# Effekte von Aerosol und Dynamik auf die Eigenschaften ozeanischer Wolken im Nordwestatlantik

Dissertation zur Erlangung des Grades "Doktor der Naturwissenschaften"

am Fachbereich Physik, Mathematik und Informatik der Johannes Gutenberg-Universität in Mainz

> Simon Kirschler geb. in Augsburg Mainz, den 06.07.2023

1. Gutachten: Prof. Dr. Christiane Voigt

2. Gutachten: Prof. Dr. Stephan Borrmann

Angefertigt am Deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V. Institut für Physik der Atmosphäre, Oberpfaffenhofen

# Kurzfassung

Wolken beeinflussen durch ihre Strahlungswirkung den Energiehaushalt der Erde. Sie wirken in Abhängigkeit ihrer mikrophysikalischen Eigenschaften sowohl wärmend als auch kühlend. Insbesondere tiefe Wolken haben eine stark kühlende Wirkung über dem Ozean und bedecken dort mehr als 45 % der Meeresoberfläche. Diese Arbeit untersucht die mikrophysikalischen Eigenschaften tiefer ozeanischer Grenzschichtwolken über dem Nordwestatlantik, inwieweit die Eisphase in Mischphasenwolken diese Eigenschaften gegenüber Flüssigwolken verändert und die Effekte von Dynamik und Aerosol auf die Wolkenbildung. Zu diesem Zweck fand im Zeitraum zwischen 2020 und 2022 die NASA-Flugzeugmission ACTIVATE (*Aerosol Cloud meTeorology Interactions oVer the western ATlantic Experiment*) mit 174 in-situ Messflügen des Forschungsflugzeugs Falcon HU-25 statt. Auf Grundlage einer eingehenden Charakterisierung der Messinstrumente FCDP (Fast Cloud Droplet Probe) und 2D-S (Two Dimensional Stereo) wurde ein qualitätsgesicherter 1 Hz in-situ Wolkendatensatz von 574 Messstunden erstellt, um die mikrophysikalischen Prozesse und die Phase der tiefen ozeanischen Grenzschichtwolken gezielt zu analysieren.

Die gemessenen Mischphasenwolken zeigen im Vergleich zu Flüssigwolken um ein bis zwei Größenordnungen höhere Konzentrationen an Wolkenpartikeln mit Durchmessern >100  $\mu$ m, welche die Bildung von Niederschlag begünstigen. Auch die totale Wolkenteilchenkonzentration der untersuchten Mischphasenwolken im Nordwestatlantik ist im Vergleich zu Flüssigwolken erhöht. Dies deutet auf sekundäre Eisbildung oder Unterschiede im Vorkommen von Eisnukleationskernen und Aufwindgeschwindigkeiten hin.

Die saisonale Analyse der Wolken-, Aerosol- und Windmessungen nahe der Wolkenunterkante zeigt, dass dynamische Effekte mit bis zu doppelt so großen Aufwindgeschwindigkeiten im Winter die Wolkenbildung im Nordwestatlantik dominieren, obwohl die Teilchenkonzentration der verfügbaren Wolkenkondensationskerne geringer als im Sommer ist. Bei hohen Konzentrationen an Wolkenkondensationskernen ist durchweg eine hohe Suszeptibilität von Aufwindgeschwindigkeiten auf Wolkentropfenkonzentrationen zu beobachten. Für niedrigere Konzentrationen an Wolkenkondensationskernen nimmt die Suszeptibilität mit zunehmenden Aufwindgeschwindigkeiten ab. Die Ergebnisse dieser Arbeit tragen dazu bei, Niederschlagsbildung und Prozesse in Mischphasenwolken und die Parametrisierung der Aerosol-Wolken-Wechselwirkung in Klimamodellen besser zu verstehen.

# Abstract

The radiation effects of clouds affect the Earth's energy balance. Depending on their microphysical properties, they have a warming or a cooling effect. In particular, low clouds have a strong cooling effect over the ocean, where they cover more than 45 % of the ocean surface. This work investigates the microphysical properties of low marine boundary layer clouds over the western North Atlantic, the extent to which the ice phase in mixed-phase clouds alters these properties relative to liquid clouds, and the effects of dynamics and aerosol on cloud formation. To this end, the NASA aircraft mission ACTIVATE (*Aerosol Cloud meTeorology Interactions oVer the western ATlantic Experiment*) took place between 2020 and 2022 with 174 in-situ measurement flights of the research aircraft Falcon HU-25. Based on a detailed characterization of the instruments FCDP (Fast Cloud Droplet Probe) and 2D-S (Two Dimensional Stereo), a quality-assured 1 Hz in-situ cloud data set of 574 measurement hours was created to specifically analyze the microphysical processes and phase in marine boundary layer clouds.

Compared to liquid clouds, the measured mixed-phase clouds show one to two orders of magnitude higher concentrations of cloud particles with diameters >100  $\mu$ m, which favor the formation of precipitation. The total cloud particle concentration of the studied mixed-phase clouds in the western North Atlantic is also elevated compared to liquid clouds. This suggests secondary ice formation or differences in the abundance of ice nuclei and updraft velocities.

Seasonal analysis of cloud, aerosol, and wind measurements near the cloud base shows that dynamical effects with up to twice as high updraft velocities in winter dominate cloud formation in the western North Atlantic, although the particle concentration of available cloud condensation nuclei is lower than in summer. For high concentrations of cloud condensation nuclei, a high sensitivity of updraft velocity to cloud droplet concentrations is consistently observed. For lower concentrations of cloud condensation nuclei, the susceptibility decreases with increasing updraft velocity. The results of this work enhance our understanding of precipitation and processes in mixed-phase clouds and contribute to the improvement of the parameterization of the aerosol-cloud interaction in climate models.

# Inhaltsverzeichnis

1	Einl	eitung	1			
	1.1	Motiva	ation			
	1.2	Ziele d	lieser Arbeit			
2	Wolken und Aerosole: Grundlagen					
	2.1	Klassif	ikation von Wolken			
	2.2	Aeroso	ol-Wolken-Wechselwirkung: Wolkenbildung			
		2.2.1	Dynamik: Relative Feuchte und Übersättigung			
		2.2.2	Aerosole: Wolkenkondensationskerne			
		2.2.3	Wolkentropfenaktivierung			
	2.3	Wolke	nprozesse			
		2.3.1	Flüssigwolken			
		2.3.2	Mischphasenwolken			
3	Messtechnik: Grundlagen und Methoden 24					
	3.1	Licht-N	Materie-Wechselwirkung			
		3.1.1	Streuproblem			
		3.1.2	Mie-Streuung und geometrische Optik			
3.2 Das Streulichtspektrometer FCDP .		Das St	reulichtspektrometer FCDP			
		3.2.1	Spektrometeraufbau			
		3.2.2	Funktionsprinzip			
		3.2.3	Bestimmung der Größenverteilung			
		3.2.4	Messartefakte und Unsicherheiten			
	3.3	Der Sc	hattenbilddetektor 2D-S			
		3.3.1	Detektoraufbau			
		3.3.2	Funktionsprinzip			
		3.3.3	Bestimmung der Größenverteilung			
		3.3.4	Messartefakte und Unsicherheiten			
	3.4	Berech	nung mikrophysikalischer Parameter			
	3.5	Aerosolmesssysteme				
		3.5.1	Kondensationskernzähler			
		3.5.2	Aerosolpartikelzähler			
		3.5.3	Bestimmung der Aerosolspezies			
	3.6	Windn	nesssysteme			

4	2D-	S-FCDP Kombination: Charakterisierung und Datenverarbeitung	53	
	4.1	FCDP Charakterisierung	53	
		4.1.1 Kalibrierung der Größenbestimmung	53	
		4.1.2 Kalibrierung der Messfläche	59	
	4.2	2D-S Charakterisierung	61	
		4.2.1 Kalibrierung der effektiven Pixelgröße	61	
		4.2.2 Evaluierung der Messfläche	63	
		4.2.3 Klimakammer: Einfluss von Temperatur und Druck	64	
		4.2.4 Filtermethoden	68	
	4.3	2D-S-FCDP Kombination	74	
		4.3.1 Einheitliche Partikelgrößenverteilung	74	
		4.3.2 Fehlerbetrachtung	75	
5	Mik	rophysikalische Eigenschaften tiefer ozeanischer Wolken im Nord-		
	wes	statlantik	81	
	5.1	Die ACTIVATE Messkampagne	81	
		5.1.1 Durchführung	83	
		5.1.2 Nordwestatlantik	83	
		5.1.3 Messplattformen	85	
		5.1.4 Flugstrategien	86	
	5.2	Verteilung von mikrophysikalischen Eigenschaften und Phase tiefer ozea-		
		nischer Wolken	87	
		5.2.1 Wolken- und Niederschlagsklassifizierung durch Phasenräume	88	
		5.2.2 Mikrophysikalische Eigenschaften	93	
		5.2.3 Saisonalität von Flüssigwolken	99	
		5.2.4 Mischphasenwolken im Winter	102	
		5.2.5 Verteilung von Wolken und Niederschlag	107	
6	Ein	fluss von Dynamik und Aerosol auf Wolkentropfenkonzentrationen	112	
	6.1	PMM: Methode des Wahrscheinlichkeitsabgleichs	112	
	6.2	Messungen in der Wolkenbasis	113	
	6.3	Dynamik: Aufwindgeschwindigkeit	119	
	6.4	Aerosol: Wolkenkondensationskerne und Aerosolspezies	123	
7	Zus	ammenfassung	130	
8	Ausblick			
	8.1	Messmethoden	137	
	8.2	Auswertesoftware	139	
	8.3	Prozessstudien	141	
	8.4	Verbesserung von Wetter- und Klimamodellen	143	
Akronyme und Symbole				
٨,	hild	ungsverzeichnis	156	
AL	ADDITUTINGSVELZEICITTIS			
Та	Tabellenverzeichnis			
Lit	terat	urverzeichnis	159	

# KAPITEL 1

## Einleitung

### 1.1 Motivation

Wolken spielen eine wichtige Rolle für das Klima der Erde. Sie beeinflussen durch ihre Strahlungswirkung den Energiehaushalt unseres Planeten und regulieren die Verteilung des Wasserdampfs, das wichtigste natürliche Treibhausgas der Erdatmosphäre (IPCC, 2021). Die mikro- und makrophysikalischen Eigenschaften von Wolken bestimmen ihre Strahlungseigenschaften und können durch die gegenläufigen Effekte von Reflexion und Reemission sowohl wärmend als auch kühlend wirken. Wolken reflektieren kurzwellige Sonnenstrahlung und haben dadurch eine kühlende Wirkung (Hartmann et al., 1992). Ihr Rückstrahlvermögen ist durch ihre optische Dicke gegeben und steigt mit zunehmender Wolkenteilchenkonzentration ( $N_W$ ) (Twomey, 1977). Gleichzeitig absorbieren Wolken langwellige terrestrische Strahlung und reemittieren einen Teil davon. Die dabei abgestrahlte Leistung nimmt mit der Temperatur der Wolken zu. Wolken emittieren mit niedrigeren Temperaturen als die Oberflächentemperatur der Erde und wirken dadurch wärmend (Hartmann et al., 1992). Insbesondere tiefe Wolken haben im Vergleich zur Erdoberfläche etwas niedrigere Temperaturen und erwärmen die Atmosphäre kaum durch Reemission terrestrischer Strahlung. Dagegen sind ihre N<sub>W</sub> hoch und führen zu einer starken kühlenden Wirkung durch Reflexion kurzwelliger Sonnenstrahlung (IPCC, 2013). Dies führt zu einer großen kühlenden Wirkung von tiefen Wolken im Vergleich zu anderen Wolkentypen, wie kalte Zirren in großen Höhen, die durch geringe Wolkenteilchenkonzentrationen weniger Sonnenstrahlung reflektieren (Hartmann et al., 1992). Wolken sind häufiger über dem Meer vorzufinden und hatten dort einen durchschnittlichen jährlichen Bedeckungsgrad von 70 % in den vergangenen 60 Jahren, wobei tiefe ozeanische Wolken mehr als 45 % der Meeresoberfläche bedecken und ihr Bedeckungsgrad über die Jahrzehnte anstieg (Warren et al., 1988; Eastman et al., 2011). Die Brisanz tiefer Wolken wird eindrucksvoll durch eine Schätzung von Randall et al. (1984) gezeigt, bei der eine Zunahme von 4 % des Bedeckungsgrades durch tiefe Stratocumuli zu einer Verringerung der globalen Temperatur von 2 bis 3 °C führen kann.

Aufgrund ihrer schnellen Entwicklung und großen Variabilität bleibt die Darstellung tiefer Wolken in Klimamodellen eine Herausforderung (Mülmenstädt und Feingold, 2018). Globale Aerosol-Klima-Simulationen zeigen große Unsicherheiten bei der Darstellung von Aerosol-Wolken-Strahlungs-Wechselwirkungen (z.B., Myhre et al., 2013). Aus diesem Grund betont der jüngste Bericht des IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change) (IPCC, 2021) die Notwendigkeit, die Parametrisierung von Wolken in globalen Klimamodellen durch Beobachtungsdaten besser einzuschränken. Insbesondere das Auftreten von tiefen, durchbrochenen oder dünnen Wolkensystemen wird von den Modellen des Coupled Model Intercomparison Project Phase 5 (CMIP5) unterschätzt (Tselioudis et al., 2013) und führt zu großen Modellunsicherheiten in Bezug auf die Aerosol-Wolken-Wechselwirkung (McCoy et al., 2020, 2021). Eine der wichtigsten Aerosol-Wolken-Wechselwirkungen ist die Wolkenbildung. Dabei wirken atmosphärische Aerosole als Wolkenkondensationskerne (CCN von cloud condensation nuclei) und werden unter günstigen Bedingungen, die durch Auftrieb, Übersättigung, Aerosolgröße und chemischer Zusammensetzung bestimmt werden, zu Wolkentropfen aktiviert (Köhler, 1936; Twomey, 1959; Koehler et al., 2006; Reutter et al., 2009; Rosenfeld et al., 2014; Cecchini et al., 2017). Aus der Wolkenbildung ergeben sich anschließend  $N_{\rm W}$ und die resultierenden Strahlungseigenschaften von Wolken (Twomey und Warner, 1967; Twomey, 1977; Rosenfeld et al., 2019). Außerdem unterdrücken hohe Aerosolteilchenkonzentrationen und die verbundene CCN-Aktivierung die Ausbildung von Niederschlag und erhöhen die Lebensdauer und Dichte der Wolken (Albrecht, 1989; Freud und Rosenfeld, 2012; Braga et al., 2017a).

Die Wolkenprozesse umfassen Stoß- und Wachstumsprozesse der Wolkenpartikel und sind durch ihren Einfluss auf das Klima von grundlegender Bedeutung für die Bewertung der Vorhersagequalität von Klimamodellen (Zelinka et al., 2014; Seinfeld et al., 2016; Zelinka et al., 2017; IPCC, 2021). Die Simulation von Aerosol-Wolken-Wechselwirkungen in solchen Modellen erfordert die Anwendung von mikrophysikalischen Zwei-Moment-Wolkenschemata in Kombination mit Aerosol-Submodellen, die Informationen über relevante Aerosoleigenschaften liefern (z.B. Lohmann et al., 2007; Lohmann und Hoose, 2009; Righi et al., 2020). Aerosoleffekte auf  $N_{\rm W}$  bei der Wolkenbildung werden in diesen Modellen durch spezielle Parametrisierungen (z.B. Abdul-Razzak und Ghan, 2000; Ghan et al., 2011) beschrieben, die durch die Aerosolgrößenverteilung und -zusammensetzung sowie dynamische Parameter, wie die Aufwindgeschwindigkeit (w), gesteuert werden. Vergleiche mit Beobachtungsdaten sind unerlässlich, um die Robustheit der Simulation zu bewerten. Es gibt mehrere Ansätze zur Quantifizierung von N<sub>W</sub> mit Satellitenmessungen (z.B. Quaas et al., 2008; Rosenfeld et al., 2016; Grosvenor et al., 2018), die aufgrund von großen Unsicherheiten weiterhin eine Herausforderung darstellen (Gryspeerdt et al., 2017; Painemal et al., 2020). Satelliten messen großvolumige Eigenschaften, die Mechanismen auf einer mikrophysikalischen Skala begrenzt erfassen (McComiskey und Feingold, 2012). Folglich



**Abbildung 1.1:** Jährliche CMIP6 Multimodell-Mittelwertabweichung der bodennahen Lufttemperatur (2 m) gegenüber der Klimatologie aus ERA5 zwischen 1955 und 2014. Die Messregion dieser Arbeit liegt innerhalb des roten Kreises. Quelle: adaptiert aus Bock et al. (2020).

werden in-situ Messungen benötigt, um das Verständnis der jeweiligen Wolkenprozesse zu überprüfen und zu verbessern.

In Abb. 1.1 ist die Multimodell-Mittelwertabweichung der bodennahen Lufttemperatur von *Coupled Model Intercomparison Project Phase* 6 (CMIP6) Modellen gegenüber der Klimatologie aus der fünften globalen Reanalyse (ERA5) des *European Centre for Medium-Range Weather Forecasts model* (ECMWF) aus Bock et al. (2020) gezeigt. Die Ergebnisse der Modellevaluierung des CMIP6 zeigen, dass Verbesserungen in der Wolkendarstellung zu stärkeren kurzwelligen Wolkenrückkopplungen und einer höheren effektiven Klimasensitivität gegenüber der globalen mittleren bodennahen Lufttemperatur führen (ebd.). Insbesondere Regionen mit großen Multimodell-Mittelwertabweichungen sind von großem Interesse (Andrews et al., 2015; Ceppi et al., 2017) und Ziel verschiedener in-situ Messkampagnen (z.B. Lu et al., 2007; Hersey et al., 2009; Wood et al., 2011; Russell et al., 2013; Knippertz et al., 2015; Wendisch et al., 2016; Flamant et al., 2018; Sorooshian et al., 2018; Formenti et al., 2019; Sorooshian et al., 2019). Dabei konzentrieren sich aktuelle Messkampagnen auf die Region des antarktischen Ozeans in der südlichen Hemisphäre (z.B. McFarquhar et al., 2021). Der Nordwestatlantik (NWA) als Region weist hohe Abweichungen zwischen dem CMIP6 Multimodell-Mittelwert und den bodennahen Lufttemperaturen auf (siehe roter Kreis in Abb. 1.1). Im NWA gibt es einen großen Anstieg der Aerosolteilchenkonzentrationen und Nw seit der vorindustriellen Zeit, wobei die Aerosolbelastung seit den frühen 1980er-Jahren leicht zurückgegangen ist (Merikanto et al., 2010; Chin et al., 2014). Die Region bietet durch Einflüsse der Ostküste Nordamerikas eine große Bandbreite an Aerosolvariabilität und ideale Bedingungen für die Untersuchung von Aerosol-Wolken-Wechselwirkungen (Sorooshian et al., 2020). Gleichzeitig deckt der NWA ein weites Spektrum an meteorologischen Bedingungen mit hauptsächlich tiefen, dünnen Cumuli und weniger häufigen marinen Stratocumuli ab (Tselioudis et al., 2013). Dies bietet ideale Bedingungen für die Untersuchung der Modelldiskrepanz, wie anhand der anspruchsvollen Modellierung kalter postfrontaler Wolken während eines Kaltluftausbruchs (CAO von cold air outbreak) deutlich wird (Field et al., 2017b). Dabei sind die Wolkenprozesse von Mischphasenwolken und deren Homogenität von großem Interesse (Korolev et al., 2017; Korolev und Milbrandt, 2022), da vermutet wird, dass Eispartikel die Bildung von Niederschlag beschleunigen und den Bedeckungsgrad verändern (Field et al., 2017a; Tornow et al., 2022). Insgesamt bietet der NWA die Voraussetzungen für die Bildung interessanter und komplexer Wettersysteme zur Untersuchung von dünnen und durchbrochenen Cumuli in der Nähe eines breiten, saisonal wechselnden Aerosol- und Wetterspektrums, um die großen Diskrepanzen zwischen den Modellen zu verstehen.

Ein besseres Verständnis der mikrophysikalischen Prozesse in Wolken, insbesondere der Wolkentropfenaktivierung, ist für diese anspruchsvolle Aufgabe unerlässlich. Die Kombination von Dynamik und Aerosolen spielt eine wichtige Rolle bei der Wolkentropfenaktivierung (Pruppacher und Klett, 2010). Das Vorhandensein von Aerosolen und vertikalen Luftmassenbewegungen sind Voraussetzungen für die Bildung von Cumuli. Die Effekte von Aerosol und Dynamik sind schwer zu quantifizieren, da sie sich in der Atmosphäre nicht isoliert voneinander betrachten lassen. Dies hat zur Folge, dass die Abhängigkeiten von aerosol- und wolkenspezifischen Parametern wie der CCN- und Aerosolteilchenkonzentration mit der Wolkenteilchenkonzentration regional variieren. Globale Analysen von Satellitendaten zeigen eine positive Korrelation zwischen der optischen Dicke von Aerosol (AOD von aerosol optical depth) und N<sub>W</sub> in den meisten Regionen der Erde sowie für den gesamten Nordatlantik (Gryspeerdt et al., 2016). Die positive Korrelation bleibt für alle Jahreszeiten und für den gesamten Nordatlantik bestehen (Quaas et al., 2008; Penner et al., 2011). Im Gegensatz dazu konnten Dadashazar et al. (2021b) eine saisonale Antikorrelation zwischen AOD und N<sub>W</sub> im westlichen Teil (NWA) nahe der Ostküste Nordamerikas nachweisen. In diesem Zusammenhang ist eine Quantifizierung beobachteter Einflüsse von Dynamik und Aerosol mit in-situ Messungen von großem Interesse, um in Modellen Parametrisierungen validieren zu können.

## 1.2 Ziele dieser Arbeit

Ein zentrales Ziel der Arbeit ist die Erstellung eines Datensatzes von tiefen ozeanischen Wolken mit in-situ Messungen in der marinen Grenzschicht des NWA. Dieser soll konsistente Informationen über die von Wettermodellen und globalen Klimamodellen benötigten Wolkendaten unter marinen Bedingungen für verschiedene Jahreszeiten liefern. Des Weiteren soll eine hochwertige Datenbasis zur Bewertung globaler Klimamodelle geschaffen werden. In der vorliegenden Arbeit sollen insbesondere die mikrophysikalischen Eigenschaften von durchbrochenen und dünnen Cumuli, die in globalen Klima- und Wettermodellen unzureichend repräsentiert sind, näher untersucht werden. Dies soll klären, ob und wie Eisbildung und Mischphasenwolken die mikrophysikalischen Eigenschaften, die Bildung von Niederschlag und das regionale Klima beeinflussen. Ein weiteres zentrales Ziel der Arbeit ist die systematische Untersuchung der Wolkenbildung im NWA mit Hilfe des erstellten in-situ Datensatzes und die Quantifizierung des Einflusses von Dynamik und Aerosolen. Damit soll die Hypothese überprüft werden, ob N<sub>W</sub> von tiefen Wolken in der marinen Grenzschicht des NWA wesentlich durch die Dynamik reguliert wird. Daher können die Ergebnisse dieser Arbeit wichtige Beiträge zur Verbesserung der Aerosol-Klimasimulationen und der angewandten Parametrisierungen der Wolkenbildung ermöglichen.

Der Hauptteil dieser Arbeit beginnt mit einer Einführung in die Theorie von Wolken und Aerosolen. Ein besonderer Schwerpunkt liegt auf der Wolkenbildung und dem Zusammenhang zwischen Dynamik und Aerosol bei der Wolkentropfenaktivierung. Zusätzlich wird ein Überblick über die mikrophysikalischen Auswirkungen von Wolkenprozessen in Flüssig- und Mischphasenwolken gegeben. In Kapitel 3 werden die Grundlagen, Funktionsweisen und Limitierungen der verwendeten, flugzeuggetragenen Messinstrumente vorgestellt. Insbesondere das Streulichtspektrometer Fast Cloud Droplet Probe (FCDP) und der Schattenbilddetektor Two-Dimensional Stereo (2D-S) für die Wolkenmessungen werden detailliert behandelt und in Kapitel 4 experimentell charakterisiert. Die Charakterisierung umfasst neben der Messflächenkalibrierung und Größenbestimmung beider Instrumente eine ausführliche Ausarbeitung der verwendeten Filtermethoden zur Differenzierung zwischen Eis und Wassertropfen bei den gemessenen 2D-S-Beugungsbildern. Anschließend werden die methodische Kombination der Messinstrumente sowie die damit verbundenen Schwierigkeiten und die Messunsicherheiten für verschiedene Messkonditionen aufgezeigt. In Kapitel 5 folgt die Vorstellung der Messkampagne ACTIVATE und der daraus gewonnenen wissenschaftlichen Ergebnisse. Zunächst wird ein Überblick über den Datensatz gegeben und eine Unterscheidung von Wolken und Niederschlag anhand von Phasenräumen mikrophysikalischer Parameter erarbeitet. Diese Klassifikation wird verwendet, um die Saisonalität von Flüssigwolken, die Variabilität von Mischphasenwolken im Winter und das räumliche und saisonale Auftreten von Niederschlag und Wolken zu untersuchen. Anschließend werden in Kapitel 6 die saisonalen Einflüsse von Dynamik und Aerosol auf die Wolkentropfenkonzentration bei der Wolkenbildung anhand von Messungen in der Wolkenbasis quantifiziert. Abschließend werden die zentralen Ergebnisse in Kapitel 7 zusammengefasst. In Kapitel 8 wird ein Ausblick für Verbesserungen der Methodik und an diese Arbeit anknüpfende Forschungsaktivitäten, wie die Evaluation globaler Klimamodelle, gegeben.

# Kapitel 2

## Wolken und Aerosole: Grundlagen

Ziel dieses Kapitels ist die Vermittlung der physikalischen Grundlagen zum Verständnis der im Rahmen dieser Arbeit relevanten Wolkenprozesse. Zur Einordnung der betrachteten marinen Grenzschichtwolken dienen die konventionelle Klassifizierung und die Einteilung anhand des Aggregatzustandes der Wolkenpartikel. Die theoretischen Grundlagen konzentrieren sich zunächst auf die Wolkenbildung und die essenzielle Rolle der Aerosole darin. Die Aerosol-Wolken-Wechselwirkung bei der Wolkenbildung wird als indirekte Aerosol-Rückkopplung bezeichnet und stellt eine der größten Unsicherheiten in Klimamodellen dar (IPCC, 2021). Dabei ist der Wasserdampfgehalt der betrachteten Luft und dessen Temperatur- und Druckabhängigkeit von entscheidender Bedeutung für die Phasenübergänge des atmosphärischen Wassers. Nur geeignete Wasserdampfgehalte, Temperaturbereiche und die Anwesenheit von Aerosol führen zur Bildung von Wolkentropfen. Im Folgenden wird die Thermodynamik von Wasserdampf und Aerosol erörtert und der Einfluss der chemischen Eigenschaften von Aerosol auf die Wolkenbildung dargestellt. Abschließend werden die Interaktionen der Wolkenpartikel untereinander wie Stoß- und Wachstumsprozesse sowie Vereisung vorgestellt. Dabei wird zwischen Flüssig- und Mischphasenwolken unterschieden. Die in diesem Kapitel vorgestellten Wolkenprozesse und Wolkentropfenaktivierung von Aerosol sind Voraussetzung für die Interpretation der gemessenen mikrophysikalischen Wolkeneigenschaften in Kapitel 5 und Kapitel 6.

## 2.1 Klassifikation von Wolken

Die Vielzahl an Wolkenarten unterscheiden sich in ihren Bildungsmechanismen, mikround makrophysikalischen Eigenschaften und in ihrer chemischen Zusammensetzung. Unter dem Begriff Wolke versteht man allgemein die Ansammlung von kleinen flüssigen Tröpfchen oder Eiskristallen, die im Zusammenspiel mit Licht für das menschliche Auge sichtbar werden. Der überwiegende Anteil an Wolken besteht aus Wasser und befindet sich in



**Abbildung 2.1:** Konventionelles Klassifizierungsschema (a) und die Einteilung über den Aggregatzustand der Wolkenpartikel (b) (selbsterstellte Skizze).

der Troposphäre, der niedrigsten Atmosphärenschicht, in der die Temperatur mit der Höhe abnimmt. Auch in der darüberliegenden Stratos- und Mesosphäre mit vergleichsweise geringem Wasserdampfgehalt können sich Wolken ausbilden. Beispiele sind die leuchtenden Nachtwolken und die polaren Stratosphärenwolken, die aus Schwefelsäureaerosol, Salpetersäure und Wasser bestehen. In dieser Arbeit werden ausschließlich tiefe troposphärische Wolken, die sich vollständig innerhalb der planetaren Grenzschicht befinden, betrachtet. Die planetare Grenzschicht bezeichnet die an die Erdoberfläche angrenzende Luftschicht unterhalb von 2 km. Sie ist durch Turbulenz gekennzeichnet und die Bewegung der Luftmassen ist durch die Bodenreibung beeinflusst. Meist grenzt sich die planetare Grenzschicht durch eine Inversion von meteorologischen Parametern, wie der Temperatur oder der potentiellen Temperatur, von der darüberliegenden freien Troposphäre ab (Garratt, 1994).

Die Einteilung der Wolken wurde erstmals von Howard (1803) anhand der Höhe der Wolkenunterkante und der visuellen Struktur niedergeschrieben. Im Folgenden wird das Wolkenklassifikationsschema nach Wang (2013) verwendet, in dem nach vier Höhenkategorien und den drei Basisstrukturen zirrusförmig (hoch und eher fasrig), stratiförmig (gleichförmig geschlossene Schicht) und cumuliförmig (wattig und zellförmig) unterschieden wird. In Abb. 2.1a sind die Hauptwolkenarten abgebildet. Die troposphärischen Wolkenarten oberhalb von 6 km sind Zirrus, Zirrocumulus und Zirrostratus. Die Wolkenarten in mittleren Höhen von 2 bis 6 km werden als Altocumulus und Altostratus bezeichnet. Die tiefen Wolkenarten sind Stratus, Stratocumulus und Nimbostratus, mit Wolkenunterkanten innerhalb der Grenzschicht unterhalb von 2 km, welche oft in Verbindung mit Regen stehen. Des Weiteren gibt es die Wolkenarten Cumulus und Cumulonimbus, die sich durch ihre vertikale Ausbreitung und größere Aufwindgeschwindigkeiten von den anderen Wolkenarten unterscheiden. In dieser Arbeit werden hauptsächlich Cumuli über dem NWA betrachtet, deren vertikale Ausbreitung nicht oder nur geringfügig über die planetare Grenzschicht hinaus geht.

In Abb. 2.1b ist eine weitere Einteilung der Wolken über den Aggregatzustand der Wolkenpartikel dargestellt. Dabei werden Flüssigwolken mit ausschließlich Wassertropfen, Eiswolken mit ausschließlich Eispartikeln und Mischphasenwolken mit Wolkenpartikeln beider Aggregatzustände unterschieden. Der Vorteil dieser schlichten Unterscheidung ist, dass die Wechselwirkung elektromagnetischer Strahlung mit Wolkenpartikeln von großer Bedeutung ist und die Streueigenschaften stark vom Aggregatzustand und der daraus resultierenden Geometrie der Wolkenpartikel abhängen. Die in dieser Arbeit untersuchten Cumuli innerhalb der marinen Grenzschicht bestehen aus Flüssig-, Mischphasen- und Eiswolken. Insbesondere die Mischphasenwolken haben aufgrund der Interaktionen von Wolkenpartikeln unterschiedlicher Aggregatzustände mehr und verschiedene Wolkenprozesse, welche die mikrophysikalischen Eigenschaften vielseitig verändern. Zusätzlich bilden Mischphasenwolken ein großes Spektrum mit unterschiedlichen Verhältnissen zwischen dem flüssigen und festen Aggregatzustand ab. Im Hinblick auf die kühlende Wirkung von tiefen Wolken, welche sich aus den Streueigenschaften der Wolkenpartikel ergeben, sind Mischphasenwolken von besonders großem Interesse.

### 2.2 Aerosol-Wolken-Wechselwirkung: Wolkenbildung

Die zwei Grundvoraussetzungen für die Wolkenbildung innerhalb der marinen Grenzschicht sind die Anwesenheit von Aerosolen und die maximale Wasserdampfmenge, die ein Luftpaket aufnehmen kann. Diese wird durch Temperatur und Druck reguliert. Deshalb werden im Folgenden die wichtigsten Kennwerte des atmosphärischen Wasserdampfs eingeführt und aufgezeigt, wie sich die Dynamik beziehungsweise die Bewegung der Luftmassen auf diese auswirkt. Anschließend wird ein Überblick über die Entstehung und das Wachstum von Aerosol gegeben sowie der Zusammenhang mit Wolken- und Eiskondensationskernen erläutert. Abschließend wird die Theorie der Wolkentropfenaktivierung durch Kondensation des Wasserdampfes auf geeigneten Aerosolen vorgestellt.

#### 2.2.1 Dynamik: Relative Feuchte und Übersättigung

Der Wasserdampfgehalt in feuchter Luft wird über die Temperatur und Dichte der darin vorhandenen Wasserdampfmoleküle bestimmt. Feuchte Luft ist ein Gasgemisch aus Wasserdampf und trockener Luft, dessen Druck mit der Annahme eines idealen Gases hinreichend approximiert werden kann und durch die Summe der Partialdrücke der Komponenten beschrieben wird (Dalton, 1802; Goff und Gratch, 1946). Im Weiteren wird auf eine ausführliche Herleitung verzichtet und die Anzahl der thermodynamischen Gleichungen auf ein Minimum beschränkt, um den Fokus der Arbeit zu bewahren. Eine detaillierte Herleitung ist in Pruppacher und Klett (2010) zu finden. Der Wasserdampfpartialdruck (*e*) ist gegeben durch

$$e = \rho_{\rm wd} \frac{\mathcal{R}}{M_{\rm w}} T = \rho_{\rm wd} R_{\rm wd} T, \tag{2.1}$$

mit der universellen Gaskonstante ( $\mathcal{R}$ ), der spezifischen Gaskonstante ( $R_{wd}$ ) und Dichte ( $\rho_{wd}$ ) von Wasserdampf, der molaren Masse von Wasser ( $M_w$ ) und der Temperatur (T). Der Sättigungsdampfdruck ( $e_{sat}$ ) gibt den Gleichgewichtszustand des flüssigen und gasförmigen Aggregatzustands an und ergibt sich aus der Clausius-Clapeyron-Gleichung. Für ein ideales Gas ist die Verdampfungs-/Kondensationsenthalpie von Wasser ( $\Delta_w$ H) konstant und der Sättigungsdampfdruck ist gegeben durch:

$$\frac{de_{\text{sat}}}{dT} = \frac{\Delta_{\text{w}} H \ e_{\text{sat}}}{R_{\text{w}} T^2}.$$
(2.2)

Die Verdampfungsenthalpie hat denselben Betrag wie die Kondensationsenthalpie mit entgegengesetztem Vorzeichen und beschreibt die latente Wärme einer Aggregatzustandsänderung oder eines Phasenübergangs, in der die zugeführte Wärmemenge zu keiner tatsächlichen Temperaturerhöhung führt. Da  $\Delta_w$ H von der Temperatur abhängt, lässt sich  $e_{sat}$  mit weiteren Näherungen nur ungenau bestimmen (Koutsoyiannis, 2012), und in der Praxis kommen die empirischen Magnus-Formeln zur Anwendung (W.M.O. World-Meteorological-Organization, 2021):

$$e_{\text{sat,w}} = 6,112e^{\left(\frac{17,62T}{243,12+T}\right)} \qquad \text{für} - 45^{\circ}C < T < 60^{\circ}C, \tag{2.3}$$

$$e_{\text{sat,e}} = 6,112e^{\left(\frac{22,46T}{272,62+T}\right)} \qquad \text{für} - 65^{\circ}C < T < 0^{\circ}C.$$
(2.4)

Die Magnus-Formeln beschreiben den Wasserdampfpartialdruck über einer ebenen Wasseroberfläche ( $e_{sat,w}$ ) und Eisoberfläche ( $e_{sat,e}$ ).  $e_{sat,e}$  wird dabei mit der Sublimations-/Resublimationsenthalpie ( $\Delta_s$ H) des Phasenübergangs zwischen fest und gasförmig in Gleichung 2.2 berechnet. Sowohl  $e_{sat,w}$  als auch  $e_{sat,e}$  nehmen mit der Temperatur ab. Aus dem Tripelpunkt, indem die Aggregatzustände flüssig, fest und gasförmig im Gleichgewicht sind, ergibt sich, dass sich  $\Delta_s$ H aus der latenten Wärme des Schmelz- und Verdampfungsvorgangs beziehungsweise Kondensations- und Erstarrungsvorgangs zusammensetzt. Es gilt immer  $\Delta_s$ H  $\geq \Delta_w$ H. Folglich ist  $e_{sat,e}$  kleiner als  $e_{sat,w}$  für alle Temperaturen unterhalb von 0 °C. Aus  $e, e_{sat,w}$  und  $e_{sat,e}$  ergeben sich die für die Wolkenbildung relevanten Größen der relativen Feuchte (*RH* von *relative humidity*) und Übersättigung (*S* von *supersaturation*) zu

$$RH_{\rm w,e} = \frac{e}{e_{\rm sat,w,e}}; \qquad S_{\rm w,e} = \frac{e}{e_{\rm sat,w,e}} - 1. \tag{2.5}$$

In dieser Arbeit werden hauptsächlich die relative Feuchte und die Übersättigung gegenüber flüssigem Wasser ( $RH_w$ ,  $S_w$ ) verwendet und daher auf eine entsprechende Indexierung, außer an relevanten Stellen, verzichtet. Bei S>0 handelt es sich um übersättigte Luft und das Gleichgewicht zwischen dem flüssigen und gasförmigen Aggregatzustand ist verletzt. Es handelt sich hierbei um einen metastabilen Zustand. Die Clausius-Clapeyron-Gleichung vernachlässigt, dass in reiner Luft beim Phasenübergang von gasförmig zu flüssig kleine Wassertropfen mit sehr stark gekrümmten Oberflächen entstehen. Diese können aufgrund des instabilen Gleichgewichts zwischen Verdunstung und Kondensation nicht über ein kritisches Maß anwachsen, da die gekrümmte Oberfläche den Druck innerhalb des Wassertropfens vergrößert und den benötigten Sättigungsdampfdruck erhöht. Daher können Wassertropfen erst durch Verunreinigungen über den kritischen Radius anwachsen.

