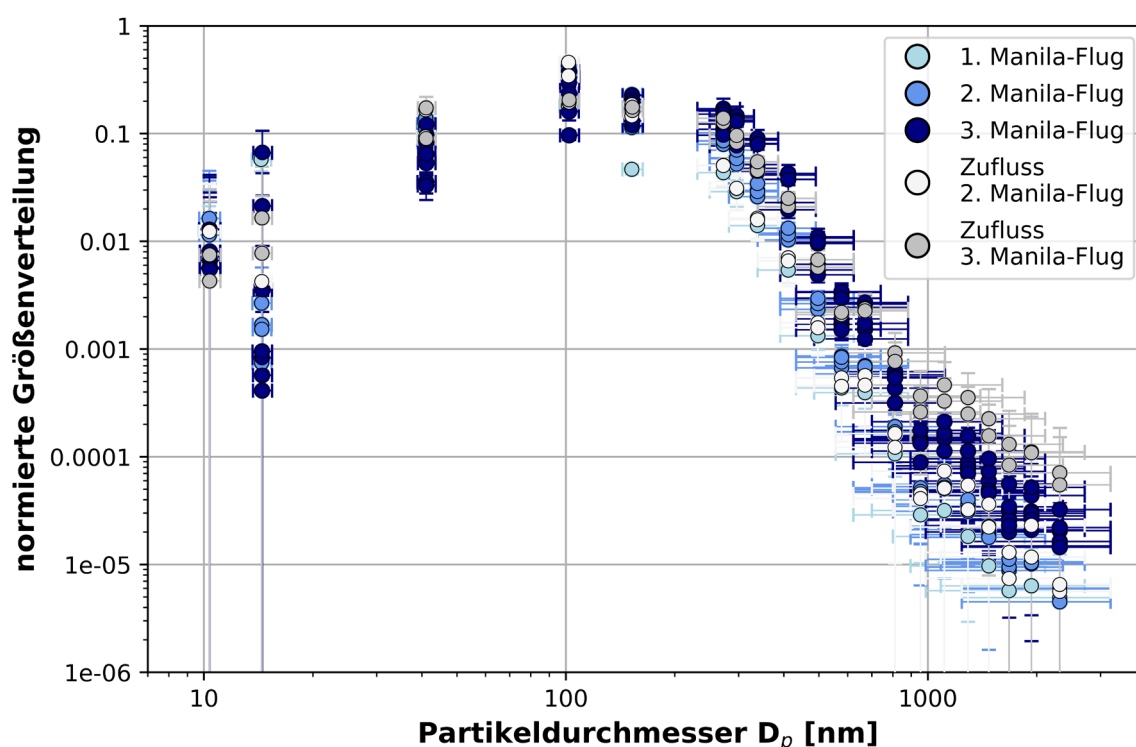


Abbildung 63: Normierte Größenverteilungen der einzelnen Zeitspannen von den Zuflüssen von Manila und derer von der Beprobung der Abgasfahne von Manila. Der Fehlerbalken in x-Richtung kennzeichnet die Kanalbreite und der in y-Richtung die normierte Standardabweichung über die Zeitspanne hinweg. Die Größenverteilungen, welche die Abgasfahne von Manila beprobt haben, sind jeweils in den zuvor verwendeten Blautönen der einzelnen Flüge dargestellt und die Hintergrundmessungen in den Grautönen mit denen sie auch auf der Karte in Abbildung 62 dargestellt wurden.

Aufgrund der niedrigen Gesamtanzahlkonzentration bei den Zuflüssen von Manila ist die Massenkonzentration von Black Carbon auch sehr viel niedriger als bei den Zeitspannen, welche die Abgasfahne von Manila beprobt haben. Aus diesem Grund sind die Absorptionskoeffizienten, welche aus den PSAP-Messungen bestimmt werden, nicht signifikant oder sogar nicht korrigierbar, da bei der Transmission keine Abnahme innerhalb

der ausgewerteten Zeitspanne zu verzeichnen war. Und auch die Konzentrationen von CO und Ozon sind niedriger als bei der Beprobung der Abgasfahne. Dafür sind die Luftmassen der Hintergrundmessungen anhand ihres Verhältnisses von f_{44}/f_{43} mit Werten oberhalb von 4.2 älter als die von der Abgasfahne von Manila. Werden die Mittelwerte der Klassifizierungen über das Vorhandensein von Acetonitril (ACN) und Benzol (BEN) für die Zuflüsse berechnet, so wurden mit $BEN=0.36$ immer noch schwache anthropogene Emissionen bei den Zuflüssen vermessen, aber mit $ACN=0$ kann der Einfluss von Biomass Burning ausgeschlossen werden oder konnte zumindest aufgrund des Detektionslimits nicht mehr gemessen werden.

Da der Verlauf der normierten Größenverteilungen charakteristisch für die ganze Region zu sein scheint und nicht nur für die Megacity selbst, stellt sich dir Frage wie repräsentativ die Größenverteilungen von Manila für die Region sind. Aus diesem Grund werden die Größenverteilungen mit denen der lokalen und transportierten Emissionen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden, verglichen. Dabei wird anhand des Verhältnisses von f_{44}/f_{43} wieder ein ähnliches Alter der Aerosolmassen berücksichtigt (Abbildung 64).

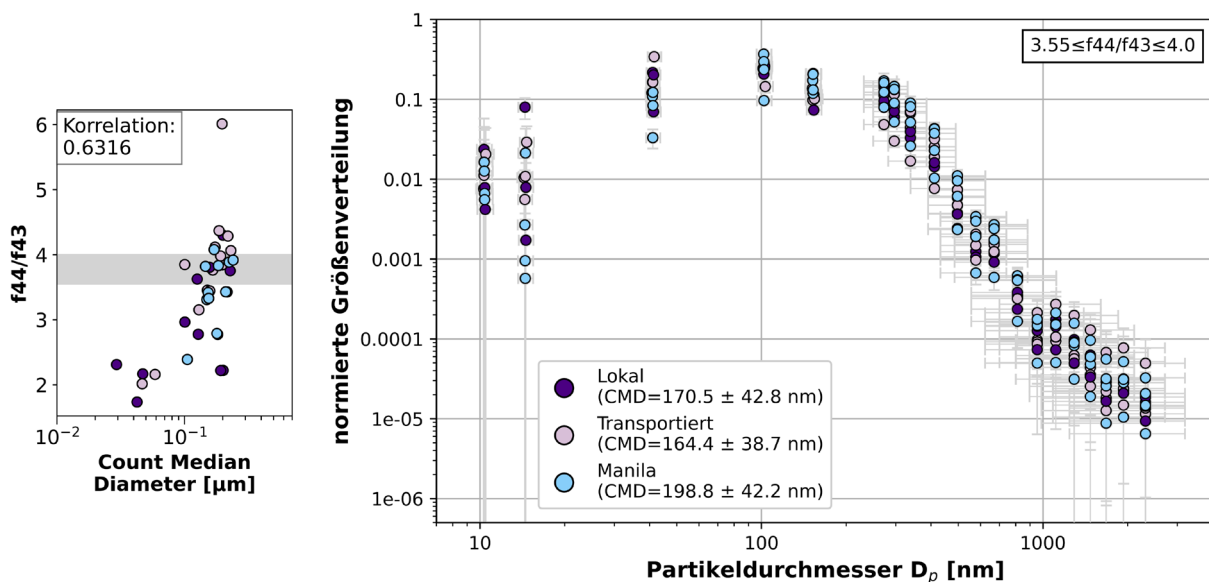


Abbildung 64: Im linken Graph befindet sich der Korrelationsplot vom Count Median Diameter (CMD) gegen das Verhältnis von f_{44}/f_{43} für die Zeitspannen von der Beprobung der Abgasfahne von Manila und den lokalen und transportierten Emissionen von der Westküste von Taiwan. Außerdem ist der Bereich von 3.55 bis 4.0 in grau gekennzeichnet, welcher für den Vergleich der normierten Größenverteilungen bei gleicher Alterung im rechten Graphen herangezogen wurde.

Trotz unterschiedlicher Messstrategien bei der Beprobung der Abgasfahne von Manila und den Messungen der lokalen und transportierten Emissionen an der Westküste von Taiwan sind die Größenverteilungen, wie in Abbildung 64 dargestellt, sehr ähnlich zueinander, sodass sich die CMDs nicht signifikant voneinander unterscheiden.

Die Annahme, dass der Verlauf der Größenverteilung nicht nur charakteristisch für die Megacity Manila ist, sondern für die gesamte Region um Taiwan und die Philippinen herum, kann somit bestätigt werden. Dies lässt vermuten, dass die Größenverteilung von der

Beprobung der Abgasfahne von London ebenfalls nicht nur charakteristisch für die Megacity selbst ist, sondern auch für eine größere Region, eventuell sogar für ganz Europa. Dies legt Wu und Boor (2021) nahe, welche weltweite Größenverteilungen von Bodenmessstationen zusammengetragen und regionsabhängig verglichen haben. Deren Ergebnis zum Vergleich der Größenverteilungen von Europa mit Asien spiegelt sich auch in den hier diskutierten Ergebnissen wieder, da sich auch bei Wu und Boor (2021) die Größenverteilungen gemessen in Ostasien und auch in der zusammengefassten Region von Zentral-, Süd- und Südostasien im Vergleich zu denen von Europa hin zu größeren Partikeldurchmessern verschieben. Nach deren Einteilung umfasst Ostasien Messungen aus China, Korea, Japan und Taiwan und Zentral-, Süd- und Südostasien besteht aus den Messungen von Pakistan, Indien, Vietnam und Singapur.

Vergleich von London und Taiwan

Anhand des Korrelationsplots in Abbildung 64 ist zu erkennen, dass die vermessenen Luftmassen an der Westküste von Taiwan teils sehr niedrige Werte des Verhältnisses f_{44}/f_{43} aufweisen, welche mit denen der London-Flüge vergleichbar sind. Aus diesem Grund wurden die Größenverteilungen von London und Taiwan im Bereich von 1.7 bis 2.2 für das Verhältnis von f_{44}/f_{43} noch einmal gesondert betrachtet (Abbildung 65).

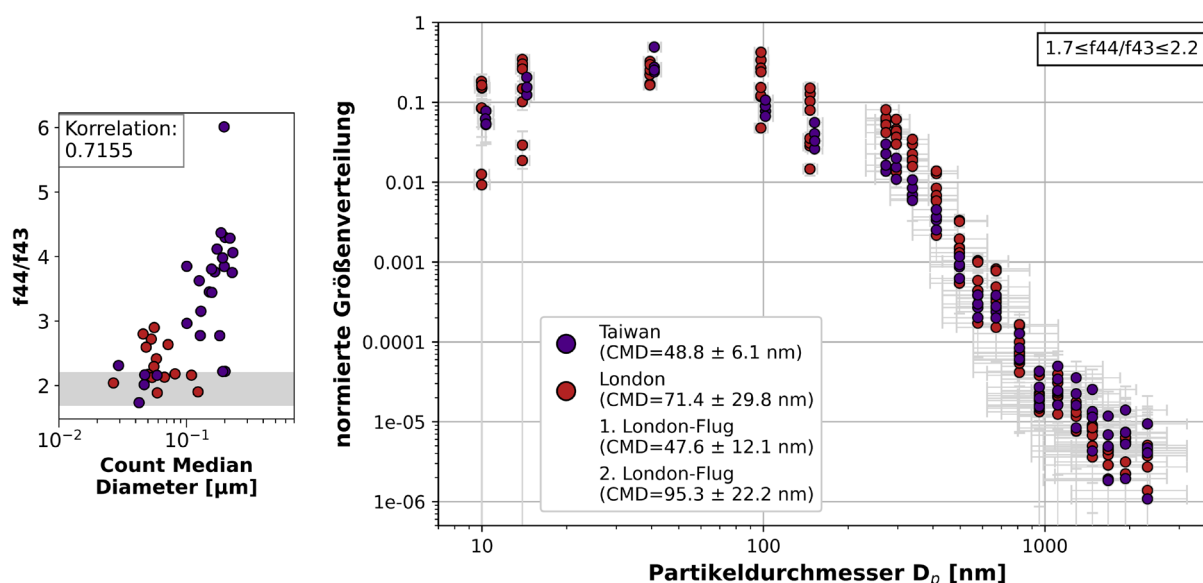


Abbildung 65: Der Korrelationsplot vom Count Median Diameter gegen das Verhältnis von f_{44}/f_{43} für die Zeitspannen von London und Taiwan befindet sich im linken Graphen, bei dem außerdem der Bereich von 1.7 bis 2.2 in grau gekennzeichnet ist. Die Größenverteilungen, welche in diesen Bereich fallen, werden im rechten Graphen miteinander verglichen.

Die Größenverteilungen bei diesem niedrigen Verhältnis von f_{44}/f_{43} von Taiwan und London unterscheiden sich nicht signifikant voneinander. Vor allem der CMD von ersten London-Flug ist mit 47.6 nm fast identisch zu dem von Taiwan mit 48.8 nm. Bei sehr jungen

Luftmassen anhand dieses Verhältnisses von f_{44}/f_{43} scheint es also noch keine Unterschiede in den Größenverteilungen der verschiedenen Regionen zu geben.

Da es sich bei dem Verhältnis von f_{44}/f_{43} um eine chemische Zeitskala handelt, ist davon auszugehen, dass diese in Europa aufgrund der verschiedenen Grundvoraussetzungen im Vergleich zu Südostasien anders sein wird. So spielen unter anderem das Vorhandensein von Hydroxyl-Radikalen (OH), die UV-Strahlung, welche entscheidend für die Reaktionsgeschwindigkeit ist, und die Quellen und Senken von organischen Aerosolen eine Rolle (persönliche Mitteilung von Katharina Kaiser (MPIC), 2022). Die Werte dieser chemischen Zeitskala sind für die verschiedenen Kontinente also nicht linear auf einer Zeitskala von Tagen oder Stunden darzustellen. Wie sich diese unterschiedlichen chemischen Zeitskalen von f_{44}/f_{43} auf die Größenverteilungen auswirken, ist in dieser Arbeit nicht auflösbar und bleibt eine offene Frage für die Zukunft.

4.5 Einordnung in die Literatur

Wie schon in Kapitel 1.3 aufgeführt, sind Flugzeugmessungen zur Beprobung von Verschmutzungsaerosolen in den hier untersuchten Messgebieten sehr selten oder nicht vorhanden. Vor allem für London gibt es meist nur Bodenmessungen (Rodriguez et al. 2007; Beddows et al. 2009; Harrison et al. 2011; Harrison et al. 2012), sodass ein Vergleich der Gesamtanzahlkonzentrationen nicht sehr zielführend ist, da die Bodenmessungen näher an der Quelle sind und die Gesamtanzahlkonzentration daher höher ist als bei Flugzeugmessungen in einer Entfernung von über 100 km. Der Verlauf der Größenverteilungen und besonders das Maximum der Verteilung ist daher besser für einen Vergleich geeignet. In der Südost-Region Asiens gab es einige größere Flugmesskampagnen wie TRACE-P (Transport and Chemical Evolution over the Pacific) und ACE-Asia (Asian Pacific Regional Aerosol Characterization Experiment), welche jedoch immer noch in einiger Entfernung zu den hier untersuchten Messgebieten stattfanden (McNaughton et al. 2004; Moore et al. 2004). Eine weitere Flugmesskampagne ist PACE-7 (Pacific Atmospheric Chemistry Experiment), die im Westpazifik stattfand und die vor allem die vertikale Verteilung der Aerosole untersucht hat (Zaizen et al. 2004). Da die hier gezeigten Ergebnisse implizieren, dass die Größenverteilung charakteristisch für die ganze Region in Südostasien zu sein scheint, ist ein Vergleich der Größenverteilungen mit denen von den genannten Kampagnen, auch wenn sie weiter entfernt stattfanden, trotzdem sinnvoll. Und auch Bodenmessungen aus anderen Ländern dieser Region könnten für einen Vergleich herangezogen werden.

Für den Vergleich der hier vorgestellten Größenverteilungen mit denen aus der Literatur sind in Tabelle 10 nun die abgeschätzten Maxima der Größenverteilungen aus den verschiedenen Messregionen aufgelistet. Die Maxima der Größenverteilungen aus Europa, welche alle von Bodenmessungen entstammen, rangieren zwischen 10 nm und 90 nm, wobei die meisten bei 30 nm bis 40 nm liegen. Auch die Messung auf dem hohen Gebäude von Harrison et al. (2012) weist in diesem Größenbereich eine Mode auf, die jedoch kleiner ist als das Maximum, welches in der Tabelle angegeben ist.

Insgesamt passen die Maxima gut zu den hier vorgestellten Ergebnissen des ersten London-Flugs, dessen Maximum im Größenkanal von 14 nm zu finden ist (Abbildung 60). Auch der zweite London-Flug liegt trotz der Verschiebung hin zu größeren Partikeldurchmessern noch nahe bei den hier aufgelisteten Maxima. Vor allem wenn der Count Median Diameter (CMD) von 90.6 nm beachtet wird. Denn da sich der CMD stets rechts des Maximums befindet, wird sich das Maximum des zweiten London-Flugs ebenfalls unterhalb dieses Wertes befinden, auch wenn es in Abbildung 60 im Größenkanal von 100 nm zu finden ist. Dies liegt jedoch daran, dass unterhalb von 100 nm wenige Partikelgrößen, gemessen mit dem DMA, ausgewertet werden konnten, sodass der Vergleich der Maxima dahingehend erschwert wird. Aus diesem Grund sollten auch immer noch die CMDs von den hier vorgestellten Ergebnissen mitbeachtet werden. Diese liegen für den ersten London-Flug bei 50.6 nm, für den zweiten London-Flug bei den zuvor erwähnten 90.6 nm, beim ersten Manila-Flug bei 105.2 nm, beim zweiten Manila-Flug bei 150.9 nm und beim dritten Manila-Flug bei 203.6 nm.

In Zukunft sollte darauf geachtet werden, dass mehr Datenpunkte unterhalb von 100 nm ausgewertet werden können. Dies kann durch eine bessere Auswahl der Partikeldurchmesser, welche vom DMA beprobt werden, unter Rücksichtnahme auf die Doppelladungen erreicht werden. Denn wenn nach jedem gemessenen Partikeldurchmesser der Partikeldurchmesser beprobt wird, welcher bei einer Doppelladung die gleiche elektrische Mobilität wie der vorher gemessene Partikeldurchmesser bei einer einfachen Ladung aufweist, könnten alle Datenpunkte bezüglich ihrer Doppelladung korrigiert und ausgewertet werden, was bei der EMERGe-Kampagne nicht der Fall war (Tabelle 3).

Tabelle 10: Angaben über die Maxima der Größenverteilungen in der Literatur unterteilt in Europa und Asien.

	Messung	Messregion	Maximum der Größenverteilung	Quelle
Europa	Boden	London	20-30 nm (Straße) 30-80 nm (Park) 70-80 nm (hohes Gebäude)	Harrison et al. (2012)
	Boden	London	30-40 nm	Rodriguez et al. (2007)
	Boden	Mailand	30-40 nm	Rodriguez et al. (2007)
	Boden	Barcelona	30-40 nm	Rodriguez et al. (2007)
	Boden	Paris	10-20 nm (Einfluss aus Europa)	Freutel et al. (2013)
	Boden	Paris	10-20 nm und 30-40 nm (Sommer) 30-40 nm (Winter)	von der Weiden- Reinmüller et al. (2014b)
	Boden	Budapest	50-80 nm (Januar) 40-50 nm (Juli)	Borsos et al. (2012)

	Boden	Prag	80-90 nm (Januar) 10-20 nm (Juli)	Borsos et al. (2012)
	Boden	Wien	20-30 nm (Januar) 40-50 nm (Juli)	Borsos et al. (2012)
	Boden	Europa	20-30 nm	Wu und Boor (2021)
Asien	Boden	Zentral-, Süd-, Südostasien	60-70 nm und 100-200 nm	Wu und Boor (2021)
	Boden	Ostasien	60-70 nm	Wu und Boor (2021)
	Boden	Shanghai	30-60 nm	Du et al. (2012)
	Boden	Tokio	30-40 nm	Kondo et al. (2010)
	Boden	Peking	40-50 nm (Frühling) 40-80 nm (Sommer) 40-10 nm (Herbst) 60-80 nm (Winter)	Wu et al. (2008)
	Flug	Über Naha	40-60 nm (Höhe: 2 km)	Zaizen et al. (2004)
	Flug	Über Saipan	30-50 nm (Höhe: 2 km)	Zaizen et al. (2004)
	Flug	Westpazifik nahe Korea	100-200 nm (ohne Nukleations- prozesse)	McNaughton et al. (2004)
	Flug	Westpazifik nahe Korea und Japan	100-200 nm	Moore et al. (2004)
Flug	Anhui Provinz, China (nahe Yangtzedelta)	100-300 nm (Höhe: 1-2 km)	Hao et al. (2017)	

Da die Maxima aus Tabelle 10 von den Bodenmessungen in Asien und die der Flugmesskampagne PACE-7 (Zaizen et al. 2004) meist ebenfalls unter 100 nm liegen, wären auch hier mehr Datenpunkte bei den in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnissen speziell für den Bereich zwischen 40 nm und 100 nm wünschenswert. Denn vor allem für den ersten Manila-Flug mit einem CMD von 105.2 nm liegt das Maximum wahrscheinlich unterhalb von 100 nm, in dessen Größenkanal es nach Abbildung 60 zu finden ist. Dadurch könnte der erste Manila-Flug gut zu den Maxima der meisten Bodenmessungen und der PACE-7 Kampagne passen. Der zweite und dritte Manila-Flug passen aufgrund ihrer höheren CMDs eher in den Bereich der anderen Flugmesskampagnen TRACE-P und ACE-Asia, vorgestellt durch McNaughton et al. (2004) und Moore et al. (2004), und den Flugzeugmessungen nahe des Yangtzedeltas von Hao et al. (2017) in der Provinz Anhui.