Feuchte Luft kühlt sich in der Atmosphäre durch Expansion ab und schafft dadurch Bedingungen mit ausreichender *S* für die Wolkenbildung. Die primäre Quelle für den Wasserdampfeintrag in die Atmosphäre ist die Verdunstung von Wasser auf der Erdoberfläche. Nahe der Erdoberfläche sind die höchsten Temperaturen der Troposphäre und Luftpakete mit hohen Temperaturen haben die größte Kapazität Wasserdampf aufzunehmen. Da die Temperatur in der Troposphäre mit der Höhe abnimmt, sinkt gleichzeitig  $e_{sat}$ . Die adiabatische Kühlung von feuchter Luft ist der dynamische Hauptprozess bei der Bildung von Cumuli und beschreibt deren Aufstieg in der Atmosphäre. Bei der adiabatischen Kühlung wird ein Luftpaket, ohne Wärmeaustausch mit der Umgebung, betrachtet. Dieses steigt aufgrund des Temperaturunterschieds gegenüber der darüberliegenden Luft auf. Durch den Druckunterschied gegenüber der Umgebung dehnt sich das Luftpaket aus. Die Volumenzunahme führt in einem adiabatischen Prozess zu einer Temperaturerniedrigung des Luftpakets, welche über den feucht adiabatischen Temperaturgradienten beschrieben wird. Das Luftpaket steigt bis zu einer Temperatur auf, bei der  $e_{sat,w}$  gleich dem im Luftpaket vorhandenen e ist. Dieser Punkt wird als Kondensationsniveau bezeichnet. Ein weiteres Aufsteigen führt zu einem übersättigten Luftpaket mit *S*>0 und Bedingungen, in denen Wasserdampf auskondensiert. Die Kondensation produziert latente Wärme und erhöht die Temperatur des Luftpakets, das zu einem zusätzlichen Auftrieb und einer reduzierten Temperaturabnahme mit der Höhe führt. Die adiabatische Kühlung durch aufsteigende Luft stellt einen maximalen Grenzwert der zu erreichenden Übersättigung dar. In der realen Atmosphäre kühlt das aufsteigende Luftpakt durch Lufteinschluss (im Englischen *entrainment*) und Mischprozesse mit trockener Luft ab. Durch diese Mischprozesse fällt die relative Feuchte an den Wolkenkanten ab. Dies kann zu einer Untersättigung und verdampfenden Wolkentropfen führen, die einen kühlenden Effekt aufgrund der latenten Wärme auf die Umgebung haben.

Für die Interpretation der in Kapitel 6 vorgestellten Wolkendaten ist eine Abschätzung der maximalen Übersättigung ( $S_{max}$ ) oberhalb der Wolkenunterkante hilfreich. Hierfür wird die Parametrisierung von (Pinsky et al., 2012) verwendet, die ein adiabatisches Modell von Luftpaketen nutzt und  $S_{max}$  mit Hilfe von Messdaten bestimmt. In die Parametrisierung

$$S_{\text{max}} = Cw^{\frac{3}{4}} N_{\text{flüssig}}^{-\frac{1}{2}}$$
(2.6)

fließen die gemessene Aufwindgeschwindigkeit (*w*) und die Teilchenkonzentration der Wolkentropfen ( $N_{\text{flüssig}}$ ) ein. Im Allgemeinen steigt der thermodynamische Parameter C mit abnehmender Temperatur und wird aus Druck und Temperatur der Wolkenbasis ermittelt. Da die Temperaturschwankungen in der Wolkenbasis gering sind, kann C als konstant angenommen werden. Im adiabatischen Modell des Luftpakets wird die maximale  $N_{\text{flüssig}}$ , die für die  $S_{\text{max}}$ -Schätzung benötigt wird, je nach *w* in verschiedenen Höhen über dem Kondensationsniveau erreicht. Die Untersuchungen von Braga et al. (2021) haben gezeigt, dass die Bedingungen für die  $S_{\text{max}}$ -Bestimmung für Messungen oberhalb von 35 m über der Wolkenunterkante für das in dieser Arbeit betrachtete *w*-Spektrum erfüllt sind. Da *w*-Messungen innerhalb der Wolkenbasis stark fluktuieren, wird für einen repräsentativen  $S_{\text{max}}$ -Schätzwert die effektive Aufwindgeschwindigkeit ( $w_{\text{eff}}$ ) nach Y. Zheng et al. (2015) verwendet:

$$w_{\text{eff}} = \frac{\sum m_i w_i^2}{\sum m_i w_i}; \text{ mit } w_i > 0, \qquad (2.7)$$

wobei  $m_i$  die Häufigkeit des Auftretens der Vertikalgeschwindigkeit  $w_i$  im Histogramm der Vertikalgeschwindigkeitsverteilung ist. Mit Hilfe der Parametrisierung können die  $S_{max}$  innerhalb von Wolken durch in-situ Messdaten abgeschätzt werden.



Abbildung 2.2: Schematische Darstellung einer multimodalen Aerosol-Partikelgrößenverteilung und eine typische Wolkenpartikelverteilung.

#### 2.2.2 Aerosole: Wolkenkondensationskerne

Die Aerosole werden nach ihrem Durchmesser in Nukleationsmode (<10 nm), Aitkenmode (10 bis 100 nm), Akkumulationsmode (100 bis 1000 nm) und Grobmode (von coarse mode) (>1000 nm) unterschieden. In Abb. 2.2 sind die Moden einer multimodalen Aerosol-Partikelgrößenverteilung schematisch dargestellt. Nach Seinfeld und Pandis (2016) sind die Hauptbestandteile von atmosphärischem Aerosol Sulfate, Nitrate, Ammonium, organisches Material, Meersalz, Metalloxide, Hydroxide und Wasser. Die Aerosole der Nukleations- und Aitkenmode bestehen überwiegend aus Sulfaten, Ammonium und organischem oder elementarem Kohlenstoff. Aerosole der Grobmode bestehen hauptsächlich aus erodiertem Gestein, Meersalz oder Bioaerosolen wie Pollen, Sporen oder Pflanzenresten, die vom Wind eingetragen werden. Die Masse wird von der Grob- und Akkumulationsmode dominiert. Den größten Beitrag zur Aerosolteilchenkonzentration liefern die Nukleations- und die Aitkenmode. Das Auftreten der Nukleationsmode hängt von den atmosphärischen Bedingungen und den Konzentrationen von Vorläufergasen wie Schwefeldioxid, flüchtigen organischen Verbindungen und Stickoxiden ab (ebd.). Aerosole werden häufig nach den Regionen unterschieden, in denen sie entstehen, und hier soll kurz auf die Charakteristiken von urbanem und marinem Aerosol eingegangen werden. Urbanes Aerosol besteht aus einer Mischung von Primäremissionen von Industrie, Verkehr, Kraftwerken oder natürlichen Quellen und aus sekundärem Aerosol, das sich aus der Gasphase bildet. In urbanen Gebieten sind die Massenverhältnisse zwischen Akkumulations- und Grobmode ausgeglichen. Die Masse des marinen Aerosol wird durch die Grobmode dominiert, die hauptsächlich aus Meersalz besteht (ebd.).

Die drei Hauptprozesse der Aerosolbildung sind laut Pruppacher und Klett (2010) die Bildung aus der Gasphase, die Verdunstung von Wassertropfen und der mechanische und chemische Abbau der Erdoberfläche wie Erosion oder brechende Meereswellen. Im Folgenden werden Beispiele für die Hauptprozesse der Aerosolbildung genannt und das dabei entstehende Aerosol den Moden der Aerosol-Partikelgrößenverteilung zugeordnet. Bei der Bildung aus der Gasphase gibt es eine Vielzahl von Prozessen. Es wird zwischen homogener Keimbildung ohne Kondensationskern und heterogener Keimbildung mit Kondensationskern unterschieden. Die häufigsten Prozesse sind die homogene Keimbildung von Gasen mit niedrigen Siedetemperaturen, die meist aus der pflanzlichen Exspiration oder von Verbrennung stammen, wie Ruß, Öle, Schwefelsäure oder Sulfate, und hauptsächlich Aerosole der Aitkenmode bilden (Pruppacher und Klett, 2010). Ein weiterer Prozess stellt die homogene Keimbildung durch chemische Reaktionen dar, vorwiegend die durch ultraviolettes Licht induzierte Chemie von Schwefelsäure oder Salpetersäure (ebd.). In der marinen Grenzschicht trägt die Produktion von Dimethylsulfiden (DMS) und anderen flüchtigen organischen Verbindungen durch Phytoplankton zur chemischen Aerosolbildung bei (Brooks und Thornton, 2018; Behrenfeld et al., 2019). Junge Aerosole, die durch die homogene Keimbildung gebildet werden, sind der Hauptbestandteil der Nukleationsmode. Der Entstehungsmechanismus durch Kondensation aus der Gasphase wird durch das vermehrte Auftreten von Akkumulationspartikeln gehemmt, da die Kondensation an einem vorhandenen Partikel energetisch günstiger ist als die homogene Keimbildung. Wolkentropfen enthalten in der Regel einen Nukleationskern oder gelöste Gase, die nach der Verdunstung des Wassers als Aerosol vorliegen und sich vom ursprünglichen Nukleationskern in Größe und chemischer Zusammensetzung unterscheiden. Die durch Verdunstung zurückbleibenden Aerosole sind meistens groß und liegen in der oberen Hälfte der Akkumulationsmode (Seinfeld und Pandis, 2016). Über dem Meer dominiert die Produktion von Meersalzaerosol. Kleinste Wassertröpfchen entstehen an der Meeresoberfläche durch platzende Gasblasen oder sich brechende Wellen, wobei diese von Scherwinden erfasst und in die marine Grenzschicht transportiert werden (Pruppacher und Klett, 2010; Grythe et al., 2014).

Koagulation ist die Verklumpung von Partikeln und der wichtigste Wachstumsprozess von Aerosol im Submikrometerbereich. Die Zusammenführung von flüssigen Partikeln wird als Koaleszenz, die von festen Partikeln als Aggregation bezeichnet (Seinfeld und Pandis, 2016). Die Koagulation wird theoretisch durch die Brownsche Bewegung beschrieben, wobei der Stoßprozess zweier unterschiedlich großer Aerosolpartikel betrachtet wird. Abhängig von der Teilchenkonzentration des Aerosols und der damit verbundenen freien Weglänge zwischen den Aerosolteilchen wirken veränderte kinetische Effekte aufgrund eines anderen Diffusionsverhaltens auf kleine Aerosole, die etwa so groß sind wie die freie Weglänge und sich in der Nähe größerer Aerosolteilchen befinden. Die Stoßwahrscheinlichkeit steigt mit dem Größenunterschied der Aerosolpartikel und ist für gleich große Aerosolpartikel am geringsten (ebd.). Daher ist die Koagulation bei Aerosol-Partikelgrößenverteilungen mit ausgeprägter Aitken- und Akkumulationsmode sehr effizient. Ein weiterer Wachstumsprozess von Aerosol ist die Kondensation verschiedener Gase. Die Geschwindigkeit der Kondensation wird durch die Diffusion der Gase an die Aerosoloberfläche bestimmt (ebd.). Dabei wachsen kleine Aerosole durch Kondensation schneller als große Aerosole aufgrund des günstigeren Verhältnisses von Volumenzunahme zu Aerosoloberfläche. Der Vollständigkeit halber ist das Wachstum durch Verdunstung von Wolkentropfen zu erwähnen, das der Aerosolbildung durch Verdunstung von Wolkentropfen entspricht, das ursprüngliche Aerosol vergrößert und in seiner Zusammensetzung verändert (Pruppacher und Klett, 2010).

Wolkenkondensationskerne (CCN) sind eine Teilmenge des in der Atmosphäre vorhandenen Aerosols und bezeichnen Aerosol, das bei einer bestimmten Übersättigung zu einem Wolkentropfen aktiviert wird. Die Fähigkeit eines Aerosolpartikels, als CCN zu fungieren, hängt von seiner Größe, seinen chemischen Eigenschaften und der lokalen Übersättigung ab (Seinfeld und Pandis, 2016). Untersuchungen von Dusek et al. (2006) zeigen, dass die Größe der wichtigste Faktor für die Wolkentropfenaktivierung ist und die chemischen Eigenschaften eine untergeordnete Rolle spielen. Daher gibt es für jede S einen kritischen Durchmesser, bei dem alle größeren Partikel zu Wolkentropfen aktiviert werden. Durch diesen Zusammenhang ist die Teilchenkonzentration der CCN (N<sub>CCN</sub>) ein Indikator für die zu erwartende Teilchenkonzentration der Wolkentropfen. Der CCN-Anteil in der Aerosolpopulation ist in marinen Regionen höher als in urbanen Gebieten (Pruppacher und Klett, 2010). Neben den CCN gibt es Eisnukleationskerne (INP von ice nucleating particle), die unterkühlte Wassertropfen gefrieren lassen oder direkt Eiskristalle bilden. INP sind stark wasserabweisend und größer als 100 nm, wobei insbesondere Silikate wie Feldspat gute INP sind und der Akkumulations- und Grobmode zugeschrieben werden (ebd.). Die Güte der INP wird in Parametrisierungen durch die Anzahl der aktiven Stellen eines Aerosolpartikels beschrieben (DeMott et al., 2010; Hoose und Möhler, 2012; DeMott et al., 2016; Vergara-Temprado et al., 2017). Aktive Stellen sind Vertiefungen in der Aerosoloberfläche. Durch die konkave Krümmung werden die Wassermoleküle in der Vertiefung abgeschirmt und die Effekte der Oberflächenspannung reduziert, das als inverser Kelvin-Effekt bezeichnet wird und den Phasenübergang von unterkühltem Wasser zu Eis erleichtert. Der für Mischphasenwolken wichtigste Prozess zur Eisbildung ist das Immersionsgefrieren, bei dem INP bei Temperaturen oberhalb von 0 °C zu einem Wassertropfen aktiviert werden und bei anschließender Unterkühlung durch den inversen Kelvin-Effekt gefrieren.

#### 2.2.3 Wolkentropfenaktivierung

Die Wolkentropfenaktivierung wird für eine verdünnte Lösung in einfachster Form durch die Köhler-Gleichung beschrieben (Köhler, 1936),

$$\ln\left(\frac{e_{\text{sat,w}}(D_p)}{e_{\text{sat,w}}}\right) = \frac{4M_{\text{w}}\sigma_{\text{w}}}{\mathcal{R}T\rho_{\text{w}}D_p} - \frac{6\nu n_{\text{s}}M_{\text{w}}}{\pi\rho_{\text{w}}D_p^3} .$$

$$\downarrow^{\downarrow} \text{Kelvin-Effekt} \quad \text{Raoult-Effekt}$$
(2.8)

Diese drückt den Sättigungsdampfdruck der Lösung  $e_{sat,w}$  als Funktion einer gekrümmten Fläche mit Durchmesser  $D_p$  aus. Dabei werden die Dichte von Wasser ( $\rho_w$ ), die Oberflächenspannung von Wasser ( $\sigma_w$ ), die gelöste Stoffmenge des Salzes ( $n_s$ ) und die Anzahl der dissoziierten Ionen des Salzes ( $\nu$ ) als konstant betrachtet (Pruppacher und Klett, 2010). In der Köhler-Gleichung werden der Kelvin-Effekt und der Raoult-Effekt, die einander entgegengesetzt wirken, kombiniert.

Der Kelvin-Effekt beschreibt die krümmungsbedingte Erhöhung des Sättigungsdampfdrucks und ist die primäre Ursache für die Unterbindung homogener Keimbildung und der Ausbildung stabiler Übersättigungsbedingungen. Aufgrund der Oberflächenspannung des Wassers erfahren Wassertropfen einen zusätzlichen nach innen gerichteten Druck, der mit einem erhöhten esat, wim Gleichgewicht steht. Bei der homogenen Keimbildung bilden sich Wassermolekül-Cluster, die instabil sind und stark von der Flussrate der Wassermoleküle zur Clusteroberfläche abhängen. Die kleinsten Wassermolekül-Cluster sind bei Übersättigungen von über 400 % stabil, dies tritt in der Atmosphäre nicht auf, wodurch die homogene Keimbildung als Bildungsmechanismus ausgeschlossen wird. Obwohl die Clausius-Clapeyron-Gleichung (Gleichung 2.2) über  $e_{\text{sat.e}} < e_{\text{sat.w}}$  Eis als bevorzugten Aggregatzustand bei Abkühlung unter dem Tripelpunkt vorhersagt, zeigt der Kelvin-Effekt, dass die Oberflächeneffekte mit einer höheren Oberflächenenergie von Eis ( $\sigma_{\rm e}$ ) gegenüber  $\sigma_{
m w}$  die Keimbildung von Eis unterdrücken, da die erforderlichen Übersättigungen um ein Vielfaches größer sind als die für die Keimbildung von Wasser (Ketcham und Hobbs, 1969; Pruppacher und Klett, 2010). Dies bestätigt die Ostwaldsche Stufenregel, die besagt, dass ein übersättigter Aggregatzustand (Wasserdampf) nicht direkt in den energetisch günstigsten Aggregatzustand (Eis) übergeht, sondern meist einen metastabilen Zwischenzustand (unterkühltes Wasser) einnimmt (Ostwald, 1897). Die heterogene Keimbildung über ein unlösliches Aerosolpartikel basiert auf der Annahme, dass sich Wassermolekül-Cluster auf einem Substrat anlagern und die Benetzung des Aerosolpartikels über den Kontaktwinkel zwischen Substrat und der Wasseroberfläche des Clusters beschrieben werden kann. Der Kontaktwinkel spiegelt die hydrophilen Eigenschaften des Substrats, wobei ein Kontaktwinkel von 0° einer ebenen Benetzung und 180° dem Grenzwert der homogenen Keimbildung entspricht. Unter der Annahme, dass die typischen maximalen Übersättigungen in Wolken unterhalb von 3 % liegen, dürfte der Kontaktwinkel nicht größer als 12 % sein, damit das Aerosolpartikel als CCN fungieren kann (Pruppacher und Klett, 2010). Selbst bei einer erfolgreichen Benetzung benötigen Wassertropfen mit einem Durchmesser <20 nm Übersättigungen von mehr als 12 %, um nicht zu verdampfen. In der Atmosphäre ist die Auf-



**Abbildung 2.3:** Köhlerkurven für verschiedene  $n_s$  an NaCl mit den entsprechenden  $D_c$  und  $S_c$  bei einer Temperatur von 0 °C und  $\sigma_w$ =75,6 mN m<sup>-1</sup>. Der Kelvin Grenzwert ist für reine Wassertropfen gegeben.

trittswahrscheinlichkeit von Bedingungen mit Übersättigungen über 12 % sehr gering und zeigt, dass unlösliche, stark hydrophile Aerosolpartikel <80 nm in typischen Bedingungen ( $S_{\text{max}}$ <3 %) nicht als geeignete CCN infrage kommen.

Der Raoult-Effekt wirkt dem Kelvin-Effekt entgegen und beschreibt die Erniedrigung des Sättigungsdampfdrucks für stark verdünnte Lösungen durch den Einfluss von Ionen. In der Atmosphäre liegt Wasser immer mit Verunreinigungen wie Salzen, Säuren oder Mineralien vor und enthält Ionen (Lamb und Verlinde, 2011). Wassermoleküle besitzen aufgrund ihrer Ladungsverteilung ein Dipolmoment und richten sich deshalb in einer Flüssigkeit so aus, dass sogenannte Wasserstoffbrückenbindungen entstehen. Ionen sind geladene Atome oder Moleküle und stören die im Wasser vorhandenen Clusterketten von Wassermolekülen, die sich entsprechend ihrem Dipolmoment schalenförmig um das Ion anordnen. Die durch die Ionen hervorgerufene Störung verringert die intermolekulare Wechselwirkung der Wassermoleküle und reduziert an der Grenzschicht den Sättigungsdampfdruck des Wassers. Nach der Köhler-Gleichung (Gleichung 2.8) kann  $e_{\text{sat,w}}(D_p)$  bei genügend hoher Konzentration gelöster Ionen sogar kleiner werden als der Sättigungsdampfdruck des Wassers über einer ebenen Fläche, sodass hydrophile lösliche Aerosole bereits bei RH<100 % als Wassertropfen vorliegen. Das hygroskopische Verhalten ist insbesondere bei Salzen zu beobachten und wird durch eine Hysteresekurve beschrieben. Meersalz bildet etwa bereits bei *RH*≥75 % Wassertropfen (Bi et al., 2018).

In Abb. 2.3 sind Köhlerkurven für verschiedene NaCl-Lösungen bei einer Temperatur von 0 °C dargestellt. Aus Gleichung 2.8 ergeben sich die kritische Übersättigung ( $S_c$ ) und der



**Abbildung 2.4:** Schematische Darstellung der Flüssigwolkenprozesse Kondensation (a) und Koaleszenz (b).

kritische Durchmesser ( $D_c$ ). In der Wolkenphysik wird ein Wassertropfen erst dann als Wolkenpartikel bezeichnet, wenn er größer als  $D_c$  ist. Ist die Übersättigung der Umgebung größer als  $S_c$ , spricht man von einem aktivierten Aerosolpartikel, der durch Kondensation rasch anwächst und einen Wolkentropfen bildet (Seinfeld und Pandis, 2016). Für  $S < S_c$ gibt es zwei Schnittpunkte mit der NaCl-Lösung entsprechenden Köhlerkurve (Abb. 2.3). Der stabile Gleichgewichtszustand wird durch den Schnittpunkt bei  $D < D_c$  beschrieben. Der Gleichgewichtszustand für  $D > D_c$  ist instabil, da eine kleine Vergrößerung von D zu Wachstum durch Kondensation führt und eine kleine Verkleinerung zu einer Erhöhung der erforderlichen Übersättigung und damit zu Verdunstung führt. Bei  $S > S_c$  wird der Wassertropfen unendlich groß und gilt als aktiviert (ebd.). Da lösliche Gase in den Wassertropfen diffundieren können und damit die Ionenkonzentration beeinflussen, andere Aerosole nur schwer löslich sind oder die Oberflächenstruktur der Aerosole die Benetzung beeinflusst, kann die Köhler-Gleichung entsprechend erweitert werden (ebd.).

### 2.3 Wolkenprozesse

Im Lebenszyklus von Wolken finden nach der Wolkentropfenaktivierung weitere Stoß- und Wachstumsprozesse der Wolkenpartikel statt, die die mikrophysikalischen Eigenschaften verändern. Durch die gleichzeitige Betrachtung mehrerer mikrophysikalischer Parameter können einzelne Prozesse voneinander unterschieden und als Indikator für den derzeitigen Punkt im Lebenszyklus verwendet werden. Da die Anwesenheit von Eispartikeln die Prozessanzahl erhöht, wird im Folgenden zwischen den Prozessen von Flüssig- und Mischphasenwolken unterschieden.

#### 2.3.1 Flüssigwolken

Unmittelbar nach der Wolkentropfenaktivierung ist Kondensation der wichtigste Wachstumsprozess bis zu Durchmessern von ungefähr 15 µm (Pruppacher und Klett, 2010). Das Wachstum durch Kondensation von Wasserdampf ist in Abb. 2.4a gezeigt und verhält sich analog zur Kondensation bei Aerosol. Demnach wachsen kleine Wassertropfen schneller durch das günstigere Verhältnis von Volumenzunahme und Wassertropfenoberfläche. Der Diffusionsfluss bestimmt die Geschwindigkeit des Wachstums und ist proportional zum Sättigungsdampfdruck beziehungsweise zur Übersättigung. Bei einer adiabatischen Abkühlung korreliert die Übersättigung mit der Aufwindgeschwindigkeit, jedoch führen hohe Aufwindgeschwindigkeiten zu einer kürzeren Verweilzeit der Wolkentropfen. Umgekehrt werden niedrigere Übersättigungen mit kleineren Aufwindgeschwindigkeiten verbunden und haben eine größere Verweilzeit der Wassertropfen, in der die Kondensation länger andauert. Das thermodynamische System einer Wolke ist immer bestrebt die vorhandene Übersättigung abzubauen und für einen effektiven Abbau durch Kondensation dient die Maximierung der Grenzschichtfläche zwischen Wasser und Wasserdampf. Daher führen höhere N<sub>CCN</sub> zu einem rascheren Abbau der Übersättigung, dichteren Wolken und kleineren Wolkentropfen. Da Wolkentropfen <10 µm sehr geringe Stoßwahrscheinlichkeiten mit anderen Wolkentropfen haben (Böhm, 1992b; Pruppacher und Klett, 2010), können hohe N<sub>CCN</sub> die Ausbildung von Niederschlag durch Koaleszenz unterdrücken (Albrecht, 1989; Freud und Rosenfeld, 2012; Braga et al., 2017b). In Abb. 2.4a ist der Luftstrom um einen Wolkentropfen dargestellt. Dieser baut die durch Kondensation erzeugten Temperatur- und Wasserdampfpartialdruckgradienten ab und beschleunigt das Wachstum, insbesondere in starker Turbulenz oder bei hohen Aufwindgeschwindigkeiten (Pruppacher und Klett, 2010). Die Kondensation ist die Hauptursache für die Erhöhung des Flüssigwassergehalts (LWC von liquid water content) in einer Wolke, der in einem adiabatischen Aufstieg mit der Höhe ansteigt.

Das Wachstum durch Koaleszenz ist in Abb. 2.4b gezeigt und führt kurz nach der Wolkentropfenaktivierung zu einer Verbreitung der Größenverteilung. Die Stoßwahrscheinlichkeit zwischen Wolkentropfen steigt mit dem Durchmesser an und ist für >50 µm nahezu 1 (Böhm, 1992b; Pruppacher und Klett, 2010). Das Strömungsfeld, in dem sich die Wassertropfen befinden, hat starken Einfluss auf die Stoßwahrscheinlichkeit. In einem laminaren Aufwärtsstrom führen die unterschiedlichen Fallgeschwindigkeiten (Böhm, 1992a), aufgrund von Gravitation und der größenabhängigen Luftwiderständen, zu den genannten Stoßwahrscheinlichkeiten (Böhm, 1992b). In einem turbulenten Strömungsfeld sind die Stoßwahrscheinlichkeiten erhöht. Nicht jeder Stoß führt zu einer Verbindung der Wassertropfen, da beispielsweise ein Lufteinschluss zwischen den Grenzflächen ein Abprallen verursacht oder die kinetische Rotationsenergie der Wassertropfen zu einer kurzzeitigen Koaleszenz mit anschließender Aufspaltung führt (Pruppacher und Klett, 2010). Demnach sind



**Abbildung 2.5:** Schematische Darstellung der Mischphasenwolkenprozesse Wegener-Bergeron-Findeisen (a), Verreifung (b) und Aggregation (c).

die Stoßwahrscheinlichkeiten, die durch Querschnittsflächen und Trajektorien berechnet werden, als ein oberer Grenzwert der Koaleszenz zu betrachten. Nichtsdestotrotz werden durch Koaleszenz bereits nach 15 Minuten Wolkentropfen >100 µm gebildet und eine bimodale Partikelgrößenverteilung erzeugt (Böhm, 1992b). Koaleszenz wird für Flüssigwolken mit Temperaturen >0 °C in der Literatur als warme Regenbildung bezeichnet. Die Koaleszenz verringert  $N_{\text{flüssig}}$  der Wolke und erzeugt größere Wassertropfen, die durch ihre erhöhte Fallgeschwindigkeit ausfallen und den *LWC* der Wolke verringern.

#### 2.3.2 Mischphasenwolken

In Mischphasenwolken erweitert die Eiskeimbildung durch INPs die Anzahl der möglichen Wolkenpartikelinteraktionen, die trotz der meist sehr geringen INP-Teilchenkonzentration von weniger als 0,001 cm<sup>-3</sup> und einem Verhältnis zur Aerosolteilchenkonzentration von eins zu einer Million zur Vereisung der Wolke führen (Seinfeld und Pandis, 2016). In Mischphasenwolken werden die Wachstumsprozesse von Flüssigwolken um die in Abb. 2.5 gezeigten Eiswachstumsprozesse erweitert. Das Eiswachstum durch Kondensation funktioniert analog zu dem von Wolkentropfen und hängt zusätzlich von der Eispartikelform ab. Kondensa-

tion aller Wolkenpartikel tritt in Mischphasenwolken bei einer  $S_w > 1$  und  $S_e > 1$  auf, wobei der übersättigte *e* als Reservoir für sowohl flüssige als auch Eispartikel dient (Pruppacher und Klett, 2010). Da  $e_{\text{sat},e} < e_{\text{sat},w}$  für Temperaturen unterhalb von 0 °C ist, wachsen Eispartikel schneller als Wassertropfen. Bei  $S_w < 1$  und  $S_e > 1$  wird das Eiswachstum durch Kondensation deutlich beschleunigt, da die Wassertropfen verdunsten und als ein zusätzliches Wasserdampfreservoir für das Eiswachstum fungieren, dies wird als Wegener-Bergeron-Findeisen Prozess (WBF) bezeichnet (Korolev, 2007a, 2008) (Abb. 2.5a). Der WBF wächst mit der Differenz zwischen  $e_{\text{sat},e}$  und  $e_{\text{sat},w}$  und erreicht ein theoretisches Maximum bei -12 °C. Durch Freisetzung von latenter Wärme an der Oberfläche der Eispartikel während der Kondensation wird die größte Differenz unter realen Bedingungen bei Temperaturen von -15 °C erreicht (Pruppacher und Klett, 2010).

In Abb. 2.5b ist die Verreifung (im Englischen *riming*) dargestellt und beschreibt das Eiswachstum durch Anlagerung von unterkühlten Wassertropfen, die bei Kontakt gefrieren. Verreifung führt zu Eispartikelformen wie Graupel oder Hagel, während Kondensation Eispartikelformen mit der hexagonalen Gitterstruktur von Eis erzeugt. Ein weiterer Eiswachstumsprozess ist die Aggregation (Abb. 2.5c), bei der sich zwei Eispartikel durch eine Kollision verbinden. Die Aggregation ist temperaturabhängig und überwiegend bei Temperaturen oberhalb von -5 °C zu beobachten. Hierbei bildet sich bei Kontakt eine Eisbindung zwischen den Eispartikeln aus. Dagegen tritt Aggregation unterhalb von -10 °C kaum auf, wobei sich meist dendritartige Eispartikel verhaken (ebd.). Die in Abb. 2.5 gezeigten Eiswachstumsprozesse reduzieren  $N_{\rm W}$  und führen rasch zur Bildung von größeren Eispartikeln.

Die beobachteten Teilchenkonzentrationen der Eispartikel ( $N_{\rm Eis}$ ) in Eis- und Mischphasenwolken sind deutlich größer, als man anhand der INP-Teilchenkonzentrationen erwarten würde. Dies deutet auf sekundäre Eisbildungsprozesse (SIP von *secondary ice production*) hin, die  $N_{\rm Eis}$  erhöhen und damit die Vereisung beschleunigen (Field et al., 2017a). In Abb. 2.6 ist eine Auswahl der SIP gezeigt, die Gegenstand aktueller Untersuchungen sind (Korolev und Leisner, 2020). Abb. 2.6e zeigt die Zersplitterung bei Verreifung, welche als Hallett-Mossop Prozess (Hallett und Mossop, 1974) bezeichnet wird und meist als einziger SIP Prozess in lokale und globale Wetter- und Klimamodelle integriert ist (Korolev und Leisner, 2020). Der Hallett-Mossop Prozess benötigt die Anwesenheit von großen Eispartikeln wie Graupel oder Hagel und ist in einem Temperaturbereich zwischen -8 und -3 °C zu beobachten.

Abb. 2.6a zeigt die Zersplitterung durch Erstarrung eines Wassertropfens, der von außen nach innen gefriert (Keinert et al., 2020). Da die äußere Hülle zuerst gefriert, drückt das Eis aufgrund der niedrigeren Dichte auf das Wasser im Inneren, bis ein kritischer Druck erreicht ist und die Eishülle zersplittert. Untersuchungen von Luke et al. (2021) in leicht unter-



**Abbildung 2.6:** Schematische Darstellung der sekundären Eisbildungsprozesse Zersplitterung durch Erstarrung (a), Sublimation (b), Kollision (c), thermischen Schock (d) und bei Verreifung (Hallett-Mossop) (e).

kühlten arktischen Mischphasenwolken über Alaska deuten auf ein erhöhtes Vorkommen von SIP durch Erstarrung hin. Bislang wurde der Hallett-Mossop Prozess (Abb. 2.6e) als Hauptmechanismus für die sekundäre Eisbildung angenommen. Neuere Untersuchungen von Lawson et al. (2023) zeigen, dass in Cumuli mit starken Aufwinden die Zersplitterung durch Erstarrung der Hauptmechanismus sein kann und von der Anwesenheit großer unterkühlter Wassertropfen reguliert wird. Abb. 2.6b zeigt die Zersplitterung durch Sublimation, welche in Wolkenbereichen mit  $S_e < 1$  auftreten kann. Die durch Sublimation erzeugten Eispartikel lösen sich meist komplett auf, bevor sie wieder in die Wolke eingetragen werden und als Eiskeim dienen können. Daher ist die Zersplitterung durch Sublimation für die SIP von niedriger Relevanz (Korolev et al., 2004).

Abb. 2.6c zeigt die Zersplitterung bei einer Kollision zweier Eispartikel, welche insbesondere in Stratocumuli und Cumuli zu einer raschen Erhöhung von  $N_{\rm Eis}$  führt und in marinen CAOs beobachtet wird (Karalis et al., 2022). In Abb. 2.6d ist die Zersplitterung durch thermischen Schock gezeigt, die bei der Verreifung durch die Freisetzung der latenten Wärme entsteht und insbesondere für Wolken mit Temperaturen <-5°C eine Rolle spielt (Korolev und Leisner, 2020). Der Vollständigkeit halber ist noch die Eiskeimbildung in der Nähe von großen unterkühlten Wassertropfen zu nennen. Bei dieser bilden sich Eiskeime um den Wassertropfen herum, da im freien Fall oft niedrige  $S_e$ >1 in unmittelbarer Nähe zum Wassertropfen erreicht werden, welche in Kombination mit kleinen Fluktuationen von  $S_e$ ausreichen, um INPs zu aktivieren (Prabhakaran et al., 2020). SIP ist ein Erklärungsansatz, mit dem die häufig beobachtete Diskrepanz zwischen INP-Teilchenkonzentration und  $N_{Eis}$ (Pruppacher und Klett, 2010; Seinfeld und Pandis, 2016) in der Atmosphäre erklärt werden kann. In diesem Zusammenhang enthält der in-situ Mischphasenwolkendatensatz wichtige Informationen für die Evaluierung der Parametrisierungen zur Niederschlagsbildung in den CMIP6-Modellen für den NWA.

# KAPITEL 3

## Messtechnik: Grundlagen und Methoden

Zur Untersuchung von Aerosol-Wolken-Wechselwirkungen hinsichtlich der auftretenden mikrophysikalischen Prozesse sind detaillierte Kenntnisse über die beteiligten Partikel erforderlich. Hierfür wird in der Atmosphärenforschung eine Vielzahl an Instrumenten verwendet, welche am Boden, Flugzeug oder Satelliten installiert sind. Insbesondere flugzeuggetragene in-situ Messungen sind nötig, da sie die physikalischen und chemischen Eigenschaften einzelner Partikel und daraus abgeleitete Größenverteilungen unter atmosphärischen Bedingungen messen können. Die Größe von Aerosol- und Wolkenpartikeln erstreckt sich über mehrere Größenordnungen von wenigen Nanometern bis zu mehreren Millimetern und jede verwendete Messtechnik deckt einen Teil dieses Größenbereichs ab. Erst die Kombination unterschiedlicher Messmethoden ermöglicht ein umfassendes Bild der Aerosol-Wolken-Wechselwirkung. Im Folgenden werden die theoretischen Grundlagen, die Funktionsprinzipien und die inhärenten Limitierungen der in dieser Arbeit genutzten Instrumente vorgestellt. Es werden mikrophysikalische Parameter, wie der Flüssig- oder Eiswassergehalt, die Teilchenkonzentration und der Effektivdurchmesser, aus den gewonnenen Messungen bestimmt. Sowohl die in diesem Kapitel 3 vorgestellten Korrekturmechanismen zur Prozessierung der Rohdaten, als auch die im folgenden Kapitel 4 beschriebenen Kalibrationen der beiden Messinstrumente FCDP und 2D-S, sind notwendig zur Erstellung eines qualitativ hochwertigen Datensatzes. Dieser ist essenziell für die Ableitung aussagekräftiger Zusammenhänge der Aerosol-Wolken-Wechselwirkung in Kapitel 5 und Kapitel 6.

## 3.1 Licht-Materie-Wechselwirkung

Die Wechselwirkung zwischen elektromagnetischer Strahlung und Materie ist eines der zentralsten Konzepte der modernen Physik. Das breite Spektrum der elektromagnetischen Strahlung erstreckt sich von langwelliger Strahlung, wie den Radiowellen mit Wellenlängen von mehreren Kilometern und einer Frequenz im Megahertz Bereich (>10<sup>6</sup> Hz), bis zu

der hochfrequenten und energiereichen Höhen- und Gammastrahlung mit typischen Wellenlängen im Pikometer Bereich (<10<sup>-12</sup> m) und Frequenzen im Zetahertz Bereich (10<sup>21</sup> Hz). Ebenso schließt Materie Größenordnungen zwischen atomarer oder makroskopischer Ebene ein. In diesem Kapitel wird insbesondere die Wechselwirkung von Licht im Wellenlängenspektrum elektromagnetischer Strahlung im sichtbaren Bereich (380 bis 800 nm) mit Materie in Form von Partikeln im Nano- und Millimeter Bereich betrachtet.

#### 3.1.1 Streuproblem

Die Ausbreitung und das Verhalten von Licht an einer Grenzschicht wird durch die Maxwell-Gleichungen (Maxwell, 1865) in der Feldtheorie der klassischen Elektrodynamik beschrieben. Dabei kann man sich die Interaktion des einfallenden Lichts mit der Materie folgendermaßen vorstellen: Das oszillierende elektromagnetische Feld des einfallenden Lichts regt die Elektronen und Atomkerne der bestrahlten Materie zu einer Schwingung an. Durch die beschleunigten Ladungsträger entsteht ein elektromagnetisches Feld, welches dem Feld des einfallenden Lichts entgegengerichtet ist. Innerhalb der bestrahlten Materie gleichen sich die Felder aus. Nach außen wird das induzierte elektromagnetische Feld emittiert und als Sekundärstrahlung bezeichnet (Oseen, 1915). Ein Teil der einfallenden elektromagnetischen Energie verbleibt in der Materie und wird in andere Energieformen umgewandelt, dies ist allgemein als Absorption bekannt (Bohren und Huffman, 1983).

Die Sekundärstrahlung kann als Superposition der elektromagnetischen Felder aller angeregten Ladungsträger in der bestrahlten Materie angesehen werden und hängt von der äußeren Geometrie und der inneren Struktur der Materie ab. Unter der Annahme einer ebenen, einfallenden elektromagnetischen Welle und einem isotropen sphärischen Partikel beschreibt die Lorenz-Mie-Theorie eine analytische Lösung der Maxwell-Gleichungen unter gegebenen Randbedingungen (Lorenz, 1890; Debye, 1908; Mie, 1908; Bateman, 1915). Eine exakte Herleitung ist in Bohren und Huffman (1983) zu finden. Trotz der exakten Lösung werden in der Physik zwei Grenzfälle der Lorenz-Mie-Theorie anhand des sogenannten Größenfaktors x unterschieden.

$$x = \frac{\pi n D}{\lambda},\tag{3.1}$$

mit dem Durchmesser D der Sphäre, der Wellenlänge  $\lambda$  des einfallenden Lichts und dem Brechungsindex n des umgebenden Mediums. Es gibt zwei Grenzfälle, die die Komplexität des Streuproblems reduzieren. Der Grenzfall kleinerer Partikel als die Wellenlänge des eintreffenden Lichts  $x \ll 1$  wird durch die Rayleigh-Streuung beschrieben. Die in dieser Arbeit verwendeten Instrumente messen ausschließlich größere Partikel als die verwendete Laserwellenlänge und können besser mit dem Grenzfall der geometrischen Optik  $x \gg 1$ 



**Abbildung 3.1:** Schematische Darstellung der ersten drei Debye-Terme (a) für p=0 (türkis), p=1 (orange) und p=2 (grün). Die dazugehörigen Intensitätsverteilungen (b), sowie die Mie-Lösung (rot) und Lichtbeugung (schwarz) einer Sphäre aus Wasser mit  $D = 50 \,\mu\text{m}$ ,  $n_{Sphäre} = 1,329753 + i1.67 * 10^{-8}$ ,  $\lambda = 785 \,\text{nm}$  in Luft mit  $n_{Luft} = 1,000285$ . Die daraus resultierenden Streuquerschnitte  $\sigma_{total}$  für den Größenbereich von  $0.1-100 \,\mu\text{m}$  (c). Software: MiePlot Laven (2021).

approximiert werden. Der Übergang zur optischen Lichtbeugung ist für den in dieser Arbeit betrachteten Größenbereich essenziell und wird im Weiteren erörtert.

#### 3.1.2 Mie-Streuung und geometrische Optik

Der Streuquerschnitt  $\sigma_{total}$  ist eine nützliche Größe, um die Licht-Materie-Wechselwirkung zu quantifizieren und setzt die Leistung des einfallenden Lichts  $I_A$  mit der am Partikel gestreuten Lichtleistung im gesamten Raum (d $\Omega = 4\pi$ ) in Beziehung. Somit kann der Streuquerschnitt für Partikel jeglicher Größe und Form bestimmt werden, nach

$$\sigma_{\text{total}} = \sigma_{4\pi} = \int_{4\pi} \left(\frac{\mathrm{d}\sigma}{\mathrm{d}\Omega}\right) \mathrm{d}\Omega = \frac{P_{\text{streu}}}{I_{\text{A}}}.$$
(3.2)

Hier ist der differenzielle Streuquerschnitt  $\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)$  enthalten, mit dem die räumliche Verteilung der gestreuten Lichtleistung ( $P_{streu}$ ) abgebildet werden kann. Dazu wird die gestreute Leistung nur in einem spezifischen Raumelement d $\Omega$  ins Verhältnis zu  $I_A$  gesetzt. Im sphärischen Fall der Lorenz-Mie-Theorie wird die einfallende Lichtleistung auf eine Kreisfläche projiziert, welche mit ansteigendem Kugeldurchmesser quadratisch ansteigt.

Das Streuproblem wurde für einen Zylinder zeitgleich zur Lorenz-Mie-Theorie von Debye (1908) mithilfe der Wellenoptik gelöst und die Lösung kann aufgrund der Symmetrie leicht auf eine Sphäre erweitert werden. Die Lösung wird im Folgenden als Debye-Reihe bezeichnet und ist in Abb. 3.1a schematisch abgebildet. Die Debye-Reihe ist die Summe aller möglichen Strahlengänge durch die Sphäre und unterscheidet dabei, wie oft das einfallende Licht auf die Luft-Sphären-Grenzschicht trifft. Der nullte Term (p=0) beschreibt die erste Reflexion und Lichtbeugung, bei dem kein Lichtstrahl in die Sphäre eindringt und ist deshalb unabhängig vom Brechungsindex der Sphäre. Als Lichtbeugung wird allgemein die Ablenkung elektromagnetischer Wellen an einem Hindernis bezeichnet, welche durch das Huygens-Fresnelsche Prinzip beschrieben wird und zu überlagerten Interferenzmustern führt (Huygens, 1912). Der erste Term (p=1) beschreibt alle durch die Sphäre transmittierten Strahlengänge, welche nach dem ersten Auftreffen aus der Sphäre hinaus gebrochen werden. Der zweite Term (p=2) wird einmal innerhalb der Sphäre reflektiert, propagiert zum zweiten Mal an die Grenzschicht und transmittiert nach außen. Diese Reihe kann beliebig bis  $p=\infty$  erweitert werden, die gesamte Summe von p=0 bis  $p=\infty$  stellt dabei eine gleichwertige Lösung zur zuvor skizzierten Lorenz-Mie-Lösung dar.

Die Debye-Reihe liefert einen störungstheoretischen Ansatz für die Lorenz-Mie-Theorie, welcher durch die inneren Vorgänge motiviert ist. In Abb. 3.1b ist der differenzielle Streuquerschnitt einer 50 µm Wassersphäre dargestellt und die Lichtbeugung (schwarz) macht den Großteil des vorwärts gestreuten Lichts des p=0 (türkis) Terms aus. Dieser Term bleibt bei lichtundurchlässigen Sphären erhalten, somit bildet sich immer ein Intensitätsmaximum für den Streuwinkel von 0° aus. Die Intensitäten ab dem 2. Hauptmaximum sind deutlich geringer als die einfallende Lichtintensität. Insbesondere das Hauptmaximum 0. Ordnung, auch Poissonfleck genannt, hat einen großen Einfluss auf das detektierbare Beugungsbild. Die ersten drei Terme p=[0 (türkis), 1 (orange), 2 (grün)] der Debye-Reihe decken bereits einen großen Teil der Intensitätsverteilung der Mie-Theorie (rot) ab. Die dazugehörigen  $\sigma_{total}$  sind für Durchmesser zwischen 0,1 bis 100 µm in Abb. 3.1c gezeigt. Die feinen Oszillationen der Mie-Kurve können von den ersten Debye-Termen nicht abgebildet werden, insbesondere im Durchmesserbereich von 1 bis 10 µm. Dennoch reichen bereits die ersten drei Debye-Terme (schwarz) für eine gute Approximation von Partikeldurchmessern >20 µm aus. Des Weiteren nähert sich die Mie-Kurve für kleine Partikel der Rayleigh-Streuung ( $\sigma \sim D^6$ ) und für große Partikel der geometrischen Optik ( $\sigma \sim D^2$ ) an.

## 3.2 Das Streulichtspektrometer FCDP

Die Fast Cloud Droplet Probe (FCDP) (O'Connor et al., 2008; Knop et al., 2021) ist ein modernes Streulichtspektrometer von Stratton Park Engineering Company (SPEC). Flugzeuggetragene Streulichtspektrometer sind für die Untersuchung von Aerosol- und Wolkenpartikeln essenziell. Vor dem Einsatz von Streulichtspektrometern wurden direkte Probenentnahmen vorgenommen, bei denen die Partikel durch die mechanische Entnahme beeinträchtigt werden. Die Auflösung der mikrophysikalischen Strukturen war durch die verbundenen Nachteile wie eine niedrige Frequenz und Diskontinuität der Probenentnahmen, die Verunreinigung der Proben und bekannten Problemen bei der Zähleffizienz limitiert (Knollenberg, 1970). Mit der Entwicklung des ersten Lasers mittels eines Rubinkristalls 1960 von Theodore Maiman wurde die direkte Probenentnahme durch passive Laser-Methoden ersetzt. Erste kommerzielle flugzeuggetragene Streulichtspektrometer wie die Forward Scattering Spectrometer Probe (FSSP) wurden von R.G. Knollenberg bei Particle Measurement Systems entwickelt (Pinnick und Auvermann, 1979). Auf Basis der FSSP entwickelte Droplet Measurement Technologies (DMT) das Streulichtspektrometer Cloud Droplet Probe (CDP) (Lance et al., 2010), das durch eine Modifikation mit schnell verarbeitenden elektronischen Bauteilen von SPEC zur FCDP ausgebaut wurde.

#### 3.2.1 Spektrometeraufbau

Der Aufbau der FCDP ist in Abb. 3.2 gezeigt und besteht aus einem Sende- und Empfängerarm, dem Hauptgehäuse und einer Befestigungsstrebe. In allen Bauteilen ist eine Heizung in Flugrichtung gegen Vereisung eingebaut. Der Sendearm beinhaltet den Laser und eine fokussierende Optik. Der Empfängerarm besteht aus der Sammeloptik und den Detektoren, die jeweils zwei Verstärkerstufen besitzen. Das Messvolumen befindet sich zwischen den Armen, die einen Abstand von 5,2 cm zueinander haben. Die Signale der Verstärkerstufen werden zum Datenerfassungssystem geleitet, welches sich im Hauptgehäuse befindet und die analogen Spannungssignale mithilfe eines Mikroprozessors in digitale Signale umwandelt und speichert. In der Befestigungsstrebe liegt die Steuereinheit, die die Stromversorgung innerhalb der FCDP regelt.



**Abbildung 3.2:** FCDP Aufbau mit Heizungspositionen, sowie den funktionellen Teilen (a) und der Steuereinheit innerhalb der Befestigungsstrebe (b).

#### 3.2.2 Funktionsprinzip

Das Streulichtspektrometer FCDP detektiert vorwärts gestreutes Licht und zählt einzelne Partikel mit Durchmessern von 1,5 bis 50 µm. In Abbildung 3.3 ist die Funktionsweise schematisch dargestellt. Für die Detektion werden die Partikel von einem Laser mit einer Wellenlänge von 785 nm bestrahlt. Das am Partikel gestreute Licht wird im Raumwinkelbereich von 4 bis 12° durch ein Linsensystem gesammelt und die detektierte Intensität kann durch die Mie-Theorie approximiert werden. Die Untergrenze von 4° ergibt sich aus der Verwendung eines Blindpunktes, der sicherstellt, dass nur gestreutes Licht ohne den Einfluss des primären Laserstrahls detektiert wird. Das gesammelte Licht wird durch einen 70:30 Strahlteiler in zwei Lichtbündel aufgeteilt und jeweils auf einen Detektor projiziert. Dabei fallen 70 % des gesammelten Lichts auf den Qualifizierungsdetektor und 30 % auf den Signaldetektor. Vor dem Signaldetektor ist eine Lochblende mit einem Durchmesser von 800 µm angebracht, um die Wahrscheinlichkeit des Messens zweier gleichzeitig in das Messvolumen eintretender Partikel, auch Koinzidenz genannt, zu verringern (Lance, 2012). Partikel, die nicht durch die Objektebene des Sammellinsensystems fliegen, werden aufgrund der Optik vergrößert auf die Detektoren projiziert. Dabei steigt die Vergrößerung mit dem Abstand der Partikel zur Objektebene an. Deshalb ist vor dem Qualifizierungsdetektor eine rechteckige Spaltblende mit 800 µm Länge und 200 µm Breite installiert, die die eintreffende Intensität bei zunehmender Vergrößerung limitiert. Dadurch verändert sich das Verhältnis der Intensitäten der Detektoren, das als Qualifizierungskriterium, bei Streulichtspektrometern auch als Tiefenschärfekriterium (DOF<sub>VS</sub> von depth of field ) bekannt ist, angewendet wird. Über das DOF<sub>VS</sub> kann die verwendete effektive Messfläche (SA<sub>eff</sub>) der FCDP eingestellt werden.



**Abbildung 3.3:** Schematische Darstellung der Streulichtdetektion in der FCDP (oben) und Signalverlauf eines qualifizierten (I) und nicht qualifizierten (II) Partikel.

#### 3.2.3 Bestimmung der Größenverteilung

Die Größenbestimmung der einzelnen Partikel erfolgt über die gemessene Intensität des Signaldetektors, die über den differenziellen Streuquerschnitt auf die Partikelgröße schließen lässt. Die FCDP speichert für alle Partikel die gemessene maximale Spannung des Signaldetektors, welche der anteiligen Strahlungsleistung im Raumwinkel 4 bis 12° ( $\sigma_{4-12^\circ}$ ) entspricht. Der von der FCDP detektierbare Bereich ist in Abb. 3.4a rot dargestellt. Da mehrere Partikeldurchmesser den gleichen Streuquerschnitt aufweisen können, ist die Genauigkeit der Größenbestimmung limitiert. Diese Unsicherheit wird Mie-Mehrdeutigkeit genannt und ist für den von der FCDP gemessenen Raumbereich stark von der Maxima- und Minima-Verteilung des differenziellen Streuquerschnitts abhängig. Für Partikeldurchmesser größer als 8 µm liegt das Hauptmaximum außerhalb des beobachtbaren Winkelbereichs und der Anteil des detektierbaren Lichts pendelt sich bei ca. 9% ein, vergleiche Abb. 3.4b. In der FCDP sind für jeden Detektor zwei Verstärkerstufen in Reihe geschaltet, wobei jede Verstärkerstufe einen anderen Größenbereich abdeckt. Über die in Unterabschnitt 3.1.2 gezeigte Mie-Streuung kann für jede Verstärkerstufe ein linearer Zusammenhang zwischen der gemessenen Spannung und  $\sigma_{4-12^\circ}$  gefunden werden. Dieser Zusammenhang ist instrumentenspezifisch und wird für die in dieser Arbeit verwendeten FCDP in Unterabschnitt 4.1.1 experimentell bestimmt. An dieser Stelle sei angemerkt, dass sich die Mie-Streuung ausschließlich auf sphärische Partikel bezieht und asphärische Eispartikel prinzipiell mit einer


**Abbildung 3.4:** Differenzieller Streuquerschnitt sphärischer Wassertropfen der Durchmesser 5 und 20 µm in Luft (a), die mit einem Laser der Wellenlänge 785 nm bestrahlt werden (Software: MiePlot Laven (2021)). Der Raumwinkelbereich 4 bis 12°, der von der FCDP zur Detektion erfasst wird, ist rot eingezeichnet. Die Streuquerschnitte des kompletten Raums ( $\sigma_{total}$ /schwarz), des Raumwinkels von 4 bis 12° ( $\sigma_{4-12^{\circ}}$ /rot), sowie der prozentuale Anteil von  $\sigma_{4-12^{\circ}}$  (grau gestrichelt) für verschiedene Partikeldurchmesser (b).

angepassten Kalibration mit Hilfe der T-Matrix-Methode bestimmt werden können (Borrmann et al., 2000). Diese wurde in dieser Arbeit nicht angewendet, da hauptsächlich Flüssigwolken beprobt wurden.

Die gemessene Spannung beider Detektoren wird über zwei Verstärkerstufen und einen Analog zu Digital (A/D)-Wandler von der Instrumentenelektronik als A/D-Wert zwischen 0 und 32696 abgespeichert. Dabei können die A/D-Werte den entsprechenden Verstärkerstufen zugeordnet werden. Die Werte zwischen 0 und 16384 stammen von der Verstärkerstufe für kleine Partikel (VS1) und entsprechen einer Spannung von 0 bis 2 V. Der Übergang von VS1 zur Verstärkerstufe für große Partikel (VS2) hängt von der Kalibration ab und liegt bei ungefähr 20 µm. Alle größeren A/D-Werte werden (VS2) zugeschrieben und entsprechen einer Spannung von 0 bis 16 V. Durch den Einsatz mehrerer Verstärkerstufen können insbesondere kleine Partikel mit vergleichsweise niedrigen und stark variablen Spannungen auf einen großen A/D-Wertebereich hochaufgelöst abgebildet werden. VS1 überlappt mit den ersten 2048 A/D-Werten von VS2 und die Auswirkungen werden in Unterabschnitt 4.1.1 diskutiert.

Notwendige Daten zur Berechnung der Größenverteilung werden während einer Messung in fünf Dateien, bei einer Aktualisierungsrate von 25 ns, abgespeichert. Die *Particle-by-Particle*-Datei (PbP-Datei) mit der Endung "scat.bin" ist das Herzstück und speichert die A/D-Werte des Qualifizierungs- und Signaldetektors, die anliegenden Detektorbordspannungen, die Transitzeit in einem Vielfachen der Aktualisierungsrate, den Zeitstempel, die Summe aller Spannungen des Signaldetektors und die Zeit vom Beginn der Partikelaufzeichnung bis zur gemessenen Maximalspannung. Aus diesen Größen lassen sich alle Korrekturen und mikrophysikalischen Parameter bestimmen. Über die Betriebsparameter-Datei (im Englischen *housekeeping*), in der alle Laser- und Bordspannungen dokumentiert sind, wird die erwartete Lichtintensität angepasst, falls die anliegenden Detektorbordspannungen der PbP-Datei vom eingestellten Soll-Wert abweichen. Zusätzlich werden die kompletten Signalverläufe von ausgewählten Partikeln in binäre Signal- und Qualifizierungsdateien gespeichert und eine Log-Datei erstellt.

Im ersten Schritt werden aus den Rohdaten der PbP-Datei zwei zusätzliche Dateien mithilfe eines von SPEC gestellten MATLAB-Skripts erstellt. Die "scatPBP.bin"-Datei enthält alle Messereignisse pro Zeile, damit die Partikel in einer Nachprozessierung leicht zugänglich sind. Gleichzeitig wird eine "scatPBPindex.bin"-Datei erstellt, die eine Zeitindexierung der in der "scatPBP.bin"-Datei enthaltenen Zeilen angibt. Anschließend werden im zweiten Schritt die Messereignisse über Korrekturen gefiltert und aus den validierten Partikeln eine Größenverteilung bestimmt.

Die Partikel werden anhand ihrer maximalen Signalspannung in festgelegte Größenbereiche einsortiert. Die Spannungen der Größenbereiche werden in einer Kalibration bestimmt und stellen festgelegte Grenzen des  $\sigma_{4-12^\circ}$  dar. Aus der in einem festgelegten Zeitintervall  $\Delta t$  detektierten Partikelanzahl  $a_i$  im Größenbereich *i* lässt sich die Teilchenkonzentration  $N_i$  des jeweiligen Größenbereichs durch

$$N_i = \frac{a_i(\Delta t)}{V(\Delta t)} \tag{3.3}$$

bestimmen. Wobei  $V(\Delta t)$  das in  $\Delta t$  untersuchte Messvolumen darstellt. Das Messvolumen ergibt sich aus der Geschwindigkeit des Luftstroms durch den Laserstrahl der FCDP und der durch das Tiefenschärfekriterium eingestellten effektiven Messfläche. Die effektive Messfläche der FCDP wird in Unterabschnitt 4.1.2 charakterisiert.

Die berechneten Teilchenkonzentrationen  $N_i$  stellen die gemessene Größenverteilung dar und werden üblicherweise auf die Breite des Größenbereichs oder das logarithmische Verhältnis der Größenbereichsgrenzen normiert. Letztere hat den Vorteil, dass die Einheit unberührt bleibt und der Normierungsfaktor bei unterschiedlichen Größenbereichsbreiten deutlich weniger voneinander abweicht. Dies führt zu einer Vergleichbarkeit von verschiedenen Instrumenten mit teils deutlich abweichenden Größenbereichsbreiten. Die gängige Normierung ist folgendermaßen definiert:

$$\frac{\mathrm{d}N(D_i)}{\mathrm{dlog}D_p} := \frac{N_i}{\mathrm{log}D_{i,o} - \mathrm{log}D_{i,u}} = \frac{N_i}{\mathrm{log}\left(\frac{D_{i,o}}{D_{i,u}}\right)},\tag{3.4}$$

mit den unteren und oberen Größenbereichsgrenzen  $D_{i,u}$  und  $D_{i,o}$ , und dem mittleren Partikeldurchmesser  $D_i$  des jeweiligen Größenbereichs *i*. Für die Normierung ist sowohl der natürliche Logarithmus als auch der Logarithmus zur Basis 10 gebräuchlich. In dieser Arbeit wird ausschließlich Letzterer verwendet. Die Größenverteilung ist der Ausgangspunkt zur Bestimmung aller daraus abgeleiteten mikrophysikalischen Parameter in Abschnitt 3.4.

#### 3.2.4 Messartefakte und Unsicherheiten

Während einer Messung können instrumentenspezifische Messartefakte auftreten, die eine korrekte Größenbestimmung erschweren und falsche Ergebnisse liefern. Um einer verfälschten Messung vorzubeugen, werden die Partikel mithilfe der gewonnenen Rohdaten validiert. Die Validierung besteht aus einer Reihe von Korrekturen, die auftretende Messartefakte herausfiltern. Im Folgenden werden mögliche Messartefakte in Bezug auf die FCDP und die in dieser Arbeit angewendete Korrektur vorgestellt.

#### Shattering

Als Shattering wird das Zerplatzen von großen Partikeln an den Instrumentenarmen bezeichnet. Die zerplatzten Partikel gelangen in das Messvolumen und generieren eine künstliche Erhöhung der Teilchenkonzentration mit einer Überschätzung von kleinen Partikeln und einer Unterschätzung von großen Partikeln. Dieser Effekt stammt vom rein physischen Auftreffen der Partikel auf die Instrumentenarme oder von den starken Scherwinden, welche durch das Instrumentengehäuse generiert werden (Korolev und Isaac, 2005). Insbesondere große Eispartikel können einen stark ausgeprägten Shattering-Effekt bewirken und zu einer Überschätzung von bis zu einem Faktor von fünf in natürlichen Zirren führen, beispielsweise in Anvilzirren von Gewitterwolken (Field et al., 2003). Über den zeitlichen Abstand zweier aufeinanderfolgenden Partikel, auch *Interarrivaltime* (IAT) genannt, wird der Shattering-Effekt korrigiert. Hierzu werden die zerbrochenen Partikel über einen Minimum-IAT-Schwellwert herausgefiltert (Field et al., 2006). Field et al. (2003) haben ge-



**Abbildung 3.5:** Schematische Darstellung der erweiterten (a) und klassischen (b) Koinzidenz.

zeigt, dass die Verteilung der IAT-Werte von Wolken, die Shattering produzieren, durch zwei überlappende Poisson-Verteilungen beschrieben werden kann. Der IAT-Schwellwert wird über den Schnittpunkt der Poisson-Verteilungen bestimmt. Dieser Ansatz funktioniert für Wolken mit geringer Dichte unterhalb von ungefähr  $10 \text{ cm}^{-3}$ , aber stößt an seine Grenzen für dichte tiefe Wolken, da der mittlere Abstand natürlicher Wolkenpartikel dem Abstand der zerplatzen Partikel ähnelt. Die in dieser Arbeit untersuchten Luftmassen beinhalten Mischphasenwolken mit großen Eispartikeln und relativ hohen Teilchenkonzentrationen  $>300 \text{ cm}^{-3}$ , sowie Eisniederschlag mit Teilchenkonzentrationen  $<2 \text{ cm}^{-3}$ . Laut Korolev et al. (2013a) ist davon auszugehen, dass der Beitrag von Shattering in Mischphasenwolken zur Teilchenkonzentration eher gering ist. Die verwendete FCDP hat speziell konstruierte Armspitzen, die den Shattering-Effekt größtenteils eliminieren (Korolev et al., 2013b). Um mögliche Einflüsse während Eisniederschlag zu berücksichtigen, wird in dieser Arbeit eine Shattering-Korrektur mithilfe der von SPEC gestellten Software durchgeführt. Die darin enthaltene adaptive2-Methode filtert die in einer Sekunde aufgezeichneten Partikel und passt sich der gemessenen Teilchenkonzentration an. Der Maximum-IAT-Schwellwert ist dabei auf 625 µs festgelegt und entspricht einem Partikelabstand von ungefähr 6 cm. Der Minimum-IAT-Schwellwert passt sich iterativ an die IAT-Verteilung an. Dadurch ist gewährleistet, dass im homogenen Fall ohne nennenswerten Einfluss von Shattering die Teilchenkonzentration unverändert bleibt und im Fall von Shattering bei Eisniederschlag eine angepasste Korrektur pro Sekunde durchgeführt wird.

#### Koinzidenz

Koinzidenz bezeichnet das gleichzeitige Vorhandensein von mehreren Partikeln im Messvolumen und tritt beim Vorgängermodell CDP verstärkt bei hohen Teilchenkonzentrationen (>100 cm<sup>-3</sup>) auf (Lance et al., 2010). Die Koinzidenz wird in einen klassischen Anteil mit Partikeln innerhalb des Messvolumens und einen erweiterten Anteil mit Einflüssen von Partikeln außerhalb des Messvolumens aufgeteilt, siehe Abb. 3.5 (Lance, 2012). Die Auswirkungen auf die klassische Koinzidenz und insbesondere der Zusammenhang zur Geschwindigkeit der verarbeitenden Elektronik wurden bereits im Vorgängermodell FSSP diskutiert (Dye und Baumgardner, 1984; Baumgardner et al., 1985). Bei Untersuchungen mit dem Vorgängermodell CDP, welches eine langsamere verarbeitende Elektronik besitzt, konnte gezeigt werden, dass der Einfluss der klassischen Koinzidenz deutlich geringer ist als die erweiterte Koinzidenz (Lance et al., 2010). Lance (2012) hat eine Unterschätzung der Teilchenkonzentration von mindestens 27 % (44 %) und gleichzeitiger Überschätzung der Größenbestimmung von 20 bis 30 % bei einer Teilchenkonzentration von 500 cm<sup>-3</sup> (1000 cm<sup>-3</sup>) durch die erweiterte Koinzidenz nachgewiesen, welche durch eine Lochblende vor dem Signaldetektor fast vollkommen aufgehoben werden kann. Die FCDP mit eingebauter Lochblende, siehe Abb. 3.3, und einer schnell verarbeitenden Elektronik ist stark resistent gegenüber der klassischen und erweiterten Koinzidenz. Trotzdem wird in dieser Arbeit eine zusätzliche Koinzidenz-Korrektur durchgeführt, die unplausible Partikel über die sogenannte Transitzeit herausfiltert. Aus der gemessenen Spannung und daraus abgeleiteten Partikelgröße wird bei gegebener Partikelgeschwindigkeit eine theoretische Transitzeit berechnet. Falls die gemessene Transitzeit 120 % der theoretischen Transitzeit überschreitet, wird eine unnatürliche Verlängerung durch Koinzidenz angenommen und das Partikel verworfen.

#### Signalsymmetrie

In dieser Arbeit werden ausschließlich Flüssig- und Mischphasenwolken untersucht, bei denen angenommen wird, dass Wolkenpartikel kleiner als 50 µm als Wassertropfen vorliegen und aufgrund der Oberflächenspannung mit einer idealen Sphäre beschrieben werden können (Pruppacher und Klett, 2010; Vargas und Feo, 2011; Spanu et al., 2020). Diese Symmetrie spiegelt sich in der gemessenen Spannungskurve, die aus der symmetrischen Verteilung des gestreuten Lichts resultiert, wider und weist bei Abweichungen auf asphärische Aerosolpartikel oder Koinzidenz hin. Zur Unterscheidung wird die Symmetrie aus dem Verhältnis der Zeit der Partikelaufzeichnung zur gemessenen Maximalspannung und der Transitzeit bestimmt. Für symmetrische Spannungskurven nimmt das Verhältnis den Wert 0,5 an und Abweichungen kennzeichnen asymmetrische Partikel. Hier soll angemerkt werden, dass sich die Spannungskurve direkt aus der Symmetrie des differenziellen Streuquerschnitts zwischen 4 und 12° ableitet und auf einer idealisierten Mie-Lösung basiert. Diese geht von einer gleichmäßigen Intensitätsverteilung oder idealen Gaußverteilung des einfallenden Laserlichts aus, welches in der Realität von dieser Annahme abweicht und daraus eine Asymmetrie entsteht. Auch elektrisches Rauschen der Bauteile kann einen Einfluss auf das Symmetrie-Verhältnis haben, somit können lediglich starke Abweichungen eindeutig als asymmetrische Partikel oder Koinzidenz identifiziert werden.



Abbildung 3.6: 2D-S Aufbau mit Strahlengang des vertikalen Schattenbilddetektors.

Zusätzlich zu den angewendeten Filtermethoden gibt es Unsicherheiten aufgrund externer Fehlerquellen, die teilweise durch eine sorgfältige Handhabung im Messbetrieb minimiert werden können. Insbesondere leichte Verunreinigungen an den optischen Fenstern der Arme führen zu einer verminderten Laserintensität und bewirken eine systematische Unterschätzung der Partikelgröße. Eine konstante Reinigung der optischen Fenster vor jedem Flug beugt dieser Symptomatik vor. Um die Limitierungen aufgrund der beschriebenen Unsicherheiten zu quantifizieren, müssen alle möglichen Fehlerquellen im Zuge einer ausführlichen Charakterisierung, welche in Abschnitt 4.1 vorgestellt wird, untersucht werden.

# 3.3 Der Schattenbilddetektor 2D-S

Das Messinstrument Two-Dimensional Stereo (2D-S) (Lawson et al., 2006) von SPEC gehört zu der Klasse der Schattenbilddetektoren und misst zusätzlich zur Größe und Anzahl die Form der Wolkenpartikel. Die Form der Partikel ist insbesondere in der Klassifizierung von Eispartikeln ein wesentlicher Bestandteil, der sich makroskopisch auf die Strahlungsbilanz der Wolken und dadurch auf die globalen Klimamodelle auswirkt. Die 2D-S besteht aus zwei unabhängigen Schattenbilddetektoren, die senkrecht zueinander ausgerichtet sind und einen sich überschneidenden Anteil der Messvolumina formen. Dadurch können Partikel, die von beiden Detektoren erfasst werden, auf ihre dreidimensionale Struktur hin untersucht werden. Beide Schattenbilddetektoren sind identisch und basieren auf dem Konzept von Knollenberg (1970).

#### 3.3.1 Detektoraufbau

Der Innenraum der 2D-S ist in Abb. 3.6 dargestellt. Die 2D-S hat ein Hauptgehäuse, in dem sich die Stromsteuerung, die Photodiodenreihe mit zugehörigen Mikrocontrollern, die optischen Elemente, die verwendeten Laser mit einer Wellenlänge von 785 nm und das Datenerfassungssystem befinden. Der vordere äußere Bereich besteht aus den Messarmen des horizontalen und vertikalen Schattenbilddetektors mit je einem Sende- und Empfängerarm. In jeder Armspitze befindet sich eine Heizung, um Vereisungen während des Betriebs entgegenzuwirken.

#### 3.3.2 Funktionsprinzip

Der vertikale und der horizontale Schattenbilddetektor sind voneinander unabhängige identische Einheiten, die hochauflösend Intensitätsverteilungen abbilden können. Das über den Sendearm geleitete Laserlicht beleuchtet die von den beiden Armen aufgespannte Detektionsfläche. Sobald Partikel vom Laserlicht erfasst werden, wird das Licht an den Rändern der Partikel gemäß dem Huygens-Fresnelschen Prinzip der Wellenoptik gebeugt (Huygens, 1912). Der Strahlengang des Lasers ist in Abb. 3.6 skizziert. Das vorwiegend ge-



**Abbildung 3.7:** Projektion des dreidimensionalen Partikels (I) und Koordinatensystems (II).

beugte Licht wird über einen Spiegel auf eine achromatische Linse im Empfängerarm reflektiert, welche das Licht über eine zweite achromatische Linse und Spiegel auf ein 90°-Prisma in der horizontalen Einheit fokussiert. In der vertikalen Einheit ist stattdessen ein Amici-Prisma verbaut, welches das Bild zusätzlich zur 90° Reflexion invertiert, damit sich das Messvolumen beider Einheiten auf der Photodiodenreihe überschneidet. Ausgehend von den Prismen wird das Licht über einen weiteren Spiegel auf die Photodiodenreihe geworfen. Der Aufbau beider Linsen entspricht einem Kepler-Teleskop und bildet alle Partikel aus der Objektebene der ersten Linse, welche sich ungefähr in der Mitte zwischen den Armen befindet, scharf auf die Photodiodenreihe mit einer Verfünffachung der Größe ab.

Alle Partikel, die den Laserstrahl nicht exakt in der Objektebene passieren, werden über ihr entsprechendes Beugungsbild vergrößert detektiert. In Abb. 3.7 ist die Vorgehensweise und das Koordinatensystem zur Berechnung des Beugungsbildes skizziert. Eine lichtundurchlässige 2D-Projektion senkrecht zur Laserstrahlrichtung stellt eine gute Näherung des dreidimensionalen Partikels dar, und dessen Beugungsbild im Punkt Q wird für eine ebene Welle nach Korolev et al. (1991) berechnet. Das Beugungsbild der Kreisfläche ist größenunabhängig, daher werden zur Beschreibung die dimensionslosen Koordinaten  $\xi$  und  $Z_d$  eingeführt,

$$\xi = \frac{r}{R}; \qquad Z_d = Z \frac{\lambda}{R^2}, \tag{3.5}$$

wobei R den Radius der ursprünglichen projizierten Kreisfläche und r den Radius des Beugungsbildes im Abstand Z darstellt.



**Abbildung 3.8:** Beugungsbild einer lichtundurchlässigen Kreisfläche in  $Z_d$ - $\xi$ -Koordinaten (a) und die daraus abgeleitete größenabhängige Detektierbarkeit für die 2D-S (b). Quelle: adaptiert aus Vaillant de Guélis et al. (2019).



**Abbildung 3.9:** Generierung der gemessenen Abbildung über Abtastung des Beugungsbildes.

Untersuchungen von Vaillant de Guélis et al. (2019) in Abb. 3.8a zeigen die Ausbildung des in Unterabschnitt 3.1.2 erwähnten Poissonflecks. Bereits kleine Abstände  $Z_d$ =0,15 von der Objektebene verursachen eine Vergrößerung von 10 % des Partikeldurchmessers und mit zunehmendem  $Z_d$  vergrößert sich insbesondere der Poissonfleck. Die Photodioden der 2D-S werden aktiviert, sobald die Diodenspannung einen Schwellwert unterschreitet, welcher im Idealfall 50 % der ursprünglichen Lichtintensität darstellt. Ab dem maximalen Abstand  $Z_{max}$  ist die Abschattung zu schwach und die Detektion des Partikels unmöglich. Daher wird  $Z_{max}$  auch als Tiefenschärfe oder *depth of field* (DOF) bezeichnet. Die damit verbundene Größenabhängigkeit des Messvolumens wurde von Korolev et al. (1998) für Schattenbilddetektoren diskutiert und ist in Abb. 3.8b dargestellt. Partikel mit *D* kleiner als 109 µm sind nicht im gesamten Armabstand der 2D-S messbar und werden fast ausschließlich mit Poissonfleck und vergrößertem Radius detektiert. Für größere Partikel ab 800 µm ist das Linsensystem besser geeignet, wobei weiterhin eine Vergrößerung der Partikel um bis zu 10 % möglich ist. Ohne detektierbaren Poissonfleck kann die Vergrößerung nicht genauer quantifiziert werden.

Um ein zweidimensionales Bild aus der eindimensionalen Photodiodenreihe zu generieren, wird das Beugungsbild im Verlauf des Partikeldurchgangs abgetastet, siehe Abb. 3.9 (Knollenberg, 1970). Die Abtastrate ist proportional zum Vielfachen der relativen Partikelgeschwindigkeit (PAS von *probe air speed*) durch das Messvolumen und ist so eingestellt, dass ein von einer Photodiode erzeugtes Pixel einer Fläche mit gleicher Kantenlänge entspricht. Jede einzelne Photodiode hat eine Dimension von 50 µm × 42,5 µm und ist mit einem Abstand von 15 µm zur Nächsten auf der Photodiodenreihe platziert. Daraus ergibt sich eine Gesamtlänge der Photodiodenreihe von 7,35 mm. Da das Beugungsbild mit einer Verfünffachung auf die Photodiodenreihe abgebildet wird, entspricht jede Photodiode oder auch Pixel einer Partikelgröße von ungefähr 10 µm. Die gemessene Abbildung des Beugungsbildes stellt die Grundlage zur Bestimmung aller weiteren Partikeleigenschaften dar.



**Abbildung 3.10:** Durchmesser der Abbildung einer idealen Sphäre (a) und eines verformten Wassertropfens (b).

#### 3.3.3 Bestimmung der Größenverteilung

Zur Größeneinteilung wird aus den gewonnenen Abbildungen der Partikeldurchmesser D bestimmt. In Abb. 3.10 sind alle Möglichkeiten zur Bestimmung von D für sphärische Partikel aufgezeigt. Der Durchmesser in x-Richtung  $(D_x)$  ist parallel zur Photodiodenreihe und unterliegt keinen Einflüssen der PAS, da während der Messung die PAS-Komponente parallel zur Flugrichtung (y-Richtung) je nach Fluggeschwindigkeit deutlich größer ist und der senkrechte Anteil vernachlässigt werden kann. Daher ist  $D_{\rm x}$  die bevorzugte Wahl für die Kalibrierung der Pixelauflösung in Unterabschnitt 4.2.1. Alle anderen Methoden unterliegen einer Über- oder Unterschätzung des Durchmessers aufgrund von gestreckten oder gestauchten Abbildungen, die durch eine Abweichung der PAS zur Abtastrate entstehen. Korrekte Durchmesser können daher erst nach angewandter Bildkorrektur angegeben werden, siehe Unterabschnitt 3.3.4. Der flächenäquivalente Durchmesser (Df) ist insbesondere für fokussierte flüssige Tropfen größer als 500 µm geeignet, da diese aufgrund von Kompression Verformungen aufweisen, die von der idealen Sphäre abweichen (Pruppacher und Beard, 1970; Vargas und Feo, 2011; Sor und García-Magariño, 2015; Spanu et al., 2020). Die Methoden über die reine Flugrichtung  $(D_v)$  oder das Mittel  $(D_{xv})$  werden der Vollständigkeit halber hier gezeigt, finden in der Praxis aber keine Anwendung.

In dieser Arbeit wird für sphärische Partikel der über den Abstand Z zurückgerechnete Durchmesser ( $D_Z$ ) nach Korolev (2007b) verwendet. Die Berechnung nutzt das Verhältnis  $D_{spot}/D_{edge}$  aus Abb. 3.8a und ermittelt  $Z_d$  aus Gleichung 3.5 mit zugehörigem Vergrößerungsfaktor aus der Nachschlagetabelle in Korolev (ebd.). Letztlich kann über  $D_{spot}$  auf den von der Messung unbeeinflussten Partikeldurchmesser  $D_Z$  in der Objektebene zurück-



**Abbildung 3.12:** Beugungsbilder und ihre vergrößerten Abbildungen eines säulenartigen Partikels (400  $\mu$ m × 150  $\mu$ m) für verschiedene Z<sub>d</sub>.

gerechnet werden. Diese Methode wird allgemein auch als Korolev-Korrektur bezeichnet und verhindert die systematische Überschätzung der Partikelgröße aufgrund der Lichtbeugung.

Die Größeneinteilung von Eispartikeln ist wegen der vielen unterschiedlichen Formen deutlich schwieriger als im sphärischen Fall. In Abb. 3.11 stellen die zugehörigen  $D_{\rm f}$  und  $D_{\rm max}$  die verallgemeinerte Grenzfallbeschreibung eines Eispartikels dar. Beide Durchmesser sind formunabhängig ermittelbar, wobei jede Form idealerweise über ihre eigenen Parameter definiert ist, beispielsweise mit Länge und Breite bei einem säulenartigen Partikel. Eine formunabhängige Beschreibung ist ungenauer, aber hat den Vorteil, dass eine einheitliche Größenverteilung aller Eisformen angegeben werden kann.  $D_{\rm f}$  leitet aus der abgeschatteten Fläche den Durchmesser einer äquivalenten Kreisfläche ab und beschreibt das



**Abbildung 3.11:** Durchmesser eines unfokussierten säulenartigen Eispartikels.

Volumen des Partikels adäquat, unterschätzt jedoch die räumliche Ausbreitung, je nach Form, deutlich. Wohingegen  $D_{\text{max}}$  die räumliche Ausbreitung hinreichend widerspiegelt und das Volumen deutlich überschätzt. Da die räumliche Ausbreitung insbesondere eine wichtige Größe für Strahlungstransportrechungen darstellt, wird in Modellen und in dieser Arbeit  $D_{\text{max}}$  verwendet.