Zusammengefasst passen die in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse gut zu denen, welche bereits in der Literatur veröffentlicht sind. Aus diesem Grund können die Anzahlkonzentrationen und die Größenverteilungen von den Beprobungen der Abgasfahnen von London und Manila gut als Grundlage zur Validierung und Verbesserung von globalen Modellen genutzt werden. Denn bei diesen sind, wie am Anfang dieser Arbeit erwähnt, die Auflösung von etwa 100 km auf 100 km zu grob, als dass die Emissionen und Transportprozesse von Megacitys gut aufgelöst werden können (Kunkel et al. 2013; Andrés Hernández et al. 2022 und die Referenzen hierin). Durch die monatliche und saisonale Variabilität des Maximums von den Größenverteilungen ist zu erkennen, dass der Messzeitpunkt im Jahr einen großen Einfluss auf die Größenverteilungen haben kann, sodass dieser bei Vergleichen am besten mitberücksichtigt wird. Auch wird dadurch offensichtlich, dass Messungen von verschiedenen Zeitpunkten im Jahr nötig sind, um ein Modell vollständig zu validieren.

5 Fazit und Ausblick

5.1 Fazit

Im Zuge dieser Arbeit wurde das Messinstrument AMETYST zur Messung von Aerosolpartikeln erstmals umfassend charakterisiert und kalibriert. Dadurch war es möglich, Korrekturen für eine Vielzahl von Parametern, wie dem Rohrleitungsverlust oder der Abnahme der CPC-Effizienz bei abnehmendem Druck, durchzuführen. Die Messdaten, die während der EMeRGe-Kampagne im Sommer 2017 in Europa und im Frühjahr 2018 in Südostasien gesammelt wurden, konnten somit unter Berücksichtigung der Fehlerquellen korrigiert und ausgewertet werden, sodass die wissenschaftlichen Fragestellungen beantwortet werden konnten.

Frage 1: Gibt es Unterschiede in den mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften bei unterschiedlichen Quellregionen?

Zur Beantwortung dieser Frage wurden die Verschmutzungsaerosole in den Abgasfahnen von der europäischen Megacity London und der asiatischen Megacity Manila charakterisiert und bezüglich ihrer mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften miteinander verglichen. Diese beiden Megacities wurden ausgewählt, da sie hinsichtlich ihrer Einwohneranzahl und den registrierten Fahrzeugen vergleichbar sind, aber auch da sie isoliert liegen und beide zweifach während der EMeRGe-Kampagne intensiv mit einer ähnlichen Strategie beprobt wurden. Für die London-Flüge wurden insgesamt 15 Zeitspannen mit Einfluss der Megacity, welcher durch HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien bestätigt wurde, ausgewertet und für die Manila-Flüge waren es 12 Zeitspannen.

Auch wenn die Gesamtanzahlkonzentration der einzelnen Zeitspannen von den Manila-Flügen in einem größeren Bereich variierte, als die der London-Flüge, so ist die gemittelte Gesamtanzahlkonzentration über alle Zeitspannen hinweg mit 3457.70 cm^{-3} fast identisch zu der der London-Flüge, welche 3459.18 cm^{-3} beträgt. Ein signifikanter Unterschied bezüglich der Gesamtanzahlkonzentration zwischen den beiden Megacities konnte nicht festgestellt werden.

Bei den Größenverteilungen und den Absorptionskoeffizienten von London und Manila dagegen gibt es Unterschiede. So sind die Absorptionskoeffizienten aller drei Wellenlängen von den Manila-Flügen höher als die der London-Flüge und gegenüber der Nullmessung des PSAPs stets signifikant, während sie bei den London-Flügen nahe des Detektionslimits liegen und daher meist nicht signifikant sind. Bei den Größenverteilungen von den beiden Megacities ist bei denen von Manila eine Verschiebung hin zu größeren Partikeldurchmessern im Vergleich zu denen von London auszumachen. Dies spiegelt sich auch im Count Median Diameter (CMD) wieder, welcher für die Manila-Flüge bei 178.0 nm liegt, für die London-Flüge jedoch im Durchschnitt bei nur 64.0 nm zu finden ist.

Eine Ursache für diese Verschiebung ist die erhöhte Black Carbon (BC) und CO-Konzentration, welche auf vermehrte Verbrennungsprozesse im Messgebiet von Südostasien hinweisen und die auch die Erklärung für die erhöhten Absorptionskoeffizienten bei Manila im Vergleich zu London sind. Eine weitere Ursache ist die ebenfalls erhöhte Ozon-Konzentration nahe Manila, die auf eine allgemein höhere Luftverschmutzung hinweist. Die Alterung ist durch die Überprüfung mit dem Alterungstracer f_{44}/f_{43} nicht ausschlaggebend für die unterschiedlichen Verläufe der Größenverteilungen, da auch bei gleichem Alter der Luftmassen die Verschiebung hin zu größeren Partikeldurchmessern nahe Manila zu erkennen ist. Anhand der Möglichkeit zur Beprobung des Hintergrunds von Manila war außerdem ersichtlich, dass der Verlauf der Größenverteilung nicht nur charakteristisch für die Megacity selbst ist, sondern für die ganze Region. Dies konnte mit Hilfe der Größenverteilungen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden, ebenfalls bestätigt werden. Die beobachtete Verschiebung hin zu größeren Partikeldurchmessern im südostasiatischen Raum ist auch in der Literatur zu finden, sodass die hier vorgestellten Ergebnisse eine gute Grundlage bilden um Modelle zu validieren und zu verbessern. So nutzt beispielsweise Jingmin Li (DLR-IPA) unter anderem die hier bereitgestellten Daten um ihr Modell der Clusterung zu validieren (Li et al. 2022). Dieses Modell simuliert die Anzahlkonzentration der verschiedenen Aerosoltypen und die Anzahlkonzentration der Gesamtaerosolpartikel in den verschiedenen Moden für die einzelnen in der jeweiligen Weltregion vorherrschende Luftmasse, wie beispielsweise der maritimen oder der kontinental verschmutzten Luftmasse. Für eine Verbesserung der zu Grunde liegenden Parametrisierungen in diesem Modell der Clusterung werden dann Beobachtungsdaten, wie die hier vorgestellten, benötigt um die Modellergebnisse mit realen Werten zu vergleichen.

Frage 2: Unterscheiden sich die mikrophysikalischen Eigenschaften von lokalen und transportierten Aerosolpartikeln und was ist der Einfluss von Transport und Alterung?

Zur Beantwortung dieser zweiten Frage, in wie fern sich der Transport und die Alterung auf die mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften auswirkt, wurden insgesamt 92 Zeitspannen, in denen die Messungen mit dem DMA ausgewertet wurden, an der Westküste von Taiwan untersucht. Diese wurden zunächst aufgrund ihres Kontakts mit der planetaren Grenzschicht bei den HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien in lokale, gemischte und transportierte Emissionen und Luftmassen, die keinerlei Kontakt zur PBL in den vergangenen 144 Stunden aufwiesen, unterteilt.

Werden die klassifizierten zwölf Zeitspannen mit lokalen Emissionen und die vierzehn Zeitspannen mit transportierten Emissionen hinsichtlich ihrer mikrophysikalischen Eigenschaften miteinander verglichen, ist bis auf die höhere mittlere Gesamtanzahlkonzentration der lokalen Emissionen kein signifikanter Unterschied feststellbar. Dies liegt daran, dass einige transportierte Luftmassen jünger waren als so manch eine lokalen Luftmasse, was aus der Betrachtung des Alters der Luftmassen mit Hilfe des

Verhältnisses von f_{44}/f_{43} ersichtlich wurde. Die lokale Verweildauer der Luftmassen war damit länger als erwartet, auch wenn eine Tendenz von jüngeren lokalen Emissionen und älteren transportierten Emissionen durchaus zu erkennen war. Wird nun die Größenverteilung der jüngsten lokalen Emission mit denen der ältesten transportierten Emissionen verglichen, ergibt sich ein klar zu erkennender Unterschied, da sich die Größenverteilungen aufgrund von Koagulation und Kondensation mit zunehmendem Verbleib in der Atmosphäre hin zu größeren Partikeldurchmessern verschieben. Da die Alterungsprozesse in den Größenverteilungen von der Westküste von Taiwan gut in den hier vorgestellten Ergebnissen zu erkennen sind (Abbildung 55), können die in dieser Arbeit ausgewerteten Daten genutzt werden, um die Modelle hinsichtlich der implementierten Alterungsprozesse zu validieren und zu verbessern.

Da Änderungen der mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften unterschiedlicher Quellen anthropogener Verschmutzung nicht von der geographischen Entfernung von Messort und Aerosolquelle abhängen, sondern vom Alter der Luftmasse, ist eine Unterscheidung zwischen lokalen und transportierten Emissionen aufgrund der mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften nicht möglich.

5.2 Ausblick

Im Zuge dieser Arbeit ergaben sich diverse Verbesserungsvorschläge für zukünftige Flugmesskampagnen zur Beprobung der Abgasfahnen von Megacitys, sowohl auf der Instrumentenseite als auch auf Seiten der Messstrategie.

Zum einen decken die hier vorgestellten DMA-Messungen den Messbereich <100 nm nur unzureichend ab. Aus diesem Grund sollten entweder die Geräteeinstellungen, wie in Kapitel 4.5 beschrieben, geändert werden oder aber ein anderes Messgerät mit einer höheren Messfrequenz zur Messung von mehr Partikeldurchmessern in der gleichen Messzeit verwendet werden. Denn vor allem der Größenbereich der Aitkenmode zwischen 10 nm und 100 nm ist wichtig um die Alterungsprozesse der Aerosolpartikel besser abschätzen zu können und so die Modellannahmen diesbezüglich validieren und verbessern zu können.

Auch bei den Einstellungen des PSAPs könnten in Zukunft Verbesserungen vorgenommen werden. So könnte das Rauschen reduziert werden, indem eine Einstellung des Geräts verwendet wird, bei welcher zunächst über eine gewisse Zeitspanne gemittelt wird. Die Auflösung wird dadurch jedoch verringert im Vergleich zu den hier vorgestellten sekundlich aufgetragenen Daten. Es würde sich daher anbieten in Zukunft auf ein anderes Gerät zur Messung der Absorptionskoeffizienten umzusteigen, da mit deren Hilfe eine wichtige Aussage bezüglich der Strahlungseigenschaften der Aerosolpartikel und deren Einfluss auf das Klima getroffen werden kann.

Aber auch hinsichtlich der Messstrategie zur Beprobung der Abgasfahnen von Megacitys mittels flugzeuggetragener Messungen könnten Verbesserungen vorgenommen werden, da diese wichtig sind um große Skalen im Vergleich zu Bodenmessungen abdecken zu können.

So wären mehr Flüge zur Beprobung einer Megacity für eine höhere Statistik sinnvoll, als auch die Messung des Zuflusses der jeweiligen Megacity bei jedem einzelnen Flug. Bei den hier gezeigten Daten fand dies nur bei den Manila-Flügen statt. Auch wäre es interessant die Abgasfahne einer Megacity in verschiedenen Abständen während eines Fluges zu beproben, um die verschiedenen Transport- und Alterungsprozesse näher zu untersuchen und ab wann diese mit Messinstrumenten nachgewiesen werden können.

Da Unterschiede in den mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften zwischen Europa und Südostasien festgestellt werden konnten, sollten auch Megacities in anderen Regionen weltweit untersucht und miteinander verglichen werden. Dies könnte für ein erweitertes Verständnis der Auswirkungen von verschiedenen Quellregionen auf die mikrophysikalischen Aerosoleigenschaften sorgen.

6 Anhang

6.1 Rohrleitungsverluste der restlichen CPCs und des OPCs

Im Folgenden sind die Parametrisierungen für die Transmissionseffizienzen der restlichen CPCs und des OPC1 bei zwei verschiedenen angenommenen Aerosoldichten gegen die Berechnungen des Particle Loss Calculators aufgeführt.

Da der CPC2 zusätzlich noch einen Thermodenuder eingebaut hat, sind die Rohrleitungen bei diesem länger im Vergleich zu den anderen CPCs, wodurch die Transmissionseffizienz bei größeren Partikeln und sehr kleinen Partikeln stärker abnimmt (Abbildung 66).

Beim CPC3 (Abbildung 67) ist im Messbereich von etwa 10 nm bis 3 μm eine konstant hohe Transmissionseffizienz zu verzeichnen, welche am Rand des Messbereichs meist immer noch etwa 70 % beträgt. Eine hohe Transmissionseffizienz im gesamten Messbereich ist bei diesem CPC wichtig, da dieser nur die Gesamtanzahlkonzentration misst und nicht in Kombination mit einem DMA betrieben wird, sodass die Konzentration der einzelnen Partikeldurchmesser mit Hinsicht auf die Rohrleitungsverluste korrigiert werden könnte.

Der OPC1 weist bei der gleichen Aerosoldichte von 1.8 g cm^{-3} (Abbildung 68) zunächst ein ähnliches Profil der Transmissionseffizienz auf wie der CPC3, da die Rohrleitungen mit 104.6 cm beim OPC1 und 111.3 cm beim CPC3 vergleichbar lang sind. Wird nun die höhere Aerosoldichte von 2.6 g cm^{-3} angenommen (Abbildung 69), ändert sich bei der Transmissionseffizienz bei den Partikeln <100 nm nichts, während sich bei den größeren Partikeln ein stärkerer Abfall bemerkbar macht, der sich bei Partikeldurchmessern >1 μm stark von dem der niedrigeren Aerosoldichte unterscheidet.

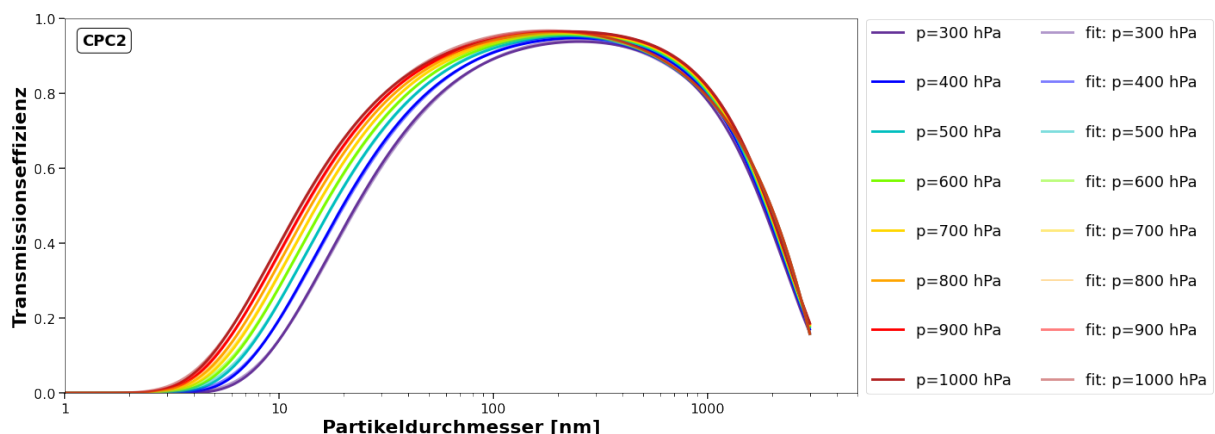


Abbildung 66: Transmissionseffizienzen berechnet durch den Particle Loss Calculator auf den verschiedenen Druckstufen und die jeweils dazugehörigen Parametrisierungen für den CPC2.

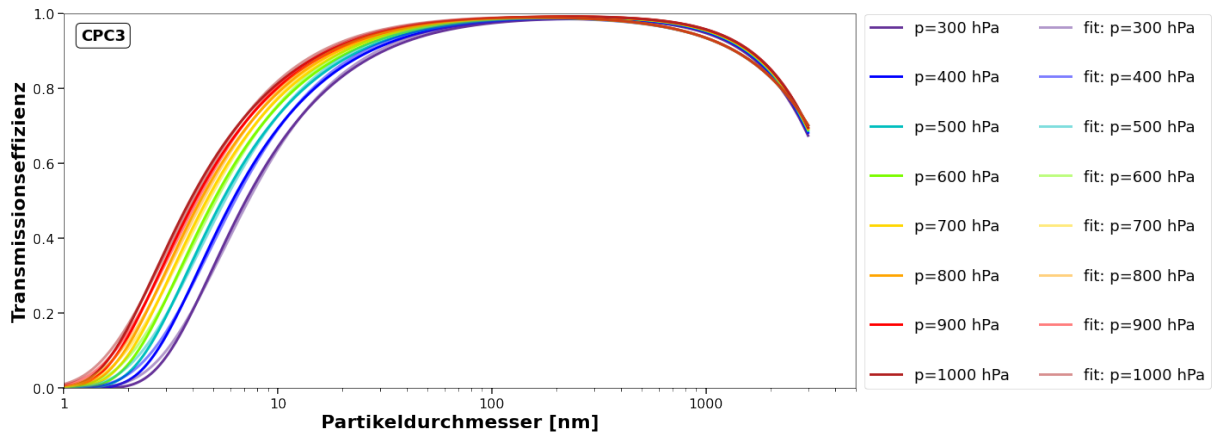


Abbildung 67: Transmissionseffizienzen berechnet durch den Particle Loss Calculator auf den verschiedenen Druckstufen und die jeweils dazugehörigen Parametrisierungen für den CPC3.

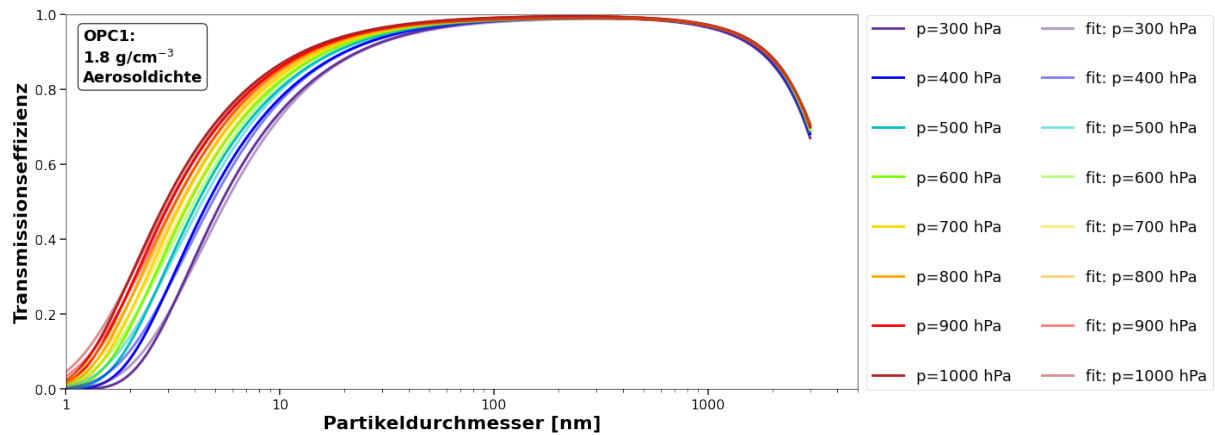


Abbildung 68: Transmissionseffizienzen berechnet durch den Particle Loss Calculator auf den verschiedenen Druckstufen und die jeweils dazugehörigen Parametrisierungen für den OPC1 bei einer angenommenen Aerosoldichte von 1.8 g cm^{-3} .

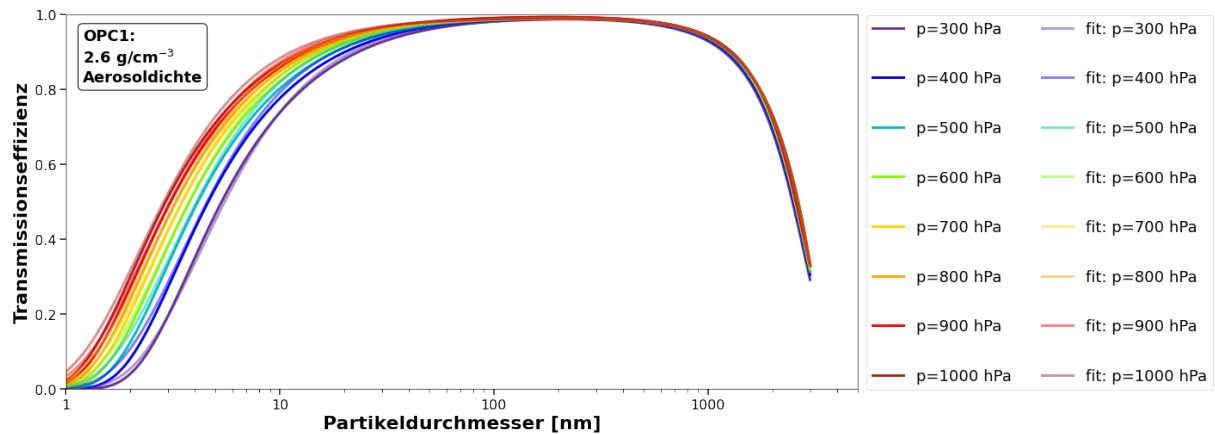


Abbildung 69: Transmissionseffizienzen berechnet durch den Particle Loss Calculator auf den verschiedenen Druckstufen und die jeweils dazugehörigen Parametrisierungen für den OPC1 bei einer angenommenen Aerosoldichte von 2.6 g cm^{-3} .

6.2 Herkunft der Luftmassen von den Zuflüssen von Manila

Für die Zuflüsse von Manila wurde die von Manila unabhängige Herkunft mittels HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien überprüft, indem für jede Sekunde der Zeitspanne eine Rückwärtstrajektorie von 144 Stunden erstellt wurde. Diese wurden für ein besseres Verständnis der Zugrichtung mit der Höhe über Grund farbcodiert und sind in Abbildung 70 dargestellt.

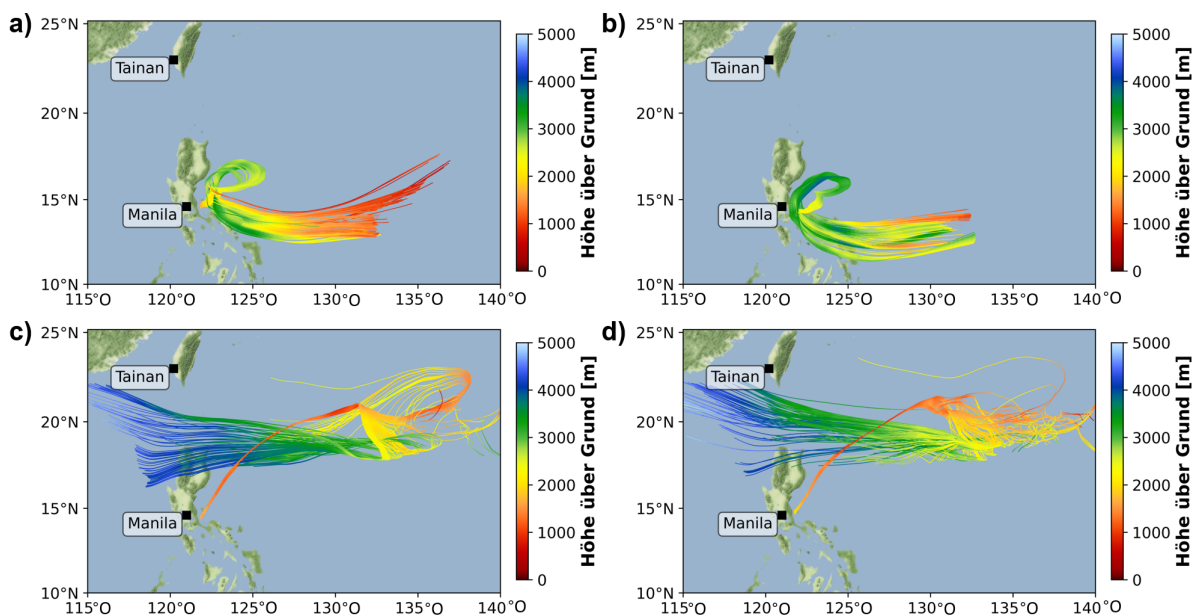


Abbildung 70: HYSPLIT Rückwärtstrajektorien für die Zuflüsse von Manila beim zweiten Manila-Flug am 20.03.2018 in a) und b) und beim dritten Manila-Flug am 28.03.2018 in c) und d). Für jede Sekunde der ausgewerteten Zeitspanne wurde eine Rückwärtstrajektorie über 144 Stunden erstellt und farblich mit der Höhe über Grund codiert.

Die Luftmassen des Zuflusses vom zweiten Manila Flug kamen aus einer niedrigen Höhe über den Pazifik herangezogen, stiegen dann auf, drehten vor der Küste der Philippinen und sanken dann wieder ein wenig ab, bevor sie von HALO vermessen werden konnten. Die Luftmassen des Zuflusses beim dritten Manila-Flug kamen aus großer Höhe und sind ostwärts raus auf den Pazifik gezogen, bevor sie abrupt die Richtung geändert haben, um dann lange auf niedriger Höhe über den Ozean zu ziehen, bis sie dann am Messort von HALO an der Ostküste der Philippinen angelangten. Dieser abrupte Richtungsumschwung wurde dabei von der tropischen Depression Jelawat verursacht, welche später noch die Kategorie eines Super-Taifuns erreichte (JTWC 2018). Die Zugbahn ist in Abbildung 71 dargestellt.

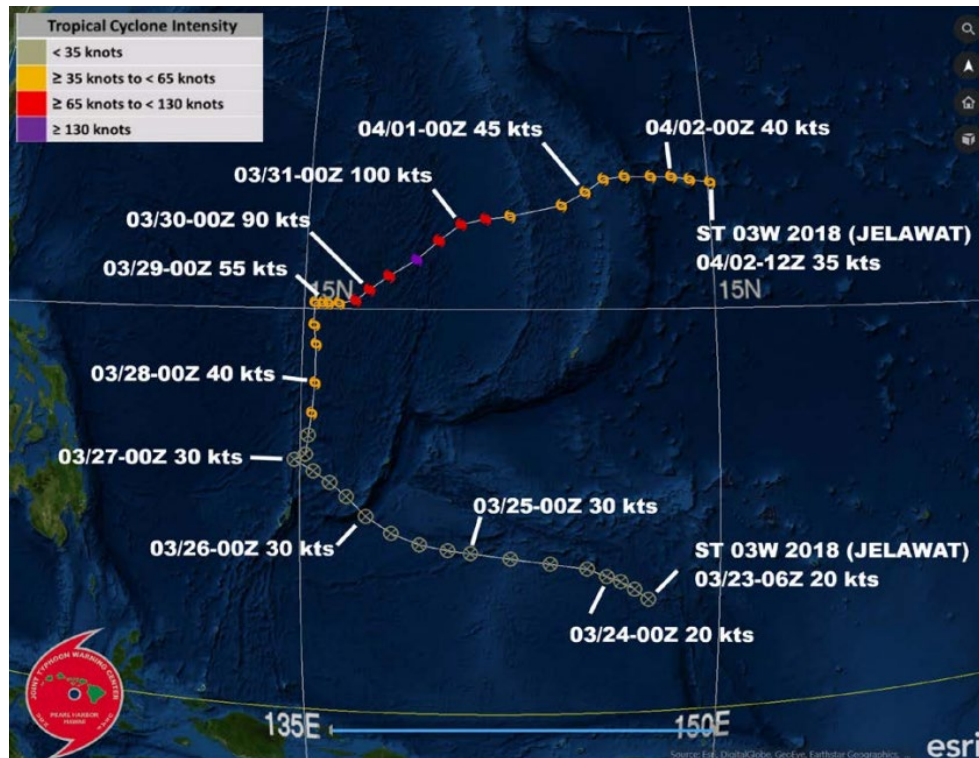


Abbildung 71: Zugbahn von Jelawat östlich der Philippinen. Zunächst klassifiziert als tropische Depression, verstärkte sich Jelawat am 30. März 2018 bis zu einem Super-Taifun, bevor er sich wieder abschwächte (JTWC 2018).

6.3 Zeitlicher Verlauf der Anzahlkonzentrationen für die Flüge an der Westküste von Taiwan

Im Folgenden werden die zeitlichen Verläufe der Gesamtanzahlkonzentration, der Konzentration im Bereich von 250 nm bis 3 μm und der Druckhöhe der Flüge von EMeRGe-Asien gezeigt, welche die Westküste von Taiwan beprobt haben. Die untersuchten Zeitspannen, welche als lokale, transportierte und gemischte Emissionen und Luftmassen ohne Kontakt zur planetaren Grenzschicht (PBL) mittels der HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien klassifiziert wurden, sind als farbliche Balken eingezeichnet.

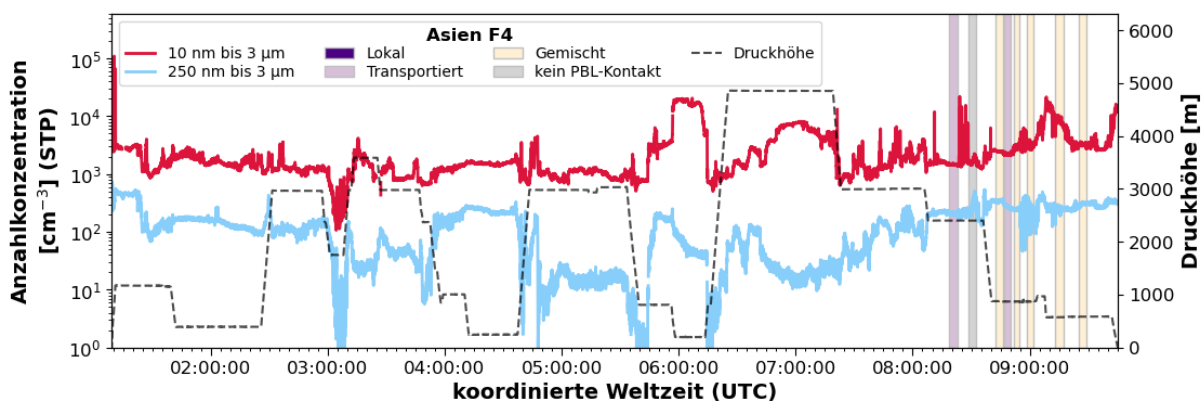


Abbildung 72: Zeitlicher Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 μm und der Druckhöhe bei Flug 4 von EMeRGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.

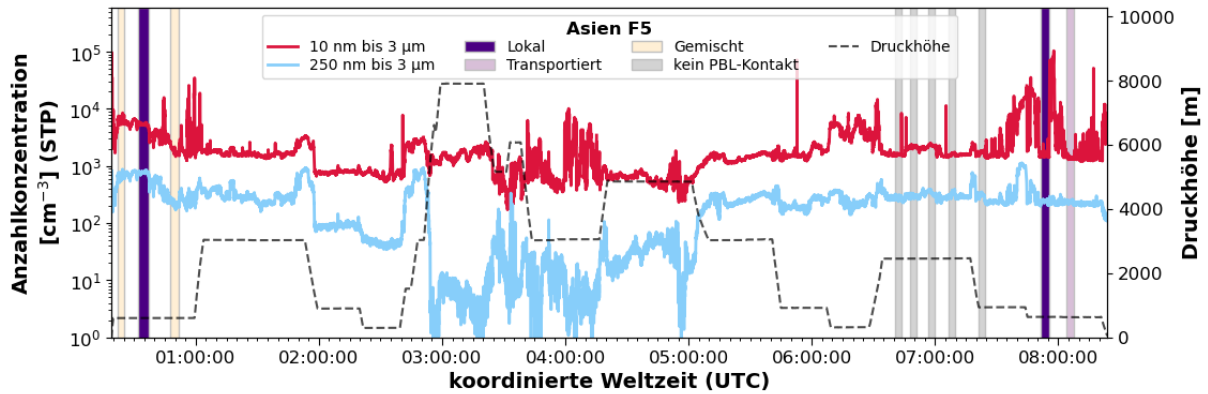


Abbildung 73: Zeitlicher Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 µm und der Druckhöhe bei Flug 5 von EMERGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.

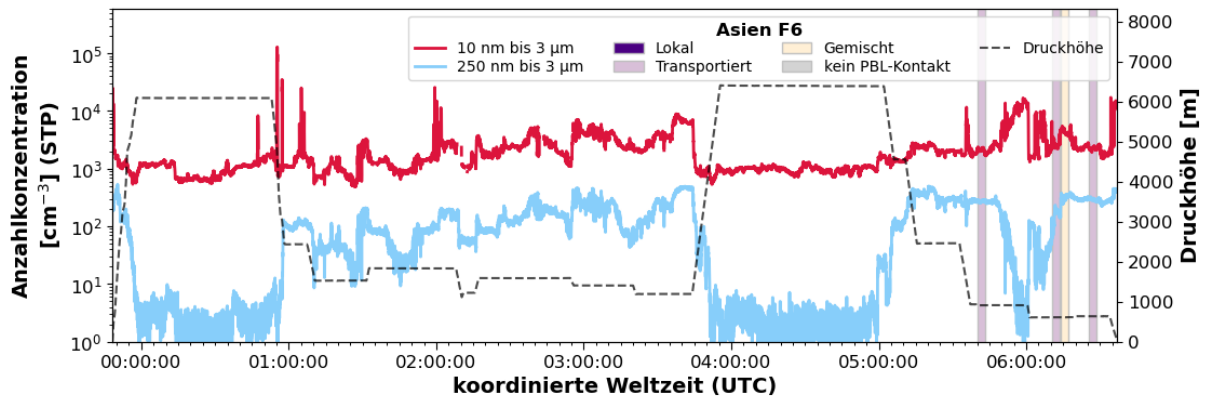


Abbildung 74: Zeitlicher Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 µm und der Druckhöhe bei Flug 6 von EMERGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.

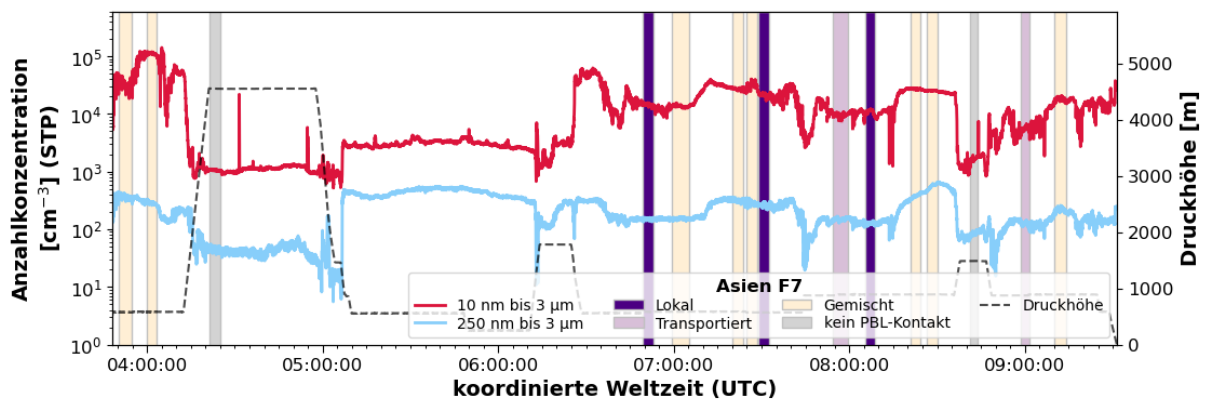


Abbildung 75: Zeitlicher Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 µm und der Druckhöhe bei Flug 7 von EMERGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.

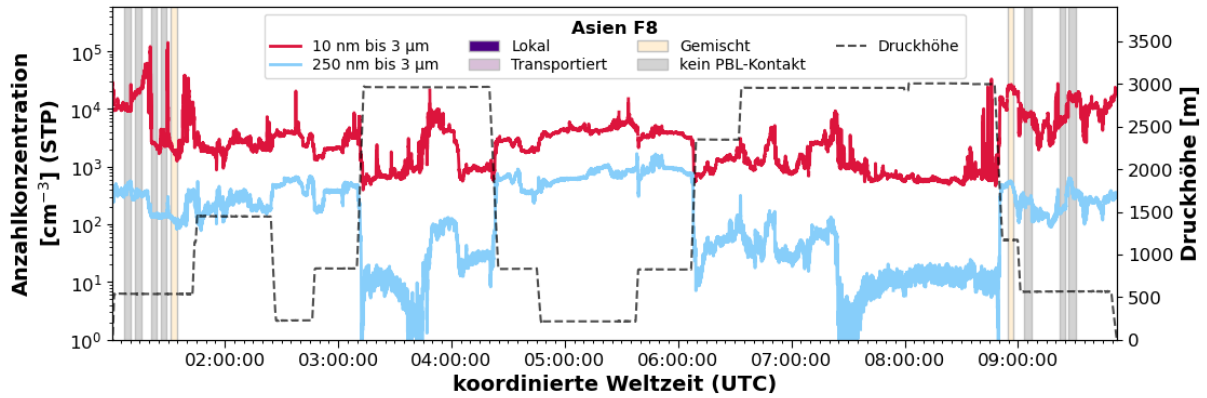


Abbildung 76: Zeitlicher Verlauf der Gesamanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 µm und der Druckhöhe bei Flug 8 von EMERGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.

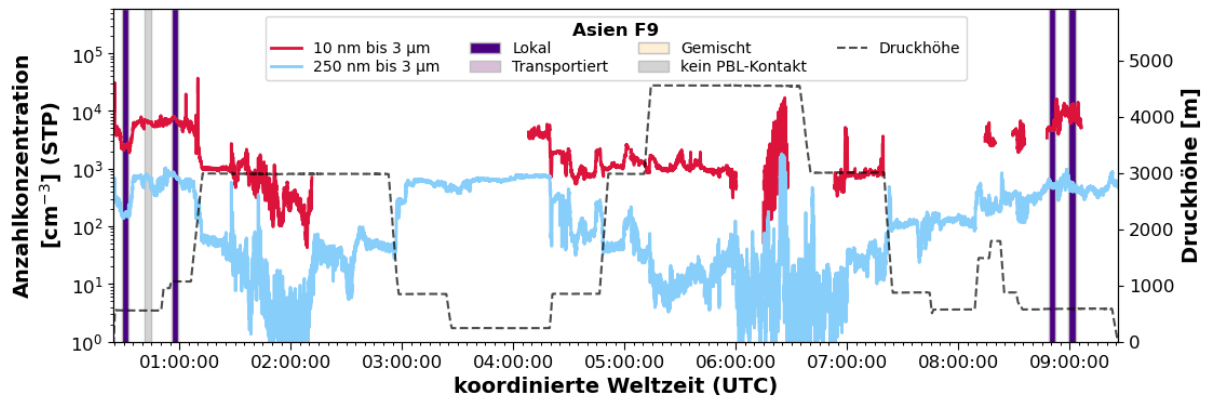


Abbildung 77: Zeitlicher Verlauf der Gesamanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 µm und der Druckhöhe bei Flug 9 von EMERGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.

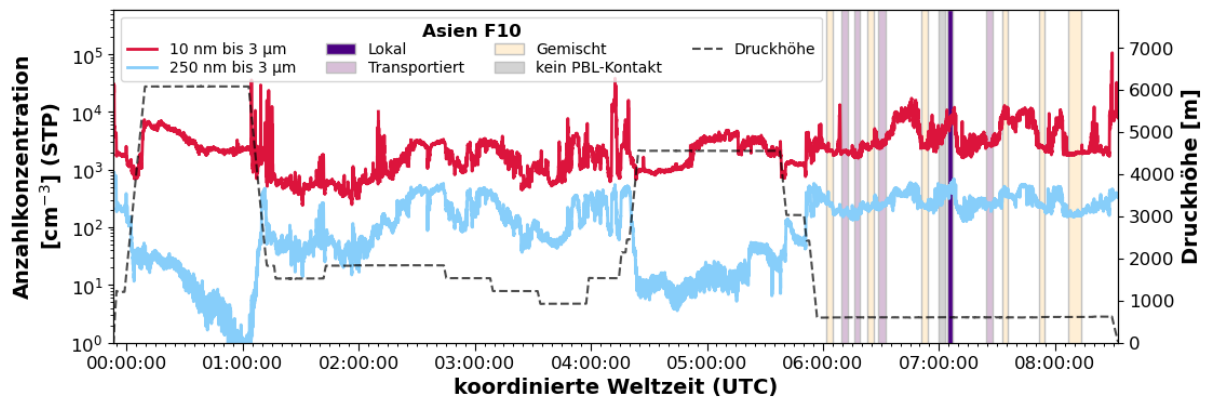


Abbildung 78: Zeitlicher Verlauf der Gesamanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 µm und der Druckhöhe bei Flug 10 von EMERGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.

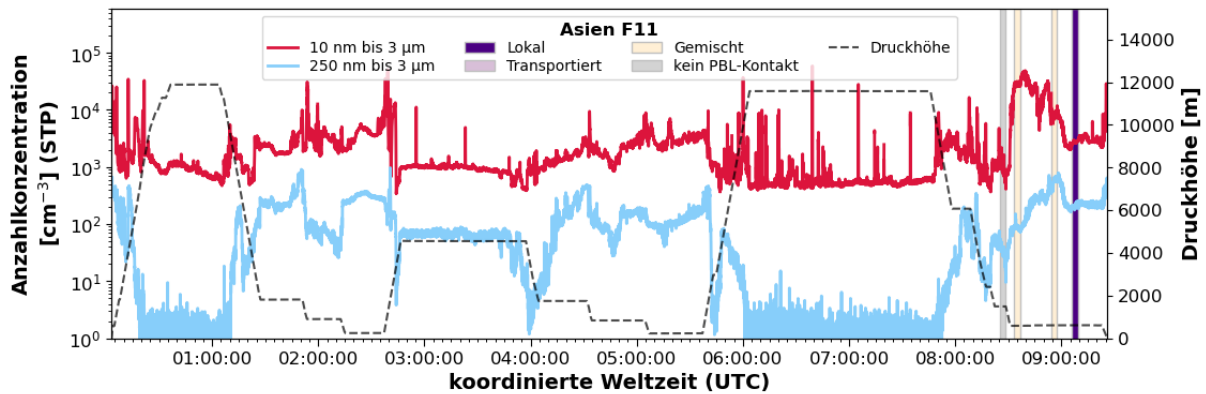


Abbildung 79: Zeitlicher Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 μm und der Druckhöhe bei Flug 11 von EMERGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.

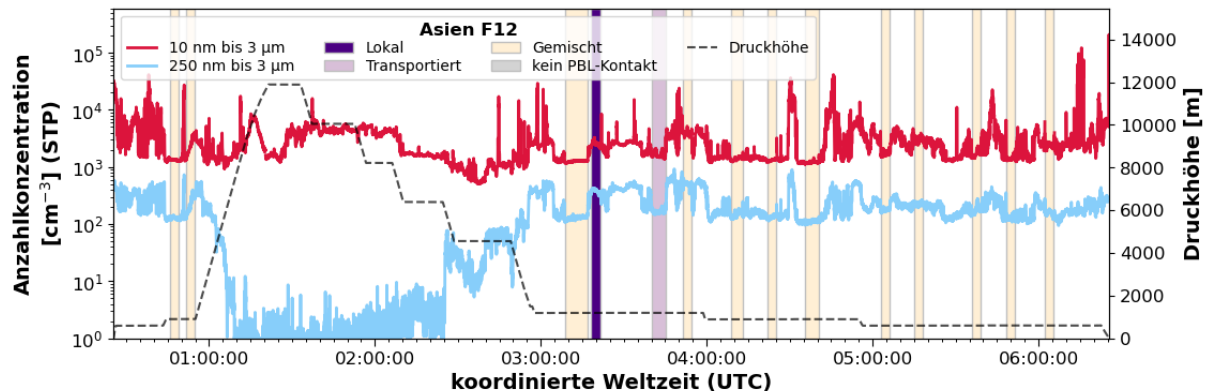


Abbildung 80: Zeitlicher Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 μm und der Druckhöhe bei Flug 12 von EMERGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.