Eispartikel unterliegen der Lichtbeugung und haben je nach Form und Orientierung eine andere Projektion und dementsprechend ein stark variables Beugungsbild. Die in Abb. 3.12 gezeigten Beugungsbilder eines säulenartigen Partikels können bei größeren Abständen



**Abbildung 3.13:** Methoden zur Bestimmung des Messvolumens über die teilweise angepassten Photodiodenreihenlängen  $L_{eff}$ , L und  $L_{rec}$ .

auch als Sphäre missinterpretiert werden. Es liegt wie im sphärischen Fall eine systematische Überschätzung vor, da sich  $D_{\max}$  für alle Formen und steigendem  $Z_d$  vergrößert oder sogar in zwei Partikel aufspalten kann. Somit unterliegen Eispartikel einer größeren systematischen Ungenauigkeit, welche insbesondere für Partikel kleiner als 200 µm eine Überschätzung bis zu 200 % aufweisen kann (O'Shea et al., 2021).

Die Teilchenkonzentration wird wie in Gleichung 3.3 und Gleichung 3.4 berechnet. Das Messvolumen ergibt sich aus der Photodiodenlänge, der PAS und dem DOF und ist damit, anders als bei der FCDP, größenabhängig. Somit haben alle Partikel kleiner als 109 µm ein kleineres Messvolumen aufgrund ihrer limitierten Detektierbarkeit. Alle größeren Partikel können im Abstand zwischen den Armen von 6,2 cm gemessen werden und weisen daher ein konstantes Messvolumen auf. Das angepasste Messvolumen für kleinere Partikel wird DOF-Korrektur genannt und kann für Eispartikel als Grenze der maximal möglichen Detektierbarkeit angesehen werden. Je stärker die Form der Eispartikel vom sphärischen Fall abweicht, desto niedriger fällt das zugehörige DOF aus. Daraus folgt eine leichte Unterschätzung der Teilchenkonzentration für kleine Eispartikel. In dieser Arbeit werden Eispartikel erst ab einem Durchmesser von ungefähr 100 μm als solche erkannt und fallen daher in den Bereich des konstanten Messvolumens. Das macht die DOF-Korrektur für Eispartikel obsolet. Die Größeneinteilung in die jeweiligen Größenbereiche erfolgt im sphärischen Fall mittels D<sub>Z</sub> und für Eispartikel über D<sub>max</sub>. Die feinste Aufteilung der Größenbereiche ist durch die effektive Pixelauflösung festgelegt, welche in Unterabschnitt 4.1.1 experimentell bestimmt wird.

Basierend auf dem Umgang mit Randpartikeln, welche nur teilweise abgebildet sind, wird das Messvolumen zusätzlich angepasst, siehe Abb. 3.13. Die *All-In*-Methode nutzt ausschließlich vollständig abgebildete Partikel und verwirft alle Randpartikel. Dadurch wird die Partikelstatistik großer Partikel reduziert. Zum Ausgleich wird eine effektive Photodiodenreihenlänge  $L_{\text{eff}}$  nach Knollenberg (1970) eingeführt,

$$L_{\rm eff} = (m-1)\Delta_{\rm res} - D, \tag{3.6}$$

wobei *m* die Photodiodenanzahl und  $\Delta_{res}$  die effektive Pixelauflösung der Photodiode ist. L<sub>eff</sub> berücksichtigt, dass größere Partikel statistisch häufiger als Randpartikel auftreten und verworfen werden. Die Verkleinerung des Messvolumens durch Leff bewirkt eine zunehmende Vergrößerung der Teilchenkonzentration in Gleichung 3.3 mit ansteigender Partikelgröße. Die All-In-Methode überschätzt zunehmend  $N_i$  für konvergierende D zur Photodiodenreihenlänge L nahe dem oberen Messspektrum. Insbesondere Eispartikel können mit dieser Methode am genauesten charakterisiert werden, da Eis-Randpartikel keiner vorhersagbaren räumlichen Ausbreitung folgen und daher Rückschlüsse vom gemessenen Bruchteil des Partikels auf das gesamte Partikel unmöglich sind. Die Center-In-Methode ist für sphärische Partikel ausgelegt und berücksichtigt runde Randpartikel, bei denen der Kreismittelpunkt innerhalb der Abbildung liegt. Das Messvolumen bleibt in diesem Fall unverändert. Die Reconstructed-Methode kann ausschließlich für sphärische Partikel angewendet werden und beinhaltet eine künstliche Vergrößerung der Photodiodenreihenlänge L<sub>rec</sub>, basierend auf den geometrischen Überlegungen in Heymsfield und Parrish (1978). In dieser Arbeit findet die All-In-Methode durchgängig Anwendung, da die Partikelstatistik in tiefen Wolken vergleichsweise hoch ist und Eispartikel gemessen wurden. Um die Vergleichbarkeit der Messungen zu gewährleisten, wird auch bei Messungen ohne Eispartikel die All-In-Methode verwendet.

#### 3.3.4 Messartefakte und Unsicherheiten

Auf dem Weg zwischen Eintreten des Partikels in den Laserstrahl bis zur Generierung der Abbildung können verschiedene Messartefakte und Unsicherheiten auftreten, welche im Folgenden skizziert und diskutiert werden.

#### Shattering

In Abb. 3.14 sind gemessene Shattering-Ereignisse von Regentropfen abgebildet. Die Regentropfen zerplatzen durch den Aufprall an den Armen und passieren den Laserstrahl. Diese Ereignisse werden mittels, aus den Abbildungen abgeleiteten, Parameter in Unterabschnitt 4.2.4 herausgefiltert. Die 2D-S besitzt spezielle Armspitzen ähnlich der FCDP zur Reduktion von Shattering (Korolev et al., 2013a). Zusätzlich wird eine IAT-Korrektur, wie bereits in Unterabschnitt 3.2.4 beschrieben, angewendet. Die 2D-S misst Zeit mittels Ticks. Für eine PAS von 100 m s<sup>-1</sup> entspricht ein Tick ungefähr 100 ns. Die mittlere freie Weglänge zwischen den Wolkenpartikeln lässt sich nach Pruppacher und Klett (2010) berechnen. Eine typische Teilchenkonzentration von 100 bis 200 cm<sup>-3</sup> entspricht einer freien Weglänge von ungefähr 1 mm, liegt somit im Bereich der Laserstrahlbreite und kann von der IAT erfasst



Abbildung 3.14: 2D-S Shattering Abbildungen.



**Abbildung 3.15:** 2D-S Koinzidenz Abbildungen (a) und 2D-S Stereo Regentropfen in Objektebene (b).

werden. Um den Shattering-Effekt zu korrigieren, wird ähnlich wie in Field et al. (2006) eine untere IAT Grenze von 50 Ticks oder ungefähr  $5,7 \cdot 10^{-6}$  s angewendet. Dies gewährleistet, dass abnormale Ereignisse wie Shattering oder oszillierende Diodenfehler herausgefiltert werden.

#### Koinzidenz

Die in Abb. 3.15a gezeigte Koinzidenz-Messung der 2D-S wird über Bildparameter herausgefiltert und kann separat analysiert werden. In Schattenbilddetektoren wird bei einer Koinzidenz zweier Partikel parallel zum Laserstrahl automatisch der größere abgebildet. Erst wenn die Partikel gleichzeitig versetzt den Laserstrahl passieren, wird Koinzidenz detektiert. Aufgrund des DOF sind kleine Partikel nur in einem kleinen Messvolumen detektierbar und die mittlere freie Weglänge der Partikel ist deutlich größer als die mögliche Auflösung von ungefähr 10  $\mu$ m. Das Auftreten von Koinzidenz ist unwahrscheinlich und liegt in den untersuchten Flügen bei unter 0,01 % der zuvor von Messartefakten bereinigten Menge an Abbildungen. Für die Abschätzung wurde eine stichprobenartige Untersuchung von Messa-



**Abbildung 3.16:** Verzögerter Signalverlauf einer 45 µm Sphäre im Abstand 0,8 mm zur Objektebene bei einer Fluggeschwindigkeit von  $100 \text{ m s}^{-1}$  und einer Ansprechzeit von  $0,4 \mu \text{s}$  (a) aus Strapp et al. (2001) und daraus resultierende 2D-S-Abbildungen (b).

flügen mit hohen  $N_{\rm W}$  herangezogen. Daher werden 2D-S-Koinzidenz-Messungen in dieser Arbeit nicht weiter berücksichtigt.

#### Übergang von 3D zu 2D

Der in Abb. 3.15b gezeigte Wassertropfen wurde von beiden Schattendetektoren gleichzeitig gemessen und liegt somit fokussiert in der Mitte des Messvolumens. Nach Gleichung 3.5 dürfte es keinen detektierbaren Poissonfleck geben, allerdings wird ein ähnlicher Fleck detektiert. Die Beschreibung des Beugungsbildes, ausgehend von einer lichtundurchlässigen 2D-Projektion, senkrecht zur Laserstrahlrichtung ist als Näherung hilfreich, aber birgt Nachteile. Ein Wassertropfen ist lichtdurchlässig und geradlinige Lichtstrahlen durch den Bereich nahe dem Mittelpunkt transmittieren und generieren insbesondere für Partikel größer als 500 µm einen Lichtfleck, der fälschlicherweise als Poissonfleck missinterpretiert werden kann. Dies führt bei Anwendung der Korolev-Korrektur zu einer systematischen Unterschätzung größerer fokussierter Wassertropfen. Die Dreidimensionalität von einem Eispartikel führt durch seine Orientierung zu unterschiedlichsten 2D-Projektionen für dasselbe Partikel. Die Näherung einer undurchlässigen 2D-Projektion wurde für diesen Fall noch nicht hinreichend untersucht und es ist davon auszugehen, dass die Näherung für komplexere Eisstrukturen zunehmend abweicht.

#### Ansprechzeit der Photodioden

Idealerweise wird eine Photodiode aktiviert, sobald ein Schwellwert von 50 % Abschattung überschritten wird. Tritt bei der Aktivierung eine zeitliche Verzögerung auf, wird das Beugungsbild mit einer Neigung abgebildet. Die theoretischen Berechnungen in Abb. 3.16a zei-



Abbildung 3.17: Fehlerhafte Abbildungen durch Diodenfehler.

gen eine verminderte Auflösung und deutlich niedrigere Abschattungsgrade, die mit erhöhter PAS eine Abnahme des Messvolumens bewirken (Baumgardner und Korolev, 1997). Zusätzlich unterscheiden sich die Ansprechzeiten  $\tau$  zwischen allen Photodioden und im Vorgängermodell 2D-C ( $\tau$ = 0,4 bis 0,6 µs) erniedrigen diese die Zähleffizienzen für Partikel <100 µm (Strapp et al., 2001). Die 2D-S hat eine vom Hersteller angegebene Ansprechzeit von 41 ns und kann insbesondere Partikel <100 µm bis zu Fluggeschwindigkeiten von 250 m s<sup>-1</sup> abbilden. Messungen von Hayman et al. (2016) zeigen, dass die Ungenauigkeit des Messvolumens erst ab Partikel <120 µm größer als 2 % wird und selbst für Partikel <80 µm 10 % nicht überschreitet. Dabei spielen insbesondere die in Abb. 3.16b gezeigten Partikel im Randbereich des DOF eine entscheidende Rolle, da diese eine Abschattung leicht über 50 % aufweisen und demnach als erstes nachweisbare Effekte der Ansprechzeit detektieren (Gurganus und Lawson, 2018).

#### **Diodenfehler und Schwellenwert**

Als Diodenfehler werden rein durch die Instrumentenelektronik ausgelöste Messungen bezeichnet. Strapp et al. (2001) zeigen, dass sich die Photodioden nicht nur in ihren Ansprechzeiten, sondern auch in ihren jeweiligen Spannungsschwellwerten unterscheiden. Dies führt zu den in Abb. 3.17 gezeigten fehlerhaften Abbildungen wie einer konstanten Auslösung einzelner Photodioden. Befindet sich das elektronische Rauschen einer Photodiode im Bereich des Schwellwerts, lösen diese oszillierend aus und generieren viele einzelne Messartefakte, welche sich mit einer echten Abbildung überlagern können und eine künstliche Koinzidenz erzeugen. Systematische Fehler ergeben sich aus stark von den umgebenden Photodioden abweichenden Spannungsschwellwerten einzelner Photodioden.

#### Abweichungen der Partikelgeschwindigkeit zur Abtastrate

Die Generierung der zweidimensionalen Abbildungen hängt von der Abtastrate ab, welche durch die angenommene PAS (PAS<sub>a</sub>) definiert ist. Die Effekte einer Unter- bzw. Über-



Abbildung 3.18: 2D-S PAS-Korrektur eines gestauchten und gestreckten Wassertropfens.



**Abbildung 3.19:** Zwei direkt nacheinander gemessene Wassertropfen (a) und Messartefakte durch externe Einflüsse (b).

schätzung der PAS<sub>a</sub> zur realen PAS (PAS<sub>r</sub>) in Abb. 3.18 verursachen eine Stauchung bzw. Streckung der Abbildungen (Weigel et al., 2016). In dieser Arbeit wurden alle Messungen mit einer konstanten PAS durchgeführt, da die 2D-S bei einem Ausfall der PAS-Messung keine Abbildungen aufzeichnet. Für die konstante PAS wurde ein Wert von ungefähr 115 % der mittleren Fluggeschwindigkeit gewählt, um einem Informationsverlust vorzubeugen. Die Abbildungen wurden nachträglich mit dem Verhältnis von realer zur gewählten PAS korrigiert, um die Dimension in Flugrichtung korrekt abzubilden.

#### Regentropfen

Regentropfen mit einem Durchmesser >500 µm können nicht mehr als ideale Sphäre angenommen werden und deformieren sich bei äußerer Krafteinwirkung. Diese ist bereits im freien Fall zu beobachten (Pruppacher und Beard, 1970). Die Deformierung tritt verstärkt bei einem erhöhten Druckgradienten nahe der 2D-S auf, welcher durch die Luftkomprimierung während des Fluges entsteht (Vargas und Feo, 2011; Weigel et al., 2016). Regentropfen mit zunehmender Deformierung weisen einen vergrößerten  $D_x$  und davon abgeleiteten  $D_Z$ auf und weichen stärker vom ursprünglichen Durchmesser ab. In diesem Fall gleicht  $D_f$  die Vergrößerung aus und stellt eine bessere Beschreibung dar. Die in Abb. 3.19a abgebildeten Wassertropfen wurden bei derselben PAS gemessen und der größere Regentropfen zeigt eine deutliche Deformierung.

Die vorgestellten Messartefakte und Unsicherheiten werden teilweise durch externe Feh-

lerquellen verstärkt. Zur Minimierung von externen Einflüssen wird eine, wie in Unterabschnitt 3.2.4 beschriebene, sorgfältige Reinigung der 2D-S Fenster vor jedem Einsatz durchgeführt. Zusätzlich wird der Innenraum der 2D-S mit trockenem Stickstoff geflutet, um einer Kondensation der sich im Innenraum befindenden Feuchte auf den optischen Bauteilen vorzubeugen. Dennoch können die Fenster während des Fluges vereisen oder mit Wasser benetzt werden und fehlerhafte Abbildungen, wie in Abb. 3.19b gezeigt, generieren. Schattenbilddetektoren besitzen aufgrund des komplexeren Messverfahrens mehr Unsicherheiten als Streulichtspektrometer und benötigen eine aufwendige Analyse der Abbildungen, um die zuvor beschriebenen Unsicherheiten herauszufiltern. Zusätzlich zur ausführlichen Charakterisierung der in die Größenverteilung eingehenden Parameter müssen passende Filtermethoden, siehe Unterabschnitt 4.2.4, angewandt werden. Es soll hier angemerkt werden, dass es sich sowohl bei der FCDP als auch der 2D-S um Instrumente handelt, die an der Außenhülle des Flugzeuges meistens unterhalb der Flügel angebracht sind. Daher messen beide Instrumente bei atmosphärischen Bedingungen, die gewonnenen Daten beziehen sich auf diese.

# 3.4 Berechnung mikrophysikalischer Parameter

Die gemessene Größenverteilung (PSD von *particle size distribution*) ist die Ausgangslage für die Berechnung der mikrophysikalischen Parameter, mit welchen die Wolken beschrieben werden. Im Folgenden werden die Berechnungen der in dieser Arbeit verwendeten Parameter vorgestellt.

#### Teilchenkonzentration

Die Teilchenkonzentration (N) bezeichnet die Anzahl der detektierten Teilchen im Messvolumen und ergibt sich aus der Summe aller Teilchenkonzentrationen der betrachteten Größenbereiche  $N_i$  aus Gleichung 3.3:

$$N = \sum_{i} N_i. \tag{3.7}$$

#### Effektivdurchmesser

Der Effektivdurchmesser (*ED*) soll allgemein die Größenabhängigkeit der Streu- und Absorptionsprozesse für den Strahlungstransfer von Wasser- und Eiswolken repräsentieren. Dabei gibt es mehrere Definitionen von *ED*, welche in McFarquhar und Heymsfield (1998) insbesondere für Eiswolken diskutiert wurden. In dieser Arbeit wird die Definition von Hansen und Travis (1974) und Slingo (1989) für ursprünglich reine Wasserwolken verwendet. Die Auswirkungen der *ED* Definitionen wurden breit von Wyser (1998) und Mitchell (2002) erörtert und hängen alle stark vom gewählten Durchmesser zur Größenbestimmung ab (Wu und McFarquhar, 2016). Im Folgenden wird die Definition von Parol et al. (1991) für die Eispartikel verwendet, welche der von Wasserwolken ähnlich ist. Die verallgemeinerte Definition von *ED* ergibt sich zu

$$ED = \frac{\sum_{i} D_i^3 N_i}{\sum_{i} D_i^2 N_i},\tag{3.8}$$

wobei  $D_i$  die arithmetische Mitte des Größenbereichs *i* darstellt. Für die PSD der Wolkentropfen wird  $D_Z$  und für Eispartikel  $D_{max}$  verwendet und dementsprechend auch in der jeweiligen Ermittlung von *ED*.

#### Flüssig- und Eiswassergehalt

Der Flüssigwassergehalt (*LWC*) ergibt sich aus der Summe aller Wassertropfen im Messvolumen durch

$$LWC = \sum_{i} LWC_{i} = \sum_{i} N_{i} \frac{4}{3} \pi \rho_{w} \left(\frac{D_{i}}{2}\right)^{3}, \qquad (3.9)$$

wobei  $\rho_w$  die Dichte von Wasser ist und die Wassertropfen als ideale Sphäre angenommen werden. *LWC*<sub>i</sub> stellt den Flüssigwassergehalt des jeweiligen Größenbereichs *i* dar.

Die Bestimmung des Eiswassergehalt (*IWC* von *ice water content*) ist komplexer aufgrund des unterschiedlichen Zusammenhangs zwischen Größe und Volumen der verschiedenen Eispartikelformen. Erste Parametrisierungen zwischen  $D_{max}$  und der Eismasse einzelner Eiskristallformen wurden von Mitchell et al. (1990) experimentell bestimmt. Brown und Francis (1995) haben eine erste generalisierte Parametrisierung für  $D_{max}$  erstellt. Allerdings unterliegt die Abschätzung des Eisvolumens mittels der eindimensionalen Größe  $D_{max}$  einer großen Unsicherheit. Die Untersuchungen von Baker und Lawson (2006) zeigen, dass unter Verwendung der zweidimensionalen abgeschatteten Fläche *A* eine genauere Parametrisierung der Eismasse bestimmt werden kann. Der Zusammenhang ist gegeben durch

$$M_{\rm Eis} = 0.115A^{1.218},\tag{3.10}$$

wobei die Parametrisierung in den Einheiten für A in mm<sup>2</sup> und der Eismasse  $M_{\text{Eis}}$  in mg definiert ist. Folglich besitzt jeder Eispartikel eine durch Gleichung 3.10 festgelegte Eismasse und der *IWC* ist durch

$$IWC = \frac{\sum\limits_{p} M_{\text{Eis},p} w_p}{V(\Delta t)}$$
(3.11)

gegeben, wobei über alle Partikel p im Messvolumen summiert wird. Der Faktor  $w_p$  stellt eine Gewichtung dar, welche sich aus der DOF-Korrektur und der gewählten Methode (*All-In*-Methode) zusammensetzt. Da die detektierten Eispartikel in dieser Arbeit nicht in den Bereich der DOF-Korrektur fallen, wird nur der abgeleitete Vergrößerungsfaktor  $L \cdot L_{\text{eff}}^{-1}$  aus Gleichung 3.6 verwendet.

### 3.5 Aerosolmesssysteme

Wolkenpartikel bilden sich durch Kondensation des umgebenden Wasserdampfes auf Wolkenkondensationskernen, welche einen Bruchteil des vorhandenen Aerosolspektrums darstellen. Für eine Untersuchung des Wolkenbildungsprozesses ist eine exakte Kenntnis über die Größenverteilung und chemische Zusammensetzung des zur Verfügung stehenden Aerosols unabdingbar. Im Folgenden werden die in dieser Arbeit verwendeten Aerosolmessysteme zur Bestimmung der relevanten Größen kurz vorgestellt. Die NASA LARGE Arbeitsgruppe hat die Aerosolmessungen und Auswertung durchgeführt. In dieser Arbeit werden die Aerosoldaten der NASA in Kapitel 6 genutzt.

#### 3.5.1 Kondensationskernzähler

Die Teilchenkonzentration der Wolkenkondensationskerne ( $N_{\rm CCN}$ ) wird mit einem CCN-100 Teilchenzähler von DMT gemessen, welcher auf dem Konzept von Roberts und Nenes (2005) basiert und von Lance et al. (2006) charakterisiert wurde. Die zu vermessende Luft wird durch eine Feuchtekammer geleitet, in der eine künstliche Übersättigung eingestellt werden kann. Die in der Luft enthaltenen Aerosole werden bei gegebener *S* je nach Größe und ihrer chemischen Eigenschaften aktiviert und wachsen durch Kondensation an. Anschließend wird  $N_{\rm CCN}$  von einem Streulichtspektrometer bestimmt. Der CCN-100 Teilchenzähler hat zwei Operationsmodi. Einen bei konstanter *S* von 0,43 % mit einer zeitlichen Auflösung von 1 Hz und einen Scan-Modus mit einer sich verändernder *S* in einem Intervall von ungefähr 60 s (Moore und Nenes, 2009). In dieser Arbeit werden die Messungen beider Modi verwendet und im Scan-Modus wird die  $N_{\rm CCN_{0.43\%}}$  durch den  $N_{\rm CCN}$  Mittelwert im Übersättigungsbereich von 0,40 bis 0,46 % approximiert. Die Messungenauigkeit liegt für *S* bei ±0,04 % und für  $N_{\rm CCN_{0.43\%}}$  bei ±10 %.

#### 3.5.2 Aerosolpartikelzähler

Die Aerosol-Partikelgrößenverteilungen werden mit einer Kombination aus zwei Partikelmessgeräten ermittelt. Dazu zählen ein selbsterstellter Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS), bestehend aus einem Differenzial-Mobilitäts-Analysator Modell 3085 und einem Kondensationspartikelzähler Modell 3776 von *TSI Inc.* (Moore et al., 2017), und ein Laser-Aerosol Spektrometer (LAS) Modell 3340 von *TSI Inc.* (Moore et al., 2021). Das SMPS misst Partikelgrößenverteilungen mit einem Durchmesser von 3 bis 94 nm in einem Zeitintervall von etwa 60 s und das LAS misst Partikel mit einem Durchmesser von 94 bis 3488 nm mit einer zeitlichen Auflösung von 1 Hz. Die Größenbestimmung des SMPS wird mit Hilfe von Polystyrol-Latexkugeln, welche dem NIST (National Institute of Standards and Technology) Standard genügen, kalibriert und während der Mission häufig überprüft. Die LAS-Größenbestimmung wird mit im Labor hergestelltem monodispersem Ammoniumsulfat mit einem Brechungsindex von 1,52 kalibriert. Beide Partikelmessgeräte benutzen die durch einen Einlass geleitete und getrocknete Umgebungsluft und die gemessenen Daten werden für Standardbedingungen angegeben.

#### 3.5.3 Bestimmung der Aerosolspezies

Die chemische Zusammensetzung des Aerosols wird mit zwei Messmethodiken ermittelt. Der nicht refraktäre Anteil im Submikrometerbereich wird mit einem High Resolution Time-of-Flight Aerosol-Massenspektrometer (HR-ToF-AMS) von Aerodyne Research Inc. gemessen (DeCarlo et al., 2006; Hilario et al., 2021). Die Massenkonzentrationen von Sulfat, Nitrat, Chlorid, Ammonium und organischem Material werden mit einer zeitlichen Auflösung von 1 Hz aufgezeichnet und für alle nachfolgenden Analysen in dieser Arbeit auf 30 s gemittelt. Die Messungen werden isokinetisch mit einem nach vorne gerichteten Doppel-Diffusor-Flugzeugeinlass (Modell 1200 von Brechtel Manufacturing Inc.) durchgeführt und werden auf Konstantdruck bei 67 kPa betrieben. Die Massenkonzentrationen werden unter Verwendung von Standardwerten für die relative Ionisationseffizienz für jede chemische Komponente mit einer Sammeleffizienz von eins verarbeitet und für Standardbedingungen angegeben. Die wasserlösliche Aerosolzusammensetzung wird durch einen Particle-Into-Liquid Sampler (PILS) gewonnen. Die zu einem Wassertropfen aktivierten Aerosolpartikel werden durch einen Behälter am Flugzeugrumpf gesammelt und in Fläschchen innerhalb des Flugzeugs geleitet und aufbewahrt. Der Flüssigkeitsgehalt der Fläschchen wird nach dem Flug mittels Ionenchromatographie auf wasserlösliche Ionen hin analysiert (Sorooshian et al., 2006). In dieser Arbeit werden die Na<sup>+</sup>, Cl<sup>-</sup> und Mg<sup>2+</sup> Konzentrationen ausschließlich dem Meersalz zugeschrieben und die SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, K<sup>+</sup> und Ca<sup>2+</sup> Konzentrationen auf der Grundlage ihres Verhältnisses von 0,25, 0,036 und 0,039 zu Na<sup>+</sup> im

Meerwasser (Bowen, 1979; Farren et al., 2019; Ma et al., 2021). Der PILS kann Partikel bis zu einem Durchmesser von etwa 4 µm detektieren (McNaughton et al., 2007; Hilario et al., 2021).

# 3.6 Windmesssysteme

Die dreidimensionalen Windkomponenten werden mit dem Turbulent Air Motion Measurement System (TAMMS) auf dem NASA Langley Forschungsflugzeug HU-25 Falcon gemessen. Die Hauptkomponenten umfassen schnell ansprechende Strömungswinkel- und Temperatursensoren zur Bestimmung der Windrichtung und -stärke in Bezug auf das Flugzeugkoordinatensystem. Zusammen mit dem Trägheitsnavigationssystem Applanix 650 von Applanix Inc., welches die Position, Geschwindigkeit und Höhe des Flugzeugs ermittelt, können die absoluten Windgeschwindigkeiten in Nord-Süd, Ost-West und vertikaler Richtung abgeleitet werden. Die Daten werden mit 200 Hz auf einem UEIPAC-300 Echtzeit-Controller von United Electronics Industries aufgezeichnet und anschließend für die Verarbeitung, Analyse und Archivierung der Daten auf 20 Hz herunter gemittelt. Das Strömungswinkelsystem umfasst fünf bündig im Radom des Flugzeugs angebrachte Drucköffnungen, die den Anstellwinkel (vertikal ausgerichtete Öffnungen) und den Schiebewinkel (horizontal ausgerichtete Öffnungen) messen. Entsprechende schnell ansprechende Präzisionsdruckwandler werden so nah wie möglich an den Drucköffnungen angebracht, um Verzögerungen und Fehler zu minimieren. Nick- und Giermanöver, Geschwindigkeitsänderungen und Umkehrungen werden regelmäßig während des Einsatzes durchgeführt, um den Betrieb und die Kalibrierung des Systems zu überprüfen und die abgeleiteten mittleren Vektoren des horizontalen Windes zu validieren. Die dreidimensionalen Windvektoren werden anhand der vollständigen Luftbewegungsgleichungen berechnet (Lenschow, 1986). Die Geschwindigkeitskomponenten der Flugzeugplattform werden intern vom Applanix berechnet, indem die GPS- und Inertialdaten mit Hilfe eines Kalman-Filterverfahrens kombiniert werden. Die für die Bestimmung der tatsächlichen Luftgeschwindigkeit erforderlichen Messungen der Umgebungstemperatur erfolgen mit dem nicht enteisten Gesamtlufttemperatursensor Rosemount Modell 102 mit einem schnell ansprechenden Platinelement (E102E4AL). Weitere Einzelheiten über die Kalibrierung und Vergleichsergebnisse des TAMMS beim Einsatz auf der NASA P-3 finden sich in Thornhill et al. (2003). Alle Windmessungen, einschließlich der horizontalen und vertikalen Winde, haben eine Unsicherheit von 5 %. Die Windmessungen wurden von der NASA LARGE Arbeitsgruppe bereitgestellt und werden in Kapitel 6 verwendet.

# KAPITEL 4

# 2D-S-FCDP Kombination: Charakterisierung und Datenverarbeitung

Im Fokus der experimentellen Untersuchungen stehen die Wolkenmessinstrumente FCDP und 2D-S. Die in Kapitel 3 vorgestellten Grundlagen haben die theoretischen Grenzen der Instrumente aufgezeigt. In diesem Kapitel sollen die experimentellen Untersuchungen zur exakten Bestimmung der Messungenauigkeiten und Verbesserung der Datenqualität vorgestellt werden. Dies beinhaltet neben der Kalibration der Größenbestimmung und der Charakterisierung der Messfläche beider Instrumente, die für diese Arbeit entwickelte Software zur Datenverarbeitung der 2D-S Rohdaten. Anschließend werden die Kombination beider Instrumente und die dabei auftretenden Unsicherheiten vorgestellt.

# 4.1 FCDP Charakterisierung

Unter der Verwendung monodisperser Kalibrationskugeln mit bekannter Größe und bekanntem Brechungsindex wird der in Unterabschnitt 3.2.3 vorgestellte lineare Zusammenhang zwischen  $\sigma_{4-12^{\circ}}$  und der gemessenen Spannung für beide Verstärkerstufen des Streulichtspektrometers FCDP ermittelt. Anschließend wird die Güte verschiedener Methoden zur Einteilung der Größenbingrenzen evaluiert. Da  $SA_{\text{eff}}$  direkt in die Berechnung der Teilchenkonzentration in Gleichung 3.3 über das Messvolumen eingeht, wird  $SA_{\text{eff}}$  mit einem Tröpfchengenerator für eine bestimmte Tropfengröße und verschiedene Tiefenschärfekriterien bestimmt.

#### 4.1.1 Kalibrierung der Größenbestimmung

Die monodispersen Kalibrationskugeln wurden mittels Unterdruck über eine Vorrichtung in das Messvolumen geleitet und vermessen. Es wurde darauf geachtet, eine möglichst geringe Anzahl an Kalibrationskugeln über einen langen Zeitraum einzuleiten, um Koinzidenz-



**Abbildung 4.1:** Theoretische Mie-Kurven des  $\sigma_{4-12^{\circ}}$  für Sphären aus Borosilikat (n=1,56), Kalknatron (n=1,52) und Wasser (n=1,33) mit den verwendeten Kalibrationskugeln. Software: MieConScat (Wiscombe, 1980; Rosenberg et al., 2012). Die Kalibration ist angelehnt an Kleine et al. (2018).

Effekte zu vermeiden. Die verwendeten Kalibrationskugeln bestehen aus Borosilikatglas (n=1,56) und Kalknatronglas (n=1,52). Ihre Standardabweichung und mittleren Durchmesser sind bekannt. Zudem ist vom Hersteller die erweiterte Messungenauigkeit des mittleren Durchmessers angegeben, welche die Grenzen des Konfidenzintervalls festlegt, in dem der wahre Wert mit einer Wahrscheinlichkeit über 95% liegt. In Abb. 4.1 sind die Mie-Kurven des  $\sigma_{4-12^\circ}$  der jeweiligen Materialien und von Wasser (n=1,33) über den Durchmessers abgebildet. Aus der vom Hersteller angegebenen Standardabweichung des Durchmessers lässt sich der zu erwartende Wertebereich aufgrund der Mie-Mehrdeutigkeit für  $\sigma_{4-12^\circ}$  angeben. Da die Mie-Kurven von Borosilikat- und Kalknatronkugeln durch ihren höheren Brechungsindex deutlich flacher als die Wasser Mie-Kurve ausfallen und der FCDP-Messbereich bis zu 50 µm geht, ist die Verwendung der 60 µm Kalknatronglaskugeln essenziell für eine Kalibrierung des oberen Messgrößenbereichs.

Für die Kalibration finden ausschließlich überqualifizierte Partikel mit einem Tiefenschärfekriterium größer als 0,95 Verwendung, da diese im Fokus des FCDP-Linsensystems liegen und den theoretischen  $\sigma_{4-12^\circ}$ -Wert bestmöglich abbilden. Zusätzlich erfolgt eine Filterung koinzidierender Partikel durch eine IAT-Analyse, indem alle Partikel mit einer IAT, die mehr als 30 % vom Median der IAT-Verteilung je Messpunkt abweicht, verworfen werden. In Abb. 4.2 sind die relativen Häufigkeiten der A/D-Werte aller verbliebenen Partikel pro Messpunkt aufgetragen. Daraus ist zu erkennen, dass sich die Borosilikatkugeln für VS1 und die Kalknatronglaskugeln für VS2 eignen. Messpunkte mit Partikeln nahe des A/D-Wertes



**Abbildung 4.2:** Die A/D-Werte Verteilung der verschiedenen Kalibrationskugeln im gekennzeichneten Wertebereich der VS1 und VS2.

16384 laufen teilweise über beide Verstärkerstufen. Aus dem vom Hersteller bereitgestellten MATLAB-Skript ist ersichtlich, dass alle Partikel beider Verstärkerstufen gezählt werden. Die Umrechnung in entsprechende Spannungen erfolgt mit einer Spannungsschrittweite von  $2^{-13}(2^{-10})$  V pro A/D-Wert für VS1(VS2). Somit entfallen die ersten 2048 A/D-Werte der VS2 auf denselben Spannungswertebereich von VS1. Da letztlich nur die Spannungen für die Größenbestimmung herangezogen wird, führt dies zu einer systematischen Unterschätzung der Größe für den A/D-Bereich 16385-18433. Gleichzeitig ist dadurch eine adäquate Bestimmung der Teilchenkonzentration gewährleistet, da keine Partikel der VS2 verworfen werden.

Die Einteilung der Größenbereichsgrenzen ist über mehrere Methoden ermittelbar, welche im Folgenden beschrieben und evaluiert werden. Über die Kalibrationskugeln wird mittels der theoretischen Mie-Kurve ein linearer Zusammenhang zwischen  $\sigma_{4-12^{\circ}}$  und den Spannungswerten gefunden. Dieser ist unabhängig vom verwendeten Material und Brechungsindex. Unter Verwendung dieses Zusammenhangs ist es möglich, bei gegebener Signalspannung des Partikels ( $U_p$ ) den zugehörigen Durchmesser über die Wasser Mie-Kurve in Abb. 4.1 herauszufinden. Es besteht die Möglichkeit, den linearen  $\sigma_{4-12^{\circ}}$ - $U_p$  Zusammenhang für die jeweilige Verstärkerstufe separat oder für beide gemeinsam zu bestimmen, wie in Abb. 4.3a gezeigt. Für eine separate Kalibrierung stehen folglich die in Abb. 4.3b gezeigten zwei Wasser Mie-Kurven der jeweiligen Verstärkerstufe zur Verfügung, die mit einem Polynom gefittet werden. Die gängige Methode ist laut Kalibrationsbericht des Herstellers ein polynomischer Fit 2. Ordnung für den linearen  $\sigma_{4-12^{\circ}}$ - $U_p$  Zusammenhang beider Verstärkerstufen ( $D_{beide,p=2}$ ). Für einen Vergleich wird im Folgenden eine separate Kalibrierung gleichen Polynoms ( $D_{sep,p=2}$ ) herangezogen. Der polynomische Fit 2. Ordnung deckt die



**Abbildung 4.3:** Gemessener  $\sigma_{4-12^{\circ}}$ - $U_p$  Zusammenhang für beide Verstärkerstufen und separat (a). Die zugehörigen Wasser Mie-Kurven für VS1 (violett) und VS2 (rot) mit einem polynomischen Fit 28. Ordnung der VS1 (blau) und VS2 (orange) (b).

Mie-Mehrdeutigkeiten kaum ab und wird daher mit einem Polynom 28. Ordnung als weitere Möglichkeit verglichen ( $D_{sep,p=28}$ ), welche in Abb. 4.3b zu sehen ist und die Mie-Kurve insbesondere zwischen 4 und 15 µm adäquater widerspiegelt. Die Ordnung des Polynoms ist willkürlich gewählt, jedoch so groß, dass die Abflachung zwischen 4 und 15 µm abgebildet ist und die gewonnene Funktion streng monoton steigt, damit die Bijektivität zwischen Durchmesser und Spannung erhalten ist. Die letztendliche Festlegung der Größenbereichsgrenzen erfolgt über den Fit und ist im separaten Fall durch VS1 für Partikel <20 µm und durch VS2 für Partikel >20 µm gegeben.

Um die Methoden untereinander vergleichen zu können, wird die Implementierung der Größenbestimmung im MATLAB-Skript schrittweise erläutert. Zuerst wird die hinterlegte Größenbereichseinteilung mit der allgemeinen quadratischen Gleichung

$$AD_p^2 + BD_p + C = 0 \tag{4.1}$$

gefittet und die Vorfaktoren A,B und C bestimmt. Dieser Fit beschreibt die Beziehung zwischen  $U_p$  und der Partikelgröße  $D_p$ . Anschließend wird  $D_p$  für jedes Partikel über die Lösungsformel

$$D_p = \frac{-B + \sqrt{B^2 - 4A(C - V_p)}}{2A}$$
(4.2)

**Tabelle 4.1:** Die Herstellerangaben des mittleren  $D_K$  mit Standardabweichung in Klammern, die daraus abgeleiteten  $D_T$  und die Durchmesser der Methoden  $D_{sep,p=28}$ ,  $D_{sep,p=2}$ ,  $D_{beide,p=2}$  mit den Minimal- und Maximaldurchmessern in Klammern. Zusätzlich sind für jede Methode der Korrelationskoeffizient R und der Pearson-Koeffizient P in Klammern im Vergleich zu  $D_T$  angegeben.