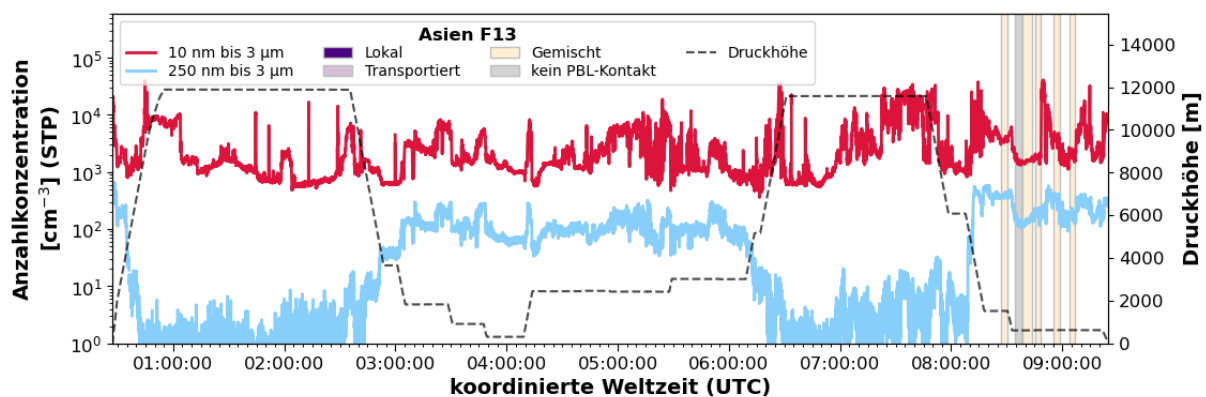


Abbildung 81: Zeitlicher Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 μm und der Druckhöhe bei Flug 13 von EMERGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.

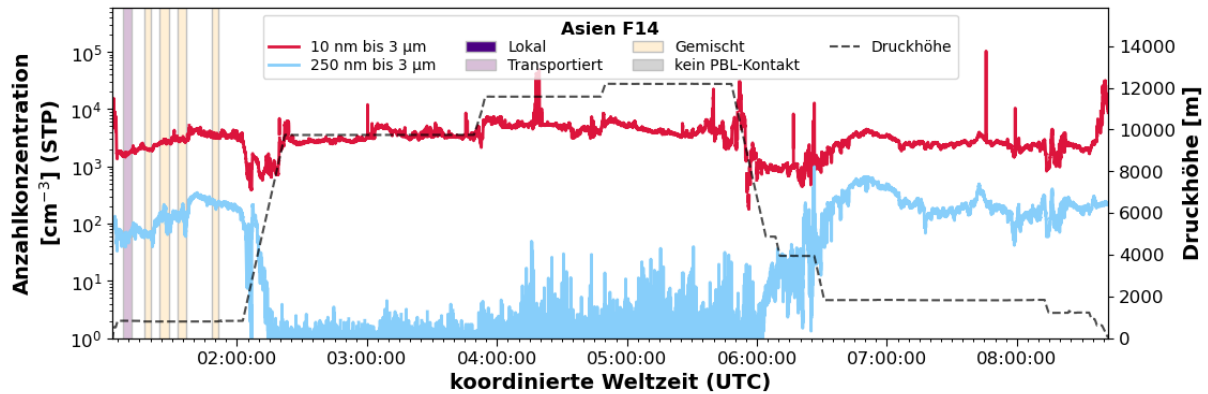


Abbildung 82: Zeitlicher Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 µm und der Druckhöhe bei Flug 14 von EMERGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierte Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.

6.4 Gesamtanzahlkonzentrationen in den ausgewerteten Zeitspannen

In den beiden folgenden Unterkapiteln werden die Gesamtanzahlkonzentrationen in den jeweiligen untersuchten Zeitspannen dargestellt. In Kapitel 6.4.1 für Zeitspannen der Fallstudien von London und Manila und in Kapitel 6.4.2 für die Zeitspannen, welche die Emissionen an der Westküste von Taiwan vermessen haben. Bei der Tabelle für die Westküste von Taiwan ist außerdem noch die Klassifizierung der Luftmassen durch die HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien aufgeführt.

6.4.1 London und Manila

Tabelle 11: Auflistung der Gesamtanzahlkonzentrationen in den jeweiligen untersuchten Zeitspannen von der Beprobung der Abgasfahne von London (rot hinterlegt) und Manila (blau hinterlegt) und von den Zuflüssen von Manila (grau hinterlegt).

Fallstudie	EMERGe-Flugnummer	ausgewertete Zeitspanne	Gesamtanzahlkonzentration [cm ⁻³]
London	EU F5	L1-1	2223.45
		L1-2	3801.66
		L1-3	5032.87
		L1-4	4360.14
		L1-5	2576.46
		L1-6	1962.10
		L1-7	2558.84
		L1-8	3941.47
		L1-9	2934.42
		L1-10	2871.84
	EU F8	L2-1	4127.66
		L2-2	3506.53

		L2-3	4189.07
		L2-4	4262.34
		L2-5	3538.87
Manila	Asien F3	M1-1	7957.49
	Asien F6	M2-1	2476.00
		M2-2	4611.37
		M2-3	4128.53
		M2-4	3811.73
	Asien F10	M3-1	3116.37
		M3-2	3017.93
		M3-3	2203.02
		M3-4	3214.32
		M3-5	1758.73
M3-6		1283.66	
Zufluss Manila	Asien F6	M3-7	3913.20
		M2-Z1	619.76
	Asien F10	M2-Z2	921.43
		M3-Z1	511.52
		M3-Z2	601.74

6.4.2 Taiwan

Tabelle 12: Auflistung der Gesamtanzahlkonzentration in allen ausgewerteten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden. Außerdem aufgelistet ist die Klassifizierung der Emissionen, welche aufgrund der HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien erfolgte. „L“ steht dabei für lokale Emissionen, „T“ für transportierte Emissionen, „mix“ für gemischte Emissionen und „-“ steht für Luftmassen, welche innerhalb der letzten 144 Stunden, für welche die Rückwärtstrajektorien berechnet wurden, keinen Kontakt zur planetaren Grenzschicht hatten.

Fallstudie	EMeRGe-Flugnummer	ausgewertete Zeitspanne	Emission	Gesamtanzahlkonzentration [cm^{-3}]
Taiwan	Asien F4	T4-1	T	1549.39
		T4-2	-	1837.29
		T4-3	mix	2597.78
		T4-4	T	2329.62
		T4-5	mix	3040.56
		T4-6	mix	3422.02
		T4-7	mix	8927.42
		T4-8	mix	3165.39
	Asien F5	T5-1	mix	7158.02
		T5-2	L	5713.77
T5-3		mix	1926.52	

	T5-4	-	1676.63
	T5-5	-	2324.49
	T5-6	-	2427.76
	T5-7	-	1699.28
	T5-8	-	1782.14
	T5-9	L	1682.09
	T5-10	T	1478.65
Asien F6	T6-1	T	2276.83
	T6-2	T	2775.64
	T6-3	mix	4588.93
	T6-4	T	2369.38
Asien F7	T7-1	mix	34 976.77
	T7-2	mix	117 850.95
	T7-3	-	1118.54
	T7-4	L	15 248.21
	T7-5	mix	14 398.06
	T7-6	mix	28 543.82
	T7-7	mix	34 241.07
	T7-8	L	22 376.30
	T7-9	T	9063.17
	T7-10	L	10 850.83
	T7-11	mix	28 804.78
	T7-12	mix	26 905.16
	T7-13	-	1750.89
	T7-14	T	5849.89
	T7-15	mix	19 175.50
Asien F8	T8-1	-	10 412.25
	T8-2	-	21 013.06
	T8-3	-	2635.76
	T8-4	-	2979.94
	T8-5	mix	2019.96
	T8-6	mix	22 822.19
	T8-7	-	7481.08
	T8-8	-	6722.31
	T8-9	-	16 922.19
Asien F9	T9-1	L	2510.44
	T9-2	-	6837.24
	T9-3	L	7621.81
	T9-4	L	4979.49
	T9-5	L	9395.85
Asien F10	T10-1	mix	2281.72
	T10-2	T	2163.57

		T10-3	T	1848.98	
		T10-4	mix	2623.72	
		T10-5	T	2880.40	
		T10-6	mix	2562.46	
		T10-7	-	4422.04	
		T10-8	L	7280.79	
		T10-9	T	2919.10	
		T10-10	mix	10 595.91	
		T10-11	mix	2620.93	
		T10-12	mix	1956.94	
		Asien F11	T11-1	-	966.04
			T11-2	mix	29 898.21
T11-3	mix		7055.48		
T11-4	L		2864.96		
Asien F12	T12-1	mix	1403.23		
	T12-2	mix	2380.54		
	T12-3	mix	1326.61		
	T12-4	L	2682.66		
	T12-5	T	1725.13		
	T12-6	mix	4157.52		
	T12-7	mix	1320.93		
	T12-8	mix	1252.22		
	T12-9	mix	1278.86		
	T12-10	mix	1768.30		
	T12-11	mix	3239.74		
	T12-12	mix	1791.62		
	T12-13	mix	1507.89		
	T12-14	mix	2217.40		
Asien F13	T13-1	mix	3840.94		
	T13-2	-	1663.56		
	T13-3	mix	1633.61		
	T13-4	mix	1923.01		
	T13-5	mix	4076.10		
	T13-6	mix	1806.35		
Asien F14	T14-1	T	1762.75		
	T14-2	mix	2079.47		
	T14-3	mix	2752.84		
	T14-4	mix	3059.23		
	T14-5	mix	3521.57		

6.5 HYSPLIT Trajektorien

6.5.1 London und Manila

Aufgeführt sind die HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien, welche wie in Kapitel 2.4 beschrieben, für einen Zeitpunkt der verschiedenen Zeitspannen von der Beprobung der Abgasfahnen von London (Abbildung 83) und Manila (Abbildung 84) erstellt wurden.

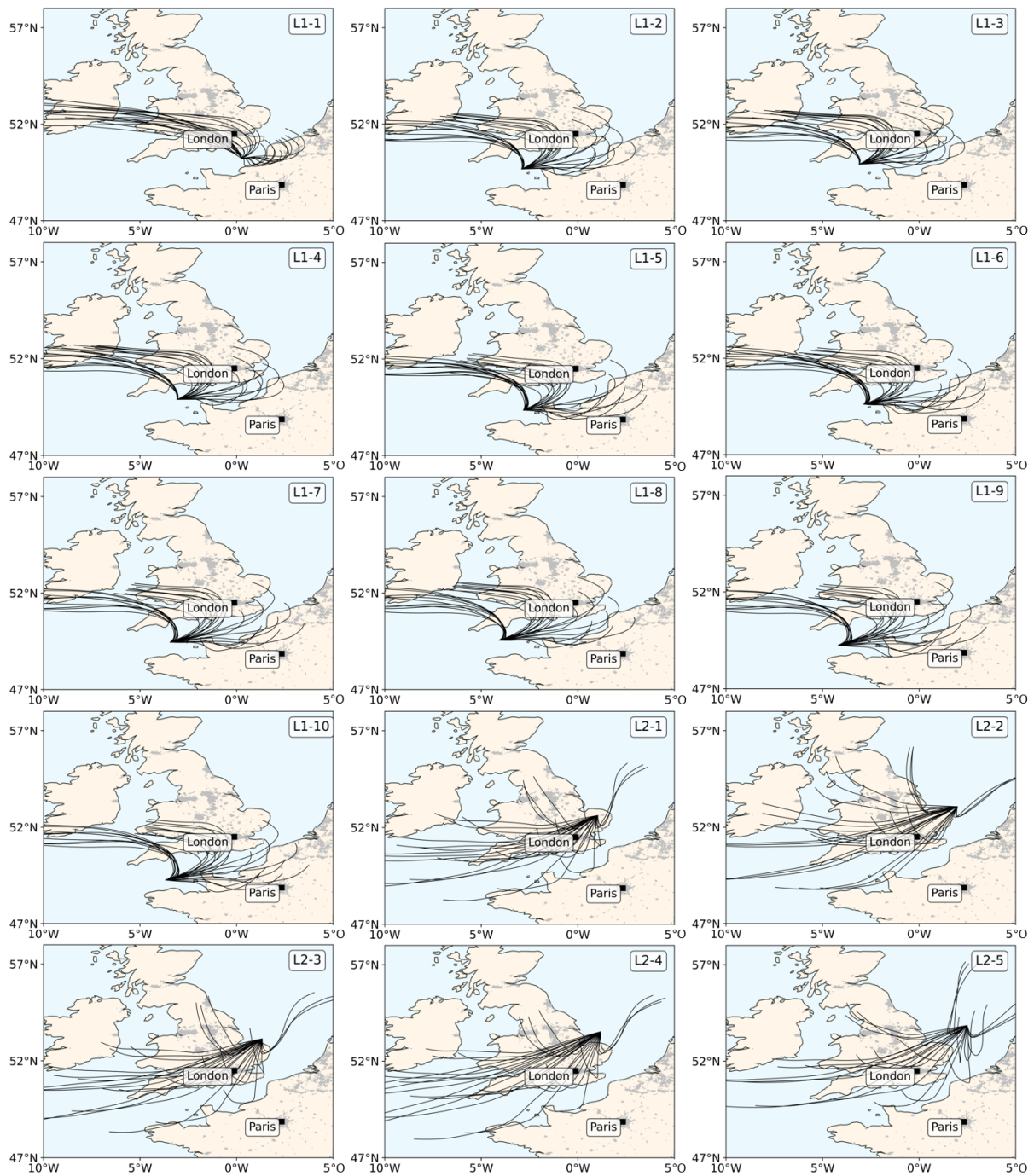


Abbildung 83: Rückwärtstrajektorien erstellt mit HYSPLIT für einen Zeitpunkt der verschiedenen Zeitspannen, bei denen die Abgasfahne von London beprobt wurde. Die Bezeichnung der einzelnen Zeitspannen findet sich oben rechts in den jeweiligen Graphen.

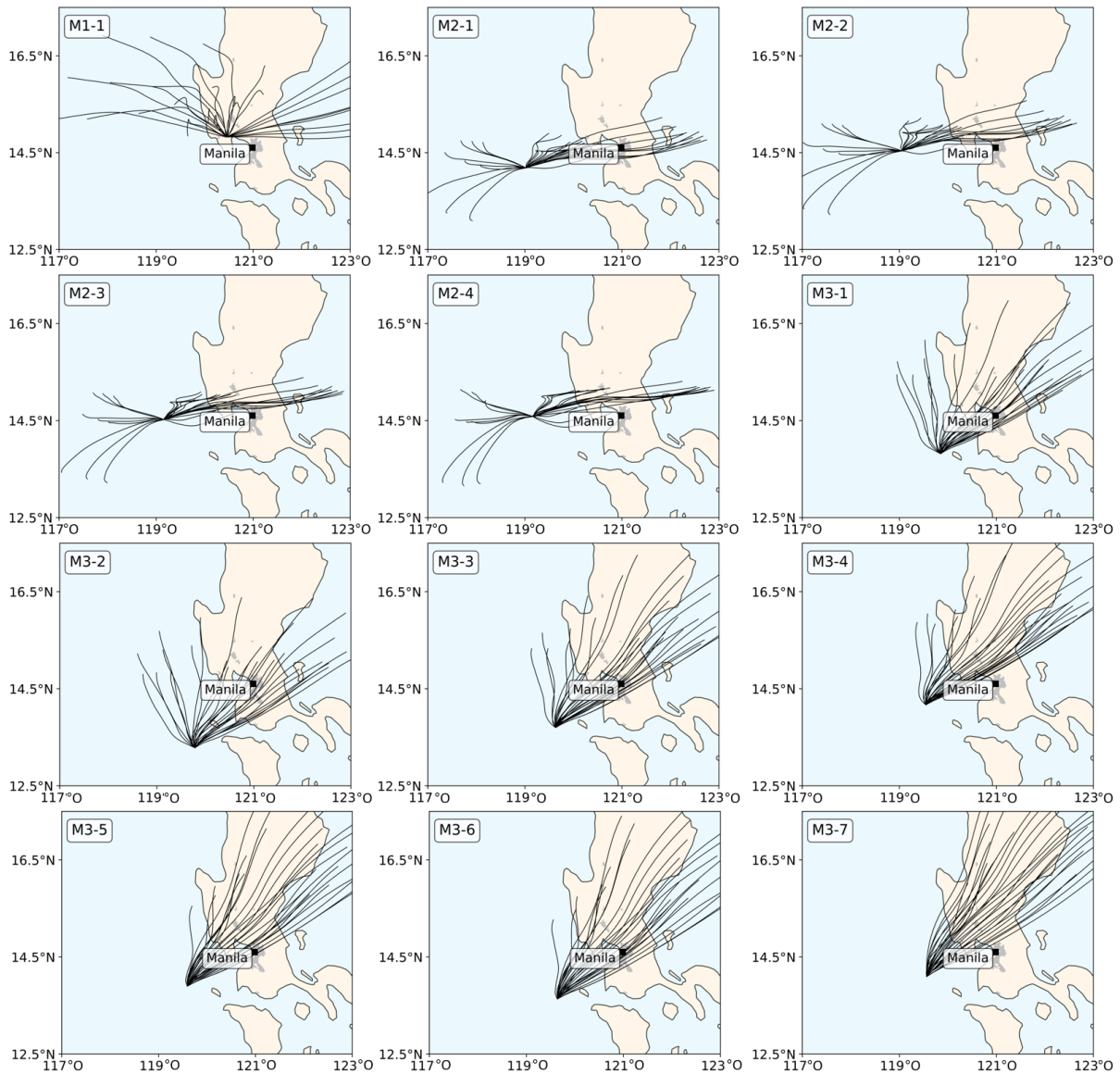


Abbildung 84: Rückwärtstrajektorien erstellt mit HYSPLIT für einen Zeitpunkt der verschiedenen Zeitspannen, bei denen die Abgasfahne von Manila beprobt wurde. Die Bezeichnung der einzelnen Zeitspannen findet sich oben links in den jeweiligen Graphen.

6.5.2 Lokale und transportierte Emissionen an der Westküste von Taiwan

In diesem Kapitel sind die HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien aufgeführt, durch welche die vermessenen Zeitspannen an der Westküste von Taiwan in lokale (Abbildung 85) und transportierte Emissionen (Abbildung 86) anhand ihres Kontakts mit der planetaren Grenzschicht (PBL) klassifiziert wurden. Beschrieben wurde dies in Kapitel 2.4.

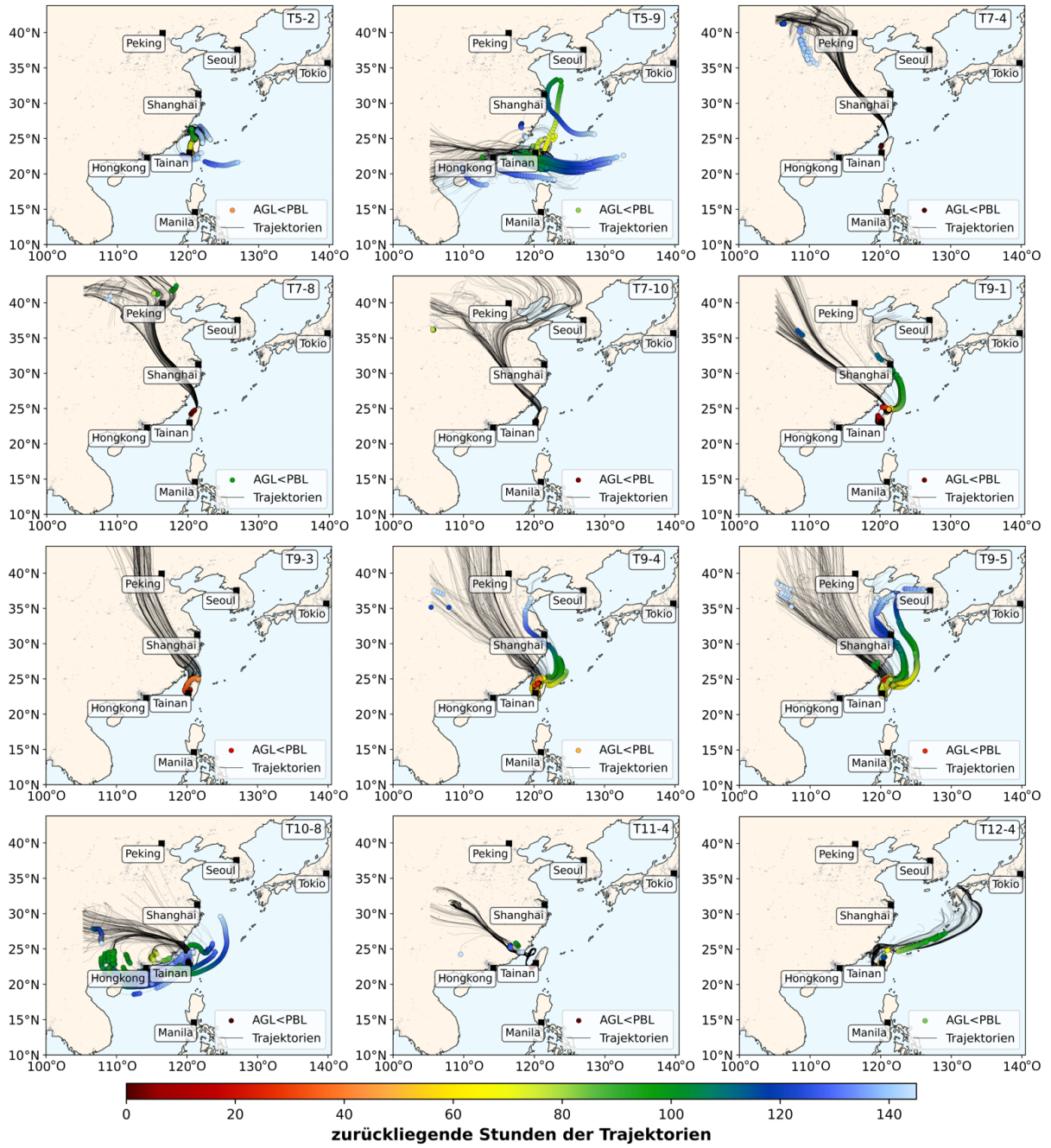


Abbildung 85: Rückwärtstrajektorien der Zeitspannen, welche anhand ihres Kontakts mit der PBL, erkennbar durch die Farbcodierung, als lokale Emissionen klassifiziert wurden.

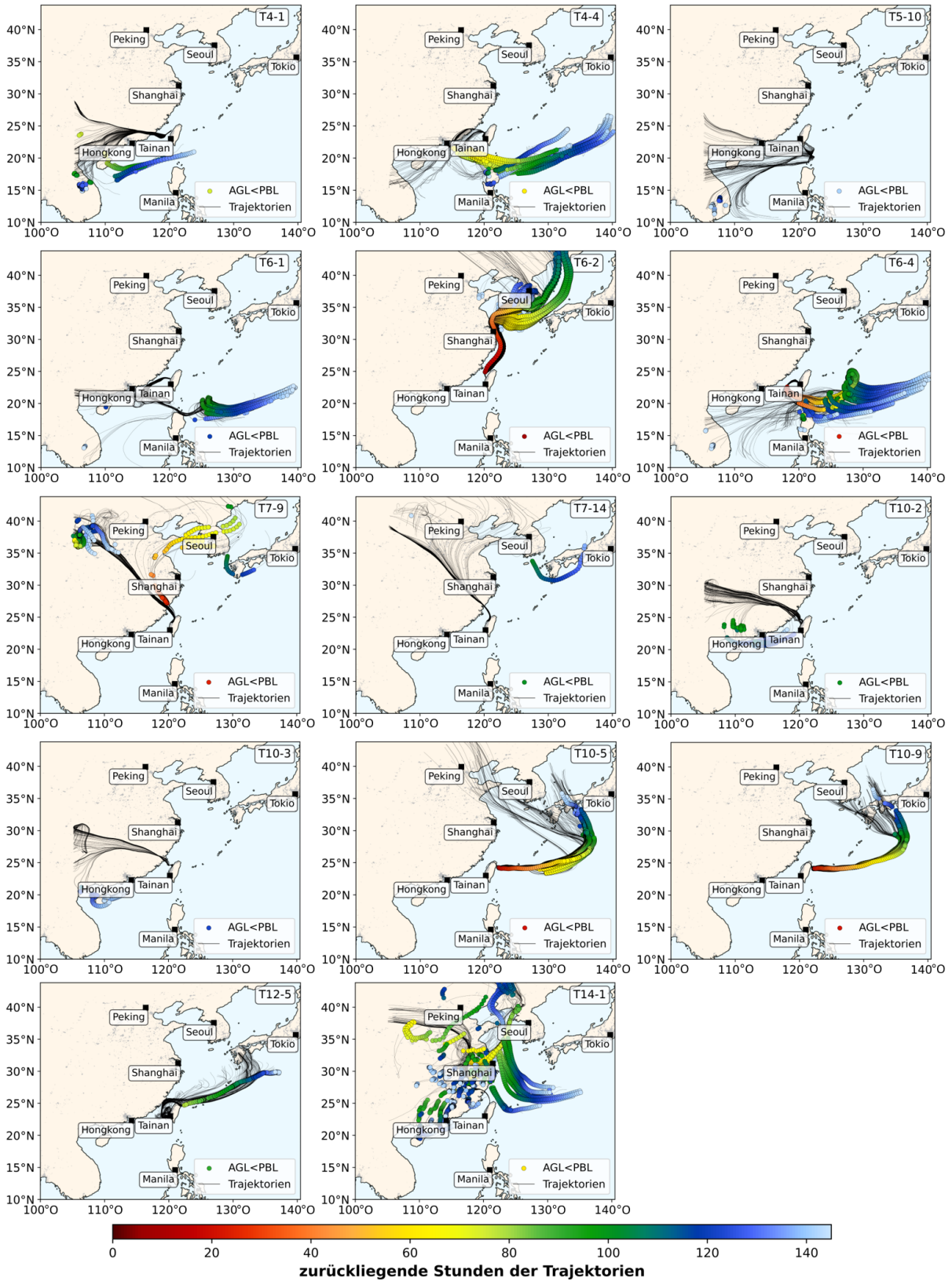


Abbildung 86: Rückwärtstrajektorien der Zeitspannen, welche anhand ihres Kontakts mit der PBL, erkennbar durch die Farbcodierung, als transportierte Emissionen klassifiziert wurden.

7 Verzeichnis der Abkürzungen und Symbole

Akronyme

ACE-Asia	Asian Pacific Regional Aerosol Characterization Experiment
ACN	Klassifizierung über das Vorhandensein von Acetonitril
AGL	Above ground level → Höhe über Grund
AMETYST	Aerosol Measurement System
AMTEX	Atmospheric Trace Experiment
ARL	Air Resources Laboratory
BAHAMAS	Basic HALO Measurement and Sensor System
BC	Black Carbon
BEN	Klassifizierung über das Vorhandensein von Benzol
BeNeLux	Belgien, Niederlande, Luxemburg
CFC	Chlorofluorocarbon → Chlorfluorkohlenstoff
CMD	Count Median Diameter → medianer Partikeldurchmesser
CPC	Condensation Particle Counter → Kondensationskernzähler
C-ToF-AMS	Compact Time-of-Flight Aerosol Mass Spectrometer
DLR	Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt
DMA	Differential Mobility Analyzer → differentieller Mobilitätsanalysator
ECMWF	European Centre for Medium-Range Weather Forecasts
EMeRGe	Effect of Megacities on the Transport and Transformation of Pollutants on the Regional to Global Scales
FCE	Faraday-Cup Elektrometer
GEOS-5	Goddard Earth Observing System Model, Version 5
GSAT	Global Mean Surface Air Temperature
HALO	High Altitude and Long Range → Forschungsflugzeug
HASI	HALO Aerosol Submicrometer Inlet

HCFC	Hydrochlorofluorocarbon → Fluorchlorkohlenwasserstoff
HFC	Hydrofluorocarbon → Fluorkohlenwasserstoff
HKMS	HALO Karlsruhe Mass Spectrometer
HYSPLIT	Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory → Modell zur Berechnung von Rückwärtstrajektorien
IMPACT	Integrated Measurement Program for Aerosol and Oxidant Chemistry in Tokyo
IPA	Institut für Physik der Atmosphäre
KIT	Karlsruher Institut für Technologie
MAC	Mass Absorption Cross Section
MACE	Manila Aerosol Characterization Experiment
MCMA	Mexico City Metropolitan Area
MCMC	Markow-Chain-Monte-Carlo
MEGAPOLI	Megacities: Emissions, urban, regional and global atmospheric pollution and climate effects, and integrated tools for assessment and mitigation
MFC	Mass Flow Controller → Massenflussregler
MILAGRO	Megacity Initiative: Local and Global Research Observations
MPIC	Max-Planck-Institut für Chemie
NMVOC	Non-Methane Volatile Organic Compounds → flüchtige organische Verbindungen ohne Methan
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration
OPC	Optical Particle Counter → optischer Partikelzähler
PACE-7	Pacific Atmospheric Chemistry Experiment
PBL	Planetary Boundary Layer → planetare Grenzschicht
PM _{2.5}	Masse der feinen Partikel (<2.5 μm)
PRIDE-PRD	Program of regional integrated experiments of air quality over Pearl River Delta
PSAP	Particle Soot/Absorption Photometer
PSL-Partikel	monodisperse Partikelgrößenstandards aus Polystyrol
REPARTEE	Regents Park and Tower Environmental Experiment

SMPS	Scanning Mobility Particle Sizer
SP2	Single Particle Soot Photometer
STP	Standard Temperature and Pressure
TD	Thermodenuder
TRACE-P	Transport and Chemical Evolution over the Pacific
UTC	koordinierte Weltzeit
WHO	World Health Organization → Weltgesundheitsorganisation
VOC	Volatile Organic Compounds → flüchtige organische Verbindungen

Chemische Summenformeln und Isotope

^{241}Am	Americium-241
CH_4	Methan
CO	Kohlenstoffmonoxid
CO_2	Kohlenstoffdioxid
H_2O	Wasser
H_2SO_4	Schwefelsäure
N_2O	Distickstoffmonoxid
NO_3	Nitrate
NO_x	Stickoxide
O_3	Ozon
OH	Hydroxyl-Radikal
SO_2	Schwefeldioxid

Einheiten

A	Ampere
C	Coulomb
°C	Grad Celsius

cm	Zentimeter
ft	Fuß
g	Gramm
hPa	Hektopascal
J	Joule
K	Kelvin
km	Kilometer
L	Liter
m	Meter
μg	Mikrogramm
μm	Mikrometer
min	Minute
mm	Millimeter
nm	Nanometer
ppbV	parts per billion by volume → Volumenmischungsverhältnis
s	Sekunde
V	Volt
W	Watt pro Quadratmeter

Formelzeichen

a_i	Koeffizient für die Korrektur der Mehrfachladung
A, B, C	Parameter von Kim et al. (2005)
\mathring{A}_{abs}	Absorptions-Ångström-Exponent
A_{spot}	Fläche des Spots auf dem Filter vom PSAP
$A_{spot_{corr}}$	korrigierte Fläche des Spots auf dem Filter vom PSAP
b	blur: Unsicherheit des Instruments
b_{abs}	Absorptionskoeffizient intern vom PSAP berechnet

$b_{abs_{blau}}$	intern berechneter Absorptionskoeffizient für die blaue Wellenlänge	
$b_{abs_{rot}}$	intern berechneter Absorptionskoeffizient für die rote Wellenlänge	
BC_m	Massenkonzentration von Black Carbon	
c	intercept	
C_n	korrigierte Anzahlkonzentration für den jeweiligen Größenkanal	
C_N	Gesamtkonzentration	
C_{n1}	Konzentration der Partikel mit einer Einfachladung	
D	Diffusionsparameter	
\tilde{D}	dimensionslose Partikel-Diffusität	
D_{n_median}	Mediandurchmesser des Größenkanals	
D_p	Partikeldurchmesser	
e	Elementarladung	$1.60217733 \cdot 10^{-19} \text{ C}$
Eff	Zähleffizienz	
f_{44}/f_{43}	Verhältnis von m/z 44 zu m/z 43 jeweils im Verhältnis zum organischen Gesamtsignal des Massenspektrometers	
f_n	Wahrscheinlichkeit für eine n-fache Mehrfachladung	
G_{DMA}	dimensionslose geometrische Faktor des DMAs	
h_0, h_1	Konstanten von Virkkula (2010) für die jeweiligen Wellenlängen	
I_γ	Parameter von Stolzenburg (1988)	
k_0, k_1	Konstanten von Virkkula (2010) für die jeweiligen Wellenlängen	
k_B	Boltzmann-Konstante	$1.3806452 \cdot 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$
Kn	Knudsen-Zahl	
l	mittlere freie Weglänge	
l_0	freie Weglänge von Luft bei 1013 hPa und 20 °C	
L	aktive Länge des DMAs	
m	slope	
m/z	Massen-Ladung Verhältnis	

n	Ladungsanzahl des Partikels	
$N_{+/-}$	Ionenanzahl	
$N(D_p)$	Partikelanzahl bei Durchmesser D_p	
N_{CPC}	gemessene Anzahlkonzentration am CPC	
N_{double}	Anzahlkonzentration der Doppelladung	
N_{FCE}	gemessene Anzahlkonzentration des FCEs	
$N_{FCEcorr}$	korrigierte Anzahlkonzentration des FCEs	
$N_{measured}$	gemessene Anzahlkonzentration	
p	Druck	
p_0	Standarddruck	1013.25 hPa
$p_{Einlass}$	Einlassdruck	
p_h	höchste Druckstufe bei der Unterdruckmessung	
Q_a	Probenluftstrom im DMA	
Q_{ai}	eingehender Probenluftstrom im DMA	
Q_{ao}	ausgehender Probenluftstrom im DMA	
$Q_{PSAP_{mass}}$	Massenfluss durch das PSAP	
$Q_{PSAP_{corr}}$	korrigierter Volumenfluss durch das PSAP	
Q_s	Schleierluftstrom im DMA	
Q_{si}	eingehender Schleierluftstrom im DMA	
Q_{so}	ausgehender Schleierluftstrom im DMA	
R_1	Radius der Innenelektrode vom DMA	2.6 cm
R_2	Radius der Außenelektrode vom DMA	4.0 cm
s	Streukorrekturfaktor von Virkkula (2010)	
S	Sutherland-Konstante	110.4 K
S_c	Verschiebungskorrekturfaktor	
T	Temperatur	
T_0	Standardtemperatur	273.15 K

T_{20}	Temperatur bei 20 °C in Kelvin	296.15 K
Tr	durchschnittliche Transmission des Lichts durch den Filter	
Tr_t	Transmission des PSAP-Filters zum Zeitpunkt t	
$Tr_{t-\Delta t}$	Transmission des PSAP-Filters vor der Zeitspanne Δt	
U	angelegte Spannung am DMA	
var	absolute Gaußsche Varianz der Zählraten in den einzelnen OPC-Kanälen	
V_{PSAP}	Volumen, das während einer Zeitspanne Δt den Filter des PSAPs passiert	
$V_{PSAP_{corr}}$	korrigiertes Volumen, das während einer Zeitspanne Δt den Filter des PSAPs passiert	
x_1, \dots, x_{12}	Parameter	
$Z_{+/-}$	Ionenmobilität	
Z_e	elektrischen Mobilität	
\tilde{Z}_p	dimensionslose Mobilität	

Griechische Buchstaben

α	Verstärkungsfaktor zwischen den beiden Verstärkerstufen des OPCs	
β	Offset zwischen den beiden Verstärkerstufen des OPCs	
γ	Parameter von Stolzenburg (1988)	
$\Delta\varphi$	elektrischen Flussänderung vom Probenlufteingang zum Probenluftausgang	
ε	relativer Fehler	
ε_0	elektrische Feldkonstante	$8.854187817620 \cdot 10^{-12} \text{ As Vm}^{-1}$
$\varepsilon_{abs_{blau}}$	Standardabweichung des blauen Absorptionskoeffizienten $b_{abs_{blau}}$	
$\varepsilon_{abs_{rot}}$	Standardabweichung des roten Absorptionskoeffizienten $b_{abs_{rot}}$	
$\varepsilon_{\text{\AA}_{abs}}$	Fehler des Absorptions-Ångström-Exponenten	
ζ	Verhältnis von der Summe des ein- und ausgehenden Probeluftstroms zur Summe des ein- und ausgehenden Schleierluftstroms	
η	Viskosität des Gases	
η_0	Viskosität von Luft	$1.8325 \cdot 10^{-5} \text{ kg ms}^{-1}$

η_{FCE}	Detektionseffizienz vom FCE
κ	Parameter von Stolzenburg (1988)
λ	Wellenlänge
ξ	Verhältnis von der Differenz des eingehenden und ausgehenden Probeluftstroms zur Summe von diesen beiden
ρ	Aerosoldichte
σ	Standardabweichung
σ_0	Unkorrigierter Absorptionskoeffizient
σ_{abs}	Absorptionskoeffizient
$\sigma_{abs_{blau}}$	Absorptionskoeffizient der blauen Wellenlänge
$\sigma_{abs_{rot}}$	Absorptionskoeffizient der roten Wellenlänge
σ_d	dimensionsloser Diffusionsparameter des DMAs
σ_{streu}	Streukoeffizient
ω_0	einfache Streualbedo
Ω_d	diffuse Transferfunktion

8 Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1: Globale Verteilung von Aerosolen von NASA/Goddard (2012). Rot steht dabei für Staub, Blau für Seesalz, Grün für Rauch und Weiß für Sulfat-Aerosole.	1
Abbildung 2: Einteilung von Aerosolen in die vier verschiedenen Moden anhand ihres Partikeldurchmessers. Außerdem aufgetragen sind die Transformationsprozesse mit den gestrichelten Pfeilen. In der obersten Zeile sind beispielhafte Partikeltypen für die jeweilige Größe angegeben (DWD 2022).....	3
Abbildung 3: Strahlungsantrieb von verschiedenen Aerosoltypen und Treibhausgasen für die Zeitspanne von 1750-2019 in a) und die Änderungen bezüglich der mittleren globalen Oberflächentemperatur (Global Mean Surface Air Temperature (GSAT)) in b), entnommen von Szopa et al. (2021) und basierend auf den Daten von Thornhill et al. (2021). Die Fehlerbalken entsprechen jeweils einem Vertrauensintervall von 5-95 %. Der direkte Effekt der Aerosolpartikel ist durch die hellviolette Farbe gekennzeichnet und der indirekte Effekt durch die dunkelviolette Farbe.	4
Abbildung 4: Globale Gesamtmassenverteilung der feinen Partikel (PM _{2.5}) in der oberen Karte und in der unteren Karte unter Ausschluss von Staub und Seesalz für die Zeitspanne von 2001-2010 (van Donkelaar et al. 2015).....	6
Abbildung 5: Entwicklung der Lebensräume der Weltbevölkerung mit historischen Daten von 1950-2010 und der Vorhersage bis 2050 (Seto et al. 2014).	8
Abbildung 6: Die größten Ballungsgebiete weltweit im Jahr 2018, dargestellt durch die Punkte mit verschiedener Farbe und Größe je nach Einwohnerzahl, und die Urbanisierung der einzelnen Länder dargestellt durch die blaue Einfärbung, welche den entsprechenden Prozentbereichen entsprechen (United Nations 2019a).	8
Abbildung 7: Feuerkarten für den kompletten Messzeitraum von EMeRGe-EU (a) und von EMeRGe-Asien (b) (FIRMS - Fire Information for Resource Management System 2022).	15
Abbildung 8: Die Flugrouten von EMeRGe-EU auf einer Karte dargestellt, welche die Urbanisierung durch graue Cluster auf der hellbeigen Landfläche abbildet.	16
Abbildung 9: Die Flugrouten von EMeRGe-Asien, ausgenommen die Transferflüge von und nach Oberpfaffenhofen, abgebildet auf einer Karte, die die Urbanisierung durch graue Cluster auf der hellbeigen Landfläche widerspiegelt.....	17
Abbildung 10: HALO mit seinen diversen Außenkonfigurationen. Speziell gekennzeichnet sind hierbei der Nasenmast und der HASI Einlass (HALO-SPP 1294). Ebenfalls zu erkennen sind die verschiedenen Einlässe für die Spurengasmessungen und die Flügelstationen, wobei letztere bei EMeRGe nicht im Einsatz waren.	22
Abbildung 11: Definition eines Messlegs dargestellt durch die verschiedenen Ausschlusskriterien. Ausgeschlossen werden Zeitspannen bei denen die Sink- oder Steigrate oberhalb von 200 ft min ⁻¹ liegt (oben links), die Zeitdauer weniger als 120 Sekunden beträgt (oben rechts), die Mindesthöhe von 200 Meter über Grund unterschritten wird (unten links) oder der Rollwinkel des Flugzeugs mehr als 7 ° ist (unten rechts).	23

- Abbildung 12: Ein Foto vom AMETYST in der Frontansicht ist in a) zu sehen. Von oben nach unten ist die Einheit zur Stromversorgung mit den roten Schaltern, gefolgt vom PSAP-Einschub und dem Bildschirm mit Tastatur zu sehen. Nach dem Einschub mit dem Rechner, folgt der CPC-Einschub, welcher von vorne hinter einem Gitter verborgen ist. Im unteren Teil befinden sich dann noch die Hauptpumpe, die DMAs und die MFCs. In b) ist eine vereinfachte schematische Verrohrung der einzelnen Geräte im AMETYST dargestellt, wobei der Aerosoleinlass vom AMETYST mit einem schwarzen Pfeil markiert ist. Die CPCs, die OPCs und das PSAP sind als detektierende Geräte weiß hinterlegt, wohingegen die Thermodenuder (TD) und die DMAs blau hinterlegt sind. Vor den zwei CPCs, welche mit einem DMA verbunden sind, befinden sich außerdem jeweils ein Dreivegehahn. 24
- Abbildung 13: Gaslaufplan vom AMETYST vom Einlass bis zu den detektierenden Geräten (grün) mit dazugehöriger Nummerierung der Rohrleitungen. Die Flowsplitter sind in einem dunkleren grau gehalten, genau wie der CPC-Einschub. Die Ein- und Ausgänge der zu durchströmenden Geräte (DMAs und Thermodenuder) und die DMAs selbst sind in blau gehalten und die Dreivegehähne in orange. 25
- Abbildung 14: Schematischer Aufbau eines CPCs aus der Broschüre für die stationären Kondensationskernzähler der Modellreihe 5.410 – 5.421 von GRIMM Aerosol Technik (2012). 26
- Abbildung 15: Schematischer Aufbau eines DMAs, modifiziert aus der Gebrauchsanleitung des Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) der Firma TSI Incorporated (2002). 28
- Abbildung 16: In a) ist das Messprinzip eines OPCs dargestellt, wobei der Probenluftstrom von oben nach unten strömt. In b) ist die komplette Messzelle des OPCs dargestellt, sodass ersichtlich ist, wie der Laser von Linsen gebündelt und auf den Messpunkt fokussiert wird. Die Probenluft strömt dabei in die Blattebene hinein. Beide Graphiken wurden aus der Bedienungsanleitung von GRIMM Aerosol Technik (2007) für den Sky-OPC Modell 1.129 übernommen. 29
- Abbildung 17: Aufbau des optischen Blocks vom PSAP mit dem Probenfilter links und dem Referenzfilter rechts. Adaptiert von der Bedienungsanleitung für das 3λ -PSAP von Radiance Research (Rom version 2.03), von Bond et al. (1999) und von der Dissertation von Markus Fiebig (2001). 30
- Abbildung 18: In a) ist der gesamte Flug 5 von EMerGe-Europa vom 17.07.2017 mit dem Ziel der Beprobung der Abgasfahne von London im Ärmelkanal dargestellt, wobei die Gesamtanzahlkonzentration gemessen mit dem CPC3 in Rot dargestellt ist und die Anzahlkonzentration gemessen mit dem OPC1 im Bereich von 250 nm bis 3 μ m in Blau. Die gestrichelte Linie ist die Druckhöhe auf welcher geflogen wurde und welche auf der rechten y-Achse dargestellt ist. Der beigefarbene markierte Bereich entspricht der Zeitspanne, in welcher der DMA ausgewertet wurde. Eine vergrößerte Ansicht von Messleg 10, welches ebenfalls in a) markiert wurde, ist in b) dargestellt. 32
- Abbildung 19: Zeitreihe der mit dem DMA auszuwertenden Zeitspanne bezüglich der Anzahlkonzentration gemessen am CPC1, der eingestellten Spannung am DMA und dem eingestellten Partikeldurchmesser im oberen Graph und der Gesamtanzahlkonzentration im unteren Graph. Der zu erkennende Peak in der CPC1 Anzahlkonzentration ist ein Artefakt, welches durch die Umstellung der