$D_K$	D <sub>T</sub>	$D_{\text{sep},p=28}$	$D_{sep,p=2}$	$D_{beide, p=2}$
$1.9(\pm 0.6)$	2.2(1.1-5.1)	2.2(1.5-2.8)	2.4(1.7-3.0)	-2.3(NaN-(-0.3))
$5.4(\pm 0.7)$	5.8(3.4-8.7)	5.8(4.6-7.0)	5.9(4.7-7.1)	5.0(3.1-6.6)
$7.6(\pm 1.0)$	6.5(3.7-8.9)	6.3(5.4-7.2)	6.4(5.5-7.2)	5.7(4.4-6.9)
$10.5(\pm 1.1)$	7.8(3.7-11.7)	7.9(6.2-9.4)	7.9(6.3-9.4)	7.7(5.6-9.6)
$14.4(\pm 1.8)$	12.3(9.3-15.7)	10.9(8.8-12.8)	10.9(8.8-12.8)	11.3(8.9-13.5)
$22.2(\pm 1.8)$	17.8(14.1-22.0)	17.2(15.1-19.1)	17.2(15.1-19.1)	18.1(16.0-20.0)
$32.5(\pm 2.3)$	26.2(22.4-30.4)	26.1(24.0-28.1)	26.1(24.0-28.1)	27.0(24.9-28.9)
$43.4(\pm 1.5)$	34.9(32.7-37.3)	34.3(31.0-37.4)	34.3(31.0-37.4)	34.8(31.7-37.7)
$49.3(\pm 3.4)$	39.3(35.1-43.3)	39.1(35.4-42.6)	39.2(35.4-42.7)	39.3(35.8-42.5)
$59.4(\pm 1.5)$	47.0(43.6-50.1)	47.0(43.4-50.4)	47.1(43.4-50.5)	46.6(43.3-49.7)
R(P)	1(0)	$0.9993(1.09 \times 10^{-12})$	$0.9992(1.66 \times 10^{-13})$	$0.9970(3.4 \times 10^{-10})$

berechnet. Hier ist anzumerken, dass prinzipiell zwei Lösungen existieren, aber die zweite Lösung aufgrund von negativen D<sub>p</sub> Werten physikalisch unsinnig ist und daher nicht weiter berücksichtigt wird. Mit diesem Hintergrund kann die Güte der jeweiligen Methode ermittelt werden. In Tabelle 4.1 befinden sich die Kalibrationskugeldurchmesser  $(D_K)$ mit ihren jeweiligen Standardabweichungen. Daraus werden über den  $\sigma_{4-12^{\circ}}$ -Wertebereich der Kalibrationskugeln die entsprechenden theoretischen mittleren Durchmesser äquivalenter Wassertropfen berechnet (D<sub>T</sub>). Die Durchmesser der Methoden D<sub>sep,p=28</sub>, D<sub>sep,p=2</sub> und D<sub>beide, p=2</sub> werden aus den gewonnenen Größenbereichseinteilungen über Gleichung 4.1 und Gleichung 4.2 berechnet und simulieren die Größenbestimmung der Auswerteroutinen des Herstellers. Die Minimal- und Maximaldurchmesser der Methoden in Klammern wurden über Gleichung 4.2 berechnet, wobei Up um die Standardabweichung der Spannung aus den A/D-Werten in Abb. 4.2 für die betreffende Kalibrationsgröße verringert beziehungsweise vergrößert wurde. Die Methode mit der Bestimmung des  $\sigma_{4-12^{\circ}}$ - $U_p$  Zusammenhangs über beide Verstärkerstufen mit einem polynomischen Fit 28. Ordnung ist nicht angegeben, da hierfür keine reellen Lösungen von Gleichung 4.2 für kleine Partikel existieren. Die Güte der Methode ist über den Korrelationskoeffizienten R und die Pearson-Koeffizienten P gegeben.

Die Ergebnisse in Tabelle 4.1 zeigen, dass eine separate Kalibrierung der Verstärkerstufen die beste Korrelation im gesamten Größenbereich der FCDP aufweist. Wohingegen die Zusammenfassung beider Verstärkerstufen insbesondere für kleine Partikel unrealistische Werte liefern kann. Dieses Ergebnis ist zuerst verwunderlich, wenn man sich verdeutlicht,

· · ·			
Größenbereich	D [µm]	$U_u$ - $U_o$ [V]	Mie <sub>u</sub> -Mie <sub>o</sub> [%]
1	0.75(0.0-1.5)	0-0.063	0-200
2	2.25(1.5-3.0)	0.064-0.195	67-67
3	3.75(3.0-4.5)	0.196-0.328	40-140
4	5.25(4.5-6.0)	0.329-0.443	29-71
5	7.0(6-8)	0.444-0.530	46-57
6	9.0(8-10)	0.531-0.612	58-22
7	11.0(10-12)	0.613-0.816	36-18
8	13.0(12-14)	0.817-1.143	15-15
9	15.0(14-16)	1.144-1.470	13-13
10	17.0(16-18)	1.471-1.712	12-15
11	19.5(18-21)	1.713-2.133	13-15
12	22.5(21-24)	2.134-2.588	13-13
13	25.5(24-27)	2.589-3.144	12-12
14	28.5(27-30)	3.145-3.596	11-11
15	31.5(30-33)	3.597-4.070	10-10
16	34.5(33-36)	4.071-4.738	9-9
17	37.5(36-39)	4.739-5.444	8-8
18	40.5(39-42)	5.445-6.050	7-9
19	44.0(42-46)	6.051-7.002	8-9
20	48.0(46-50)	7.003-8.196	8-∞
21	$\infty(50-\infty)$	8.197-16	_

**Tabelle 4.2:** FCDP Größenbereichsdefinition mit mittlerem Durchmesser D und den Größenbereichsgrenzen in Klammern, den korrespondierenden Minimal- und Maximalspannungen und der Abweichung eines Einzelpartikels durch Mie-Mehrdeutigkeit hin zu kleineren ( $Mie_u$ ) bzw. größeren ( $Mie_o$ ) Größenbereichen.

dass im MATLAB-Skript für die Größenbestimmung ein Fit 2. Ordnung über beide Verstärkerstufen verwendet wird. Die quadratische Vereinfachung ist auch ein Grund, warum sich kein Unterschied zwischen  $D_{sep,p=28}$  und  $D_{sep,p=2}$  feststellen lässt und die ermittelten Minimal- und Maximaldurchmesser für kleine Partikel eine größere Genauigkeit gegenüber den theoretischen Abweichungen in  $D_T$  suggerieren. Über eine bessere Approximation der Wasser Mie-Kurve mittels eines Polynoms höherer Ordnung im MATLAB-Skript könnte die Mie-Mehrdeutigkeit im Bereich von 4 bis 15 µm aufgrund der flacheren Steigung, siehe Abb. 4.3b, besser abgebildet werden. Nichtsdestotrotz veranschaulicht der Methodenvergleich die enorme Relevanz einer präzisen Kalibration. In dieser Arbeit wird eine Kalibrierung nach  $D_{sep,p=28}$  für die Prozessierung der Daten verwendet. Um eine zeitlich robuste Größenbestimmung zu gewährleisten, wurde vor und nach jeder Kampagnenphase eine Kalibrierung durchgeführt, welche keinen signifikanten zeitlichen Trend aufweisen.

Die gemäß D<sub>sep,p=28</sub> festgelegten FCDP Größenbereiche in Tabelle 4.2 zeigen die jeweiligen mittleren Durchmesser, ihre unteren und oberen Größenbereichsgrenzen in Klammern und korrespondierende Spannungen. Zusätzlich ist die mögliche prozentuale Unterschätzung (Mie<sub>u</sub>) und Überschätzung (Mie<sub>o</sub>) eines Einzelpartikels aufgrund der Mie-Mehrdeutigkeit angegeben, die mit Hilfe der idealen Wasser Mie-Kurve aus Abb. 4.1 ermittelt werden. Für jeden Größenbereiche regibt sich eine Menge an  $\sigma_{4-12^{\circ}}$ -Werten, die auch in den nächstgelegenen Größenbereichen auftreten können. Die mittleren Durchmesser der kleinsten beziehungsweise größten Größenbereiche, welche sich eine Schnittmenge an  $\sigma_{4-12^{\circ}}$ -Werten mit dem betrachteten Größenbereich teilen, werden zur Berechnung von Mie<sub>u</sub> und Mie<sub>o</sub> genutzt. Diese Betrachtung gilt ausschließlich für die Größeneinteilung eines Einzelpartikels und kann den statistischen Fehler eines Größenbereichs bei der Abbildung einer Größen-verteilung aufgrund der Mie-Mehrdeutigkeit nicht widerspiegeln, da sich unter anderem die Überschätzung eines Größenbereichs mit der Unterschätzung des nächsten teilweise ausgleicht. Um eine statistische Fehlereinschätzung der Mie-Mehrdeutigkeit zu erfassen, könnte eine Monte-Carlo Simulation mit gegebener Größenverteilung aufschlussreich sein.

#### 4.1.2 Kalibrierung der Messfläche

Die Teilchenkonzentration wird über das vermessene Volumen ermittelt, das sich aus dem Partikelstrom mit bekannter PAS und der  $SA_{eff}$  zusammensetzt. Die Bestimmung von  $SA_{eff}$  wurde experimentell mit Hilfe eines Tröpfchengenerators durchgeführt. Dieser produziert Wassertropfen mit einem Durchmesser von ungefähr 15 bis 17 µm mit 100 Hz und ist an einer Vorrichtung angebracht, welche ein vorgegebenes Raster schrittweise durchläuft. Für die Kalibration wurde eine Schrittweite von  $\Delta X=30 \mu m$  parallel und  $\Delta Y=200 \mu m$  senkrecht zum Laserstrahl gewählt. Um eine ausreichende Statistik zu gewährleisten, wurde 7 s auf jeder Rasterposition verweilt. Genauere Informationen zur Funktionsweise und Aufbau des Tröpfchengenerators und der Durchführung des Experiments sind in Hahn (2019) und Hahn et al. (2022) zu finden.

Für eine möglichst exakte Messflächenkalibration wurden alle Partikel innerhalb des 5 s Zeitfensters mit einem zeitlichen Abstand von 7 s vor und nach jeder Positionsänderung verwendet. Somit besitzt jede Rasterposition eine eigene PbP-Datei, in der zusätzlich Partikel außerhalb der 20 % und 80 % Perzentile der Partikelgrößenverteilung und Partikel mit einer Abweichung von mehr als 30 % von der Median-Transitzeit verworfen werden. In Abb. 4.4a ist das Median-DOF<sub>VS</sub> bei jeder Rasterposition dargestellt. Die Minimalbreite von ungefähr 180 µm bei Position X=2600 deutet darauf hin, dass sich hier der Fokus des Sammellinsensystems der FCDP befindet. Mit zunehmendem Abstand zum Fokus weitet sich die Fläche kreuzförmig auf, dies hat einen starken Anstieg von  $SA_{eff}$  für DOF<sub>VS</sub>-Werte <0,5 zur Folge. Die Ermittlung von  $SA_{eff}$  ist in Abb. 4.4b für DOF<sub>VS</sub>=0,6 illustriert. Zur Abschätzung



**Abbildung 4.4:** Messflächenkalibration mit 16 µm Wassertropfen aus einem automatischen Tröpfchengenerator mit den Schrittweiten  $\Delta X$ =200 µm und  $\Delta Y$ =30 µm (a). Messflächenbestimmung für ein DOF<sub>VS</sub>=0,6 mit zugehöriger minimalen und maximalen Fläche (b). Die kalibrierte Messfläche gegenüber verschiedenen DOF<sub>VS</sub> (c) in blau, die Herstellerkalibration von SPEC in rot und die prozentuale Messflächenungenauigkeit in grau gestrichelt.

der minimalen und maximalen  $SA_{\rm eff}$  wurde die mittlere Standardabweichung aller DOF<sub>VS</sub>-Verteilungen herangezogen. Die minimale  $SA_{\rm eff}$  (grün) zeigt keine kreuzförmige Auffächerung und wird hin zur maximalen  $SA_{\rm eff}$  (rot) mit fünf Pixeln erweitert. In Abb. 4.4c ist die simultan ermittelte  $SA_{\rm eff}$  für verschiedene DOF<sub>VS</sub> im Vergleich zu den Herstellerangaben dargestellt. Die Fehlerabschätzung beinhaltet zusätzlich zur minimal und maximal  $SA_{\rm eff}$  eine aus der Auflösung abgeleitete Ungenauigkeit von ±0.006 mm<sup>2</sup> und ergibt insgesamt eine mittlere  $\Delta SA_{\rm eff}$ -Ungenauigkeit zwischen 7 und 12,5 % für DOF<sub>VS</sub>>0,6

Die  $SA_{\text{eff}}$  der FCDP ist für alle DOF<sub>VS</sub> vergleichsweise klein gegenüber der 2D-S-Messfläche und für eine ganzheitliche Betrachtung werden die Messinstrumente, wie in Abschnitt 4.3 beschrieben, kombiniert. Für eine qualitativ hochwertige Kombination sollte die Abweichung der jeweils gemessenen Statistik im Überlappungsbereich der Messinstrumente so klein wie möglich sein. Die Statistik hängt maßgeblich von  $SA_{eff}$  ab und wird daher in dieser Arbeit mit einem DOF<sub>VS</sub> von 0,6, einer  $SA_{eff}$  von 0,294 mm<sup>2</sup> und einer  $\Delta SA_{eff}$ -Ungenauigkeit von 7,1 % möglichst groß gewählt.

# 4.2 2D-S Charakterisierung

Die Größenbestimmung der 2D-S wird mit Hilfe eines Drehscheiben-Experiments evaluiert. Hierzu wird eine für diese Arbeit angefertigte Drehscheibenkonstruktion verwendet und damit die effektive Pixelauflösung des vertikalen und horizontalen Schattenbilddetektors ermittelt. Darauf aufbauend wird die 2D-S-Messfläche über den in Unterabschnitt 3.3.2 vorgestellten DOF-Grenzwert mittels des in Unterabschnitt 4.1.2 verwendeten Tröpfchengenerators für eine Partikelgröße bestimmt. Um atmosphärische Einflüsse auf die Größenbestimmung und Zähleffizienz nachvollziehen zu können, wurde das Verhalten der 2D-S in verschiedenen Druck- und Temperaturumgebungen mit einem Klimakammer-Experiment untersucht. Anschließend werden die für diese Arbeit entwickelte Auswertesoftware und die verwendeten Filtermethoden vorgestellt.

#### 4.2.1 Kalibrierung der effektiven Pixelgröße

Der Aufbau des Drehscheiben-Experiments, siehe Abb. 4.5a, beinhaltet eine Drehscheibenkonstruktion aus Aluminium und Epoxidharz, welche eine höhenverstellbare Schiene besitzt. Auf dieser befindet sich eine mit Hilfe eines 3D-Druckers erstellte Halterung für einen kleinen Elektromotor. An diesem ist eine Drehscheibe angebracht, auf der die Kreisflächen mit Durchmessern von D={20, 60, 100, 140, 180, 220, 500, 1200} µm mittels Chrom-Lithographie aufgedruckt wurden. Die Drehscheibe wurde so bedruckt, dass jeweils zwei aufsteigende Folgen der Durchmesser mit einem konstanten Abstand abgebildet sind. Somit ergibt sich die in Abb. 4.5c gezeigte wiederholende Abfolge der Durchmesser für jede Umdrehung. Da die Chrom-Kreisflächen nicht ideal um den Mittelpunkt der Drehscheibe platziert wurden, entsteht ein leichter Versatz in Photodiodenarray-Richtung x. Für die Bestimmung der effektiven Pixelauflösung wurde der Abstand Y zum Fenster des Sendearms variiert, vergleiche Abb. 4.5b. Anschließend werden nur die größten 1200 µm Kreisflächen, die keine Randdiode aktivieren, herausgefiltert, siehe Abb. 4.5d. Diese besitzen den kleinsten relativen Fehler, da die äußeren Photodioden der abgeschatteten Kreisfläche je nach Position relativ zum Photodiodenarray aktiviert werden können. Über die Minimierung des in Pixel gemessenen Durchmessers  $D_x$  wird die Objektebene des 2D-S Linsensystems ermittelt, da alle Partikel mit einem Abstand zur Objektebene, wie in Unterabschnitt 3.3.2 erläutert,



**Abbildung 4.5:** Drehscheibenkonstruktion an den 2D-S-Armen (a) und eine schematische Darstellung der variablen Y-Position (b) des Drehscheiben-Experiments. Wiederholende Abfolge der Durchmesser D= $\{20, 60, 100, 140, 180, 220, 500, 1200\} \mu m$  (c) und die gefilterten 1200  $\mu m$  Kreisflächen (d) für die Bestimmung der effektiven Pixelauflösung.

vergrößert abgebildet werden.

In Abb. 4.6 sind die Ergebnisse des vertikalen und horizontalen Schattendetektors in einer Zeitreihe von verschiedenen Y Abständen gezeigt. Die schwarzen Marker repräsentieren  $D_x$  einzelner Partikel. Dabei sind für einen Y Abstand mehrere  $D_x$  zu beobachten, welche durch die relative Position der abgeschatteten Kreisfläche zum Photodiodenarray hervorgerufen werden. Da eine Photodiode bereits bei einem idealen Abschattungsgrad von 50 % aktiviert wird, können die äußeren Photodioden einer Abbildung je nach Position entweder zu gerade 50 % abgeschattet sein oder nur eine äußere Photodiode mit >50 % und die gegenüberliegende <50 %. Dies erklärt das Vorhandensein von zwei  $D_x$  bei Idealbedingungen. Wie in Abb. 4.6 gezeigt, können noch weitere Abweichungen in  $D_x$  auftreten, die durch Photodiodenfehler und unterschiedliche Schwellwerte entstehen können, siehe Unterabschnitt 3.3.4. Die ro-



**Abbildung 4.6:** Zeitreihen der auftretenden  $D_x$  in Pixel (schwarze Marker) für verschiedene Abstände Y und deren Median (rote Linie) und Standardabweichung (rote Fläche) in  $D_x$  für den vertikalen und horizontalen Schattenbilddetektor.

ten Linien beschreiben den Median und die rötliche Fläche die Standardabweichung von  $D_x$ . Über die Minimierung konnte für beide Schattenbilddetektoren eine effektive Pixelauflösung von 11,5 µm ermittelt werden. Die Ungenauigkeit ergibt sich über das Gaußsche Fehlerfortpflanzungsgesetz, unter Annahme einer großzügigen Ungenauigkeit von einer Pixelauflösung der Chrom-Lithographie Kreisflächen von 2 µm und einer Ungenauigkeit von  $D_x$  entsprechend der Standardabweichung in der Objektebene von ±0,4 Pixel (horizontal) und ±0,02 Pixel (vertikal), zu (11,54 ± 0,05) µm im horizontalen und (11,54 ± 0,02) µm im vertikalen Schattenbilddetektor.

#### 4.2.2 Evaluierung der Messfläche

Die Teilchenkonzentration der 2D-S wird über die vom Partikelstrom durchflossene Fläche  $A_{2D-S}$  berechnet und ist durch

$$A_{\rm 2D-S} = P_{\rm Anzahl} P_{\rm Auflösung} 2Z_{\rm max}, \tag{4.3}$$

mit der Pixelanzahl  $P_{\text{Anzahl}}$  von 128, der effektiven Pixelauflösung  $P_{\text{Auflösung}}$  von 11,54 µm und der berechneten Tiefenschärfe ( $Z_{\text{max}}$ ) aus Unterabschnitt 3.3.2, gegeben.  $Z_{\text{max}}$  ist nach Korolev et al. (1998) bestimmt durch

$$Z_{\rm max} = c \frac{D^2}{4\lambda},\tag{4.4}$$

wobei  $\lambda$  die Wellenlänge des Lasers von 785 nm, D der Partikeldurchmesser und c eine Konstante von 8,18 für einen Abschattungsgrad von 50 % ist. Für die Kalibrierung von  $A_{2D-S}$  wird das vorhergesagte  $Z_{max}$  mit einem Drehscheiben-Experiment evaluiert. Hierfür werden die aufgedruckten 60 und 100 µm Partikel verwendet, da sich die prognostizierten  $Z_{max}$  von 9,4 und 26,1 mm innerhalb des halben Armabstands der 2D-S befindet. Der Drehscheibenabstand Y, siehe Abb. 4.5, wird in 1 mm Schritten variiert, bis der aufgedruckte Partikel nicht mehr detektierbar ist. Der dadurch ermittelte Abstand zur Objektebene ist für den horizontalen Schattenbilddetektor 8,9 mm (60 µm Partikel) und 26,9 mm (100 µm Partikel) und für den vertikalen Schattenbilddetektor 8,0 mm (60 µm Partikel) und 26,1 mm (100 µm Partikel). Die gemessenen  $Z_{max}$  Abstände stimmen bei einer Messungenauigkeit von ±2 mm mit den theoretischen  $Z_{max}$ -Werten überein und bestätigen die Untersuchungen von Reuter und Bakan (1998). Aufgrund der gewählten Schrittweite von 1 mm kann  $Z_{max}$  des 60 µm Partikels nicht genauer bestimmt werden, daher wird der 100 µm Partikel für die weitere Fehlerabschätzung herangezogen.



In Abb. 4.7 ist die größenabhängige 2D-S Messfläche  $A_{2D-S}$  gezeigt. Da  $Z_{max}$  nur für Partikel mit Dkleiner als 109 µm innerhalb des Armabstands der 2D-S liegt, ergibt sich für diese ein relativer Fehler in  $Z_{max}$  (DOF) von 7,5 % für beide Schattenbilddetektoren. Für Partikel mit D größer als 109 µm ist die Länge parallel zum Laserstrahl von  $2Z_{max}$  aus Gleichung 4.4

Abbildung 4.7: Größenabhängige 2D-S Messfläche A<sub>2D-S</sub>.

gleich dem 2D-S Armabstand von 6,2 cm. Somit ergibt sich ein relativer Fehler von ungefähr 8 % für  $A_{2D-S}$  beider Schattenbilddetektoren.

#### 4.2.3 Klimakammer: Einfluss von Temperatur und Druck

Die Auswirkungen von Temperatur und Druck auf die Messung der Teilchenkonzentration und Größenbestimmung in atmosphärischen Bedingungen wurden in einer Klimakammer simuliert. Abb. 4.8 zeigt die 2D-S inklusive Drehscheibenkonstruktion im Klimakammerinnenraum, dessen Druck über eine Pumpe geregelt wird. Die Temperaturregelung erfolgt nach dem Prinzip einer Kompressionskältemaschine. Ventilatoren sorgen für eine gleichmäßige Verteilung der Temperatur im Innenraum. Während des Experiments kann die Kli-



Abbildung 4.8: 2D-S mit Drehscheibenkonstruktion im Innenraum der Klimakammer.

makammer nicht geöffnet werden. Deswegen wurde die Drehscheibe mit einem konstanten Abstand Y betrieben. Zuerst wurde der horizontale Schattenbilddetektor bei den Temperaturen 3, 0, -3, -6, -9, -12, -15, -20, -25 und -30 °C untersucht, wobei während jeder Temperatur die Drücke 250, 300, 350, 400, 450, 500, 550, 600, 650, 700, 750, 800 und 850 mbar durchlaufen wurden. Beim Wechsel zum vertikalen Schattenbilddetektor hat sich die Position der Drehscheibenkonstruktion beim Herunterkühlen verändert. Dies konnte nicht korrigiert werden und führte zu mehr Randpartikeln. In beiden Fällen wurde die Drehscheibengeschwindigkeit mit einer anliegenden Spannung von 1 V eingestellt. Die Heizungen beider Schattenbilddetektoren hielten die Armspitzen auf 5 °C und die Lasermodule auf 20 °C.

In Abb. 4.9 sind die Median-Anzahl und der Median- $D_x$  von den gemessenen Abbildungen pro Sekunde in einem 30 s Messintervall bei den entsprechenden Soll-Temperaturen und Drücken gezeigt. Jedes Messintervall charakterisiert ein Druckniveau mit einer maximalen Toleranz des Messwerts von 10 mbar gegenüber dem eingestellten Soll-Druck. Die gemessene Temperatur wich während aller Messintervalle weniger als 1 °C von der Soll-Temperatur ab. Der gezeigte Fehlerbalken entspricht der Standardabweichung innerhalb des Messintervalls. Hier sei angemerkt, dass sich die Position der Drehscheibe in beiden Durchläufen bei niedrigen Temperaturen um wenige µm verschoben hat, dies war in den Beispielabbil-



**Abbildung 4.9:** Die Median-Anzahl für den horizontalen (a) und vertikalen (b) Schattenbilddetektor gegenüber dem Druck bei verschiedenen Temperaturen. Median- $D_x$  der 500 µm Kreisfläche in Pixel bei denselben Drücken und Temperaturen für den horizontalen (c) und vertikalen (d) Schattenbilddetektor.

dungen der operativen Software zu beobachten. Diese Positionsveränderungen stammen vermutlich vom verwendeten Polymer Polylactid für die Drehscheibenhalterung, welches für den 3D-Druck eingesetzt wurde. Polylactid ist ein Thermoplast und reagiert auf niedrige Temperaturen mit einer leichten thermischen Kontraktion. Ebenso hat sich die Position bei den niedrigsten Drücken um wenige µm verändert und ist bei den höchsten Drücken zurück in die Ausgangslage gekehrt. Da sich die Position im Laufe des Experiments verändert hat, kann keine stichhaltige Fehlerabschätzung für die Teilchenkonzentration und die


**Abbildung 4.10:** Anzahl an allen gemessenen (grau), fehlerhaften (rot) und von Diodenfehlern gefilterten (grün) Abbildungen für die Messintervalle bei 650 mbar und verschiedenen Temperaturen.

Größenbestimmung erstellt werden. Dennoch gibt die Untersuchung einen Einblick in das Verhalten der 2D-S in atmosphärischen Bedingungen.

Die Ergebnisse in Abb. 4.9a,b zeigen eine gegenüber dem Druck unveränderte Anzahl an gemessenen Abbildungen für beide Schattenbilddetektoren und eine Temperaturabhängigkeit für den vertikalen Schattenbilddetektor, siehe Abb. 4.9b. Der horizontale Schattenbilddetektor in Abb. 4.9a zeigt keine signifikante Änderung für verschiedene Temperaturen. Die Größenbestimmung des horizontalen Schattenbilddetektors in Abb. 4.9c zeigt eine Standardabweichung von weniger als 1 Pixel für alle Messintervalle und größere Abweichungen zwischen den Messintervallen aufgrund der Positionsänderungen für die 500 µm Kreisfläche. Der horizontale Schattenbilddetektor hat drei fehlerhafte Photodioden, vergleiche den systematischen Diodenfehler in Abb. 3.17, welche je nach Position eine systematische Verkleinerung von  $D_x$  bewirken. Der vertikale Schattenbilddetektor in Abb. 4.9d hat keine fehlerhaften Dioden und dementsprechend eine genauere Größenbestimmung unabhängig von der Position der gemessenen Partikel.

Nähere Untersuchungen der Temperaturabhängigkeit bei 650 mbar in Abb. 4.10 zeigen, dass der vertikale Schattenbilddetektor vermehrt Diodenfehler bei kühleren Temperaturen misst. Hierzu wurden alle gemessenen *All-In* Abbildungen (rot und grün) von den Randpartikeln (grau) getrennt. Die Anzahl an Randpartikeln ist aufgrund einer unterschiedlichen Anfangsposition der Drehscheibe im horizontalen Schattenbilddetektor kleiner und konstanter als beim vertikalen Schattenbilddetektor. Der Anteil an fehlerhaften Abbildungen ist für den horizontalen Schattenbilddetektor unabhängig von der Temperatur, wohingegen der vertikale Schattenbilddetektor eine Zunahme an fehlerhaften Abbildungen mit fallenden Temperaturen zeigt. Über geeignete Filtermethoden, welche in Unterabschnitt 4.2.4 vorgestellt werden, wird der Datensatz von fehlerhaften Abbildungen bereinigt. In diesem Fall wurde ein Filter angewandt, der einzelne Pixel, konstante und oszillierende Diodenfehler sowie teilweise abgebildete Partikel am Rande des DOF herausnimmt. Die Anzahl an gefilterten Abbildungen in Abb. 4.10 ist für beide Schattenbilddetektoren gleichbleibend und zeigt, dass passende Filtermethoden die temperaturabhängige Vermehrung an fehlerhaften Abbildungen im vertikalen Schattenbilddetektor ausgleichen. Daher wird in dieser Arbeit eine detaillierte Erstellung passender Filtermethoden verwendet, um einen qualitativ hochwertigen und umfangreichen Datensatz zu gewährleisten. Außerdem wird für diese Arbeit hauptsächlich der horizontale Schattenbilddetektor verwendet und nur bei Störungen, wie einem vereisten Arm, auf den vertikalen Schattenbilddetektor ausgewichen.

#### 4.2.4 Filtermethoden

Fehlerhafte Abbildungen, wie oszillierende oder konstante Diodenfehler in Abb. 3.17, verfälschen die Messung, je größer ihr Anteil an der Gesamtanzahl an Abbildungen ist. Für die Prozessierung der 2D-S Rohdaten steht die etablierte Software SODA (System for Optical Array Probe Data Analysis (NCAR/MMM, 2013)) und OASIS (Optical Array Shadow Imaging Software (DMT, 2013)) zur Verfügung. Beide Programme lesen die Rohdaten einzelner Abbildungen und extrahieren Bildparameter zur Filterung, Klassifikation und Größenbestimmung der Partikel. SODA besitzt unveränderbare Filter, die je nach atmosphärischen Bedingungen hinzugenommen werden können. In OASIS lassen sich über festgelegte Bildparameter Kategorien zur Klassifikation definieren. In ersten Untersuchungen beider Programme hat sich gezeigt, dass die unveränderbaren Filter und die Auswahl an Bildparametern für die in dieser Arbeit untersuchten tiefen Mischphasenwolken entweder einen erheblichen Anteil der Abbildungen nicht berücksichtigen oder ein geringer Anteil an fehlerhaften Abbildungen herausgefiltert wird. Zudem weicht die Klassifikation zwischen Wassertropfen und Eis deutlich von einer stichprobenartigen manuellen Einteilung ab. Deswegen wurde für diese Arbeit eine Software entwickelt, die SODA und OASIS nachempfunden ist, aber dem Wissenschaftler eine flexiblere Filterdefinition mit einem größeren Fundus an Bildparametern ermöglicht. Um den Anteil an fehlerhaften Abbildungen zu verringern, wurden für diese Arbeit neue Bildparameter zur Bereinigung des Datensatzes definiert. Im Folgenden werden die Entwicklung der einzelnen Parameter und die darauf aufbauenden Filterdefinitionen mit Beispielen vorgestellt. Die Parameter werden zudem für die Filterdefinitionen zur Einteilung der abgebildeten Partikel in Eis und Wassertropfen herangezogen.

Die Abbildungen sind in den Rohdaten als komprimierte Byte-Arrays gespeichert. Diese werden dekomprimiert und in eine binäre Abbildung umgewandelt. Aus der Abbildung werden die in Tabelle 4.3 aufgelisteten Parameter extrahiert. Dazu gehören die direkt ermittelbaren Forminformationen, wie Höhe (height), Breite (width), Fläche (surface). Aber auch Parameter, die speziell für die Filterung gebraucht werden. Beispielsweise wird die

Bezeichnung	Beschreibung
ylw	Position niedrigster aktivierte Photodiode in Flugrichtung
yup	Position höchster aktivierte Photodiode in Flugrichtung
xlw	Position niedrigster aktivierte Photodiode in Photodiodenreihenrichtung
xup	Position höchster aktivierte Photodiode in Photodiodenreihenrichtung
surface	Anzahl aktivierter Photodioden (Pixel)
width	Breite des Partikels über yup - ylw + 1
height	Höhe des Partikels über xup - xlw + 1
aspect_ratio	Seitenverhältnis width/height
area_ratio	Flächenverhältnis zu Rechteck surface/(widht × height)
border_particle	True für aktivierte Randdioden
n_streak	Anzahl an durchgehend aktivierter Photodioden
circ_x	Komponente des Kreismittelpunktes in Photodiodenreihenrichtung
circ_y	Komponente des Kreismittelpunktes in Flugrichtung
circ_radius	Radius des kleinstmöglichen einschließenden Kreises
circ_radius_min	Radius des Poissionflecks, falls detektiert
circ_radius_ratio	Verhältnis circ_radius_min/circ_radius
circ_surface	Bereich zwischen circ_radius_min
	und circ_radius
circ_suface_ratio	Verhältnis aktivierter zu allen Pixeln in circ_surface
circ_25	Verhältnis aktivierter zu allen Pixeln
	in Fläche 0.25 × circ_radius um Kreismittelpunkt
circ_50	Verhältnis aktivierter zu allen Pixeln
	in Fläche 0.5 × circ_radius um Kreismittelpunkt
circ_75	Verhältnis aktivierter zu allen Pixeln
	in Fläche 0.75 × circ_radius um Kreismittelpunkt
circ_75_up	Verhältnis aktivierter zu allen Pixeln
	in Fläche 0.75 × circ_radius bis 1 × circ_radius um Kreismittelpunkt
circ_90_up	Verhältnis aktivierter zu allen Pixeln
	in Fläche 0.9 × circ_radius bis 1 × circ_radius um Kreismittelpunkt
circ_full_ratio	Verhältnis aktivierter zu allen Pixeln
	in Fläche 1 × circ_radius um Kreismittelpunkt
noise_y	Anzahl an Übergängen von aktivierten zu nicht aktivierten Linien
	in Flugrichtung
noise_x	Anzahl an Übergängen von aktivierten zu nicht aktivierten Linien
	in Photodiodenrichtung

**Tabelle 4.3:** Auflistung der aus den Abbildungen extrahierten Parameter.



Abbildung 4.11: Darstellung einzelner Parameter aus Tabelle 4.3.

Anzahl an Übergängen von aktivierten zu nicht aktivierten Linien in Flug- und Photodiodenreihenrichtung (noise\_y und noise\_x) für die Identifikation von speziellen fehlerhaften Abbildungen verwendet. Da die Partikel mit diesen Informationen noch nicht ausreichend selektiert werden können, wurde die MEC-Methode (MEC von *minimal enclosing circle*) verwendet. Dabei wird über die Positionen der aktivierten Pixel ein Kreismittelpunkt ermittelt und der Radius über ein iteratives Verfahren, sodass sich alle aktivierten Pixel innerhalb des Kreises befinden. Zudem wird selbige Methode invers verwendet, falls der Pixel des Kreismittelpunktes nicht aktiviert ist, um die Größe des Poissionflecks zu bestimmen. In Abb. 4.11 ist ein vergrößerter Tropfen mit ausgewählten Parametern abgebildet. Mit Hilfe der MEC-Methode werden weitere nützliche Parameter definiert, die das Verhältnis der aktivierten zu allen Pixeln in mehreren Flächen widerspiegeln. Da sich das Verhältnis immer auf einen Bruchteil einer Kreisfläche bezieht, können sphärische von asphärischen Partikeln besser als mit den direkten Forminformationen, wie Breite und Höhe, getrennt werden.

Mit den extrahierten Parametern wurden Filterdefinitionen entwickelt, welche Mengen an Abbildungen darstellen. Die Filterdefinitionen sind in Tabelle 4.4 aufgelistet und bestehen aus Filtern, die immer angewendet werden, und aus Filtern, die an den jeweiligen Flugtag angepasst werden. In dieser Arbeit wurde für jeden Messflug eine Vorselektierung mit der Kombination aus den Filtern oscillate und standard\_filter angewandt, welche die meisten fehlerhaften Abbildungen erkannt hat. Beispiele für die aussortierten Abbildungen sind in Abb. 4.12 gezeigt. Die Filter circ\_streak, big\_noise und distortion wurden immer angewandt und gaben Aufschluss über die atmosphärischen Bedingungen. Der distortion-Filter hat nach angewandter PAS-Korrektur, siehe Abb. 3.18, gestreckte Partikel aussortiert. Die

Filter	Definition				
all_in	(border_particle = False)				
one_pixel	(height $\leq 1$ ) $\land$ (width $\leq 1$ )				
shape	(width < 256) $\land$ (aspect_ratio < 6) $\land$ (area_ratio > 0.15)				
streak_line	$(area_ratio = 1) \land (aspect_ratio > 3)$				
standard_filter	shape $\land$ all_in $\land \neg$ streak_line $\land \neg$ one_pixel				
oscillate	Testet ob die vorherigen und nachfolgenden drei Abbildungen				
	die selben xup und xlw Werte hat und (area_ratio = 1)				
circ_streak	(cic_radius _ratio = 1) $\lor$ (circ_surface_ratio < 0.05)				
big_noise	$(n_streak > 1) \land (width > 30) \land (circ_surface_ratio < 0.2)$				
distortion	$(circ\_surface > 30) \land (aspect\_ratio > 2.2)$				
noise_lines	$((noise_y > 7) \lor (noise_x > 1)) \land (circ_{25} < 0.6)$				

**Tabelle 4.4:** Filterdefinitionen zur Detektion fehlerhafter Abbildungen mit den logischen Operatoren UND ( $\land$ ), ODER ( $\lor$ ) und NICHT ( $\neg$ ).

gestreckten Partikel besitzen eine nicht zu vernachlässigende Geschwindigkeitskomponente in Flugrichtung, da ein Fehler in der PAS-Messung durch Vergleich mit der Fluggeschwindigkeit (TAS von true air speed) relativ zur Luftmasse ausgeschlossen werden kann. Eine weitere Analyse der Temperatur- und Höhendaten hat gezeigt, dass die gestreckten Partikel überwiegend nach einem Sinkflug von Temperaturen unter 0 °C zu Temperaturen über 0 °C gemessen wurden und somit wahrscheinlich von abschmelzendem Eis an den Instrumentenarmen stammen. Der noise lines-Filter wurde in Flügen mit vermehrtem Niederschlag zu höheren Schwellwerten angepasst, da teilweise große Tropfen und Eispartikel davon erfasst wurden. Nichtsdestotrotz konnten damit Abbildungen, wie in Abb. 4.12 gezeigt, identifiziert werden, die vorwiegend in Flugsegmenten mit übersättigter Luft vom vertikalen Schattenbilddetektor aufgenommen wurden. Dieses Verhalten lässt auf einen möglicherweise nicht hermetisch abgedichteten vertikalen Schattenbilddetektor schließen. Dies führte in einzelnen Flügen zu einer Überbelastung des 2D-S Speichers, der in diesem Fall durch einen Sicherheitsmechanismus die 2D-S abschaltet (SPEC inc, 2011). Da für diesen Fall vom Hersteller kein automatischer Neustart implementiert wurde, musste dies manuell geschehen. Der Wissenschaftler, der die 2D-S während des Fluges betreut und den Absturz der 2D-S-Software beobachtet hat, hat daraufhin den vertikalen Schattenbilddetektor abgeschaltet und konnte damit das Auslösen des Sicherheitsmechanismus verhindern. Somit können die verwendeten Filter zusätzlich zur Selektion direkt einen Bezug zum Instrumentenverhalten in atmosphärischen Bedingungen herstellen. Dies ist für die Fehleranalyse von Vorteil.

Die extrahierten Parameter können auf den von fehlerhaften Abbildungen bereinigten Datensatz angewendet werden, um die Form einzelner Partikel zu klassifizieren und damit



**Abbildung 4.12:** Beispiele für fehlerhafte Abbildungen, die mit den in Tabelle 4.4 gezeigten Filterdefinitionen aussortiert werden.

wertvolle Informationen über den Aggregatzustand zu erhalten. In Tabelle 4.5 sind die Filterdefinitionen zur Klassifikation der Partikel in Eiskristalle und Wassertropfen aufgelistet. Die Eiskristallformen wurden in Graupel, Säulen, großes Eis und kleines Eis unterteilt. Beispielabbildungen für die Filter sind in Abb. 4.13 gezeigt. Die Filterdefinitionen wurden, je nach Wolkenart, teilweise angewandt. Die Definition von flüssigen Partikeln wurde zwischen Flügen mit detektierten Eiskristallen und damit Mischphasenwolken und reinen Flüssigwolken angepasst, da kein Filter ideal funktioniert und immer mit einer fehlerhaften Zuordnung einhergeht. Der Anteil an falsch zugeordneten Abbildungen hängt von der jeweiligen Wolke und den darin enthaltenen Eiskristallformen ab. Daher wurden bei Abwesen-

Filter	Definition				
Graupel	$(circ\_surface\_ratio > 0.3) \land (circ\_surface\_ratio < 0.8)$				
	$\land$ (circ_25 > 0.8) $\land$ (circ_50 > 0.8)				
	$\land$ (circ_75 > 0.7) $\land$ (circ_75_up < 0.4)				
	∧ (circ_90_up < 0.2)				
	$\land$ (surface > 350) $\land$ (circ_radius_ratio < 0.1)				
Säulen	$(circ\_surface\_ratio < 0.6) \land (surface > 50)$				
	$(\operatorname{circ}_{25} > 0.3) \land ((\operatorname{aspect}_{ratio} > 1.5) \lor (\operatorname{aspect}_{ratio} < 0.8))$				
Eis (groß)	$(circ\_full\_ratio < 0.8) \land (circ\_radius > 40)$				
	$\land$ (aspect_ratio > 0.9)				
Eis (klein)	$(circ\_surface\_ratio > 0.3) \land (surface > 150)$				
	$\land$ (surface < 350) $\land$ (circ_25 > 0.5)				
	$\land$ (circ_50 > 0.8) $\land$ (circ_75_up < 0.4)				
	$\land (circ_{90}\_up < 0.15) \land ((aspect\_ratio > 1.1) \lor (aspect\_ratio < 0.95))$				
Tropfen	(surface < 20) $\lor$ ((circ_surface_ratio > 0.22) $\land$ (width < 120))				

**Tabelle 4.5:** Filterdefinitionen zur Klassifikation der Partikel mit den logischen Operatoren UND ( $\land$ ) und ODER ( $\lor$ ).