Spannung bei einem neuen Scandurchlauf des DMAs vom größten auf den kleinsten Durchmesser entsteht.	32
Abbildung 20: Mit dem DMA ausgewertete Zeitreihe mit der Kennzeichnung der Mittelwerte bei dem jeweilig eingestellten Partikeldurchmesser.	33
Abbildung 21: Die diffuse Transferfunktion Ωd für die einzelnen Größenkanäle, farblich markiert, gemessen mit dem DMA aufgetragen gegen den Partikeldurchmesser. Mit Hilfe eines schwarzen Punkts sind die eingestellten Partikeldurchmesser auf der Kurve der diffusen Transferfunktion eingezeichnet.	37
Abbildung 22: Schematischer Versuchsaufbau zur Unterdruckmessung mit den CPCs. Die roten Pfeile kennzeichnen die Flussrichtung.	42
Abbildung 23: Anpassungen durch die emcee-Methode für die einzelnen CPCs. Die Datenpunkte der Kalibrierung sind als schwarze Punkte dargestellt, wohingegen alle möglichen Anpassungsversuche durch die grauen Linien gekennzeichnet sind und die finale Anpassung, welche am besten passt, durch die rote Linie.	46
Abbildung 24: Dargestellt ist die druckabhängige Effizienz der verschiedenen CPCs. Die gestrichelten Linien kennzeichnen die 16. und 84. Perzentile aller Anpassungsversuche, welche in etwa einer 1- σ Abweichung entspricht, und die durchgängigen Linien kennzeichnen den Median als beste Anpassung der Effizienz der einzelnen CPCs.	46
Abbildung 25: Der Streuquerschnitt für die Streugeometrie im SkyOPC aufgetragen gegen den Partikeldurchmesser von 0.1 μm bis 10 μm . In orange sind die genutzten PSL-Partikelgrößen dargestellt.	47
Abbildung 26: In der linken Spalte sind die Anzahlkonzentrationen gemessen in den einzelnen OPC-Kanälen unkorrigiert aufgetragen, wohingegen in der rechten Spalte der Hintergrund, verursacht vom Wasser, herauskorrigiert wurde.	48
Abbildung 27: Ergebnis der kalibrierten Parameter des OPCs mit der Seriennummer 29G10003 durch die Markow-Chain-Monte-Carlo Methode. Die gestrichelten Linien in den Histogrammen kennzeichnen den Median und das 16. und 84. Perzentil. Der Wert des Medians und die Abstände zu den Perzentilen für die jeweiligen Parameter sind oberhalb der Histogramme angegeben.	49
Abbildung 28: Vergleich zwischen den modellierten (blau) und gemessenen (grau) Histogrammen. In a) mit den Parametern aus der Startnäherung und in b) mit den kalibrierten Parametern von der MCMC-Methode.	50
Abbildung 29: In a) sind die Wahrscheinlichkeiten der Transferfunktionen für die verschiedenen OPC-Kanäle gegen den Partikeldurchmesser aufgetragen und in b) sind diese normiert worden und kumulativ aufgetragen.	51
Abbildung 30: Filter des PSAPs vom 28.03.2018 während EMERGe-Asien. Links der Filter mit der Ablagerung des Aerosols und rechts der Referenzfilter.	53
Abbildung 31: Transmissionseffizienz berechnet durch den Particle Loss Calculator beispielhaft für den CPC1 für verschiedene Druckstufen. Für die Temperatur und den Fluss durch die Rohrleitung F4 werden die Mittelwerte $T=30.2\text{ }^\circ\text{C}$ und $F4=2.2\text{ L min}^{-1}$ verwendet.	56
Abbildung 32: Transmissionseffizienz auf der Druckstufe 500 hPa mit allen Variationen der Temperatur und des Flusses F4. Wenn keine andere Temperatur oder Fluss angegeben sind, wurde der Mittelwert dieser beiden Parameter verwendet.	56

Abbildung 33: Die blauen Datenpunkte des Parameters x_6 für die verschiedenen Druckstufen aufgetragen. Die graue Linie entspricht der Anpassung durch Formel 2.51.	57
Abbildung 34: Transmissionseffizienzen vom CPC1 auf den verschiedenen Druckstufen berechnet durch den Particle Loss Calculator mit den jeweils dazugehörigen Parametrisierungen in den helleren Farben.	58
Abbildung 35: Rückwärtstrajektorien von HYSPLIT mit Kontakt zur PBL, welcher anhand der zurückliegenden Zeit der Trajektorien farbcodiert ist. In a) ist so eine lokale Luftmasse identifiziert worden, da der Kontakt mit der PBL, gekennzeichnet durch die farbcodierten Punkte, nur über Taiwan stattfand, während bei b) eine transportierte Luftmasse vermessen worden ist, welche nur über dem asiatischen Kontinent Kontakt mit der PBL hatte.	61
Abbildung 36: Flugrouten vom ersten (a) und zweiten (b) London-Flug auf einer urbanen Karte aufgetragen mit der Gesamtanzahlkonzentration als Farbcodierung.	64
Abbildung 37: Zeitlicher Verlauf der Anzahlkonzentrationen für das Gesamtaerosol in rot und für den Bereich von 250 nm bis 3 μm in blau für den ersten London-Flug in a) und den zweiten London-Flug in b). Außerdem ist auf der zweiten y-Achse die jeweilige Druckhöhe angegeben, auf welcher geflogen wurde. Die vertikalen Balken markieren die jeweiligen ausgewerteten Zeitspannen mit Einfluss von London.	65
Abbildung 38: Messorte der ausgewerteten Zeitspannen auf einer urbanen Karte in a) und in b) und c) die Zugrichtung der vermessenen Aerosolmassen mit der dazugehörigen Windgeschwindigkeit als Farbcodierung für den ersten London-Flug (b) und den zweiten London-Flug (c).	67
Abbildung 39: Flugrouten der drei Manila-Flüge auf einer urbanen Karte aufgetragen mit der Gesamtanzahlkonzentration als Farbcodierung.	68
Abbildung 40: Zeitlicher Verlauf der Anzahlkonzentration für das Gesamtaerosol in rot und für den Bereich von 250 nm bis 3 μm in blau für den ersten Manila Flug im oberen Graphen, für den zweiten Manila-Flug im mittleren Graphen und für den dritten Manila-Flug im unteren Graphen. Außerdem ist auf der zweiten y-Achse jeweils die Druckhöhe, auf welcher geflogen wurde, aufgezeichnet. Die vertikalen Balken in orange markieren die ausgewerteten Zeitspannen, in welchen die Abgasfahne von Manila vermessen wurde.	69
Abbildung 41: In a) sind die Messorte der ausgewerteten Zeitspannen, welche die Abgasfahne von Manila beprobten, durch blaue Sterne auf einer urbanen Karte gekennzeichnet. Eine Windrose, welche die Zugrichtung der vermessenen Aerosolmassen mit Einfluss von Manila mit der dazugehörigen Windgeschwindigkeit als Farbcodierung wiedergibt, ist für alle drei Manila-Flüge in b) dargestellt.	71
Abbildung 42: Die Druckhöhe der ausgewerteten Zeitspannen von der Beprobung der Abgasfahnen von London und Manila, eingeteilt in Höhenschritte von je 200 m.	72
Abbildung 43: Größenverteilungen der einzelnen Zeitspannen mit farblicher Einteilung der einzelnen Flüge nahe London und Manila. Der Fehlerbalken in x-Richtung kennzeichnet die Kanalbreite und der in y-Richtung die Standardabweichung der logarithmisch normalverteilten Anzahlkonzentration über die Zeitspanne hinweg.	73

- Abbildung 44: Boxplots der Größenverteilungen aus den Zeitspannen, welche die Abgasfahne von London beziehungsweise Manila beprobt haben. Die Box umfasst dabei die Werte vom ersten bis zum dritten Quartil, die Linien innerhalb der Boxen geben den Median an, die Fehlerbalken das 1.5-fache des Interquartilsabstandes und die leeren Kreise sind Ausreißer, die noch außerhalb der Fehlerbalken liegen. Die Breite der Box sind durch die Grenzen des jeweiligen Größenkanals bestimmt. Außerdem sind noch die Count Median Diameters (CMD) durch vertikale Linien eingezeichnet, deren Werte mit Standardabweichung in der Legende zu finden sind. .. 74
- Abbildung 45: Absorptionskoeffizienten aller gemessener Wellenlängen mit dem PSAP für die einzelnen Zeitspannen nahe London und Manila. Die Farbe der Punkte entsprechen denen der London- und Manila-Flüge aus den vorigen Abbildungen und die Fehlerbalken geben die Standardabweichung der PSAP-Messungen wieder, wobei das Ende des Fehlerbalkens, welcher über die Skala hinausreicht, durch den Wert neben dem entsprechendem Fehlerbalken gekennzeichnet ist. Die vertikalen Balken in Orange und Rot geben die Signifikanz der gemessenen Absorptionskoeffizienten an. Orange steht dabei für eine 1σ -Signifikanz, die zumindest erreicht wurde, Rot hingegen ist gar nicht signifikant. Die anderen Zeitspannen ohne einen orangenen oder roten Balken weisen also mindestens eine 2σ -Signifikanz auf. 75
- Abbildung 46: Absorptions-Ängström-Exponenten der Zeitspannen, bei denen der Absorptionskoeffizient im roten Wellenlängenbereich signifikant ist. Die Fehler wurden, wie in Kapitel 2.2.6 beschrieben, berechnet und als Fehlerbalken eingezeichnet. Das Ende des Fehlerbalkens, welcher über die betrachtete Skala hinausreicht, ist durch den Wert neben dem entsprechenden Fehlerbalken angezeigt. Die Einteilung in Organisches Aerosol, Staub und Black Carbon wurde aus Bond et al. (2013) entnommen. 75
- Abbildung 47: Darstellung der Mass Absorption Cross Section (MAC) für alle Zeitspannen, bei denen der Absorptionskoeffizient der roten Wellenlänge signifikant ist. Die Fehlerbalken wurden mittels einer Gaußschen Fehlerfortpflanzung ermittelt und das Ende des Fehlerbalkens, welches über die Skala hinausreicht, wurde auch hier durch den Wert neben dem entsprechendem Fehlerbalken gekennzeichnet. 76
- Abbildung 48: Flugrouten der verschiedenen Flüge an der Westküste von Taiwan mit der Gesamtanzahlkonzentration als Farbcodierung. 78
- Abbildung 49: Messorte der Zeitspannen mit klassifizierten lokalen und transportierten Emissionen an der Westküste von Taiwan auf einer urbanen Karte dargestellt. Die Klassifizierung erfolgte dabei wie in Kapitel 2.4 beschrieben. 79
- Abbildung 50: Boxplots der normierten Größenverteilungen aus den Zeitspannen, welche als lokale und transportierte Emissionen klassifiziert werden konnten. Die Box umfasst dabei die Werte vom ersten bis zum dritten Quartil, die Linien innerhalb der Boxen geben den Median an, die Fehlerbalken das 1.5-fache des Interquartilsabstandes und die leeren Kreise sind Ausreißer, die noch außerhalb der Fehlerbalken liegen. Außerdem sind noch die Count Median Diameters (CMD) durch vertikale Linien eingezeichnet, deren Werte mit Standardabweichung in der Legende zu finden sind. 81
- Abbildung 51: Die korrigierten Absorptionskoeffizienten der blauen Wellenlänge in der ersten Zeile, der grünen Wellenlänge in der mittleren Zeile und der roten Wellenlänge in der unteren Zeile für die Zeitspannen mit lokalen Emissionen in der

linken Spalte und mit transportierten Emissionen in der rechten Spalte. Die Fehlerbalken sind die Standardabweichungen der unkorrigierten intern vom PSAP berechneten Absorptionskoeffizienten. Die Enden der Fehlerbalken, welche über die gewählte Skala hinausragen sind durch die Werte neben den entsprechenden Fehlerbalken angegeben. Der vertikale orange Balken zeigt außerdem den Absorptionskoeffizienten an, welcher nur eine 1- σ Signifikanz im Vergleich zur PSAP-Nullmessung aufweist.	82
Abbildung 52: Absorptions-Ångström-Exponenten der Zeitspannen mit lokalen Emissionen im linken Graphen und mit transportierten Emissionen im rechten Graphen. Die Fehlerbalken ergeben sich aus der Gaußschen Fehlerfortpflanzung und die Enden der Fehlerbalken, welche über die Skala hinausragen, sind durch die Werte neben den entsprechenden Fehlerbalken gekennzeichnet. Die Einteilung in Organisches Aerosol, Staub und Black Carbon ist wie in Abbildung 46 aus Bond et al. (2013) entnommen.	83
Abbildung 53: Die Mass Absorption Cross Section (MAC) der Zeitspannen mit klassifizierten lokalen Emissionen im linken Graphen und transportierten Emissionen im rechten Graphen. Die Fehlerbalken wurden auch hier durch eine Gaußsche Fehlerfortpflanzung bestimmt und die Enden der Fehlerbalken, welche über die Skala hinausragen, wird auch hier durch die Werte neben den entsprechenden Fehlerbalken gekennzeichnet.	83
Abbildung 54: Die Größenverteilungen der lokalen Emissionen (linker Graph) und der transportierten Emissionen (rechter Graph) farbcodiert mit dem Verhältnis von f_{44}/f_{43}	84
Abbildung 55: Größenverteilungen der lokalen und transportierten Emissionen unter Vernachlässigung der Schnittmenge im Verhältnis von f_{44}/f_{43} , sodass nur die Größenverteilungen der jüngsten lokalen und ältesten transportierten Luftmassen dargestellt werden.	84
Abbildung 56: Die Absorptionskoeffizienten der verschiedenen Wellenlängen gegen die Black Carbon Massenkonzentration aufgetragen. Die Fehlerbalken entsprechen den jeweiligen Standardabweichungen und die Farben der Datenpunkte stimmen mit den verschiedenen Flügen von London und Manila und den lokalen und transportierten Emissionen der vorherigen Abbildungen überein.	87
Abbildung 57: Korrelationsplots bei denen die CO-Konzentration (a), die Black Carbon Massenkonzentration (b), die Ozon-Konzentration (c) und das Verhältnis f_{44}/f_{43} (d) gegen den Count Median Diameter aufgetragen sind. Die Farben entsprechen den jeweiligen London und Manila-Flügen und außerdem ist für jeden Parameter die dazugehörige Korrelation mit dem CMD angegeben.	88
Abbildung 58: Im linken Graph befindet sich der Korrelationsplot vom Count Median Diameter (CMD) gegen das Verhältnis von f_{44}/f_{43} in den Farben der London- und Manila-Flüge. Außerdem ist der Bereich von 2.35 bis 2.8 in grau gekennzeichnet, welcher für den Vergleich der normierten Größenverteilungen bei gleicher Alterung von London und Manila im rechten Graphen herangezogen wurde.	89
Abbildung 59: Feuerkarten der einzelnen Flugtage der Manila-Flüge in der ersten Zeile und deren Vortage in der zweiten Zeile (FIRMS - Fire Information for Resource Management System 2022).	90

Abbildung 60: Boxplots aus den Größenverteilungen der einzelnen Flüge dargestellt mit einer linearen y-Achse.	92
Abbildung 61: Im rechten Graphen der Korrelationsplot vom CMD mit der Methan-Konzentration und in der Karte links die Standorte der Bohrinseln in der Nordsee neben den markierten Messstandorten der ausgewerteten Zeitspannen der beiden London-Flüge.....	93
Abbildung 62: Messstandorte von der Beprobung der Zuflüsse von Manila, gekennzeichnet durch die grauen Sterne, und von der Beprobung der Abgasfahne von Manila, gekennzeichnet durch die blauen Sterne.	94
Abbildung 63: Normierte Größenverteilungen der einzelnen Zeitspannen von den Zuflüssen von Manila und derer von der Beprobung der Abgasfahne von Manila. Der Fehlerbalken in x-Richtung kennzeichnet die Kanalbreite und der in y-Richtung die normierte Standortabweichung über die Zeitspanne hinweg. Die Größenverteilungen, welche die Abgasfahne von Manila beprobt haben, sind jeweils in den zuvor verwendeten Blautönen der einzelnen Flüge dargestellt und die Hintergrundmessungen in den Grautönen mit denen sie auch auf der Karte in Abbildung 62 dargestellt wurden.....	95
Abbildung 64: Im linken Graph befindet sich der Korrelationsplot vom Count Median Diameter (CMD) gegen das Verhältnis von f_{44}/f_{43} für die Zeitspannen von der Beprobung der Abgasfahne von Manila und den lokalen und transportierten Emissionen von der Westküste von Taiwan. Außerdem ist der Bereich von 3.55 bis 4.0 in grau gekennzeichnet, welcher für den Vergleich der normierten Größenverteilungen bei gleicher Alterung im rechten Graphen herangezogen wurde.	96
Abbildung 65: Der Korrelationsplot vom Count Median Diameter gegen das Verhältnis von f_{44}/f_{43} für die Zeitspannen von London und Taiwan befindet sich im linken Graphen, bei dem außerdem der Bereich von 1.7 bis 2.2 in grau gekennzeichnet ist. Die Größenverteilungen, welche in diesen Bereich fallen, werden im rechten Graphen miteinander verglichen.....	97
Abbildung 66: Transmissionseffizienzen berechnet durch den Particle Loss Calculator auf den verschiedenen Druckstufen und die jeweils dazugehörigen Parametrisierungen für den CPC2.	i
Abbildung 67: Transmissionseffizienzen berechnet durch den Particle Loss Calculator auf den verschiedenen Druckstufen und die jeweils dazugehörigen Parametrisierungen für den CPC3.	ii
Abbildung 68: Transmissionseffizienzen berechnet durch den Particle Loss Calculator auf den verschiedenen Druckstufen und die jeweils dazugehörigen Parametrisierungen für den OPC1 bei einer angenommenen Aerosoldichte von 1.8 g cm^{-3}	ii
Abbildung 69: Transmissionseffizienzen berechnet durch den Particle Loss Calculator auf den verschiedenen Druckstufen und die jeweils dazugehörigen Parametrisierungen für den OPC1 bei einer angenommenen Aerosoldichte von 2.6 g cm^{-3}	ii
Abbildung 70: HYPLIT Rückwärtstrajektorien für die Zuflüsse von Manila beim zweiten Manila-Flug am 20.03.2018 in a) und b) und beim dritten Manila-Flug am 28.03.2018 in c) und d). Für jede Sekunde der ausgewerteten Zeitspanne wurde	

eine Rückwärtstrajektorie über 144 Stunden erstellt und farblich mit der Höhe über Grund codiert.	iii
Abbildung 71: Zugbahn von Jelawat östlich der Philippinen. Zunächst klassifiziert als tropische Depression, verstärkte sich Jelawat am 30. März 2018 bis zu einem Super-Taifun, bevor er sich wieder abschwächte (JTWC 2018).	iv
Abbildung 72: Zeitlicher Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 µm und der Druckhöhe bei Flug 4 von EMeRGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.	iv
Abbildung 73: Zeitlicher Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 µm und der Druckhöhe bei Flug 5 von EMeRGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.	v
Abbildung 74: Zeitlicher Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 µm und der Druckhöhe bei Flug 6 von EMeRGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.	v
Abbildung 75: Zeitlicher Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 µm und der Druckhöhe bei Flug 7 von EMeRGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.	v
Abbildung 76: Zeitlicher Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 µm und der Druckhöhe bei Flug 8 von EMeRGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.	vi
Abbildung 77: Zeitlicher Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 µm und der Druckhöhe bei Flug 9 von EMeRGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.	vi
Abbildung 78: Zeitlicher Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 µm und der Druckhöhe bei Flug 10 von EMeRGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.	vi
Abbildung 79: Zeitlicher Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 µm und der Druckhöhe bei Flug 11 von EMeRGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.	vii
Abbildung 80: Zeitlicher Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 µm und der Druckhöhe bei Flug 12 von EMeRGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.	vii
Abbildung 81: Zeitlicher Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 µm und der Druckhöhe bei Flug 13 von EMeRGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.	vii

- Abbildung 82: Zeitlicher Verlauf der Gesamtanzahlkonzentration, der Anzahlkonzentration im Bereich von 250 nm bis 3 μm und der Druckhöhe bei Flug 14 von EMeRGe-Asien. Außerdem eingezeichnet sind die klassifizierten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden.viii
- Abbildung 83: Rückwärtstrajektorien erstellt mit HYSPLIT für einen Zeitpunkt der verschiedenen Zeitspannen, bei denen die Abgasfahne von London beprobt wurde. Die Bezeichnung der einzelnen Zeitspannen findet sich oben rechts in den jeweiligen Graphen.xii
- Abbildung 84: Rückwärtstrajektorien erstellt mit HYSPLIT für einen Zeitpunkt der verschiedenen Zeitspannen, bei denen die Abgasfahne von Manila beprobt wurde. Die Bezeichnung der einzelnen Zeitspannen findet sich oben links in den jeweiligen Graphen.xiii
- Abbildung 85: Rückwärtstrajektorien der Zeitspannen, welche anhand ihres Kontakts mit der PBL, erkennbar durch die Farbcodierung, als lokale Emissionen klassifiziert wurden.xiv
- Abbildung 86: Rückwärtstrajektorien der Zeitspannen, welche anhand ihres Kontakts mit der PBL, erkennbar durch die Farbcodierung, als transportierte Emissionen klassifiziert wurden. xv