Abbildung 4.13: Klassifikationsbeispiele aus den in Tabelle 4.5 gezeigten Filterdefinitionen.

heit von Eiskristallen die Wassertropfen mit dem Tropfen-Filter und dem negierten Säulen-Filter definiert. Im Fall von Mischphasenwolken wurde Eis mit der Vereinigungsmenge aus den Filtern Graupel, Säulen, großes Eis und kleines Eis definiert. Die Wassertropfen sind in Mischphasenwolken über den Tropfen-Filter und die negierte Eis-Vereinigungsmenge definiert. Diese Art der Definition gewährleistet, dass im Fall von Flüssigwolken weniger falsch zugeordnete Abbildungen vorhanden sind als im Fall von Mischphasenwolken. Die Filterdefinitionen wurden mit den Messdaten der Messflüge aus 2020 iterativ entwickelt und konservativ gewählt, das heißt, die Klassifikation von Eis ist stärker gewichtet und es befinden sich weniger als 1 % fehlerhaft zugeordnete Wassertropfen in der Menge von Eiskristallen. Umgekehrt können manche Eiskristallformen mit den verwendeten Filterdefinitionen nicht von Wassertropfen unterschieden werden. Dies führt zu fehlerhaft zugeordneten Eiskristallen von bis zu 40 % in Mischphasenwolken. Weiterhin wurden die Filterdefinitionen für die Kampagnenphasen nicht verändert, um eine Vergleichbarkeit aller Flüge untereinander zu erhalten und etwaige Unterschiede aufgrund der Filterdefinition zu vermeiden.

### 4.3 2D-S-FCDP Kombination

Die Messinstrumente FCDP und 2D-S werden für eine ganzheitliche Betrachtung der Wolkenpartikel im Größenbereich von 3 bis 1478 µm kombiniert. Im Folgenden wird die angewandte Methode zur Kombination im theoretischen Überlappungsbereich von 5,75 bis 50 µm vorgestellt. Die Messinstrumente besitzen unterschiedliche Größenauflösungen, Messvolumen und daraus abgeleitete Limitierungen der Teilchenkonzentration, sowie andere Messungenauigkeiten aufgrund der verwendeten Messmethode. Die Effekte der kombinierten PSD auf die Berechnung der mikrophysikalischen Parameter werden abschließend in einer Fehlerbetrachtung diskutiert.

#### 4.3.1 Einheitliche Partikelgrößenverteilung

Es gibt mehrere Möglichkeiten zur Berechnung der Teilchenkonzentrationen im Überlappungsbereich, die den Informationsanteil der jeweiligen Messinstrumente festlegen. So können Informationen beider Messinstrumente im gesamten Überlappungsbereich oder einem reduzierten Größenbereich herangezogen werden. Zudem müssen Annahmen über die Verteilung der Partikelgröße innerhalb der Größenauflösung der Messinstrumente getroffen werden. In der im Folgenden beschriebenen Methode wird der letzte berücksichtigte Größenbereich der FCDP zwischen 27 und 30 µm als gleichmäßig verteilt angenommen. Die Verteilung im ersten berücksichtigten 2D-S-Größenbereich (2D-S<sub>E</sub>) von 28,75 bis 40,25 µm wird über eine lineare Interpolation mit der Teilchenkonzentration des darauffolgenden 2D-S-Größenbereichs abgeschätzt.

In Abb. 4.14 ist die Berechnung des angepassten Größenbereichs schematisch dargestellt. Der letzte berücksichtigte Größenbereich der FCDP wird in  $FCDP_L$  (rot) und einen Über-



**Abbildung 4.14:** Schematische Darstellung der neu berechneten Größenbereiche im Überlappungsbereich.

lappungsanteil mit 2D-S<sub>E</sub> (FCDP<sub>L,Ü</sub>, orange gemustert) zwischen 28,75 und 30 µm aufgespalten. Die abgeschätzte Verteilung in 2D-S<sub>E</sub> wird in einen Anteil 2D-S<sub>E,FCDP</sub> (zyan), welcher anschließend dem neu berechneten FCDP-Größenbereich von 27 bis 30 µm zugeschrieben wird, und einen Anteil 2D-S<sub>E,2D-S</sub> (blau), welcher in einen neuen reduzierten 2D-S-Größenbereich von 30 bis 40,25 µm eingeht, aufgeteilt. Anschließend wird der Mittelwert aus FCDPL (1) und 2D-SE FCDP (grün) aus den Anteilen FCDPL (1) und 2D-SE FCDP berechnet. Die letztendliche Teilchenkonzentration des FCDP-Größenbereichs von 27 bis 30 µm besteht aus der anteiligen Teilchenkonzentrationen von  $FCDP_L$  und dem Mittelwert aus  $FCDP_{L,U}$  und  $2D-S_{E,FCDP}$ . Der Anteil ist über das Verhältnis der Flächen gegeben und in diesem Fall 58 % (FCDP<sub>L</sub>) zu 42 % (Mittelwert aus FCDP<sub>L,Ü</sub> und 2D-S<sub>E,FCDP</sub>). Der neue 2D-S-Größenbereich von 30 bis 40,25 µm ist die Teilchenkonzentration 2D-S<sub>E.2D-S</sub>. In der Berechnung ist darauf zu achten, dass sich die Teilchenkonzentrationen auf das gleiche Volumen beziehen und erst im Anschluss über die neuen Größenbereiche logarithmisch normiert werden. Zudem kann der Fall eintreten, dass ein Messinstrument keine Daten im betrachteten Messintervall gemessen hat. Falls nur Daten der FCDP vorhanden sind, ist die Teilchenkonzentration im Größenbereich von 27 bis 30  $\mu$ m durch FCDP<sub>L</sub> mit FCDP<sub>L</sub><sup>U</sup> und im umgekehrten Fall durch 2D-S<sub>E,FCDP</sub> bestimmt.

#### 4.3.2 Fehlerbetrachtung

Die Schwierigkeiten bei der Vereinheitlichung von Streulichtspektrometern und Schattenbilddetektoren stammen von den unterschiedlichen Messvolumina beziehungsweise deren Messflächen  $SA_{eff}$  und  $A_{2D-S}$ . Die FCDP hat eine konstante maximale Messfläche von 0,294 mm<sup>2</sup>, wohingegen die 2D-S je nach Partikelgröße eine Messfläche von 1,025 bis 91,581 mm<sup>2</sup> aufweist. Die größere Messfläche der 2D-S ist notwendig, um insbesondere Nieselregen- und Niederschlagspartikel, welche eine um mehrere Größenordnungen niedrigere Teilchenkonzentration in atmosphärischen Bedingungen besitzen, in einer statistischen Relevanz messen zu können. Dies führt im Überlappungsbereich zu abweichenden Statistiken, die beispielsweise für einen 30 µm Partikel von einer bis zu 24 Mal größeren 2D-S-Messfläche stammen. Dadurch entstehen teils stark abweichende Teilchenkonzentrationen im Überlappungsbereich aufgrund einer unzureichenden Statistik der FCDP. Die Auswirkungen der Statistik und der zuvor bestimmten Messunsicherheiten werden im Folgenden ausführlich für beide Messinstrumente separat und in Kombination untersucht.

Unter Annahme von willkürlich verteilten Wolkenpartikeln im Raum, einer sogenannten Poissonverteilung, kann der statistische relative Fehler  $u_{n_p}$  über die Anzahl der Partikel  $n_p$  in einem Messintervall nach

$$u_{n_{\rm p}} = \frac{\Delta n_{\rm p}}{n_{\rm p}} = \frac{1}{\sqrt{n_{\rm p}}} \tag{4.5}$$

berechnet werden. Umgekehrt gibt  $1 - u_{n_p}$  die Wahrscheinlichkeit an, wie gut die Verteilung durch die Messung repräsentiert ist, vergleiche Baumgardner et al. (2017). Im Weiteren werden die zusätzlichen Messunsicherheiten und ihre Auswirkungen auf die in Abschnitt 3.4 vorgestellten mikrophysikalischen Parameter schrittweise erläutert, wobei  $SA_{eff}$  und  $A_{2D-S}$  mit A beziehungsweise  $A_i$  generalisiert werden. Somit ergibt sich  $N_i$  und die Messunsicherheiten heit  $\Delta N_i$  aus Gleichung 3.3 und dem Gaußschen Fehlerfortpflanzungsgesetz zu

$$N_i = \frac{a_i(\Delta t)}{V(\Delta t)} = \frac{a_i(\Delta t)}{A_i \operatorname{PAS} \Delta t},\tag{4.6}$$

$$\Delta N_i = \sqrt{\left(\frac{\delta N_i}{\delta a_i(\Delta t)} \cdot \Delta a_i(\Delta t)\right)^2 + \left(\frac{\delta N_i}{\delta A_i} \cdot \Delta A_i\right)^2 + \left(\frac{\delta N_i}{\delta PAS} \cdot \Delta PAS\right)^2}.$$
(4.7)

 $\Delta a_i(\Delta t)$  setzt sich aus dem variablen statistischen Fehler  $u_{a_i}$  (für  $n_p = a_i$  aus Gleichung 4.5) und einem konstanten Fehler zusammen, welcher sich aus der Messungenauigkeit aufgrund von klassischer Koinzidenz und der verbleibenden Messungenauigkeit nach angewandter Shattering-Korrektur, die mit 3 % abgeschätzt wird, zusammensetzt. Für das Vorgängermodell CDP ist die Auftrittswahrscheinlichkeit von klassischer Koinzidenz in vergleichbaren Flugbedingungen 5 % (Lance et al., 2010). Die verbleibende Messungenauigkeit nach angewandter Koinzidenz-Korrektur wird für diese Arbeit ebenfalls mit 5 % für beide Messinstrumente abgeschätzt. Die 2D-S-Abbildungen von Koinzidenz sind überwiegend mit einem einzelnen abgeschatteten Pixel aufgenommen, welcher einer Partikelgröße zwischen 5,8 und 17,3 µm entsprechen. Obwohl eine stichprobenartige Untersuchung der 2D-S eine Koinzidenz in unter 0,01 % der Abbildungen gezeigt hat, kann der Einfluss auf die Messunsicherheit bei einer 1 Hz Betrachtung davon abweichen. Daher wird für eine Maximalabschätzung der 2D-S dieselbe Auftrittswahrscheinlichkeit von Koinzidenz angenommen, wie auch bei der FCDP. Da die 2D-S-Partikelgrößen <30 µm nur in einem Bruchteil des Messvolumens detek-

tierbar sind, kann die Messungenauigkeit von 5 % als obere Grenze verstanden werden. Der Fehler  $\Delta PAS$  des verwendeten Pitotrohrs beträgt 5 %.  $\Delta A_i$  geht aus der Charakterisierung der Messinstrumente hervor und ist für die FCDP konstant und für die 2D-S größenabhängig. Dadurch kann Gleichung 3.7 mit folgender Relation umformuliert werden zu

$$n_{\rm p} = \sum_{i} a_i(\Delta t) \tag{4.8}$$

$$N = \sum_{i} N_{i} = \frac{1}{PAS \Delta t} \sum_{i} \frac{a_{i}(\Delta t)}{A_{i}} \simeq \frac{n_{p}}{PAS \Delta t A}$$
2D-S & Kombination
(4.9)

Die Messunsicherheit  $\Delta N$  wird wie in Gleichung 4.7 berechnet. Analog dazu ergeben sich aus Gleichung 3.9 und Gleichung 3.8 die Messungenauigkeiten  $\Delta LWC$  und  $\Delta ED$  zu

$$\Delta LWC = \sum_{i} \sqrt{\left(\frac{\delta LWC_{i}}{\delta N_{i}} \cdot \Delta N_{i}\right)^{2} + \left(\frac{\delta LWC_{i}}{\delta D_{i}} \cdot \Delta D_{i}\right)^{2}},$$
(4.10)

$$\frac{\Delta ED}{ED} = \left\{ \left( \frac{\sum_{i} \sqrt{(D_{i}^{3} \cdot \Delta N_{i})^{2} + (3D_{i}^{2}N_{i} \cdot \Delta D_{i})^{2}}}{\sum_{i} D_{i}^{3}N_{i}} \right)^{2} + \left( \frac{\sum_{i} \sqrt{(D_{i}^{2} \cdot \Delta N_{i})^{2} + (2D_{i}N_{i} \cdot \Delta D_{i})^{2}}}{\sum_{i} D_{i}^{2}N_{i}} \right)^{2} \right\}^{\frac{1}{2}}.$$
(4.11)

 $\Delta LWC$  und  $\Delta ED$  sind abhängig von der Partikelgrößenverteilung und folglich von der Messungenauigkeit der Größenbestimmung  $\Delta D_i$ . Die FCDP und vergleichbare Streulichtspektrometer unterliegen der Mie-Mehrdeutigkeit, die für Partikeldurchmesser <10 µm durchschnittlich 30 % beträgt und für Partikeldurchmesser >10 µm kleiner als 10 % ist (Baumgardner et al., 2017; Jang et al., 2022). In dieser Arbeit wird  $\Delta D_i$  der FCDP mit der Mie-Mehrdeutigkeit abgeschätzt.  $\Delta D_i$  der 2D-S nach angewandter Korolev-Korrektur wird mit dem Verhältnis der halben effektiven Pixelauflösung zum mittleren Partikeldurchmesser des jeweiligen 2D-S-Größenbereichs abgeschätzt. Diese Abschätzung ergibt vergleichbare Werte wie die von Korolev (2007b) berechneten relativen Fehler von Schattenbilddetektoren. Für alle 2D-S-Größenbereiche, die Partikeldurchmesser >500 µm beinhalten, wird eine zusätzliche Messungenauigkeit in  $\Delta D_i$  von 10 % aufgrund der in Unterabschnitt 3.3.2 beschriebenen Vergrößerung mit zunehmendem Abstand zur Objektebene angenommen (Vaillant de Guélis et al., 2019).

Die Messunsicherheit  $\Delta IWC$ ergibt sich mit folgender Umformulierung von IWCaus Gleichung 3.10 zu

**Tabelle 4.6:** Relative Messunsicherheiten von N, LWC, ED und IWC für die Messinstrumente FCDP, 2D-S und deren Kombination für Wolken- und Niederschlagssekunden aus den ausgewählten Messflügen 65 (16.05.2021), 106 (18.06.2022) und 149 (03.05.2022). Dabei ist die in den Messflügen minimale gemessene Messunsicherheit / ihr Median und die Standardabweichung in Klammern angegeben.

		N Min/Med(StA)	<i>LWC</i> Min/Med(StA)	ED Min/Med(StA)	<i>IWC</i> Min/Med(StA)
Wolken	FCDP	$12/13(\pm 4)\%$	33/38(±26)%	39/44(±25)%	_
	2D-S	$13/21(\pm 26)\%$	$43/52(\pm 37)\%$	49/61(±35)%	82/465(±1057)%
	Komb.	$13/14(\pm 13)\%$	33/38(±14)%	39/44(±12)%	—
Niederschlag	FCDP	$17/51(\pm 24)\%$	$41/96(\pm 24)\%$	46/103(±27)%	—
	2D-S	13/83(±24)%	46/85(±13)%	50/86(±12)%	50/370(±840)%
	Komb.	21/55(±19)%	$44/84(\pm 11)\%$	45/86(±12)%	—

$$IWC = \frac{\sum_{p} M_{\text{Eis},p} w_{p}}{V(\Delta t)} = \frac{a_{\text{Eis}} \overline{M_{\text{Eis}}} \overline{w}}{A PAS}$$

$$\Delta IWC = \left\{ \left( \frac{\delta IWC}{\delta A} \cdot \Delta A \right)^{2} + \left( \frac{\delta IWC}{\delta PAS} \cdot \Delta PAS \right)^{2} \right\}$$
(4.12)

$$+\left(\frac{\delta IWC}{\delta a_{\rm Eis}}\cdot\Delta a_{\rm Eis}\right)^{2}+\left(\frac{\delta IWC}{\delta M_{\rm Eis}}\cdot\Delta M_{\rm Eis}\right)^{2}\right\}^{\frac{1}{2}},$$
(4.13)

mit der Eispartikelteilchenanzahl  $a_{\text{Eis}}$ , der mittleren Eismasse der Partikel  $\overline{M_{\text{Eis}}}$  und dem mittleren Gewichtungsfaktor  $\overline{w}$  pro Sekunde. Die Messunsicherheit  $\Delta M_{\text{Eis}}$  der Parametrisierung ist 0,0262 mg (Baker und Lawson, 2006). Die Messunsicherheit  $\Delta \overline{M_{\text{Eis}}}$  pro Sekunde setzt sich aus der Unsicherheit, die dem berechneten Mittelwert anhaftet, und  $\Delta M_{\text{Eis}}$  der Parametrisierung, zusammen. Hier soll angemerkt werden, dass  $\overline{w}$  auch einer Unsicherheit aufgrund der gewählten *All-In-M*ethode und prinzipiell für in dieser Arbeit nicht betrachtete Eiskristalle <109 µm durch die größenabhängige Messfläche  $A_{2D-S}$  unterliegt. Die Messungenauigkeit von  $\overline{w}$  wird hier vernachlässigt, da dem Autor hierzu keine Studien für Eiskristalle bekannt sind.

Die genannten Messunsicherheiten sind zur Veranschaulichung für ausgewählte Messflüge in Tabelle 4.6 aufgelistet. Die Einteilung der Messungen in Wolken und Niederschlag erfolgt über die Parameter *N*, *ED* und *LWC* der 2D-S-FCDP-Kombination, siehe Abschnitt 5.2 für eine detaillierte Ableitung der Einteilungskriterien. Sekunden mit N > 10 cm<sup>-3</sup> und *LWC* >0,02 g m<sup>-3</sup> werden den Wolken zugeordnet. Die zusätzlichen Bedingungen *N*(FCDP)>0 und *N*(2D-S)>0 gewährleisten, dass sowohl die einzelnen Messinstrumente als auch ihre Kombination in denselben Sekunden betrachtet werden und gleichzeitig funktioniert haben. Zur Veranschaulichung der Messunsicherheiten von *N*, *LWC* und *ED* in Wolken wurde der Messflug 149 am 03.05.2022 gewählt, da dieser keinen Niederschlag und ein weites Spektrum an verschiedenen *ED* der individuellen Wolken beinhaltet. Die dargestellten Messunsicherheiten in Wolken sind aus 693 s abgeleitet und zeigen, dass die FCDP für *N* die geringste Median-Messunsicherheit von 13 % besitzt. Die in *LWC* und *ED* erhöhte Messunsicherheit beider Messinstrumente stammt von  $\Delta D_i$ , welche in beiden Fällen mit 3. Ordnung eingeht. Die Messunsicherheiten der Kombination in Wolken orientieren sich an der FCDP, da der Hauptanteil an Wolkenpartikeln in den Messbereich der FCDP fällt und die in dieser Arbeit untersuchten tiefen ozeanischen Wolken ein Maximum der Partikelgrößenverteilung zwischen 8 und 15 µm aufweisen. Die reduzierte Standardabweichung der Messunsicherheiten in *LWC* und *ED* resultiert aus der gewählten Methode zur Vereinheitlichung der Partikelgrößenverteilung, da die effektive Messfläche der angepassten Größenbereiche im Überlappungsbereich mit der größeren 2D-S-Messfläche *A*<sub>2D-S</sub> angenommen wird. Die Verwendung der effektiven Messfläche der FCDP im Überlappungsbereich führt aufgrund der Untergrenze des 2D-S-Auflösungsvermögens von niedrigeren *N* zu unrealistisch hohen Messunsicherheiten.

Die Datensatzpunkte, an denen Niederschlag vorhanden war, werden mit  $N < 10 \text{ cm}^{-3}$ ,  $ED > 60 \,\mu\text{m}$ , N(FCDP) > 0, und N(2D-S) > 0 klassifiziert. Zur Veranschaulichung der Messunsicherheiten von N, LWC und ED in Niederschlag wurden 264 s aus dem Messflug 65 am 15.05.2021 in Tabelle 4.6 verwendet, da dieser eine hohe Dichte an flüssigem Niederschlag aufweist. Die Median-Messunsicherheiten sind für N, LWC und ED erhöht gegenüber denen in Wolken. Dies stammt von der niedrigen Statistik in Niederschlag, welche in N sichtbar ist und durch propagiert. Die FCDP misst in Niederschlag maritimes Hintergrundaerosol und teilweise von der Korrektur nicht erfasste Shattering Ereignisse, die aufgrund der Untergrenze des FCDP-Auflösungsvermögens in N einen großen Beitrag der Kombination in N darstellen und durch  $\Delta D_i < 10 \,\mu\text{m}$  von 30 % die Messunsicherheit der FCDP in LWC und ED maßgeblich beeinflusst. Die Messunsicherheit der Kombination in LWC und ED maßgeblich der Standardabweichungen der 2D-S und der Kombination zeigt, dass die angepassten Größenbereiche des Überlappungsbereichs für Niederschlag eine untergeordnete Rolle spielen.

Die Messunsicherheit in *IWC* wird mit den bereits genannten Klassifikationskriterien für Wolken und Niederschlag und aus 266 s (Wolken) beziehungsweise 587 s (Niederschlag) des Messflugs 106 am 18.06.2022 veranschaulicht, da dieser ein hohes Aufkommen von Eisniederschlag mit unterschiedlichen Eiskristallformen aufweist. Aus Tabelle 4.6 ist ersichtlich, dass die Messunsicherheit des *IWC* für Niederschlag geringer ist als in Wolken. Dies folgt aus der unterschiedlichen Partikelgrößenverteilung, welche in Wolken einen größeren Anteil an kleinen Eiskristallen als in Niederschlag aufweist. Der Hauptanteil der Messunsicherheit des *IWC* stammt von  $\Delta M_{\rm Eis}$  der Parametrisierung von Baker und Lawson (2006). Die abgeschattete Fläche von 90 % der von der 2D-S gemessenen Partikel ist kleiner als 0,1 mm<sup>2</sup> was aufgrund von  $\Delta M_{\rm Eis}$  einem relativen Fehler von mehreren hundert Prozent in  $M_{\rm Eis}$  bewirkt. Hier soll angemerkt werden, dass die Parametrisierung über die Fläche eine geringere  $\Delta M_{\rm Eis}$  im Vergleich zu der Parametrisierung über  $D_{\rm max}$  besitzt (Brown und Francis, 1995; Baker und Lawson, 2006). Weiterhin berücksichtigt die *IWC*-Fehlerbetrachtung keine fehlerhafte Zuordnung der Eispartikel, vergleiche Unterabschnitt 4.2.4. Die Fehlerbetrachtung zeigt die Messunsicherheiten der verwendeten Wolkeninstrumentierung FCDP, 2D-S und deren Kombination. Die gewählten Messflüge decken typische Messbedingungen während ACTIVATE ab. Daher sind die gezeigten Messunsicherheiten repräsentativ für die in dieser Arbeit gewonnenen Wolkendaten.

## Kapitel 5

# Mikrophysikalische Eigenschaften tiefer ozeanischer Wolken im Nordwestatlantik

Für die Untersuchung der mikrophysikalischen Eigenschaften tiefer ozeanischer Wolken ist zunächst die Erstellung eines Datensatzes mit Hilfe der in Kapitel 3 und Kapitel 4 eingeführten und charakterisierten Instrumentierung erforderlich. Dazu wird die im Nordwestatlantik durchgeführte Messkampagne ACTIVATE vorgestellt, ihre Ziele und Durchführung erläutert, die Messregion definiert und ein Überblick über die atmosphärischen Bedingungen im NWA gegeben. Weiterhin werden die eingesetzten Messplattformen präsentiert und die angewandten Flugstrategien für einen typischen statistischen Flug und einen Prozessstudienflug geschildert. Es folgt eine detaillierte Beschreibung der Wolken- und Niederschlagsklassifikation mit Hilfe geeigneter Phasenräume. Damit ist eine separate Analyse von Flüssig- und Mischphasenwolken respektive Niederschlag möglich. Danach wird ein Überblick über die mikrophysikalischen Eigenschaften dieser Wolken gegeben. Nachfolgend wird die Saisonalität von Flüssigwolken anhand von Vertikalprofilen diskutiert. Daran schließt sich ein Vergleich mit den mikrophysikalischen Eigenschaften von Mischphasenwolken an. Abschließend werden Häufigkeit und räumliche Verteilung von Flüssig- und Mischphasenwolken sowie Niederschlag diskutiert.

### 5.1 Die ACTIVATE Messkampagne

Die ACTIVATE (*Aerosol Cloud meTeorology Interactions oVer the western ATlantic Experiment*) Mission zielt darauf ab, das Verständnis für die Beziehung zwischen Aerosolen, Wolken und Klima zu verbessern. Die Mission beinhaltet die Realisierung von 174 Flügen über einen Zeitraum von drei Jahren (2020-2022) unter Verwendung von zwei eng koordinierten Flugzeugen im NWA, mit gleichzeitigen, kollokierten in-situ- und Fernerkundungsmessungen (Sorooshian et al., 2019). Die drei Hauptziele von ACTIVATE sind: (1) Die Quantifizierung der Beziehungen zwischen der Aerosol-, Kondensationskern- und Wolkentropfenkonzentration und die Verringerung der Unsicherheit in Modellparametrisierungen der Wolkentropfenaktivierung. (2) Die Verbesserung des Verständnisses von Wolken auf Prozessebene und der Modelldarstellung von Parametern, die die mikro- und makrophysikalischen Eigenschaften von Wolken bestimmen und wie diese mit den Auswirkungen von Wolken auf Aerosole zusammenhängen. (3) Die Bewertung fortgeschrittener Fernerkundungskapazitäten zur Ermittlung von Aerosol- und Wolkeneigenschaften im Zusammenhang mit Aerosol-Wolken-Wechselwirkungen (Sorooshian et al., 2019). Diese Arbeit untersucht die Beziehung zwischen Aerosol-, Kondensationskern- und Wolkentropfenkonzentration bei der Wolkentropfenaktivierung, legt jedoch einen besonderen Fokus auf den Einfluss der Dynamik. Gleichwohl befasst sich diese Arbeit nicht mit der Prozessierung von Aerosol durch Wolken oder der Bewertung von Fernerkundungskapazitäten, sondern mit den Auswirkungen der thermodynamischen Phase der Wolkenpartikel auf die mikro- und makrophysikalischen Eigenschaften von Wolken.

Die NWA Region zwischen 25 bis 50°N und 60 bis 85°N wurde für diese Studie aufgrund ihrer ausgeprägten und nicht ausreichend erfassten Bandbreite der Stabilität der unteren Troposphäre (von lower tropospheric stability), einer breiten Palette von Aerosolvariabilitäten aus natürlichen und anthropogenen Quellen und der Anwesenheit verschiedener Wolkentypen ausgewählt. Nach Tselioudis et al. (2013) bilden insbesondere dünne Cumuli die wichtigste wolkenarme Wetterlage mit einer Häufigkeit von etwa 17 %, wohingegen marine Stratocumuli in der Region mit etwa 6 % weniger häufig auftreten. Dies ist im Gegensatz zu den östlichen Ozeangrenzregionen, wo die Häufigkeit von marinen Stratocumuli bei 36 % liegt, ausgesprochen niedrig und ermöglicht eine detaillierte Untersuchung der dünnen Cumuli (ebd.). Die Wolkenrückkopplungen von Grenzschichtwolken und Cumuli sind besonders problematisch bei der von globalen Klimamodellen simulierten Klimasensitivität, da sie durch enge Wechselwirkungen zwischen Wolken und turbulenten Zirkulationen aufrechterhalten werden (Bretherton, 2015; Mülmenstädt und Feingold, 2018). Durch das erhöhte Aufkommen von dünnen Cumuli, zielt die ACTIVATE Mission darauf ab, die Aerosol-Wolken-Wechselwirkungsmetriken in globalen Klimamodellen zu verbessern. Im Folgenden werden die atmosphärischen Bedingungen des NWA, die verwendeten Messplattformen Falcon HU-25 und King Air sowie die Flugstrategie genauer erläutert. Nach einer Übersicht über die Daten folgt die Darstellung der Ergebnisse auf der Basis des nach den in Kapitel 3 und Kapitel 4 vorgestellten Methoden korrigierten und qualitativ hochwertigen Datensatzes. Hierzu werden Phasenräume von mikrophysikalischen Parametern zur Einteilung der Wolken in Flüssig- und Mischphasenwolken beziehungsweise Niederschlag herangezogen, welche anschließend genauer bezüglich ihrer mikrophysikalischen Eigenschaften, Saisonalität und räumlicher Häufigkeit charakterisiert werden.

	10						
Zeitraum	Flüge			Flugstunden		Ensembles	Prozess- studien-
	HU-25	King Air	koord.	HU-25	King Air		flüge
Winter 2020	22	17	17	73	59	43	2
Sommer 2020	18	18	18	60	67	58	2
Winter 2021	17	19	15	56	66	47	_
Sommer 2021	32	32	32	106	108	103	2
Winter 2021-2022	55	54	53	182	193	198	2
Sommer 2022	30	28	27	97	98	86	4
Gesamt	174	168	162	574	592	535	12

Tabelle 5.1: Übersicht ACTIVATE Kampagne.

#### 5.1.1 Durchführung

Als Ausgangsposition für die ACTIVATE Kampagne diente der Flughafen des NASA Langley Research Centers (LaRC). Im Jahr 2020 und 2021 wurden alle Flüge ausschließlich von LaRC aus geflogen, während 2022 die Flughäfen in Providence und Bermuda für eine nördliche und westliche Ausweitung der Messregion hinzugenommen wurden. Eine Übersicht der Flüge ist in Tabelle 5.1 gezeigt. Insgesamt wurden 174 in-situ und 162 koordinierte Messflüge im Zeitraum von 2020 bis 2022 durchgeführt. Dabei wurden 574 Stunden an in-situ Daten generiert und 535 koordinierte wolkige Ensembles aufgezeichnet. Ein Ensemble bezeichnet dabei ein definiertes Flugmuster zur statistischen Erfassung der Atmosphäre. Zusätzlich wurden 12 Prozesstudienflüge durchgeführt, in denen die Flugstrategie angepasst und eine Luftmasse gezielt untersucht wurde. Eine Übersicht über die Fernerkundungs-, Satelliten- und In-situ-Messungen ist in Sorooshian et al. (2023) gegeben. Der Vollständigkeit halber ist anzumerken, dass 17 Satellitenunterflüge und 789 Dropsondenabwürfe für Satelliten-In-Situ Vergleichsstudien und meteorologische Vertikalprofile erfolgt sind, auf die in dieser Arbeit nicht weiter eingegangen wird. Gleichwohl wurden 17 Flüge im Juni 2022, die auf Bermuda stationiert waren, in dieser Analyse nicht berücksichtigt, um die Übereinstimmung in der untersuchten Region zu wahren.

#### 5.1.2 Nordwestatlantik

Jahrzehntelange atmosphärische Forschung hat sich auf die Region des NWA konzentriert, die hier als der ozeanische Bereich zwischen 25-50°N und 60-85°W sowie die Ostküste Nordamerikas definiert wird, siehe Abb. 5.1. Laut Sorooshian et al. (2020) wurden seit 1946 Schiffs-, Flugzeug-, Boden- und Satellitenmessungen sowie Modellierungsstudien verwendet, um das atmosphärische Profil des NWA zu charakterisieren. Die Region stellt trotz der in diesem Zeitraum mehr als 50 durchgeführten Feldkampagnen und Langzeitstudi-



**Abbildung 5.1:** Karte des NWA mit den wichtigsten Luftmassen und Aerosolquellen, einem Beispiel für einen CAO und den Nordatlantikwirbel, in dem Bermuda und die Sargassosee liegen (1 = Nordäquatorialstrom, 2 = Antillenstrom, 3 = Golfstrom und 4 = Nordatlantikdrift). Das gelbe Oval im unteren rechten Feld stellt die Sargassosee dar. Der CAO im rechten oberen Feld ist ein NASA Worldview Bild (https://worldview.earthdata.nasa.gov) vom 22. Januar 2019. Quelle: Sorooshian et al. (2020).

en ein komplexes atmosphärisches System mit noch vielen unbekannten Faktoren dar, insbesondere bei den Aerosol-Wolken-Wechselwirkungen (Sorooshian et al., 2020). Der NWA weist einen großen Anstieg der Aerosol- und Wolkentropfenkonzentrationen seit vorindustrieller Zeit mit einem leichten Rückgang der Aerosolbelastung seit den frühen 1980er-Jahren auf (Merikanto et al., 2010; Chin et al., 2014). Neuere Studien zeigen insbesondere während der Sommersaison einen ausgeprägten Aerosolgradienten über der Region mit einer Abschwächung abseits der Küste, welcher auf einen erheblichen anthropogenen und biogenen Aerosoltransport vom Kontinent zurückzuführen ist (Corral et al., 2021). Die Grenzschicht des NWA wird ganzjährig von der Nordatlantikströmung und im Sommer durch das Bermuda-Azoren Hoch beeinflusst. Das Hoch treibt antizyklonale Südwestwinde in der Nähe der Meeresoberfläche an, die im Sommer ihr Maximum erreichen, und sich im Winter in südwestliche Richtung wegen der Entwicklung eines zyklonalen Tiefs nördlich von 45°N, das starke Nordwestwinde fördert, verlagert. Die antizyklonalen Südwestwinde tragen Wüstenstaub im Sommer in die Region (ebd.). Die Nordwestwinde gehen mit starken sensiblen Wärmeströmen und vertikalen Bewegungen im Winter einher (Painemal et al., 2021). Zudem kommt es in den Wintermonaten vermehrt zu CAOs, welche kalte arktische Luftmassen über Nordamerika auf den NWA transportieren (Fletcher et al., 2016). Durch



**Abbildung 5.2:** Forschungsflugzeuge Falcon HU-25 (rechts) und King Air (links) auf dem LaRC Flughafen. Die Position der FCDP und 2D-S ist rot eingekreist.

starke bodennahe Scherwinde ist die Meersalzaerosolproduktion, welche vorwiegend über dem warmen Golfstrom anzufinden ist, im Winter erhöht (Grythe et al., 2014; Corral et al., 2021). Satellitendaten von MERRA-2 (*Modern-Era Retrospective Analysis for Research and Applications-Version* 2) bestätigen die hohen Aerosolkonzentrationen im Sommer durch erhöhte AOD. Gleichzeitig zeigen MERRA-2 Daten eine höhere Wolkentropfenkonzentration im Winter und dementsprechend eine saisonale Anti-Korrelation mit AOD (Dadashazar et al., 2021b). Die saisonale Variabilität von Aerosol und den dynamischen Einflüssen, wie CAOs und das Bermuda-Azoren Hoch, bieten ideale meteorologische Bedingungen zur Erforschung von Aerosol-Wolken-Wechselwirkungen.

#### 5.1.3 Messplattformen

Die verwendeten Forschungsflugzeuge Falcon HU-25 und King Air sind in Abb. 5.2 abgebildet. Im Rahmen dieser Arbeit wurden unsere Wolkeninstrumente FCDP und 2D-S bei der ACTIVATE Kampagne eingesetzt und wissenschaftlich ausgewertet. Zusätzlich wurden die in Kapitel 3 vorgestellten Wind- und Aerosolmessinstrumente auf dem NASA-Forschungsflugzeug Falcon HU-25 verwendet. Die Wolken- und Aerosolinstrumentierung ist auf der HU-25 wie folgt angebracht: Die 2D-S-FCDP Kombination ist am linken Flügelkanister etwa 4 m vom Rumpf entfernt installiert. Am gegenüberliegenden Flügelkanister befindet sich ein Cloud, Aerosol and Precipitation Spectrometer (CAPS) und eine CDP ist oberhalb des Cockpits am Rumpf verbaut. Direkt neben der CDP befinden sich der PILS und der nach vorn gerichtete Doppel-Diffusor-Einlass für die Aerosolinstrumente SMPS und LAS, sowie des HR-ToF-AMS. Das Windmesssystem TAMMS ist an der Flugzeugnase der HU-25 verbaut. Die Fernerkundungsinstrumente Research Scanning Polarimeter (RSP) und High Spatial Resolution Lidar (HSRL-2), sowie Dropsonden werden vom Forschungsflugzeug King Air aus betrieben. Die Flugdauer beider Forschungsflugzeuge be-



**Abbildung 5.3:** Schematische Darstellung des statistischen Flugprofils (Ensemble) (a) und eines Rasterprofils für Prozessstudienflüge (b) der HU-25.

trägt 3 bis 4 Stunden. Sie besitzen jeweils ein bordeigenes Messsystem zur Aufzeichnung von statischem Druck und Temperatur, der Fluggeschwindigkeit, Flughöhe sowie von GPS-Positionsdaten.

#### 5.1.4 Flugstrategien

Für eine statistisch repräsentative Untersuchung der marinen Grenzschicht über dem NWA wurden die in Abb. 5.3a gezeigten Ensembles bei Wolkenbedingungen geflogen. Das treppenstufige Profil der HU-25 beginnt mit abwechselnden Flugabschnitten unter- und oberhalb der Wolkenunterkante, gefolgt von einem Flugabschnitt bei minimaler Flughöhe bis zu 80 m, einem starken Aufstieg und endet mit den abschließenden Flugabschnitten ober- und unterhalb der Wolkenoberkante. Mit einem Ensemble wird keine einzelne Wolke gezielt vermessen, sondern die gesamte marine Grenzschicht in der für das Wolkenregime relevanten Höhen gerastert. Dabei wird die Flughöhe jedes Ensembles an die jeweils vorherrschende Schichtdicke der Wolkendecke angepasst. Die einzelnen Flugabschnitte dauern in der Regel 3 bis 5 Minuten, welche bei einer mittleren TAS der HU-25 von 100 m s<sup>-1</sup> einer Flugdistanz von 18 bis 30 km entspricht. Die statistische in-situ Vermessung des Wolkenfeldes zielt auf eine erhöhte Vergleichbarkeit mit globalen Klima- und Wettermodellen ab. Insbesondere für gut durchmischte marine Grenzschichten eignet sich das Ensemble Profil, wohingegen eine erhöhte Achtsamkeit bei vertikal schlecht gemischten Luftmassen, mehreren Wolkenschichten und starken Gradienten meteorologischer Parameter in der Auswertung geboten ist (Dadashazar et al., 2022b). Durch Verwendung von mehreren Messmethodiken und des umfassenden Datensatzes können die Ensembles entsprechend charakterisiert werden. Während die HU-25 die marine Grenzschicht vermisst, fliegt die King Air koordiniert auf ungefähr 9 km Höhe darüber. Dies gewährleistet, dass dieselbe Luftmasse gleichzeitig insitu und mit Hilfe von Fernerkundungsmethoden untersucht wird. Das Ensemble ist die bevorzugte Flugstrategie und wurde in über 95 % der Flugzeit angewandt.

In Abb. 5.3b ist ein Rasterprofil für Prozessstudienflüge gezeigt. Im Gegensatz zum Ensemble wird eine zuvor ausgewählte Luftmasse mehrfach durchflogen, dabei wurde in den meisten Fällen das Raster senkrecht zur Windrichtung ausgerichtet. Die genaue Position und Abweichungen vom Rasterprofil wurden während des Fluges durch den operativen Wissenschaftler anhand aktueller Satellitenbilder und Wettervorhersagen bestimmt. Gegebenenfalls wurden vertikale Messungen mit einem Spiralflugmanöver durchgeführt. Die King Air weicht bei einem Prozessstudienflug vom Flugweg der HU-25 ab und untersucht die Luftmasse entweder mit einem Kreis- und anschließendem Kreuzmuster oder mit einem Pedalmuster. Bei einem Spiralflugmanöver der HU-25 überfliegt die King Air diese. Bei beiden Profilen werden 11 bis 13 Dropsonden abgeworfen, um die Vertikalprofile des ein- und auslaufenden Luftvolumens zu bestimmen. Nachfolgend werden die Ergebnisse dieser Arbeit gezeigt.

# 5.2 Verteilung von mikrophysikalischen Eigenschaften und Phase tiefer ozeanischer Wolken



**Abbildung 5.4:** Flugrouten von Messflügen der HU-25 während der ACTIVATE-Mission 2020-2022, kategorisiert bezüglich der Kampagnenphasen durch Farben und Linienart, basierend auf sechs verschiedenen Kampagnenphasen. Die Bandbreite der Forschungsflüge pro Einsatz ist in der Legende angegeben. Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (2023).

Im Folgenden wird eine Übersicht der während der ACTIVATE Kampagne gewonnenen Wolkendaten erarbeitet und vorgestellt. Hierzu werden 155 Messflüge (RF von *research* 

*flight*) mit mehr als 512 Flugstunden aus den sechs Kampagnenphasen Februar-März 2020, August-September 2020, Januar-April 2021, Mai-Juni 2021, November 2021-März 2022 und Mai 2022 betrachtet, siehe Abb. 5.4. Aufgrund von Militärflugverbotszonen konnten die Messflüge über dem Ozean ausschließlich in westliche und südwestliche Richtung erfolgen. Nach Verlassen der Militärflugverbotszonen fächern die Flugwege für eine größere Abdeckung des NWA sternförmig auf. Erste Messflüge nach Providence (nördlich) und Bermuda (westlich) erfolgten 2022. Auf Messflüge um Bermuda im Juni 2022 wird in dieser Arbeit nicht weiter eingegangen.

Die Einteilung und Klassifizierung der Daten in die Kategorien Flüssig- und Mischphasenwolken beziehungsweise Niederschlag wird mittels verschiedener Phasenräume mikrophysikalischer Parameter veranschaulicht. Anschließend wird ein Überblick der mikrophysikalischen Eigenschaften von Wolken gegeben, die Saisonalität und Annuität von Flüssigwolken betrachtet und auf die Variabilität von Mischphasenwolken im Winter eingegangen. Abschließend wird ein Überblick über die Verteilung und die Häufigkeit von Wolken und Niederschlag im NWA gegeben.

#### 5.2.1 Wolken- und Niederschlagsklassifizierung durch Phasenräume

Um die mikrophysikalischen Eigenschaften von Wolken zu untersuchen, muss zuerst die Frage, was eine Wolke im Sinne der gemessenen mikrophysikalischen Parameter bedeutet, beantwortet werden. Phasenraumdiagramme ausgewählter mikrophysikalischer Parameter vermitteln einen Überblick über den Datensatz der gemessenen Grenzschicht und helfen bei der Separation von Wolken und Niederschlag. Die Phasenraumdiagramme bilden das gesamte Spektrum der Messungen ab. Bereiche mit gehäuften Messungen lassen sich einfach visuell erkennen und dienen als Grundlage für die Klassifikation. Auch die Definition von Schwellwerten für verschiedene Wolkenphasen, d. h. Flüssig- und Mischphase und Eis, kann auf der Grundlage eines Phasenraumdiagramms erfolgen. Gleichzeitig zeigen Phasenraumdiagramme direkt die Limitationen der verwendeten Messinstrumente. Insbesondere der Vergleich zwischen In-situ und Wettermodell-Phasenraumdiagrammen zeigt, ob die Unterschiede auf die Limitationen der Messinstrumente zurückzuführen sind oder lediglich ein Ausschnitt des Phasenraumdiagramms für einen Vergleich herangezogen werden darf. Wolken und Niederschlag sind verflüssigter oder gefrorener Wasserdampf in der Atmosphäre. Im Folgenden werden sie separat betrachtet, da ihr Aufkommen auf unterschiedliche Prozesse und Stadien des Wasserkreislaufs der Atmosphäre hinweisen, ihre verschiedenen Strahlungseffekte zu einem unterschiedlichen Klimaeinfluss führen und sich eine Unterteilung in der weiteren Analyse als hilfreich erweist. Daher wird eine untere Nachweisschwelle für Wolken und Niederschlag anhand der Daten erarbeitet und vorgestellt. In Abb. 5.5 sind Phasenraumdiagramme ausgewählter mikrophysikalischer Parame-



**Abbildung 5.5:**  $ED_{flüssig}$ - $N_{flüssig}$  Phasenraum als Konturdiagramm und die entsprechenden Verteilungen auf der Achse (a), sowie  $ED_{Eis}$ - $N_{Eis}$  Phasenraum (b),  $ED_{Eis}$ - $N_{flüssig}$  Phasenraum (c) und LWC- $N_{Eis}$  Phasenraum (d). Der Farbcode zeigt die Anzahl der Sekunden an und ist für alle dargestellten Phasenräume gleich. Die mittlere Partikelgrößenverteilung der Wolke (orange), des Niederschlags (blau) und des Hintergrunds (grau) (d). Alle Teilgrafiken beziehen sich auf alle Winterkampagnenphasen. Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (2023).

ter für alle Winterkampagnenphasen auf der Grundlage von 1 Hz-Partikel-Daten der 2D-S-FCDP-Kombination dargestellt. Abb. 5.6 zeigt dieselben Grafiken für alle Sommerkampagnenphasen. Es ist anzumerken, dass nur Zeitsequenzen verwendet wurden, in denen beide Messinstrumente parallel operationsfähig waren.

In Abb. 5.5a ist die Verteilung des effektiven Durchmessers aller flüssiger Partikel ( $ED_{
m flüssig}$ ) gegenüber der Verteilung von  $N_{
m flüssig}$  gezeigt. Der Bereich zwischen 0,03 cm<sup>-3</sup> < $N_{
m flüssig}$ <10 cm<sup>-3</sup> und  $ED_{
m flüssig}$ <20 µm kann auf eher großes, flüchtiges oder nichtflüchtiges Aerosol zurückgeführt werden und bildet den Hauptanteil der Messungen in wolken- und niederschlagsfreien Bedingungen ab. Die Untergrenze von 0,03 cm<sup>-3</sup> in  $N_{
m flüssig}$  spiegelt die niedrigste mögliche FCDP-Nachweisgrenze in der Teilchenkonzentration bei einer 1 Hz Auflösung wider. Diese



**Abbildung 5.6:**  $ED_{flüssig}$ - $N_{flüssig}$  Phasenraum als Konturdiagramm und die entsprechenden Verteilungen auf der Achse (a), sowie  $ED_{Eis}$ - $N_{Eis}$  Phasenraum (b),  $ED_{Eis}$ - $N_{flüssig}$  Phasenraum (c) und LWC- $N_{Eis}$  Phasenraum (d). Der Farbcode zeigt die Anzahl der Sekunden an und ist für alle dargestellten Phasenräume gleich. Die mittlere Partikelgrößenverteilung der Wolke (orange), des Niederschlags (blau) und des Hintergrunds (grau) (d). Alle Teilgrafiken beziehen sich auf alle Sommerkampagnenphasen. Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (2023).

variiert mit der TAS und ergibt sich aus einem einzelnen gemessenen Partikel im FCDP-Messvolumen bei einer TAS von 100 m s<sup>-1</sup> zu 0,034 cm<sup>-3</sup>. Alle Messungen unterhalb der FCDP-Nachweisgrenze wurden von der 2D-S gemessen und die niedrigsten  $N_{\rm flüssig}$ -Werte zeigen die untere Nachweisgrenze der 2D-S in  $N_{\rm flüssig}$ , die aufgrund eines größeren Probenvolumens deutlich kleiner ist als die der FCDP. In den Sommerkampagnenphasen ist der Hauptteil ebenfalls durch Hintergrundaerosolmessungen mit denselben Schwellwerten wie im Winter in  $ED_{\rm flüssig}$  und  $N_{\rm flüssig}$  gegeben, siehe Abb. 5.6a. Die Verteilung innerhalb des Bereichs zeigt ein erhöhtes Aufkommen von höheren  $N_{\rm flüssig}$  bei gleichzeitig geringeren  $ED_{\rm flüssig}$  des Hintergrundaerosols im Sommer. Wolken sind durch höhere  $N_{\rm flüssig}$  im Bereich von 100 bis 1000 cm<sup>-3</sup> und  $ED_{\rm flüssig} < 20 \,\mu$ m repräsentiert und wurden in beiden Saisons am zweithäufigsten angetroffen. Daten mit  $N_{\rm flüssig} < 3 \,\mathrm{cm}^{-3}$  und  $ED_{\rm flüssig} > 60 \,\mu$ m bis zu einem



**Abbildung 5.7:** Beispiele für große Bioaerosole im Frühsommer 2021 und 2022. Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (2023).

Millimeter weisen auf Niederschlag hin. Der  $ED_{\text{flüssig}}$ - $N_{\text{flüssig}}$  Phasenraum veranschaulicht, dass  $ED_{\text{flüssig}}$  für die Unterscheidung von Niederschlag und Flüssigwolken gut geeignet ist.  $N_{\text{flüssig}}$  gibt einen Anhaltspunkt, ob man sich innerhalb oder außerhalb von dichteren Wolken befindet.

Abb. 5.5b zeigt das Phasenraumdiagramm des effektiven Durchmessers aller Eispartikel  $(ED_{Eis})$  und von  $N_{Eis}$  in den Winterkampagnenphasen, das Sommerpendant ist in Abb. 5.6b gegeben. Eispartikel werden ausschließlich von der 2D-S detektiert und dementsprechend beziehen sich die gezeigten  $ED_{Eis}$ - $N_{Eis}$  Phasenräume auf den 2D-S Anteil der 2D-S-FCDP-Kombination. Da Eispartikel nur mit der Forminformation der 2D-S beobachtet werden können, stellt dieser Bereich Eispartikel oder Schnee mit Durchmessern >100 µm dar. Das Hauptaufkommen an Eispartikeln und Schnee wurde im Winter gemessen und in den Sommerkampagnenphasen wurden diese nur während eines einzigen Messflugs (RF63) am Vormittag des 14. Mai 2021 gemessen. Andere Messflüge im Sommer 2021 und 2022 enthielten asphärische Partikel bei Temperaturen über 10 °C, die aufgrund der hohen Temperaturen nicht durch Eispartikel erklärt werden können, sondern auf große Bioaerosolpartikel hinweisen, siehe Beispiele in Abb. 5.7. Die abgebildeten asphärischen Partikel haben keine erkennbare hexagonale Struktur, wie bei aus der Gasphase gewachsenen Eispartikeln üblich, und erinnern an Fäden. Die asphärischen Partikel wurden aus der weiteren Ana-

lyse ausgeschlossen und sollen hier aufgrund ihres erhöhten Aufkommens in den frühen Sommermonaten der Vollständigkeit halber gezeigt werden. Wird  $ED_{Eis}$  als Indikator für das Vorhandensein von Eis verwendet und ein Phasenraum mit  $N_{flüssig}$  anstelle von  $N_{Eis}$ gebildet, wie in Abb. 5.5c und Abb. 5.6c gezeigt, dann kann der Eisniederschlag mit denselben Bereichen der flüssigen Phase in Verbindung gebracht werden. Das Aufkommen der großen Eispartikel ist im Winter sowohl in dichteren Mischphasenwolken als auch in Niederschlag zu erkennen. Im Messflug RF63 im Sommer 2021 wurden Eispartikel fast ausschließlich innerhalb von dichteren Mischphasenwolken beobachtet. Durch die Verbindung des Aufkommens an Eispartikeln mit  $N_{flüssig}$  lassen sich die Messungen in Mischphasenwolken und Mischphasenniederschlag unterteilen. Dies ist insofern von Interesse, da wichtige Mischphasenprozesse wie Koaleszenz, Verreifung und Aggregation (Böhm, 1992b,c) von der Teilchenkonzentration abhängen und in Mischphasenwolken verstärkt auftreten.

In Abb. 5.5d und Abb. 5.6d zeigen die Phasenräume von LWC und Nflüssig die gleichen Regionen für Flüssigwolken, Niederschlag und Hintergrund wie in den ED<sub>flüssig</sub>-N<sub>flüssig</sub> Phasenräumen. In der Literatur und in Modellen wird häufig ein fester LWC-Schwellwert zur Definition von Wolken verwendet (McFarquhar et al., 2007; Ahn et al., 2018; Abel et al., 2020; Korolev und Milbrandt, 2022). Der LWC-Nflüssig-Phasenraum unterscheidet sich vom *ED*<sub>flüssig</sub>-*P*hasenraum durch einen Winkel von 45° zwischen den Parametern anstelle von 90°. Die Winkel beschreiben die Unabhängigkeit der verwendeten Parameter und lassen sich durch die Beziehung zwischen LWC, Nflüssig und EDflüssig erklären. Der LWC wird aus der Partikelgrößenverteilung, welche auf der Anzahl und der Partikelgröße der Tröpfchen basiert, berechnet. Ein hoher LWC kann entweder von großen Teilchenkonzentrationen kleiner Partikel herrühren, die für Flüssigwolken typisch sind, oder von Niederschlag mit geringen Teilchenkonzentrationen großer Partikel. Demzufolge ist der LWC nicht eindeutig und hängt von  $N_{
m flüssig}$  ab. Diese Abhängigkeit spiegelt sich im 45° Winkel des *LWC-N*<sub>flüssig</sub>-Phasenraums wider. Dagegen bezieht sich ED<sub>flüssig</sub> rein auf die Größeninformation und die Unabhängigkeit zu N<sub>flüssig</sub> ist durch den 90° Winkel abgebildet. Dies veranschaulicht, dass für eine Trennung von Wolke und Niederschlag der LWC nicht so gut wie EDflüssig geeignet ist, da ein typischer LWC-Schwellwert von 0,02 g m<sup>-3</sup> nicht nur die Wolken, sondern immer einen Anteil des Niederschlags umfasst. Noch wichtiger ist die Tatsache, dass ein großer Anteil an Niederschlagsmessungen unberücksichtigt bleibt, wenn lediglich ein LWC-Schwellwert herangezogen wird. Eine Erniedrigung des LWC-Schwellwerts birgt in diesem Fall keinen Vorteil, da es dadurch immer zu einer Vermischung von Aerosol- und Niederschlagsereignissen in der ACTIVATE Kampagne kommt.

Für die Definition von Wolken wird in dieser Arbeit eine Kombination aus  $N_{\rm flüssig} > 10 \text{ cm}^{-3}$ und  $LWC>0,02 \text{ gm}^{-3}$  verwendet, da ein einzelner LWC-Schwellwert die beschriebenen Nachteile hat. Die restlichen Daten werden mit dem  $ED_{\rm flüssig}$  über oder unter 60 µm in Niederschlag und Hintergrund unterteilt. Die Phase der Wolken und des Niederschlags werden über das Vorhandensein von Eispartikelmessungen in Flüssig- und Mischphasenwolken beziehungsweise Niederschlag gegliedert. Hier soll betont werden, dass die Mischphasenklassifikation auf der Forminformation der 2D-S beruht und der Aggregatzustand von Partikeln <100 µm unbekannt ist. Daher können die als Mischphase klassifizierten Wolken- und Niederschlagsmessungen einen Anteil an reinen Eiswolken beziehungsweise Eisniederschlag beinhalten. Die mittlere Partikelgrößenverteilung der Kategorien Wolken, Niederschlag und Hintergrund ist für die Winterkampagnenphasen in Abb. 5.5e und für die Sommerkampagnenphasen in Abb. 5.6e dargestellt. Im Winter ist zusätzlich eine Einteilung in Flüssig- und Eispartikel zu sehen und es wurden Eispartikel, die bis an das obere Detektionslimit der 2D-S reichen, gemessen. In beiden Saisons liegt das Maximum der mittleren Partikelgrößenverteilung von Wolken bei ungefähr 10 µm und die Wassertropfen werden bis zu 500 µm groß. Die mittleren Partikelgrößenverteilungen des Niederschlags und des Hintergrunds sind sich bis zu 20 um ähnlich und haben in beiden Saisons eine leicht niedrigere Teilchenkonzentration für Partikel <10 µm, dies deutet auf eine Reinigung (von scavenging) der Atmosphäre durch das Aufsammeln von Aerosol durch Niederschlagspartikel. Höhere Teilchenkonzentrationen hin zu größeren Durchmessern des Hintergrunds werden für Partikel >20 µm im Winter beobachtet, wobei die Teilchenkonzentration für Partikel <10 µm im Sommer größer ist. Im Sommer werden größere Regentropfen im Niederschlag bis über 1 mm gemessen, wohingegen die Regentropfengröße im Winter bis ungefähr 800 µm reicht. Es soll hier angemerkt werden, dass der Mittelwert Extremwerte stärker berücksichtigt und dass ein relatives Auftreten von 10 % in Messsekunden einer Verschiebung um eine Größenordnung hin zu niedrigeren Größenbereichskonzentrationen entspricht. Somit haben bereits kleine Abweichungen der mittleren Teilchenkonzentrationen eine Signifikanz bei der gezeigten Statistik.

#### 5.2.2 Mikrophysikalische Eigenschaften

Ein erster Eindruck des Datensatzes, der durch die Phasenräume definierten Wolken, ist in Abb. 5.8 gezeigt. Dieser vermittelt einen Überblick über die mikrophysikalischen Wolkeneigenschaften der gemessenen marinen Grenzschichtwolken im NWA. Abb. 5.8 zeigt den *LWC* einzelner Wolkenereignisse in Abhängigkeit von der Höhe für die sechs Kampagnenphasen, wobei die Wintersaisons in blau und die Sommersaisons in rot dargestellt sind. Ein Wolkenereignis ist dabei ein Flugabschnitt von aufeinanderfolgenden Datenpunkten, in denen die Schwellwerte  $N_{\text{flüssig}} > 10 \text{ cm}^{-3}$  und *LWC*>0,02 g m<sup>-3</sup> für Wolken überschritten sind. Folglich ist jedes Wolkenereignis im Datensatz charakterisiert durch seine Dauer und die gemittelten mikrophysikalischen Eigenschaften. In Abb. 5.8 steht jeder Punkt für ein Wolkenereignis, verteilt auf sechs Klassen für Messsequenzen zwischen 1 Sekunde und >21 Sekunden. Diese entsprechen unter der Annahme einer mittleren TAS von 100 m s<sup>-1</sup> einer



**Abbildung 5.8:** Höhenabhängigkeit des LWC aller Wolkenereignisse während der ACTI-VATE-Mission der jeweiligen Kampagnenphasen. Die mittlere  $N_{flüssig}$  und Wolkenbreite sind über die Punktgröße und Farbe gegeben. Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (2023).

Wolkenbreite von 0,1 bis 2,1 km. Die Größe der Punkte gibt die mittlere  $N_{\rm flüssig}$  und der Farbbereich die entsprechende Wolkenbreite des Wolkenereignisses an. Insgesamt wurden 17 396 Wolkenereignisse in Höhen zwischen 0,3 und 4 km in und über der marinen Grenzschicht während der ACTIVATE-Mission beprobt.

Der *LWC* der Grenzschichtwolken nimmt, in Übereinstimmung mit der Theorie der Wolkenbildung eines adiabatisch aufsteigenden Luftpakets, mit der Höhe zu. Bei einer Aufwärtsbewegung kühlt sich das Luftpaket aufgrund der Volumenzunahme ab und Wolkenkondensationskerne werden zu Wassertröpfchen aktiviert, sobald das Luftpaket mit Wasserdampf übersättigt und die Kelvin-Barriere überschritten ist (Feingold und Heymsfield,

Kampagnenphase T in °C	Alle Ereignisse	Ø	Wolkenbreite km	LWC g m <sup>-3</sup>	$N_{ m fl\ddot{u}ssig}\  m cm^{-3}$
Mitt(Min-Max)			Med/Mitt(StA)	Med/Mitt(StA)	Med/Mitt(StA)
Winter 2020	2600	122	0.3/0.7(±1.4)	0.06/0.10(±0.11)	186/249(±223)
-1.2(-17.6-16.6)	2090				
Winter 2021	2126	133	0.3/0.7(±1.0)	$0.11/0.15(\pm 0.14)$	152/227(±253)
-1.5(-16.8-15.9)	2120				
Winter 2022	6683	122	$0.3/0.8(\pm 1.8)$	$0.12/0.19(\pm 0.21)$	$113/180(\pm 193)$
-1.0(-19.2-21.1)	6281*	119*	$0.3/0.8(\pm 1.8)^*$	$0.12/0.19(\pm 0.21)^*$	$113/178(\pm 193)^*$
Sommer 2020	1517	89	$0.2/0.4(\pm 0.6)$	$0.05/0.08(\pm 0.08)$	114/163(±165)
15.9(2.3-29.8)	1517				
Sommer 2021	3107	08	$0.2/0.6(\pm 2.2)$	$0.00/0.16(\pm 0.22)$	$84/118(\pm 140)$
15.4(-6.1-28.7)	5127	70	$0.2/0.0(\pm 2.2)$	$0.09/0.10(\pm 0.22)$	04/110(±140)
Sommer 2022	1253	96	$0.2/1.4(\pm 5.4)$	$0.10/0.16(\pm 0.19)$	93/132(±130)
19.1(5.8-24.1)	835†	$84^{\dagger}$	$0.2/0.6(\pm 2.3)^{\dagger}$	$0.08/0.14(\pm 0.16)^{\dagger}$	$94/129(\pm 129)^{\dagger}$

**Tabelle 5.2:** Statistik der Wolkenereignisse mit dem durchschnittlichen Vorkommen pro  $RF(\emptyset)$  für die jeweilige Kampagnenphase der ACTIVATE-Mission. Wolkenbreite, LWC und  $N_{\text{flüssig}}$  sind als Median/Mittelwert mit ihrer Standardabweichung in Klammern angegeben. Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (2023).

\* Ohne RF128/RF129 (beinhalten vorwiegend stratiforme Wolken).

<sup>†</sup> Ohne RF150/RF151/RF152 (beinhalten vorwiegend stratiforme Wolken).

1992; Ervens et al., 2005). Bei weiterem Aufsteigen kondensiert der überschüssige Wasserdampf auf die aktivierten Wassertropfen und die Partikel wachsen. Dies führt zu einem Anstieg des *LWC* mit der Höhe, wie in Abb. 5.8 gezeigt. Da die marine Wolkenschicht während ACTIVATE mit dem statistischen Ensemble untersucht wurde und sich einzelne Cumuli in ihren Wolkenunterkanten unterscheiden, fehlt eine exakte Höhe der Wolkenunterkante aller Wolkenereignisse. Daher wird auf die Berechnung eines theoretischen *LWC* bei adiabatischem Aufstieg verzichtet. Gleichwohl stimmt der Trend des gemessenen *LWC* mit dem aus der Theorie erwarteten Verlauf überein.

Insgesamt wurden 11499 Wolkenereignisse im Winter und 5897 im Sommer erfasst. Die Mediane, Mittelwerte und Standardabweichungen von Wolkenbreite, *LWC* und  $N_{\rm flüssig}$  der Wolkenereignisse sind in Tabelle 5.2 gezeigt. Das statistische Vorkommen ( $\emptyset$ ) in einer Kampagnenphase ist als Verhältnis der Wolkenereignisse pro Messflug definiert und wird in Kombination mit der Wolkenbreite als Indikator für die horizontale Wolkenbedeckung verwendet. Es soll angemerkt werden, dass die Dauer und das Auftreten der Wolkenereignisse von den geflogenen Flugmustern abhängen. Da die Wolken in den meisten Fällen durch dasselbe Flugmuster des Ensembles untersucht wurden und das Flugmuster nur selten davon abweicht, reicht die Statistik der 155 Messflüge für eine Trendanalyse aus. Daher deuten die Wolkenbreite und  $\emptyset$  auf ähnliche makrophysikalische Eigenschaften der marinen

Grenzschicht im Winter und eine größere Variabilität im Sommer hin. Das geringere arnothing im Sommer in Kombination mit den ähnlichen (2021) und geringeren (2020 und 2022<sup>†</sup>) Wolkenbreiten im Vergleich zu den Winterkampagnenphasen deuten auf kleinere Wolken und stärker durchbrochene Wolkensysteme hin. Folglich sind die größeren Abstände zwischen den Wolken gleichbedeutend mit mehr wolkenfreien Gebieten, dies kann in Verbindung mit einer geringeren Wolkenbedeckung gebracht werden. Im Gegensatz dazu deutet die größere Wolkenbreite im Sommer 2022, die durch Messungen von geschlossenen stratiformen Wolkendecken während RF150/RF151 am 5. Mai 2022 und RF152 am 10. Mai 2022 zum nördlichen Flughafen in Providence erklärt werden kann, auf weniger, aber größere stratiforme Wolken hin. Die stratiforme Wolkendecke korreliert mit einer hohen AOD nördlich von 39°N und östlich von 70°W im Winter und einem hohen Meersalzaerosolanteil (Corral et al., 2021). Der Aerosolhintergrund im NWA nördlich von 39°N weicht von weiter südlich gelegenen Gebieten ab, die niedrigere AOD aufweisen. Der erhöhte Aerosolhintergrund im Norden führt mit einem assoziierten größeren Aufkommen von Wolkenkondensationskernen zu einer höheren Auftrittswahrscheinlichkeit von stratiformen Wolkendecken. Da im Sommer 2022 zwei sehr unterschiedliche Aerosolhintergründe untersucht wurden, ist unter Berücksichtigung der Messflüge mit stratiformen Wolken eine relative Aussage über die Wolkenbedeckung im Vergleich zu den Wintermonaten unsicher.

Der LWC der Winterkampagnenphasen zeigt einen stetigen Anstieg von 2020 bis 2022 und geht mit einer gleichzeitigen Abnahme von Nflüssig einher. Hier soll im Vorfeld angemerkt werden, dass eine jährliche Trendanalyse durch abweichende meteorologische Bedingungen und die hohe Variabilität der mikrophysikalischen Eigenschaften sehr unsicher ist. Daher lassen sich aus der jährlichen Trendanalyse keine stichhaltigen und allgemeingültigen Aussagen ableiten. Nichtsdestotrotz werden im Weiteren die Unterschiede durch mögliche mikrophysikalische Prozesse diskutiert. Die meisten Wintermessflüge decken den gleichen Zeitraum zwischen Anfang Februar und Ende März ab und haben ein ähnliches Temperaturregime. In diesem Zeitraum weist die Veränderung des LWC und der Nflüssig auf eine sich jährlich ändernde Partikelgrößenverteilung hin, da eine Zunahme des LWC bei gleichzeitiger Abnahme der Nflüssig nur durch ein erhöhtes Aufkommen größerer Partikel erklärbar ist. Der Winter 2022 weist folglich auf eine ausgeprägtere Mode großer Partikel über 100 µm, während dieselbe Mode im Winter 2020 geringer ausgeprägt sein sollte. Die Zeitrahmen der Sommerkampagnenphasen überschneiden sich nur im Frühsommer 2021 und 2022. Im Sommer 2020 wurde ausschließlich im Spätsommer gemessen. Wenn die LWC und Nflüssig Werte des Sommers 2020 mit denen des Sommers 2021 und 2022 verglichen werden, dann deutet der geringere LWC und die höhere Nflüssig 2020 auf eine Partikelgrößenverteilung mit einer dominanten Mode kleiner Partikel unter 50 µm und wenigen großen Partikeln im Spätsommer hin. Demgegenüber weisen die Messungen im Frühjahr mit relativ hohen LWC und niedrige Nflüssig-Werten auf eine ausgeprägtere Mode großer Partikel hin, die wahrschein-



**Abbildung 5.9:** Wahrscheinlichkeitsverteilung aller Wolkenereignisse im Winter und Sommer 2020, 2021 und 2022 in Abhängigkeit von der Höhe in der linken Grafik und die entsprechende Temperaturverteilung in der rechten Grafik. Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (2023).

lich auf verstärkte Koaleszenz zurückzuführen ist, welche die Bildung von warmen Regen fördern (Berry und Reinhardt, 1974; Pinsky et al., 2000; Rauber et al., 2007).

Beim Vergleich der Saisons besitzen die Wolkenereignisse im Winter größere  $N_{\text{flüssig}}$  bei vergleichbaren *LWC*-Werten. Kirschler et al. (2022) fanden heraus, dass die geringeren  $N_{\text{flüssig}}$ -Werte des Sommers 2020 im Vergleich zum Winter 2020 durch erhöhte *w* im Winter und folglich einer erhöhten *S* in der Wolkenunterkante erklärt werden können, obwohl im Sommer höhere Teilchenkonzentrationen von Aerosol mit Durchmessern über 85 nm gemessen wurden. Die positive Korrelation von *w* und *S* in der Wolke bestimmt den kritischen Durchmesser, bei dem ein Aerosol zu einem Wolkentropfen aktiviert wird. Demzufolge werden bei höheren *w* Aerosole bei einem kleineren kritischen Durchmesser aktiviert, dies führt zu einem höheren Anteil an aktivierten Aerosolen beziehungsweise Wolkentropfen (Köhler, 1936; Dusek et al., 2006; Schulze et al., 2020).

Die Höhenverteilung der Auftrittswahrscheinlichkeit ist in der linken Grafik in Abb. 5.9 dargestellt. Im Winter liegt das Maximum der Wolkenereignisse bei 1,3 km und damit deutlich höher als im Sommer (0,5 km). Dieser Unterschied lässt sich durch die Temperaturinversionshöhe der marinen Grenzschicht erklären, die die vertikale Ausbreitung der Wolken begrenzt und die maximale Höhe der Wolkenereignisse bestimmt. Die höhere Temperaturinversion im Winter hängt mit den größeren Wärmeflüssen zusammen, die durch den Temperaturunterschied zwischen den kalten und trockenen Luftmassen aus dem Westen und dem warmen Golfstrom entstehen (Painemal et al., 2021). Die erhöhten Wärmeflüsse



**Abbildung 5.10:** 2D-S-Graupelmessungen über 0°C während RF146 am 28. Mai 2022. Mischphasenwolke oberhalb der Wolkenunterkante in Box A (blau) und Graupelmessungen im folgenden Abschnitt nahe der Wolkenunterkante bei Temperaturen bis zu 3,5 °C in Box B (rot). Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (2023).

verstärken die Aufwinde und Turbulenzen in der marinen Grenzschicht, wodurch diese angehoben wird (Chelton et al., 2004; Small et al., 2008). Die meisten Wolken wurden innerhalb der marinen Grenzschicht beobachtet, und nur selten wurden Wolken in Höhen von bis zu 3,5 km über der Grenzschicht gemessen. Dagegen befinden sich die meisten Wolken der marinen Grenzschicht im Sommer in 0,5 km Höhe, mit einer zweiten, abgehobenen Schicht auf 1,3 km Höhe. Dies deutet auf eine doppelte Wolkenschichtstruktur im Sommer hin, die auch von den Piloten und dem operativen Wissenschaftler an Bord der HU-25 beobachtet wurde, oder auf unterschiedliche meteorologische Bedingungen an den jeweiligen Flugtagen. Das vermehrte Auftreten von Wolken in größeren Höhen im Winter als im Sommer steht im Einklang mit den Wolkenoberkantenmessungen des *Moderate-resolution Imaging Spectroradiometer* (MODIS) auf dem NASA-Aqua-Satelliten über der Messregion (Painemal et al., 2021).

Die Temperaturverteilung der Wolkenereignisse ist in der rechten Grafik in Abb. 5.9 dargestellt. Im Winter wurden die Wolkenereignisse in größeren Höhen und bei niedrigeren Temperaturen als im Sommer beobachtet. Die meisten Wolkenereignisse bei Temperaturen oberhalb von 0 °C bestehen aus rein flüssigen Wolkentropfen. Die Wolkenereignisse in den Winterkampagenphasen und im Frühjahr 2021 über 2 km wurden meist bei Temperaturen unterhalb von 0 °C gemessen und enthielten Eispartikel, sind somit Mischphasenwolken. In allen Winterkampagnenphasen ist Graupel die am häufigsten gemessene Eispartikelform und trat selten auch bei Temperaturen oberhalb von 0°C auf. Ein solcher Fall von Graupelmessungen zwischen 0 und 3,5 °C ist in Abb. 5.10 dargestellt. Darin ist eine Mischphasenwolke mit großen Eiskristallen, vorwiegend Graupel, im Flugabschnitt oberhalb der Wolkenunterkante zu erkennen. Der darauffolgende Flugabschnitt nahe der Wolkenunterkante hat eine durchschnittliche Temperatur über 2 °C und weist dennoch Graupel auf. Die Graupelpartikel haben sich vermutlich in der Nähe der kälteren Wolkenoberkante gebildet und sind innerhalb der Mischphasenwolke angewachsen. Nach Verlassen der Wolkenunterkante und dem Eintritt in eine wärmere Luftschicht >0 °C hatten die Graupelpartikel wahrscheinlich nicht genügend Zeit zum Schmelzen und wurden als solche detektiert.

#### 5.2.3 Saisonalität von Flüssigwolken

Im Weiteren werden die Wolkenereignisse bezüglich ihrer Phase in Flüssig- und Mischphasenwolken unterteilt und die Flüssigwolken hinsichtlich ihrer Saisonalität untersucht. Zu diesem Zweck sind Vertikalprofile von *LWC*,  $N_{\text{flüssig}}$  und *ED*<sub>flüssig</sub>, sowie durchschnittliche Partikelgrößenverteilungen von Flüssigwolken in Abb. 5.11 gezeigt. Die meisten Wolkenereignisse wurden im Winter unterhalb von 1,8 km und im Sommer unterhalb von 0,8 km gemessen. Für die weitere Analyse soll der Fokus auf Wolken innerhalb der marinen Grenzschicht gelegt werden, daher werden alle Wolkenereignisse unterhalb von 1,8 km im Weiteren als marine Grenzschichtwolkenereignisse (MBLC von *marine boundary layer clouds*) bezeichnet. Statistische Rückschlüsse oberhalb von 2 km sind aufgrund der reduzierten Wolkenstatistik begrenzt.

Der Anstieg des *LWC* mit der Höhe in Abb. 5.11 ist in beiden Jahreszeiten bis zu 1,6 km vergleichbar.  $N_{\rm flüssig}$  hat in beiden Jahreszeiten einen ähnlichen Verlauf, mit einem Anstieg bis etwa 1 km, wo ein lokales Maximum von 120 cm<sup>-3</sup> im Sommer und 150 cm<sup>-3</sup> im Winter erreicht wird, gefolgt von einer Abnahme bis 1,8 km. In beiden Saisons zeigt sich darüber



**Abbildung 5.11:** Median-Vertikalprofile von LWC (a),  $N_{flüssig}$  (b) und  $ED_{flüssig}$  (c), sowie die mittlere Partikelgrößenverteilung aller rein flüssigen Wolkenereignisse in den Winter- (blau) und Sommerkampagnenphasen (rot) (d). Dargestellt sind Wolkenereignisse im 10 bis 90 % Perzentilbereich eines 300 m Höhenintervalls, die an der Oberfläche beginnen. Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (2023).

ein stetiger Rückgang in  $N_{\text{flüssig}}$ , wobei im Winter vereinzelt Wolkenereignisse in der freien Troposphäre bei 2,7 km zu finden sind. Diese könnten in Verbindung mit überschießenden konvektiven Zellen stehen, welche die Wolken über die marine Grenzschicht hinaus aufsteigen lassen. Solche überschießenden konvektiven Zellen wurden in beiden Jahreszeiten von den Piloten und dem operativen Wissenschaftler beobachtet und können einzelne Wolkenereignisse oberhalb von 2,2 km erklären. Konvektive Zellen haben höhere w und damit größere *S*, die mehr Aerosolpartikel zu Wolkentropfen aktivieren (Twomey, 1959). Dies spiegelt sich in Wolkenereignissen mit höheren  $N_{\text{flüssig}}$ - und *LWC*-Werten oberhalb von 2,2 km wider. Zudem können sich größere Partikel bei höheren w länger in der Wolke halten, welche aufgrund ihrer Größe einen effektiveren Koaleszenzprozess durchlaufen, da die Kollisionswahrscheinlichkeit mit der Größe zunimmt. Das erhöhte Wachstum ist in der sprunghaften Zunahme des  $ED_{\text{flüssig}}$  oberhalb von 2,5 km zu sehen. Da der *LWC* gleichzeitig zunimmt, können Mischprozesse mit trockener Luft aus der freien Troposphäre ausgeschlossen werden, da diese ein Verdunsten bewirken und zu einer Abnahme des *LWC* führen würden. Es soll hier angemerkt werden, dass alle Wolkenereignisse oberhalb von 2 km nur einen sehr geringen Prozentsatz aller Wolkenereignisse ausmachen und die Mediane eine höhere statistische Unsicherheit aufweisen. Zudem liegen diese Messungen wahrscheinlich oberhalb der marinen Grenzschicht und unterliegen Einflüssen aus darüberliegenden Luftschichten. Trotz sorgfältiger Flugplanung während ACTIVATE, die sich darauf konzentrierte, Tage mit ausschließlich tiefer Bewölkung zu wählen, konnte es während einzelner Flugsegmente nicht ausgeschlossen werden, überlagernde Wolkenschichten in mittlerer und großer Höhe vorzufinden.