9 Tabellenverzeichnis

Tabelle 1: Benötigte Konstanten zur Berechnung der diffusen Transferfunktion (Kim et al. 2005).	36
Tabelle 2: Beispiel für die Grenzen der Größenkanäle von den eingestellten Partikeldurchmessern und den dazugehörigen Medianen für eine ausgewertete Zeitspanne.	38
Tabelle 3: Die eingestellten Partikelgrößen aufgetragen gegen die möglichen Partikeldurchmesser durch Einfach- und Mehrfachladungen.....	38
Tabelle 4: Koeffizienten a_i für die Korrektur der Mehrfachladungen sowohl bei positiven Ladungen als auch bei negativen Ladungen n der Partikel (Wiedensohler 1988).	39
Tabelle 5: Wahrscheinlichkeiten f_n für eine Einfach- und Zweifachladung der einzelnen Partikeldurchmesser.	40
Tabelle 6: Die eingestellten Partikelgrößen aufgetragen gegen die möglichen Partikeldurchmesser durch Einfach- und Mehrfachladungen für die Kalibrierung der CPCs im Unterdruck, damit die Korrektur der Konzentrationsabnahme durch die Druckabnahme während des Fluges möglich ist.	43
Tabelle 7: Wahrscheinlichkeiten f für eine Einfach-, Zweifach- und Dreifachladung der eingestellten Partikeldurchmesser.....	44
Tabelle 8: Angaben der unteren Grenze des Herstellers und die kalibrierten Werte für die Mediane und die oberen und unteren Grenzen der einzelnen Größenkanäle vom OPC (Seriennummer: 29G10003).	52
Tabelle 9: Gesamtanzahlkonzentrationen der verschiedenen Zeitspannen, welche für die verschiedenen Flüge an der Westküste von Taiwan vermessen wurden und deren Emissionen mit Hilfe von HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien in lokale (L) und transportierte (T) Emissionen klassifiziert wurden. Die hinterlegten Farben der Emissionstypen stimmen mit denen aus den Abbildungen dieses Kapitels überein.	80
Tabelle 10: Angaben über die Maxima der Größenverteilungen in der Literatur unterteilt in Europa und Asien.	99
Tabelle 11: Auflistung der Gesamtanzahlkonzentrationen in den jeweiligen untersuchten Zeitspannen von der Beprobung der Abgasfahne von London (rot hinterlegt) und Manila (blau hinterlegt) und von den Zuflüssen von Manila (grau hinterlegt).	viii
Tabelle 12: Auflistung der Gesamtanzahlkonzentration in allen ausgewerteten Zeitspannen, welche an der Westküste von Taiwan vermessen wurden. Außerdem aufgelistet ist die Klassifizierung der Emissionen, welche aufgrund der HYSPLIT-Rückwärtstrajektorien erfolgte. „L“ steht dabei für lokale Emissionen, „T“ für transportierte Emissionen, „mix“ für gemischte Emissionen und „-“ steht für Luftmassen, welche innerhalb der letzten 144 Stunden, für welche die Rückwärtstrajektorien berechnet wurden, keinen Kontakt zur planetaren Grenzschicht hatten.....	ix

10 Quellenverzeichnis

- Andreae, M. O., A. Afchine, R. Albrecht, B. A. Holanda, P. Artaxo, H. M. J. Barbosa, S. Borrmann, M. A. Cecchini, A. Costa, M. Dollner, D. Futterer, E. Jarvinen, T. Jurkat, T. Klimach, T. Konemann, C. Knote, M. Kramer, T. Krisna, L. A. T. Machado, S. Mertes, A. Minikin, C. Pöhlker, M. L. Pöhlker, U. Poschl, D. Rosenfeld, D. Sauer, H. Schlager, M. Schnaiter, J. Schneider, C. Schulz, A. Spanu, V. B. Sperling, C. Voigt, A. Walser, J. Wang, B. Weinzierl, M. Wendisch und H. Ziereis. 2018. 'Aerosol characteristics and particle production in the upper troposphere over the Amazon Basin', *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18: 921-961, doi: 10.5194/acp-18-921-2018.
- Andreae, M. O., O. Schmid, H. Yang, D. Chand, J. Z. Yu, L. M. Zeng und Y. H. Zhang. 2008. 'Optical properties and chemical composition of the atmospheric aerosol in urban Guangzhou, China', *Atmospheric Environment*, 42: 6335-6350, doi: 10.1016/j.atmosenv.2008.01.030.
- Andrés Hernández, M. D., A. Hilboll, H. Ziereis, E. Förster, O. O. Krüger, K. Kaiser, J. Schneider, F. Barnaba, M. Vrekoussis, J. Schmidt, H. Huntrieser, A. M. Blechschmidt, M. George, V. Nenakhov, T. Harlass, B. A. Holanda, J. Wolf, L. Eirenschmalz, M. Krebsbach, M. L. Pöhlker, A. B. Kalisz Hedegaard, L. Mei, K. Pfeilsticker, Y. Liu, R. Koppmann, H. Schlager, B. Bohn, U. Schumann, A. Richter, B. Schreiner, D. Sauer, R. Baumann, M. Mertens, P. Jöckel, M. Kilian, G. Stratmann, C. Pöhlker, M. Campanelli, M. Pandolfi, M. Sicard, J. L. Gómez-Amo, M. Pujadas, K. Bigge, F. Kluge, A. Schwarz, N. Daskalakis, D. Walter, A. Zahn, U. Pöschl, H. Bönisch, S. Borrmann, U. Platt und J. P. Burrows. 2022. 'Overview: On the transport and transformation of pollutants in the outflow of major population centres – observational data from the EMERGe European intensive operational period in summer 2017', *Atmospheric Chemistry and Physics*, 22: 5877-5924, doi: 10.5194/acp-22-5877-2022.
- ARL. 2022. 'HYSPLIT Trajectory Model', National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA), Air Resources Laboratory, Zuletzt besucht am 12.04.2022. <https://www.ready.noaa.gov/hypub-bin/trajtype.pl?runtype=archive>.
- Beddows, D. C. S., M. Dall'Osto und R. M. Harrison. 2009. 'Cluster Analysis of Rural, Urban, and Curbside Atmospheric Particle Size Data', *Environmental Science & Technology*, 43: 4694-4700, doi: 10.1021/es803121t.
- Bohren, Craig F. und Donald R. Huffman. 1983. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. 1. Auflage (John Wiley & Sons, Inc.: New York, USA).
- Bond, T. C., T. L. Anderson und D. Campbell. 1999. 'Calibration and intercomparison of filter-based measurements of visible light absorption by aerosols', *Aerosol Science and Technology*, 30: 582-600, doi: 10.1080/0278682993044435.
- Bond, T. C., S. J. Doherty, D. W. Fahey, P. M. Forster, T. Berntsen, B. J. DeAngelo, M. G. Flanner, S. Ghan, B. Karcher, D. Koch, S. Kinne, Y. Kondo, P. K. Quinn, M. C. Sarofim, M. G. Schultz, M. Schulz, C. Venkataraman, H. Zhang, S. Zhang, N. Bellouin, S. K. Guttikunda, P. K. Hopke, M. Z. Jacobson, J. W. Kaiser, Z. Klimont, U. Lohmann, J. P. Schwarz, D. Shindell, T. Storelvmo, S. G. Warren und C. S. Zender. 2013. 'Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment', *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 118: 5380-5552, doi: 10.1002/jgrd.50171.

- Borsos, T., D. Rimnacova, V. Zdimal, J. Smolik, Z. Wagner, T. Weidinger, J. Burkart, G. Steiner, G. Reischl, R. Hitzemberger, J. Schwarz und I. Salma. 2012. 'Comparison of particulate number concentrations in three Central European capital cities', *Science of the Total Environment*, 433: 418-426, doi: 10.1016/j.scitotenv.2012.06.052.
- Boucher, O., D. Randall, P. Artaxo, C. Bretherton, G. Feingold, P. Forster, V.-M. Kerminen, Y. Kondo, H. Liao, U. Lohmann, P. Rasch, S.K. Satheesh, S. Sherwood, B. Stevens und X.Y. Zhang. 2013. 'Clouds and Aerosols.' in T.F. Stocker, D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex und P.M. Midgley (eds.), *Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* (Cambridge University Press: Cambridge, United Kingdom und New York, NY, USA).
- Bundke, U., M. Berg, N. Houben, A. Ibrahim, M. Fiebig, F. Tettich, C. Klaus, H. Franke und A. Petzold. 2015. 'The IAGOS-CORE aerosol package: instrument design, operation and performance for continuous measurement aboard in-service aircraft', *Tellus Series B-Chemical and Physical Meteorology*, 67: 17, doi: 10.3402/tellusb.v67.28339.
- Charlson, R. J., S. E. Schwartz, J. M. Hales, R. D. Cess, J. A. Coakley, J. E. Hansen und D. J. Hofmann. 1992. 'CLIMATE FORCING BY ANTHROPOGENIC AEROSOLS', *Science*, 255: 423-430, doi: 10.1126/science.255.5043.423.
- Department of Transport. September 2020. 'Licensed Vehicles - Type, Borough', UK Government Department of Transport, Zuletzt besucht am 03.02.2021. <https://data.london.gov.uk/dataset/licensed-vehicles-type-0>.
- Draxler, R. R. und G. D. Hess. 1997. "Description of the HYSPLIT_4 Modeling System." letzte Überarbeitung April 2020. Silver Spring, USA. Zuletzt besucht am 11.04.2022. https://www.arl.noaa.gov/wp_arl/wp-content/uploads/documents/reports/arl-224.pdf.
- Du, J. F., T. T. Cheng, M. Zhang, J. M. Chen, Q. S. He, X. M. Wang, R. J. Zhang, J. Tao, G. H. Huang, X. Li und S. P. Zha. 2012. 'Aerosol Size Spectra and Particle Formation Events at Urban Shanghai in Eastern China', *Aerosol and Air Quality Research*, 12: 1362-1372, doi: 10.4209/aaqr.2011.12.0230.
- DWD. 2022. 'Zusammensetzung der Atmosphäre - Aerosol - Größenverteilung', Deutscher Wetterdienst, Zuletzt besucht am 25.04.2022. https://www.dwd.de/DE/forschung/atmosphaerenbeob/zusammensetzung_atmosphaere/aerosol/inh_nav/groessenverteilung_node.html.
- Eurostat. letztes Update 7.7.2020. 'Population on 1 January by broad age group, sex and metropolitan regions', Zuletzt besucht am 03.02.2021. http://appsso.eurostat.ec.europa.eu/nui/show.do?dataset=met_pjanaggr3&lang=en.
- Feng, L., S. J. Smith, C. Braun, M. Crippa, M. J. Gidden, R. Hoesly, Z. Klimont, M. van Marle, M. van den Berg und G. R. van der Werf. 2020. 'The generation of gridded emissions data for CMIP6', *Geosci. Model Dev.*, 13: 461-482, doi: 10.5194/gmd-13-461-2020.
- Fiebig, Markus. 2001. 'Das troposphärische Aerosol in mittleren Breiten - Mikrophysik, Optik und Klimaantrieb am Beispiel der Feldstudie LACE 98', Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München.

- FIRMS - Fire Information for Resource Management System. 2022. 'Providing Active Fire Data for Near-Real Time Monitoring and Applications', Zuletzt besucht am 20.05.2022. <https://firms.modaps.eosdis.nasa.gov/>.
- Foreman-Mackey, D., D. W. Hogg, D. Lang und J. Goodman. 2013. 'emcee: The MCMC Hammer', *Publications of the Astronomical Society of the Pacific*, 125: 306-312, doi: 10.1086/670067.
- Förster, E., H. Bönisch, M. Neumaier, F. Obersteiner, A. Zahn, A. Hilboll, A. B. Kalisz Hedegaard, N. Daskalakis, A. P. Poulidis, M. Vrekoussis, M. Lichtenstern und P. Braesicke. 2022. 'Chemical and dynamical identification of emission outflows during the HALO campaign EMERGE in Europe and Asia', *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 2022: 1-37, doi: 10.5194/acp-2022-455.
- Forster, P., T. Storelvmo, K. Armour, W. Collins, J.-L. Dufresne, D. Frame, D.J. Lunt, T. Mauritsen, M.D. Palmer, M. Watanabe, M. Wild und H. Zhang. 2021. 'The Earth's Energy Budget, Climate Feedbacks, and Climate Sensitivity.' in V. Masson-Delmotte, P. Zhai, A. Pirani, S.L. Connors, C. Péan, S. Berger, N. Caud, Y. Chen, L. Goldfarb, M.I. Gomis, M. Huang, K. Leitzell, E. Lonnoy, J.B.R. Matthews, T.K. Maycock, T. Waterfield, O. Yelekçi, R. Yu und B. Zhou (eds.), *Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* (Cambridge University Press: Cambridge, United Kingdom und New York, NY, USA).
- Freney, E. J., K. Sellegri, F. Canonaco, A. Colomb, A. Borbon, V. Michoud, J. F. Doussin, S. Crumeyrolle, N. Amarouche, J. M. Pichon, T. Bourianne, L. Gomes, A. S. H. Prevot, M. Beekmann und A. Schwarzenboeck. 2014. 'Characterizing the impact of urban emissions on regional aerosol particles: airborne measurements during the MEGAPOLI experiment', *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14: 1397-1412, doi: 10.5194/acp-14-1397-2014.
- Freutel, F., J. Schneider, F. Drewnick, S. L. von der Weiden-Reinmuller, M. Crippa, A. S. H. Prevot, U. Baltensperger, L. Poulain, A. Wiedensohler, J. Sciare, R. Sarda-Esteve, J. F. Burkhardt, S. Eckhardt, A. Stohl, V. Gros, A. Colomb, V. Michoud, J. F. Doussin, A. Borbon, M. Haeffelin, Y. Morille, M. Beekmann und S. Borrmann. 2013. 'Aerosol particle measurements at three stationary sites in the megacity of Paris during summer 2009: meteorology and air mass origin dominate aerosol particle composition and size distribution', *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13: 933-959, doi: 10.5194/acp-13-933-2013.
- Gao, J., T. Wang, X. H. Zhou, W. S. Wu und W. X. Wang. 2009. 'Measurement of aerosol number size distributions in the Yangtze River delta in China: Formation and growth of particles under polluted conditions', *Atmospheric Environment*, 43: 829-836, doi: 10.1016/j.atmosenv.2008.10.046.
- Good, N., H. Coe und G. McFiggans. 2010. 'Instrumentational operation and analytical methodology for the reconciliation of aerosol water uptake under sub- and supersaturated conditions', *Atmospheric Measurement Techniques*, 3: 1241-1254, doi: 10.5194/amt-3-1241-2010.
- Goodman, J. und J. Weare. 2010. 'ENSEMBLE SAMPLERS WITH AFFINE INVARIANCE', *Communications in Applied Mathematics and Computational Science*, 5: 65-80, doi: 10.2140/camcos.2010.5.65.

- GRIMM Aerosol Technik. 2007. "Vorläufige Version 1.4: Aerosolpektrometer SERIE 1.129 "SKY-OPC"." Bedienungsanleitung. Ainring, Deutschland.
- GRIMM Aerosol Technik. 2012. "Stationäre Kondensationskernzähler (CPCs) Modell 5.410 - 5.421." Broschüre. Ainring, Deutschland.
- Groma, V., B. Alföldy, E. Borsok, O. Czompoly, P. Furi, A. H. Keri, G. Kovacs, S. Torok und J. Osan. 2022. 'Sources and health effects of fine and ultrafine aerosol particles in an urban environment', *Atmospheric Pollution Research*, 13: 10, doi: 10.1016/j.apr.2021.101302.
- HALO-SPP 1294. 'Atmospheric and Earth System Research with the High Altitude and Long Range Research Aircraft (HALO)', SPP 1294, Zuletzt besucht am 31.03.2022. <http://halo-spp.de/>.
- Hamed, A., W. Tabakoff und R. Wenglarz. 2006. 'Erosion and deposition in turbomachinery', *Journal of Propulsion and Power*, 22: 350-360, doi: 10.2514/1.18462.
- Hao, J., Y. Yin, X. Kuang, J. H. Chen, L. Yuan, H. Xiao, Z. H. Li, M. J. Pu, J. Wang, X. D. Zhou, Y. W. Chen und Y. X. Wu. 2017. 'Aircraft Measurements of the Aerosol Spatial Distribution and Relation with Clouds over Eastern China', *Aerosol and Air Quality Research*, 17: 3230-3243, doi: 10.4209/aaqr.2016.12.0576.
- Harrison, R. M., D. C. S. Beddows und M. Dall'Osto. 2011. 'PMF Analysis of Wide-Range Particle Size Spectra Collected on a Major Highway', *Environmental Science & Technology*, 45: 5522-5528, doi: 10.1021/es2006622.
- Harrison, R. M., M. Dall'Osto, D. C. S. Beddows, A. J. Thorpe, W. J. Bloss, J. D. Allan, H. Coe, J. R. Dorsey, M. Gallagher, C. Martin, J. Whitehead, P. I. Williams, R. L. Jones, J. M. Langridge, A. K. Benton, S. M. Ball, B. Langford, C. N. Hewitt, B. Davison, D. Martin, K. F. Petersson, S. J. Henshaw, I. R. White, D. E. Shallcross, J. F. Barlow, T. Dunbar, F. Davies, E. Nemitz, G. J. Phillips, C. Helfter, C. F. Di Marco und S. Smith. 2012. 'Atmospheric chemistry and physics in the atmosphere of a developed megacity (London): an overview of the REPARTEE experiment and its conclusions', *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12: 3065-3114, doi: 10.5194/acp-12-3065-2012.
- Hermann, M. und A. Wiedensohler. 2001. 'Counting efficiency of condensation particle counters at low-pressures with illustrative data from the upper troposphere', *Journal of Aerosol Science*, 32: 975-991, doi: 10.1016/s0021-8502(01)00037-4.
- Hersey, S. P., J. S. Craven, K. A. Schilling, A. R. Metcalf, A. Sorooshian, M. N. Chan, R. C. Flagan und J. H. Seinfeld. 2011. 'The Pasadena Aerosol Characterization Observatory (PACO): chemical and physical analysis of the Western Los Angeles basin aerosol', *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11: 7417-7443, doi: 10.5194/acp-11-7417-2011.
- Hinds, William C. . 1999. *Aerosol Technology - Properties, Behavior, and Measurement of Airborne Particles*. 2. Auflage (John Wiley & Sons, Inc.: New York, USA).
- Hughes, L. S., G. R. Cass, J. Gone, M. Ames und I. Olmez. 1998. 'Physical and chemical characterization of atmospheric ultrafine particles in the Los Angeles area', *Environmental Science & Technology*, 32: 1153-1161, doi: 10.1021/es970280r.
- Ibald-Mulli, A., H. E. Wichmann, W. Kreyling und A. Peters. 2002. 'Epidemiological evidence on health effects of ultrafine particles', *Journal of Aerosol Medicine-Deposition Clearance and Effects in the Lung*, 15: 189-201, doi: 10.1089/089426802320282310.

- ISO 15900:2009(E). "Determination of particle size distribution - Differential electrical mobility analysis for aerosol particles."
- ISO 27891:2015(E). "Aerosol particle number concentration - Calibration of condensation particle counters."
- JTWC. 2018. 'Annual Tropical Cyclone Report 2018', Zuletzt besucht am 08.08.2022. <https://www.metoc.navy.mil/jtwc/products/atcr/2018atcr.pdf>.
- Kecorius, S., L. Madueno, E. Vallar, H. Alas, G. Betito, W. Birmili, M. O. Cambaliza, G. Catipay, M. Gonzaga-Cayetano, M. C. Galvez, G. Lorenzo, T. Muller, J. B. Simpas, E. G. Tamayo und A. Wiedensohler. 2017. 'Aerosol particle mixing state, refractory particle number size distributions and emission factors in a polluted urban environment: Case study of Metro Manila, Philippines', *Atmospheric Environment*, 170: 169-183, doi: 10.1016/j.atmosenv.2017.09.037.
- Kim, J. H., G. W. Mulholland, S. R. Kukuck und D. Y. H. Pui. 2005. 'Slip correction measurements of certified PSL nanoparticles using a nanometer differential mobility analyzer (nano-DMA) for Knudsen number from 0.5 to 83', *Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology*, 110: 31-54, doi: 10.6028/jres.110.005.
- Knutson, E. O. und K. T. Whitby. 1975. 'Aerosol Classification by Electric Mobility: Apparatus, Theory and Applications', *Journal of Aerosol Science*, 6: 443-451, doi.
- Kondo, Y., N. Takegawa, H. Matsui, T. Miyakawa, M. Koike, Y. Miyazaki, Y. Kanaya, M. Mochida, M. Kuwata, Y. Morino und M. Shiraiwa. 2010. 'Formation and Transport of Aerosols in Tokyo in Relation to Their Physical and Chemical Properties: A Review', *Journal of the Meteorological Society of Japan*, 88: 597-624, doi: 10.2151/jmsj.2010-401.
- Kulkarni, Pramod, Paul A. Baron und Klaus Willeke. 2011. *Aerosol Measurement - Principles, Techniques, and Applications*. 3. Auflage (John Wiley & Sons, Inc.: Hoboken, USA).
- Kunkel, D., M. G. Lawrence, H. Tost, A. Kerckweg, P. Jockel und S. Borrmann. 2012. 'Urban emission hot spots as sources for remote aerosol deposition', *Geophysical Research Letters*, 39: 6, doi: 10.1029/2011gl049634.
- Kunkel, D., H. Tost und M. G. Lawrence. 2013. 'Aerosol pollution potential from major population centers', *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13: 4203-4222, doi: 10.5194/acp-13-4203-2013.
- Kuwata, M. und Y. Kondo. 2008. 'Dependence of size-resolved CCN spectra on the mixing state of nonvolatile cores observed in Tokyo', *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 113: 8, doi: 10.1029/2007jd009761.
- Land Transportation Office. 27.01.2020. 'Annual Report 2019', Republic of the Philippines Department of Transportation, Zuletzt besucht am 03.02.2021. <https://lto.gov.ph/transparency-seal/annual-reports/file/908-annual-report-2019.html>.
- Li, J., J. Hendricks, M. Righi und C. G. Beer. 2022. 'An aerosol classification scheme for global simulations using the K-means machine learning method', *Geosci. Model Dev.*, 15: 509-533, doi: 10.5194/gmd-15-509-2022.
- Liu, J. F., D. L. Mauzerall, L. W. Horowitz, P. Ginoux und A. M. Fiore. 2009. 'Evaluating inter-continental transport of fine aerosols: (1) Methodology, global aerosol

- distribution and optical depth', *Atmospheric Environment*, 43: 4327-4338, doi: 10.1016/j.atmosenv.2009.03.054.
- Liu, S., M. Hu, S. Slanina, L. Y. He, Y. W. Niu, E. Brüegemann, T. Gnauk und H. Herrmann. 2008a. 'Size distribution and source analysis of ionic compositions of aerosols in polluted periods at Xinken in Pearl River Delta (PRD) of China', *Atmospheric Environment*, 42: 6284-6295, doi: 10.1016/j.atmosenv.2007.12.035.
- Liu, S., M. Hu, Z. J. Wu, B. Wehner, A. Wiedensohler und Y. F. Cheng. 2008b. 'Aerosol number size distribution and new particle formation at a rural/coastal site in Pearl River Delta (PRD) of China', *Atmospheric Environment*, 42: 6275-6283, doi: 10.1016/j.atmosenv.2008.01.063.
- Lonati, G., M. Crippa, V. Gianelle und R. Van Dingenen. 2011. 'Daily patterns of the multi-modal structure of the particle number size distribution in Milan, Italy', *Atmospheric Environment*, 45: 2434-2442, doi: 10.1016/j.atmosenv.2011.02.003.
- Lonati, G. und M. Giugliano. 2006. 'Size distribution of atmospheric particulate matter at traffic exposed sites in the urban area of Milan (Italy)', *Atmospheric Environment*, 40: S264-S274, doi: 10.1016/j.atmosenv.2005.11.077.
- Mallaun, C., A. Giez und R. Baumann. 2015. 'Calibration of 3-D wind measurements on a single-engine research aircraft', *Atmospheric Measurement Techniques*, 8: 3177-3196, doi: 10.5194/amt-8-3177-2015.
- McMurry, P. H. 2000. 'A review of atmospheric aerosol measurements', *Atmospheric Environment*, 34: 1959-1999, doi: 10.1016/s1352-2310(99)00455-0.
- McNaughton, C. S., A. D. Clarke, S. G. Howell, K. G. Moore, V. Brekhovskikh, R. J. Weber, D. A. Orsini, D. S. Covert, G. Buzorius, F. J. Brechtel, G. R. Carmichael, Y. H. Tang, F. L. Eisele, R. L. Mauldin, A. R. Bandy, D. C. Thornton und B. Blomquist. 2004. 'Spatial distribution and size evolution of particles in Asian outflow: Significance of primary and secondary aerosols during ACE-Asia and TRACE-P', *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 109: 19, doi: 10.1029/2003jd003528.
- Mertes, S., F. Schroder und A. Wiedensohler. 1995. 'THE PARTICLE-DETECTION EFFICIENCY CURVE OF THE TSI-3010 CPC AS A FUNCTION OF THE TEMPERATURE DIFFERENCE BETWEEN SATURATOR AND CONDENSER', *Aerosol Science and Technology*, 23: 257-261, doi: 10.1080/02786829508965310.
- Mie, Gustav. 1908. 'Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen', *Annalen der Physik*, 330: 377-445, doi: 10.1002/andp.19083300302.
- Minikin, Andreas, Andreas Petzold, Bernadett Weinzierl und Jean-François Gayet. 2012. 'In Situ Measurement Methods for Atmospheric Aerosol Particles and Cloud Elements.' in U. Schumann (ed.), *Atmospheric Physics: Background-Methods-Trends* (Springer Berlin, Heidelberg: Heidelberg).
- Molina, L. T., C. E. Kolb, B. de Foy, B. K. Lamb, W. H. Brune, J. L. Jimenez, R. Ramos-Villegas, J. Sarmiento, V. H. Paramo-Figueroa, B. Cardenas, V. Gutierrez-Avedoy und M. J. Molina. 2007. 'Air quality in North America's most populous city - overview of the MCMA-2003 campaign', *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7: 2447-2473, doi: 10.5194/acp-7-2447-2007.
- Molina, L. T., S. Madronich, J. S. Gaffney, E. Apel, B. de Foy, J. Fast, R. Ferrare, S. Herndon, J. L. Jimenez, B. Lamb, A. R. Osornio-Vargas, P. Russell, J. J. Schauer, P.

- S. Stevens, R. Volkamer und M. Zavala. 2010. 'An overview of the MILAGRO 2006 Campaign: Mexico City emissions and their transport and transformation', *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10: 8697-8760, doi: 10.5194/acp-10-8697-2010.
- Moore, K. G., A. D. Clarke, V. N. Kapustin, C. McNaughton, B. E. Anderson, E. L. Winstead, R. Weber, Y. Ma, Y. N. Lee, R. Talbot, J. Dibb, T. Anderson, S. Doherty, D. Covert und D. Rogers. 2004. 'A comparison of similar aerosol measurements made on the NASA P3-B, DC-8, and NSFC-130 aircraft during TRACE-P and ACE-Asia', *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 109: 35, doi: 10.1029/2003jd003543.
- Morawska, L., S. Thomas, M. Jamriska und G. Johnson. 1999. 'The modality of particle size distributions of environmental aerosols', *Atmospheric Environment*, 33: 4401-4411, doi: 10.1016/s1352-2310(99)00217-4.
- Myhre, G., D. Shindell, F.-M. Bréon, W. Collins, J. Fuglestedt, J. Huang, D. Koch, J.-F. Lamarque, B. Mendoza D. Lee, T. Nakajima, A. Robock, G. Stephens, T. Takemura und H. Zhang. 2013. 'Anthropogenic and Natural Radiative Forcing.' in T.F. Stocker, D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex und P.M. Midgley (eds.), *Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* (Cambridge University Press: Cambridge, United Kingdom und New York, NY, USA).
- NASA/Goddard. 2012. 'Portrait of Global Aerosols', Zuletzt besucht am 16.08.2022. https://www.nasa.gov/multimedia/imagegallery/image_feature_2393.html.
- Ng, N. L., M. R. Canagaratna, Q. Zhang, J. L. Jimenez, J. Tian, I. M. Ulbrich, J. H. Kroll, K. S. Docherty, P. S. Chhabra, R. Bahreini, S. M. Murphy, J. H. Seinfeld, L. Hildebrandt, N. M. Donahue, P. F. DeCarlo, V. A. Lanz, A. S. H. Prévôt, E. Dinar, Y. Rudich und D. R. Worsnop. 2010. 'Organic aerosol components observed in Northern Hemispheric datasets from Aerosol Mass Spectrometry', *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10: 4625-4641, doi: 10.5194/acp-10-4625-2010.
- Pöschl, U. 2005. 'Atmospheric aerosols: Composition, transformation, climate and health effects', *Angewandte Chemie-International Edition*, 44: 7520-7540, doi: 10.1002/anie.200501122.
- Qi, X. M., A. J. Ding, W. Nie, T. Petaja, V. M. Kerminen, E. Herrmann, Y. N. Xie, L. F. Zheng, H. Manninen, P. Aalto, J. N. Sun, Z. N. Xu, X. G. Chi, X. Huang, M. Boy, A. Virkkula, X. Q. Yang, C. B. Fu und M. Kulmala. 2015. 'Aerosol size distribution and new particle formation in the western Yangtze River Delta of China: 2 years of measurements at the SORPES station', *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15: 12445-12464, doi: 10.5194/acp-15-12445-2015.
- Radianc Research. Rom version 2.03. "Operation Procedures 3λ PSAP Particle Soot/Absorption Photometer." Bedienungsanleitung. Seattle, USA.
- Rodriguez, S., R. Van Dingenen, J. P. Putaud, A. Dell'Acqua, J. Pey, X. Querol, A. Alastuey, S. Chenery, K. F. Ho, R. M. Harrison, R. Tardivo, B. Scarnato und V. Gemelli. 2007. 'A study on the relationship between mass concentrations, chemistry and number size distribution of urban fine aerosols in Milan, Barcelona and London', *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7: 2217-2232, doi: 10.5194/acp-7-2217-2007.

- Rolph, Glenn, Ariel Stein und Barbara Stunder. 2017. 'Real-time Environmental Applications and Display System: READY', *Environmental Modelling & Software*, 95: 210-228, doi: <https://doi.org/10.1016/j.envsoft.2017.06.025>.
- Schulz, C., J. Schneider, B. Amorim Holanda, O. Appel, A. Costa, S. S. de Sá, V. Dreiling, D. Fütterer, T. Jurkat-Witschas, T. Klimach, C. Knote, M. Krämer, S. T. Martin, S. Mertes, M. L. Pöhlker, D. Sauer, C. Voigt, A. Walser, B. Weinzierl, H. Ziereis, M. Zöger, M. O. Andreae, P. Artaxo, L. A. T. Machado, U. Pöschl, M. Wendisch und S. Borrmann. 2018. 'Aircraft-based observations of isoprene-epoxydiol-derived secondary organic aerosol (IEPOX-SOA) in the tropical upper troposphere over the Amazon region', *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18: 14979-15001, doi: 10.5194/acp-18-14979-2018.
- Seinfeld, John H. und Spyros N. Pandis. 2016. *Atmospheric Chemistry and Physics - From Air Pollution to Climate Change*. 3. Auflage (John Wiley & Sons, Inc.: Hoboken, USA).
- Seto, K.C., S. Dhakal, A. Bigio, H. Blanco, G.C. Delgado, D. Dewar, L. Huang, A. Inaba, A. Kansal, S. Lwasa, J.E. McMahon, D.B. Müller, J. Murakami, H. Nagendra und A. Ramaswami. 2014. "Human Settlements, Infrastructure and Spatial Planning." *Climate Change 2014: Mitigation of Climate Change. Contribution of Working Group III to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* editiert von O. Edenhofer, R. Pichs-Madruga, Y. Sokona, E. Farahani, S. Kadner, K. Seyboth, A. Adler, I. Baum, S. Brunner, P. Eickemeier, B. Kriemann, J. Savolainen, S. Schlömer, C. von Stechow, T. Zwickel und J.C. Minx (eds.). Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- Stein, A. F., R. R. Draxler, G. D. Rolph, B. J. B. Stunder, M. D. Cohen und F. Ngan. 2015. 'NOAA's HYSPLIT Atmospheric Transport and Dispersion Modeling System', *Bulletin of the American Meteorological Society*, 96: 2059-2077, doi: 10.1175/bams-d-14-00110.1.
- Stolzenburg, M. R. und P. H. McMurry. 2008. 'Equations governing single and tandem DMA configurations and a new lognormal approximation to the transfer function', *Aerosol Science and Technology*, 42: 421-432, doi: 10.1080/02786820802157823.
- Stolzenburg, Mark Richard. 1988. 'An Ultrafine Aerosol Size Distribution System', Dissertation, University of Minnesota.
- Szopa, S., V. Naik, B. Adhikary, P. Artaxo, T. Berntsen, W.D. Collins, S. Fuzzi, L. Gallardo, A. Kiendler-Scharr, Z. Klimont, H. Liao, N. Unger und P. Zanis. 2021. 'Short-Lived Climate Forcers.' in V. Masson-Delmotte, P. Zhai, A. Pirani, S.L. Connors, C. Péan, S. Berger, N. Caud, Y. Chen, L. Goldfarb, M.I. Gomis, M. Huang, K. Leitzell, E. Lonnoy, J.B.R. Matthews, T.K. Maycock, T. Waterfield, O. Yelekçi, R. Yu und B. Zhou (eds.), *Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* (Cambridge University Press: Cambridge, United Kingdom und New York, NY, USA).
- Thornhill, G. D., W. J. Collins, R. J. Kramer, D. Olivié, R. B. Skeie, F. M. O'Connor, N. L. Abraham, R. Checa-Garcia, S. E. Bauer, M. Deushi, L. K. Emmons, P. M. Forster, L. W. Horowitz, B. Johnson, J. Keeble, J. F. Lamarque, M. Michou, M. J. Mills, J. P. Mulcahy, G. Myhre, P. Nabat, V. Naik, N. Oshima, M. Schulz, C. J. Smith, T. Takemura, S. Tilmes, T. Wu, G. Zeng und J. Zhang. 2021. 'Effective radiative forcing

- from emissions of reactive gases and aerosols – a multi-model comparison', *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21: 853-874, doi: 10.5194/acp-21-853-2021.
- TSI Incorporated. 2002. "Model 3936 SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer)." Bedienungsanleitung. Shoreview, USA.
- TSI Incorporated. 2012. "Aerosol Statistics: Lognormal Distributions and $dN/d\log D_p$." USA.
- Twomey, S. 1977. 'INFLUENCE OF POLLUTION ON SHORTWAVE ALBEDO OF CLOUDS', *Journal of the Atmospheric Sciences*, 34: 1149-1152, doi: 10.1175/1520-0469(1977)034<1149:Tiopot>2.0.Co;2.
- United Nations. 2019a. "World Urbanization Prospects 2018: Highlights." New York.
- United Nations. 2019b. "World Urbanization Prospects: The 2018 Revision." New York.
- Universität Bremen. 2022. 'EMeRGe - Effect of Megacities on the Transport and Transformation of Pollutants on the Regional to Global Scales', Zuletzt besucht am 02.05.2022. <http://www.iup.uni-bremen.de/emerge/home/home.html>.
- van Donkelaar, A., R. V. Martin, M. Brauer und B. L. Boys. 2015. 'Use of Satellite Observations for Long-Term Exposure Assessment of Global Concentrations of Fine Particulate Matter', *Environmental Health Perspectives*, 123: 135-143, doi: 10.1289/ehp.1408646.
- Virkkula, A. 2010. 'Correction of the Calibration of the 3-wavelength Particle Soot Absorption Photometer (3 PSAP)', *Aerosol Science and Technology*, 44: 706-712, doi: 10.1080/02786826.2010.482110.
- Virkkula, A., N. C. Ahlquist, D. S. Covert, W. P. Arnott, P. J. Sheridan, P. K. Quinn und D. J. Coffman. 2005. 'Modification, calibration and a field test of an instrument for measuring light absorption by particles', *Aerosol Science and Technology*, 39: 68-83, doi: 10.1080/027868290901963.
- von der Weiden-Reinmüller, S. L., F. Drewnick, M. Crippa, A. S. H. Prevot, F. Meleux, U. Baltensperger, M. Beekmann und S. Borrmann. 2014a. 'Application of mobile aerosol and trace gas measurements for the investigation of megacity air pollution emissions: the Paris metropolitan area', *Atmospheric Measurement Techniques*, 7: 279-299, doi: 10.5194/amt-7-279-2014.
- von der Weiden-Reinmüller, S. L., F. Drewnick, Q. J. Zhang, E. Freutel, M. Beekmann und S. Borrmann. 2014b. 'Megacity emission plume characteristics in summer and winter investigated by mobile aerosol and trace gas measurements: the Paris metropolitan area', *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14: 12931-12950, doi: 10.5194/acp-14-12931-2014.
- von der Weiden, S. L., F. Drewnick und S. Borrmann. 2009. 'Particle Loss Calculator - a new software tool for the assessment of the performance of aerosol inlet systems', *Atmospheric Measurement Techniques*, 2: 479-494, doi: 10.5194/amt-2-479-2009.
- Walser, A., D. Sauer, A. Spanu, J. Gasteiger und B. Weinzierl. 2017. 'On the parametrization of optical particle counter response including instrument-induced broadening of size spectra and a self-consistent evaluation of calibration measurements', *Atmospheric Measurement Techniques*, 10: 4341-4361, doi: 10.5194/amt-10-4341-2017.
- Wang, H. L., B. Zhu, L. J. Shen, J. L. An, Y. Yin und H. Q. Kang. 2014. 'Number size distribution of aerosols at Mt. Huang and Nanjing in the Yangtze River Delta, China:

- Effects of air masses and characteristics of new particle formation', *Atmospheric Research*, 150: 42-56, doi: 10.1016/j.atmosres.2014.07.020.
- Wang, W., L. H. Ren, Y. H. Zhang, J. H. Chen, H. J. Liu, L. F. Bao, S. J. Fan und D. G. Tang. 2008. 'Aircraft measurements of gaseous pollutants and particulate matter over Pearl River Delta in China', *Atmospheric Environment*, 42: 6187-6202, doi: 10.1016/j.atmosenv.2008.06.001.
- Wehner, B., S. Philippin und A. Wiedensohler. 2002. 'Design and calibration of a thermodenuder with an improved heating unit to measure the size-dependent volatile fraction of aerosol particles', *Journal of Aerosol Science*, 33: 1087-1093, doi: 10.1016/s0021-8502(02)00056-3.
- Wehner, B., A. Wiedensohler, T. M. Tuch, Z. J. Wu, M. Hu, J. Slanina und C. S. Kiang. 2004. 'Variability of the aerosol number size distribution in Beijing, China: New particle formation, dust storms, and high continental background', *Geophysical Research Letters*, 31: 4, doi: 10.1029/2004gl021596.
- Weingartner, E., H. Saathoff, M. Schnaiter, N. Streit, B. Bitnar und U. Baltensperger. 2003. 'Absorption of light by soot particles: determination of the absorption coefficient by means of aethalometers', *Journal of Aerosol Science*, 34: 1445-1463, doi: 10.1016/s0021-8502(03)00359-8.
- 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. Schafner, K. Schepanski, A. Spanu, I. Tegen, C. Toledano und A. Walser. 2017. 'THE SAHARAN AEROSOL LONG-RANGE TRANSPORT AND AEROSOL-CLOUD-INTERACTION EXPERIMENT Overview and Selected Highlights', *Bulletin of the American Meteorological Society*, 98: 1427-1451, doi: 10.1175/bams-d-15-00142.1.
- Weinzierl, Bernadett, Thomas Sailer, Daniel Sauer, Andreas Minikin, Oliver Reitebuch, Bernhard Mayer und Ulrich Schumann. 2012. 'The Eyjafjalla Eruption in 2010 and the Volcanic Impact on Aviation.' in U. Schumann (ed.), *Atmospheric Physics: Background-Methods-Trends* (Springer Berlin, Heidelberg: Heidelberg).
- Wiedensohler, A. 1988. 'AN APPROXIMATION OF THE BIPOLAR CHARGE-DISTRIBUTION FOR PARTICLES IN THE SUB-MICRON SIZE RANGE', *Journal of Aerosol Science*, 19: 387-389, doi: 10.1016/0021-8502(88)90278-9.
- Wiedensohler, A., E. Lutkemeier, M. Feldpausch und C. Helsper. 1986. 'INVESTIGATION OF THE BIPOLAR CHARGE-DISTRIBUTION AT VARIOUS GAS CONDITIONS', *Journal of Aerosol Science*, 17: 413-416, doi: 10.1016/0021-8502(86)90118-7.
- World Health Organisation. 2016. *Ambient air pollution: A global assessment of exposure and burden of disease*. Auflage (World Health Organisation: Genf, Schweiz).
- World Meteorological Organization, Global Atmosphere Watch. 2012. "WMO/IGAC Impacts of megacities on air pollution and climate." *GAW Report No. 205*, editiert von Tong Zhu, Megan Melamed, David Parrish, Michael Gauss, Laura Gallardo Klenner, Mark Lawrence, Abdourahmane Konare und Cathy Liousse. Switzerland.
- Wu, T. R. und B. E. Boor. 2021. 'Urban aerosol size distributions: a global perspective', *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21: 8883-8914, doi: 10.5194/acp-21-8883-2021.

- Wu, Z. J., M. Hu, P. Lin, S. Liu, B. Wehner und A. Wiedensohler. 2008. 'Particle number size distribution in the urban atmosphere of Beijing, China', *Atmospheric Environment*, 42: 7967-7980, doi: 10.1016/j.atmosenv.2008.06.022.
- Zaizen, Y., K. Okada, M. Ikegami, Y. Sawa und Y. Makino. 2004. 'Number-size distributions of aerosol particles in the free troposphere over the northwestern Pacific Ocean-influence of Asian outflow and tropical air transport', *Journal of the Meteorological Society of Japan*, 82: 1147-1160, doi: 10.2151/jmsj.2004.1147.
- Zhang, Y. H., M. Hu, L. J. Zhong, A. Wiedensohler, S. C. Liu, M. O. Andreae, W. Wang und S. J. Fan. 2008. 'Regional Integrated Experiments on Air Quality over Pearl River Delta 2004 (PRIDE-PRD2004): Overview', *Atmospheric Environment*, 42: 6157-6173, doi: 10.1016/j.atmosenv.2008.03.025.
- Zhu, Y. F., W. C. Hinds, S. Kim und C. Sioutas. 2002. 'Concentration and size distribution of ultrafine particles near a major highway', *Journal of the Air & Waste Management Association*, 52: 1032-1042, doi: 10.1080/10473289.2002.10470842.

11 Danksagung

Hiermit möchte ich mich bei all jenen bedanken, die mich auf meinem Weg zur Promotion begleitet und unterstützt haben.

Zunächst möchte ich meinem Doktorvater Prof. Dr. Markus Rapp danken, der es mir ermöglicht hat am IPA zu promovieren und mich auf diesem Weg mit konstruktiven Diskussionen begleitet hat. Ebenfalls danke ich Prof. Dr. Christiane Voigt, welche sich sofort bereiterklärt hat als Zweitkorrektorin für meine Arbeit zu fungieren.

Ebenfalls danken möchte ich meinen Betreuern Dr. Silke Groß und Dr. Daniel Sauer, welche mir stets mit Rat und Tat zur Seite standen und darauf achteten, dass ich auf dem richtigen Weg blieb.

Und auch bei Christopher Heckel, welcher neben Dr. Daniel Sauer, bei der Einführung in das Messgerät und den damit verbundenen Laborarbeiten stets zur Stelle war, sollte ich Fragen haben oder Hilfestellungen benötigen, möchte ich mich bedanken.

Ein weiterer Dank geht an Robert Baumann für die Bereitstellung seines eigen entwickelten Interfaces von HYSPLIT und die Klärungen von Fragen, die ich diesbezüglich hatte.

Auch bei meinen restlichen Kollegen und Kolleginnen der Abteilungen Wolkenphysik und Atmosphärische Spurenstoffe möchte ich mich für das angenehme Arbeitsklima und die gute Zusammenarbeit bedanken. Die gemeinsamen Mittagspausen werde ich nie vergessen.

Ein besonderer Dank geht an meine Mutter Uli. Ich weiß, du wirst stets bei mir sein und mich auf all meinen Wegen begleiten, egal wie steinig und schwer sie sind. Denn du warst immer das Quäntchen, das mich motiviert hat weiterzumachen und ich weiß, dies wird für immer so bleiben. Gleichzeitig möchte ich mich auch bei meiner restlichen Familie mit meinem Vater Peter, meiner Schwester Maike, meinem Schwager Tobias und meiner Nichte Lucy herzlichst bedanken, da sie mir immer zur Seite standen und mich auch in stressigen Situationen mit einem Lachen immer wieder aufmuntern konnten.