Im Winter sind die Nflüssig-Werte der MBLC durchweg höher als im Sommer. Bei EDflüssig verhält es sich umgekehrt mit durchweg höheren Werten im Sommer. Die Anti-Korrelation von Nflüssig und EDflüssig zwischen Winter und Sommer in Kombination mit einem ähnlichen LWC kann mit Hilfe der gezeigten Unterschiede der mittleren Partikelgrößenverteilungen erklärt werden. Während der Sommer weniger Partikel mit einem Durchmesser <10 µm aufweist, hat er gleichzeitig durchweg mehr Partikel >50 µm. Ferner zeigt die Partikelgrößenverteilung im Sommer Partikel bis zu Maximaldurchmessern von 700 µm, wohingegen im Winter ein Maximaldurchmesser von 500 µm erreicht wird. Eine mögliche Erklärung hierfür ist ein früheres Einsetzen von Koaleszenz in den Wolkenereignissen des Sommers. Freud und Rosenfeld (2012) zeigen, dass ab EDflüssig>13 µm verstärkt Koaleszenz auftritt und dadurch kleine Regentropfen produziert werden. Dagegen ist für EDflüssig<13 µm das Wachstum durch Kondensation aus der Gasphase der dominante Prozess, welcher ab einem Partikeldurchmesser von ungefähr 15 µm aufgrund des Verhältnisses von Oberfläche zu Volumen ineffizienter wird. Beim Wachstum durch Kondensation konkurrieren die möglichen Kondensationskerne um den Wasserdampf. Demzufolge gibt es bei geringeren N<sub>CCN</sub> weniger Konkurrenz, der kritische ED<sub>flüssig</sub> von 13 µm wird schneller erreicht und Koaleszenz setzt ein. Der Unterschied in den Maximaldurchmessern kann daher mit einem statistisch höheren Aufkommen von größeren Partikeln aufgrund des schnelleren Eintretens von Koaleszenz erklärt werden. Der stetige Anstieg von ED<sub>flüssig</sub> mit der Höhe in Abb. 5.11 stellt den Koaleszenz-Wachstumsprozess der warmen Regenbildung für alle Winter- und Sommerkampagnenphasen dar. Die Sommerperioden haben größere EDflüssig-Werte, die häufiger über oder nahe 13 µm liegen bei gleichzeitig geringeren Nflüssig-Werten. Die höhere Aktivierung der Aerosolpartikel zu Wolkentropfen, die sich in den Nflüssig-Werten widerspiegelt, erhöht die Lebensdauer der Wolken und unterdrückt die warme Regenbildung. Aufgrund der höheren Konkurrenz wird das Wachstum durch Kondensation gehemmt. Dadurch wird Niederschlag im Winter stärker unterdrückt als im Sommer, dies wird an den geringeren ED<sub>flüssig</sub>-Werten im Winter ersichtlich (Albrecht, 1989; Freud et al., 2011). Die mittlere Partikelgrößenverteilung in Abb. 5.11 stimmt mit der genannten Unterdrückung überein und zeigt im Sommer höhere  $dNdlogD_p$ -Konzentrationen für Partikel über 30 µm. Insbesondere der gleichbleibende Unterschied oberhalb von 100 µm deutet auf ein häufigeres Vorkommen von Koaleszenz im Sommer hin. Dies steht im Einklang mit einer höheren zu erwarteten

Lebensdauer für Flüssigwolken im Winter und bestätigt die Satellitenbeobachtungen von (Seelig et al., 2021), die eine längere Lebensdauern für tiefe durchbrochene ozeanische Cumuli mit erhöhten  $N_{\rm flüssig}$  beobachten haben. Folglich haben die dichteren Flüssigwolken mit längeren Lebensdauern vermutlich eine stärker kühlende Wirkung auf die Atmosphäre als im Sommer.

#### 5.2.4 Mischphasenwolken im Winter

Im Folgenden werden ausschließlich Mischphasenwolken aus den Winterkampagnenphasen hinsichtlich der Variabilität ihrer mikrophysikalischen Eigenschaften untersucht und die Parameter der flüssigen Phase mit dem Äquivalent bei Flüssigwolken verglichen. Dazu sind in Abb. 5.12 Vertikalprofile von *LWC*, *IWC*, *N*<sub>flüssig</sub>, *N*<sub>Eis</sub>, *ED*<sub>flüssig</sub>, *ED*<sub>Eis</sub> und des Eisanteils der Mischphasenwolkenereignisse dargestellt. Der Eisanteil ist definiert als der prozentuale Anteil der Datenpunkte, die Eispartikel enthalten, zu der Gesamtdauer des Wolkenereignisses. Da es im Sommer 2021 nur einen Messflug mit Mischphasenwolken oberhalb von 2 km gab, werden die Mischphasenwolkenereignisse im Sommer 2021 aufgrund von unzureichender Statistik in der weiteren Analyse nicht berücksichtigt. Hier ist anzumerken, dass die Klassifizierung von Mischphasenwolken von der 2D-S-Forminformation stammt und diese erst ab einem Partikeldurchmesser >100 µm zur Verfügung steht. Daher sind die Parameter der Wassertropfen systematisch überschätzt und die der Eispartikel unterschätzt. Zudem kann nicht ausgeschlossen werden, dass Teile der als Mischphasenwolke klassifizierten Datenpunkte tatsächlich als reine Eiswolke vorlag.

Die  $N_{\rm flüssig}$  der Mischphasenwolkenereignisse in Abb. 5.12 zeigen ein ähnliches Muster wie bei Flüssigwolken, mit einem Anstieg bis etwa 1,3 km und einer anschließenden Abnahme bis 2,5 km. Dabei werden die lokalen Maxima von 220 cm<sup>-3</sup> (Winter 2020), 280 cm<sup>-3</sup> (Winter 2021) und 170 cm<sup>-3</sup> (Winter 2022) erreicht. Die Median- $N_{\rm flüssig}$ -Werte der Mischphasenwolkenereignisse sind größer als die der winterlichen Flüssigwolken. Dies kann durch eine Kombination von SIP, siehe Unterabschnitt 2.3.2, höheren Aufwindgeschwindigkeiten, verschiedenen INP-Konzentrationen und unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen verursacht werden. Zu beachten ist, dass SIP hauptsächlich Eispartikel <100 µm erzeugt, die in dieser Analyse aufgrund der fehlenden Phaseninformation den Wassertropfen zugeordnet werden. Luke et al. (2021) zeigen in einer statistischen Langzeitstudie, dass die Eismultiplikation durch SIP für arktische Mischphasenwolken <10 % ist und somit nur einen kleinen Beitrag des Unterschieds der Median- $N_{\rm flüssig}$ -Werte zwischen Flüssig- und Mischphasenwolken erklären kann.

Die *LWC* der Mischphasenwolken in Abb. 5.12 zeigen im Winter 2021 und 2022 einen stetigen Anstieg für MBLC bis ungefähr 2 km bei durchweg größeren Medianwerten als denen


**Abbildung 5.12:** Median Vertikalprofile von IWC (a), LWC (b),  $N_{Eis}$  (c),  $N_{flüssig}$  (d),  $ED_{Eis}$  (d) und  $ED_{Eis}$  (f), sowie der Eisanteil (g) und die mittlere Partikelgrößenverteilung der flüssigen (Linien) und Eispartikel (gepunktet) aller Mischphasenwolkenereignisse in den Winterkampagnenphasen 2020 (blau), 2021 (violet) und 2022 (pink) (h). Dargestellt sind Wolkenereignisse im 10 bis 90 % Perzentilbereich eines 300 m Höhenintervalls, die an der Oberfläche beginnen. Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (2023).

rein flüssiger MBLC. Im Winter 2020 wurden vergleichbare LWC-Werte wie in rein flüssigen MBLC um 0,1 g m<sup>-3</sup> beobachtet. Die  $ED_{\text{flüssig}}$  decken mit 5 bis 80 µm einen größeren Bereich ab als die rein flüssiger MBLC. Die EDflüssig-Obergrenze kann von der fehlerhaften Zuordnung der Eispartikel stammen, da dieser in Mischphasenwolken vermehrt auftritt. Der Trend in ED<sub>flüssig</sub> ist in allen Winterkampagnenphasen ähnlich, zeigt jedoch ein unterschiedliches Ausmaß und die größten/niedrigsten Werte der MBLC wurden im Winter 2022/2020 gemessen. Die ED<sub>Eis</sub> der MBLC zeigen keinen signifikanten Trend mit der Höhe und haben einen Wertebereich zwischen 200 und 400 µm, wobei der Winter 2022 tendenziell die größten Werte aufweist. Oberhalb von 2 km nimmt EDEis in allen Winterkampagnenphasen abrupt zu. Das Gleiche gilt für die IWC- und EDEis-Vertikalprofile, wobei im Winter 2022 der abrupte Anstieg erst in einer Höhe von 2,5 km auftritt. Alle Eisparameter zeigen aufgrund der höheren Messunsicherheiten und der niedrigeren Statistik als bei Flüssigwolken eine starke Schwankung ihrer Medianwerte mit der Höhe. Vergleicht man den Eisanteil aller Winterkampagnenphasen, so ist dieser im Winter 2022 für MBLC am größten und oberhalb von 2 km werden Eispartikel fast während der gesamten Dauer der Mischphasenwolkenereignisse erfasst. Die mittleren Partikelgrößenverteilungen zeigen den gleichen Trend bei Durchmessern >100 µm und die Wassertropfen haben vergleichbare Maximaldurchmesser von ungefähr 800 µm. Wassertropfen mit Durchmessern <60 µm zeigen Abweichungen zwischen den Winterkampagnenphasen, insbesondere im Winter 2022 wurden weniger Partikel mit Durchmessern <10 µm gemessen. Das Profil der von der 2D-S gemessenen Eispartikel zeigt eine erhöhte Häufigkeit bis zur oberen Nachweisgrenze. Dies deutet darauf, dass Eispartikel größer als 1,5 mm in der Atmosphäre vorhanden waren und *IWC* und *ED*<sub>Eis</sub> systematisch unterschätzt werden.

Die *IWC-*,  $N_{\text{Eis}}$ - und  $ED_{\text{Eis}}$ -Mediane nehmen in den Wintern 2020 und 2021 ab einer Höhe von 1,7 km zu. Im Winter 2022 ist ein Anstieg in  $ED_{\text{Eis}}$  ab 1,7 km und in *IWC* und  $N_{\text{Eis}}$  erst ab 2,5 km zu erkennen, wobei die Statistik an gemessenen Mischphasenwolkenereignissen im Winter 2022 oberhalb von 2,2 km geringer ist als in den anderen Winterkampagnenphasen. Insbesondere der Anstieg in  $ED_{\text{Eis}}$  ab 1,7 km weist auf einen Wachstumsprozess der Eiskristalle hin. Der Eisanteil nimmt ebenfalls ab einer Höhe von 1,7 km zu und zeigt die Vereisung der Wolken. Da die untere Nachweisgrenze von Eiskristallen bei maximalen Durchmessern von 100 µm liegt, ist nicht auszuschließen, dass die Vereisung bereits unterhalb von 1,7 km einsetzt, die Eispartikel jedoch die Nachweisgrenze unterschreiten. Der effizienteste und vorherrschende Wachstumsprozess in Mischphasenwolken ist der Wegener-Bergeron-Findeisen Prozess (WBF) (Wegener, 1911; Bergeron, 1935; Findeisen, 1938; Korolev, 2007a). Beim WBF wachsen die Eiskristalle auf Kosten verdunstender flüssiger Partikel, siehe Unterabschnitt 2.3.2. Der WBF tritt auf, falls *e* innerhalb der Wolke größer als  $e_{\text{Eis}}$  und gleichzeitig geringer als  $e_{\text{Wasser}}$  ist (Korolev, 2007a). Sind sowohl  $e_{\text{Eis}}$  und  $e_{\text{Wasser}}$  größer als *e* der Wolke, dann wachsen sowohl Wassertropfen als auch Eispartikel durch Kondensation beziehungsweise Resublimation. Das Wachstum der Eispartikel ist aufgrund der Differenz von  $e_{\text{Eis}}$  und  $e_{\text{Wasser}}$  immer größer. Demnach sollte das Wachstum der Eiskristalle zwischen 1,7 und 2,2 km aufgrund des stagnierenden beziehungsweise leicht abnehmenden *LWC* durch Resublimation und oberhalb von 2,2 km durch den WBF gegeben sein. Die Resublimation ohne gleichzeitiges Verdampfen von Wassertropfen ist wesentlich langsamer (Korolev, 2008) und daher haben zwischen 1,7 und 2,2 km die Wachstumsprozesse durch Koaleszenz, Verreifung und Aggregation (Böhm, 1992b,c) einen nicht zu vernachlässigenden Anteil.

Der höchste mittlere Eisanteil wurde im Winter 2022 beobachtet und geht mit einem Trend zu erhöhten Eisparametern für die Mehrheit der Mischphasenwolkenereignisse zwischen 0,9 und 2 km einher. Gleichzeitig weist der Winter 2022 den niedrigsten  $N_{\rm flüssig}$  zwischen 1 und 2,2 km auf. Dies könnte durch geringere *w* erklärt werden, da damit niedrigere *S* entstehen und weniger Aerosol zu Wolkentröpfchen aktiviert werden. Gleichzeitig erhöhen niedrigere *w* die Wahrscheinlichkeit und Effizienz des WBF und insbesondere kleine flüssige Wassertropfen verdampfen zugunsten des Wachstums von Eiskristallen. Die Abnahme des *LWC* und  $N_{\rm flüssig}$  oberhalb von 2,2 km kann zusätzlich zum WBF durch Mischprozesse mit trockener Luft der freien Troposphäre erklärt werden. Diese führen zu einem Absinken von *e* bis zu einer Untersättigung und wirken sich zuerst auf *LWC* und  $N_{\rm flüssig}$  aus, da die Wolkentropfen aufgrund ihrer Größe und des Kelvin-Effekts früher verdampfen und Eiskristalle in einer solchen Umgebung länger überleben. Eine erhöhte Aktivität von Mischprozessen, wie eine Verdünnung mit trockener Luft aus der freien Troposphären, wurde im NWA mit zunehmendem Abstand zur Küste beobachtet (Tornow et al., 2022).

Die mittlere Partikelgrößenverteilung der Mischphasenwolken zeigt die Auswirkungen der Wachstumsprozesse, wie WBF, Koaleszenz, Verreifung und Aggregation durch höhere Konzentrationen von Partikeln mit Durchmessern >100 µm, die um bis zu zwei Größenordnungen größer sind als im Fall von Flüssigwolken. Durch die Eisphase in Mischphasenwolken gibt es mehr Wachstumsprozesse als in Flüssigwolken. Diese führt zu einem schnelleren Einsetzen von Niederschlag. Zusätzlich lösen die Eispartikel SIP aus, die die Vereisung weiter beschleunigen. Ferner ist die marine Grenzschicht turbulent (Brunke et al., 2022) und die Wolken erfahren kleinskalige Auf- und Abwinde, die den Mischphasenwolkenzustand laut Yang et al. (2015) für mehrere Stunden aufrechterhalten können. Aufgrund der dynamischen Einflüsse wird bei starken Aufwinden weiterhin Aerosol zu Wolkentropfen aktiviert und bei Abwinden verdampfen kleine Wassertropfen zugunsten eines effizienteren WBF. Gleichzeitig beginnen Eiskristalle bei Temperaturen >0 °C an der Wolkenunterkante zu schmelzen. Zusammen führen Auf- und Abwinde zu einem Recycling von Wassertropfen und Eispartikel (Korolev, 2008; Yang et al., 2015). Die höheren dNdlogD<sub>p</sub>-Konzentrationen der Wassertropfen in Mischphasenwolken für Durchmesser >100 µm gegenüber Flüssigwolken stammen von der fehlerhaften Zuordnung der Eispartikel und spiegeln keinen physikalischen



**Abbildung 5.13:** Häufigkeit von Niederschlag und Wolken entlang der Messflüge in den Winter- und Sommerkampagnenphasen 2020, 2021 und 2022. Die anteilige Wolkenphase ist in Flüssig- (Kreise) und Mischphase (Kreuze) gegeben. Der Anteil der Messflüge, die stratiforme Wolken beinhalten, siehe Tabelle 5.2, ist grau dargestellt. Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (2023).

Prozess wider. Deshalb können nur Aussagen mittels der absoluten Teilchenkonzentration beider Aggregatzustände getroffen werden. Dennoch zeigen Mischphasenwolken einen signifikant höheren Anteil an Niederschlagspartikeln als Flüssigwolken. Folglich begünstigen Mischphasenwolken die Niederschlagsbildung. Eine raschere Niederschlagsbildung verkürzt die Lebensdauer der Wolken. Da insbesondere niedrige Wolken kühlend wirken (Hartmann et al., 1992) und die verkürzte Lebensdauer den Wolkenbedeckungsgrad verringert, führt die durch die Eisphase ausgelöste Niederschlagsbildung in Mischphasenwolken zu einer Erwärmung der Atmosphäre. Umgekehrt zeigen Mülmenstädt et al. (2015), dass in einer wärmeren Atmosphäre mehr Flüssigwolken mit höheren Lebensdauern vorzufinden sind, die in den CMIP6-Modellen unzureichend erfasst sind. Die länger existierenden Flüssigwolken können durch Reflexion von Sonnenstrahlung zu einer stärkeren Abkühlung in den Extratropen und gemäßigten Breiten gegenüber den bisherigen Simulationen der CMIP6-Modelle führen. In diesem Zusammenhang können die Parametrisierungen der Niederschlagsbildung in Mischphasenwolken der CMIP6-Modelle mit den ACTIVATE insitu Mischphasenwolkendaten verglichen werden, um den Einfluss auf die Lebensdauer und die daraus resultierende Änderung der Strahlungsbilanz näher zu bestimmen.

#### 5.2.5 Verteilung von Wolken und Niederschlag

Die Flüssig- und Mischphasenwolken wurden in den oberen Unterabschnitten ausführlich diskutiert. Da der Datensatz Niederschlagsmessungen enthält, sollen diese im Folgenden zusätzlich einbezogen und ein Überblick über die Häufigkeit und räumliche Verteilung der Messungen gegeben werden. Abb. 5.13 zeigt die Häufigkeit von Niederschlagsund Wolkenmessungen der Winter- und Sommerkampagnenphasen 2020, 2021 und 2022. Dabei wurden alle Datenpunkte, die in die entsprechenden Kategorien Niederschlag und Wolken, welche in Unterabschnitt 5.2.1 definiert wurden, berücksichtigt. Eine weitere Unterscheidung der Phase zeigt den jeweiligen Flüssig- und Mischphasenanteil. Im Winter liegt die Gesamthäufigkeit der Wolkenmessungen zwischen 6,5 und 9%, während im Sommer eine größere Spanne von 3 und 11 % beobachtet wurde. Wie bereits erwähnt, wurden mehrminütige Wolkenereignisse von stratiformen Wolkendecken mit Strati oder Stratocumuli in den Messflügen 2022 nördlich von 39°N gemessen. Die Messungen der stratiformen Wolken tragen wesentlich zur ermittelten Häufigkeit bei. Im Winter 2022 wurden mit 55 Messflügen mehr Flüge als im Sommer 2022 (13 Messflüge) durchgeführt. Die Winter-/Sommerkampagnenphasen 2022 enthalten zwei/drei Messflüge nördlich von 39°N mit stratiformen Wolkendecken und dementsprechend ist der prozentuale Anteil der gemessenen stratiformen Wolken im Sommer 2022 höher. Die räumliche Ausdehnung der stratiformen Wolken ist beträchtlich größer als die des typischen Cumulus während der Kampagnenphasen 2020 und 2021. Daher ist die Anzahl der Datenpunkte und somit die Statistik deutlich verschieden und kann nicht direkt mit anderen Kampagnenphasen verglichen werden. Deshalb werden für den Vergleich die von Messflügen, die überwiegend stratiforme Wolken beinhalten, bereinigten Datensätze des Winters 2022\* und Sommers 2022<sup>†</sup> herangezogen. Die Erkenntnis eines höheren Wolkenbedeckungsgrads im Winter, aus der Beobachtung definierter Wolkenereignisse in Unterabschnitt 5.2.2, spiegeln sich in der Häufigkeit der Wolkenmessungen wider. Nimmt man die akkumulierte Messzeit der Datenpunkte, wie in Unterabschnitt 5.2.2, als Indikator für die Wolkenbreite, dann deutet das häufigere Vorkommen von Wolkenmessungen in den Winterkampagnenphasen gegenüber dem Sommer 2020, 2021 und 2022<sup>†</sup> auf einen größeren Wolkenbedeckungsgrad im Winter hin. Die Wolkendecken im Sommer sind folglich durch mehr wolkenfreie Bereiche gekennzeichnet und die Wolkenbreite ist geringer. Der Unterschied zwischen Sommer 2020 und 2021/2022<sup>†</sup> könnte auf die unterschiedlichen Zeiträume des Spätsommers 2020 und des Frühjahrs 2021/2020<sup>†</sup> zurückzuführen sein. Eine ähnliche Verringerung des Wolkenanteils vom Frühjahr bis zum Spätsommer wurde in einer Analyse von Satellitendaten von CloudSat und Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation (CALIP-SO) festgestellt (Painemal et al., 2021). Es ist zu betonen, dass im Allgemeinen die in-situ abgeleitete Bewölkung nicht direkt mit der vom Satelliten abgeleiteten verglichen werden kann. ACTIVATE ist ein Sonderfall, da für jeden Flug die gleiche Strategie verwendet wurde,



**Abbildung 5.14:** Räumliche Verteilung von Wolken- (links) und Niederschlagsmessungen (rechts) der Sommerkampagnenphasen in Gitterzellen von 0,2° Breiten- und Längengraden. Die oberen Grafiken (a, c) zeigen die Anzahl der Wolken- (orange) und Niederschlagsdatenpunkte (violett). Die unteren Grafiken (b, d) zeigen den relativen Anteil der Wolken- und Niederschlagsmessungen farblich kodiert. Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (2023).

umfangreiche Statistiken zur Verfügung stehen und die Wolkenbreite der vorherrschenden Cumuli hauptsächlich innerhalb eines Flugabschnitts des Ensembles lag.

Die Niederschlagshäufigkeit in Abb. 5.13 zeigt höhere Werte im Winter (3 bis 6 %) als im Sommer (1,3 bis 1,6 %) und stimmt qualitativ mit der Klimatologie aus Satellitenbeobachtungen in Painemal et al. (2021) überein. Das Auftreten der Mischphase in Wolken als auch Niederschlag schwankt zwischen 1 und 2 % in den Winterkampagnenphasen. Damit ist der relative Mischphasenanteil im Niederschlag höher als in Wolken. Das höchste Niederschlagsaufkommen wurde im Winter 2021 gemessen. Der erhöhte Anteil an Mischphasenniederschlag im Winter steht im Einklang mit der beobachteten höheren Konzentration von Partikeln mit Durchmessern >100 µm in Mischphasenwolken, die folglich Niederschlag begünstigen.

Die räumliche Verteilung der Niederschlags- und Wolkenmessungen aller Sommerkampagnenphasen ist in Abb. 5.14 gezeigt. Die meisten Messflüge im Sommer wurden über den



**Abbildung 5.15:** Räumliche Verteilung von Wolken- (links) und Niederschlagsmessungen (rechts) der Winterkampagnenphasen in Gitterzellen von 0,2° Breiten- und Längengraden. Die oberen Grafiken (a, d) zeigen die Anzahl der Wolken- (orange) und Niederschlagsdatenpunkte (violett). Die mittleren (b, e)/unteren (c, f) Grafiken zeigen den relativen Anteil/Mischphasenanteil der Wolken- und Niederschlagsmessungen farblich kodiert. Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (2023).

westlichen Flugkorridor durchgeführt. Die Wolkenmessungen im Sommer sind über die gesamten Flugrouten verteilt. Dagegen wurde auf Flugabschnitten zwischen dem westlichen und südwestlichen Flugkorridor und nördlich von 37,5°N nur selten Niederschlag gemessen. Insbesondere leicht nördlich des westlichen Flugkorridors (37,5°N bis 39,5°N und 73°W bis 70°W) haben Wolken das häufigste Vorkommen bei gleichzeitig kaum gemessenem Niederschlag. Die Messungen nördlich von 38,5°N und östlich von 71°W zeigen die

stratiformen Wolkendecken, die meist aus über 50 % Wolkenmessungen in den 0,2° Längenund Breitengrad-Gitterzellen bestehen, während im Rest der Region die Wolkenmessungen meist unter 10 % liegen. Die Niederschlagsmessungen liegen überwiegend unterhalb von 5 % und zeigen keine räumliche Präferenz, vor allem wurde kein Niederschlag im Gebiet der stratiformen Wolkendecken beobachtet.

Die räumliche Verteilung der Niederschlags- und Wolkenmessungen aller Winterkampagnenphasen ist in Abb. 5.15 dargestellt. Wie im Sommer wurden die meisten Messungen entlang des westlichen und südwestlichen Flugkorridors durchgeführt. Falls der westliche Flugkorridor genommen wurde, sind Niederschlags- und Wolkenmessungen an fast allen Orten gleichzeitig zu sehen. Im Gegensatz dazu treten Niederschlagsmessungen meist in südwestlicher Richtung nach Verlassen des südwestlichen Korridors auf und sind kaum in südlicher Richtung zu beobachten. Die relative Häufigkeit zeigt, dass Wolkenmessungen im Winter häufiger als im Sommer vorkommen, mit meist 20 % - 30 %. Östlich von 74°W ist ein vermehrtes Auftreten von Wolkenmessungen zu beobachten, während Niederschlagsmessungen weiter östlich ab 71,5°W häufiger vorkommen. Diese Verlagerung der Niederschläge nach Osten hängt mit der Dynamik der Tiefdrucksysteme zusammen, wobei sich die Grenzschichtwolken westlich des Tiefdruckgebietes (postfrontal) entwickeln und die Niederschläge eher über dem östlichen Rand des postfrontalen Gebietes auftreten, wo synoptische Auftriebsbewegungen häufiger sind (Painemal et al., 2023). Ein verstärktes Auftreten von Niederschlag mit zunehmender Entfernung von der Küste wurde bei typischen Wolkenbedingungen im NWA (Dadashazar et al., 2021a) und in CAOs beobachtet (Tornow et al., 2021). Die Bedeutung von winterlichen Wetterstörungen in den mittleren Breiten für das Auftreten von Wolken und Niederschlag kann abgeschätzt werden, indem die synoptische Klassifikation von (Painemal et al., 2023) auf die einzelnen Forschungsflüge angewendet wird. 52 % der Winterflüge sind durch eine mittel troposphärische Troglage gekennzeichnet, die entweder den gesamten NWA umfasst oder auf den westlichen Teil des NWA beschränkt ist. Diese Fälle sind typischerweise mit CAO-Bedingungen unterschiedlicher Intensität verbunden (ebd.). Das synoptische CAO-Muster ist gekennzeichnet durch ein Absinken der unteren Troposphäre und Nord-/Nordwestwinde, die die turbulenten Wärmeflüsse an der Oberfläche verstärken (ebd.) und damit wahrscheinlich auch die Turbulenz in der Grenzschicht. All diese Bedingungen begünstigen die Bildung tiefer Wolken und Niederschläge in der Nähe des westlichen Sektors von Tiefdruckgebieten in mittleren Breiten (ebd.). Im Gegensatz dazu ist die synoptische Variabilität im Sommer weniger ausgeprägt und durch Störungen der geopotentiellen Höhe in den mittleren Breiten gekennzeichnet, die um 50 % geringer sind als im Winter. Dies führt zu einer semipermanenten Hochdruckzone, die synoptischen Schwankungen in Stärke und Ausdehnung unterliegt. Die sommerliche Hochdruckzone führt zu schwacher thermischer Turbulenz an der Oberfläche und geringerer statischer Stabilität unter einer warmen Meeresoberfläche, dies begünstigt die Bildung von

dünnen Cumuli, die eine geringe räumliche Bedeckung aufweisen (Painemal et al., 2021).

Der prozentuale Anteil an Mischphase in Abb. 5.15c,f zeigt, dass die Wolkenmessungen nördlich von 35°N und östlich von 73°W mehr Mischphasenanteil als das südliche Gebiet haben. Insbesondere die stratiformen Wolkendecken haben mit meist über 50 % den höchsten Mischphasenanteil. Gleichzeitig wurden im Gebiet der stratiformen Wolkendecken in allen Gitterzellen auch Niederschlag mit einem noch höheren Mischphasenanteil von meist über 70 % gemessen. Dies bestätigt die Niederschlagsbildung durch die Eisphase in Mischphasenwolken. Der Unterschied zwischen den Niederschlags- und Wolkenmischphasenanteilen ist in der gesamten Messregion überwiegend größer als 20 % und nimmt zum Süden hin ab.

## KAPITEL 6

### Einfluss von Dynamik und Aerosol auf Wolkentropfenkonzentrationen

In diesem Kapitel wird der Fokus auf die Wolkenbildung an der Wolkenunterkante gelegt. In Abschnitt 5.2 wurde die Definition von Wolken erarbeitet und eine Übersicht über ihre mikrophysikalischen Eigenschaften, Saisonalität, Häufigkeit und räumliche Verteilung gegeben. Insbesondere die saisonalen Unterschiede der mikrophysikalischen Eigenschaften sollen im Folgenden bezüglich der Wolkenbildung in den Kampagnenphasen 2020 diskutiert werden. Dazu wird zunächst die Methode des Wahrscheinlichkeitsabgleichs (PMM) vorgestellt. Die sorgfältige Einteilung der Messungen ist die Voraussetzung für die Anwendbarkeit der PMM und wird für die verwendeten Messungen in der Nähe der Wolkenunterkante detailliert beschrieben. Anschließend wird der Einfluss der Dynamik mit Hilfe der PMM, der Variabilität und Größe von w, den Schätzungen der zugehörigen  $S_{max}$  und der Suszeptibilität von w auf  $N_{\rm flüssig}$  des jeweiligen  $N_{\rm CCN_{0.43\%}}$ -Hintergrunds untersucht. Zur Quantifizierung des saisonalen Aerosolbeitrags zur Aktivierung der vorhanden Wolkenkondensationskerne werden die Aerosolgrößenverteilungen und die Zusammensetzung der Aerosolspezies herangezogen.

#### 6.1 PMM: Methode des Wahrscheinlichkeitsabgleichs

Die Methode des Wahrscheinlichkeitsabgleichs (PMM von *probability matching method*) wurde von Calheiros und Zawadzki (1987) für einen statistischen Vergleich der Radarreflexion mit der Regenrate vorgeschlagen. Rosenfeld et al. (1994) haben die mittels der PMM abgeleiteten Beziehung verifiziert und gezeigt, dass die PMM der gebräuchlichen Regression nach dem Potenzgesetz überlegen ist. Weitere Verbesserungen durch die Berücksichtigung physikalischer Parameter zur Klassifizierung verschiedener Regenarten wurden von Rosenfeld et al. (1995) vorgenommen. Die mathematische Begründung und Anwendbarkeit der PMM wurde inklusive einer Fehlerabschätzung von Haddad und Rosenfeld (1997) dis-



**Abbildung 6.1:** Verwendete Paare (gelb und orange schattierte Bereiche) des Ensembles, die jeweils einen Flugabschnitt unter- und oberhalb der Wolkenunterkante enthalten. Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (2022).

kutiert. Braga et al. (2017a) zeigen, dass die PMM für Wolken angewendet werden kann, um eine adäquate Beziehung zwischen w und  $N_{\text{flüssig}}$  zu erhalten. Die PMM basiert auf der Annahme, dass sich die Beziehung zweier Parameter, die aus nicht zeitgleichen Messungen stammen, die die gleichen klimatologischen und physikalischen Umgebungsbedingungen haben und monoton miteinander wachsen, durch den Wahrscheinlichkeitsabgleich der Dichtefunktionen bestimmen lässt. Daher müssen die Umgebungsbedingungen der in-situ Messungen a priori klassifiziert werden. Die Monotonie zwischen w und Nflüssig ist durch die in Abschnitt 2.2 beschriebene Theorie zur Wolkenbildung gegeben, da w eine positive Korrelation mit S aufweist und S wiederum positiv mit N<sub>CCN</sub> und folglich N<sub>flüssig</sub> korreliert. Somit sind die Grundvoraussetzungen für die Anwendbarkeit der PMM für die Wolkenbildung gegeben. Die Beziehung zwischen w und Nflüssig wird durch den Vergleich der Perzentilwerte der Dichtefunktionen der Parameter bestimmt. Weitere Details zum mathematischen Hintergrund sind in Haddad und Rosenfeld (1997) beschrieben. Braga et al. (2021) zeigen eine gute Übereinstimmung zwischen der mittels der PMM abgeleiteten Beziehung aus den w und N<sub>flüssig</sub> Messungen an der Wolkenbasis konvektiver Wolken und den Schätzungen eines adiabatischen Luftpaketmodells.

#### 6.2 Messungen in der Wolkenbasis

Für die Untersuchung der Wolkenbildung werden ausschließlich Messdaten in der Nähe der Wolkenunterkante betrachtet. Die Verwendung der ersten zwei Paare eines Ensembles von aufeinanderfolgenden Flugabschnitten unter- und oberhalb der Wolkenunterkante gewährleistet, dass Umgebungsunterschiede bei der Aufzeichnung der Messdaten minimiert werden, siehe Abb. 6.1. Zur Charakterisierung des Aerosolhintergrunds wird daher der letz-



**Abbildung 6.2:** Beispielpaar vom 15.02.2020 mit zugehörigen  $N_{CCN}$ -Scans unterhalb der Wolkenunterkante (gelb), sowie  $N_{flüssig}$ - und w-Messungen oberhalb der Wolkenunterkante (blau) (a). Die Partikelgrößenverteilung der 2D-S-FCDP Kombination als zeitliches Histogramm (b) und gemittelt (c). Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (2022).

te vollständige  $N_{\rm CCN}$ -Scan oder die letzten 60 s an  $N_{\rm CCN_{0.43\%}}$ -Messungen bei konstanter *S* des Flugabschnitts unterhalb der Wolkenunterkante verwendet. Dadurch ist der horizontale Abstand zu den darauffolgenden Wolkenmessungen oberhalb der Wolkenunterkante so gering wie möglich und nie größer als 40 km. Wolkenereignisse sind wie in Unterabschnitt 5.2.1 definiert.

Paare mit Niederschlagspartikeln sowohl unterhalb als auch in der Wolke wurden aus der weiteren Analyse ausgeschlossen, da große, am Aerosoleinlass zerplatzende Partikel, die  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Messungen beeinflussen und Niederschlag Aerosole aus der Atmosphäre auswäscht. Zudem deutet Niederschlag auf eine spätere Phase des Wolkenlebenszyklus hin, in dem Koaleszenz  $N_{\text{flüssig}}$  verändert hat. Für die weitere Analyse hinsichtlich der Dynamik werden folgende Daten verwendet: die  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Verteilung, die entweder im kontinuierlichen oder Scan-Modus unterhalb der Wolkenunterkante gemessen wurde, einer aus der  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Verteilung abgeleiteten mittleren  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ , sowie den  $N_{\text{flüssig}}$  und positiven w aus Wolkenmessungen oberhalb der Wolkenunterkante.

Abb. 6.2a zeigt die verwendeten mikrophysikalischen Wolken- und Aerosolparameter eines Beispielpaars. Der für die Umgebung des Paares repräsentative N<sub>CCN0.43%</sub>-Hintergrund beträgt (440  $\pm$  20) cm<sup>-3</sup> und berechnet sich aus dem Mittelwert der N<sub>CCN</sub>-Messungen unterhalb der Wolkenunterkante zwischen 0,40 bis 0,46 % Übersättigung des CCN-100-Scans, der den Wolkenmessungen am nächsten liegt. Die Ähnlichkeit der CCN-100-Scans zeigt die Homogenität des N<sub>CCN0.43%</sub>-Hintergrunds. Die N<sub>flüssig</sub>- und w-Mittelwerte aller Wolkenmessungen oberhalb der Wolkenunterkante betragen (385  $\pm$  171) cm<sup>-3</sup> und (1,85  $\pm$  0,82) m s<sup>-1</sup>. In Abb. 6.2b ist die Größenverteilung der 2D-S-FCDP Kombination dargestellt und zeigt, dass im gesamten Paar keine zweite Mode an Niederschlagspartikeln gemessen wurde. Die FCDP misst einen konstanten Partikelhintergrund im Größenbereich zwischen 3 und 12 µm mit Konzentrationen von 0,1 bis 1 cm<sup>-3</sup>, welcher in jedem Flugabschnitt unterhalb der Wolkenunterkante aller verwendeter Paare vorhanden ist, aber in Flughöhen oberhalb der Wolkenobergrenze und über der marinen Grenzschicht verschwindet (nicht gezeigt). Die Daten der relativen Luftfeuchtigkeit zeigen für beide Jahreszeiten Werte von über 75 % unterhalb der Wolkenunterkante, dies deutet auf aktiviertes Meersalzaerosol, da Meersalz stark hydrophil ist und bereits bei niedrigeren relativen Feuchten über 75 % einen Wassertropfen ausbildet (Tang et al., 1997; Zieger et al., 2017; Bi et al., 2018). Die mittlere Partikelgrößenverteilung in Abb. 6.2c bestätigt die Abwesenheit der Niederschlagsmode und zeigt die Übereinstimmung der FCDP und 2D-S im Überlappungsbereich.

Alle verwendeten Paare der Winterkampagnenphase 2020 sind in Tabelle 6.1 aufgelistet. Die mit Hilfe der PMM abgeleiteten Ergebnisse sind robuster, wenn enge a priori Grenzen für die Klassifizierung ähnlicher Umgebungsbedingungen gewählt werden und die Statistik der einzelnen Paare ausreichend ist. Deshalb werden alle Paare wie folgt gefiltert. Für eine ausreichende Statistik an Wolkendaten des jeweiligen  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Hintergrunds werden ausschließlich Paare mit einer minimalen akkumulierten Messzeit in Wolken ( $t_W$ ) von 10 s betrachtet. Berechnungen eines adiabatischen Luftpaketmodells zeigen, dass  $N_{\text{flüssig}}$  ein Maximum in einer bestimmten Entfernung zur Wolkenunterkante ( $h_{\text{WU}}$ ), abhängig von w und der korrespondierenden  $S_{\text{max}}$ -Schätzung, erreicht (Braga et al., 2021). Die Verwendung von Paaren mit  $h_{\text{WU}}$ >35 m gewährleistet, dass die Aktivierung von CCN zu Wolkentropfen ausreichend Zeit hatte.  $h_{\text{WU}}$  wird mit der Mitte der Differenz zwischen den mittleren Höhen

der Flugabschnitte unter- und oberhalb der Wolkenunterkante abgeschätzt.

Datum	<i>t</i> <sub>inital</sub>	L <sub>max</sub>	$t_{\rm W}$	N <sub>CCN0.43%</sub>	w	N <sub>flüssig</sub>	$h_{ m WU}$
	UTC	km	S	$\mathrm{cm}^{-3}$	${\rm ms^{-1}}$	$\mathrm{cm}^{-3}$	m
14.02.2020	17:21:32	37.2	19	647 (±35)	0.83 (±0.56)	298 (±173)	127 (±4)
14.02.2020*	17:30:17	35.3	28	664 (±50)	1.67 (±0.70)	593 (±492)	136 (±14)
14.02.2020	17:58:43	28.3	51	582 (±46)	1.74 (±1.21)	723 (±344)	103 (±5)
14.02.2020*	18:05:17	35.6	44	582 (±36)	2.07 (±1.26)	570 (±308)	111 (±3)
15.02.2020	17:09:31	22.9	59	436 (±37)	0.62 (±0.48)	389 (±217)	82 (±6)
15.02.2020	17:18:16	19.8	58	630 (±36)	0.63 (±0.33)	648 (±279)	73 (±2)
15.02.2020	18:23:53	29.4	34	489 (±34)	0.87 (±0.52)	297 (±223)	147 (±6)
15.02.2020	18:32:38	38.4	130	440 (±20)	1.85 (±0.82)	385 (±171)	200 (±3)
17.02.2020*	17:41:11	40.0	74	1564 (±65)	0.25 (±0.29)	930 (±663)	93 (±3)
27.02.2020*	18:47:10	32.7	62	659 (±39)	0.72 (±0.53)	671 (±357)	98 (±5)
27.02.2020	18:55:55	29.7	36	575 (±46)	0.64 (±0.53)	336 (±218)	125 (±6)
27.02.2020	19:28:43	37.5	41	582 (±29)	0.73 (±0.54)	467 (±250)	145 (±5)
27.02.2020	19:39:39	33.2	48	656 (±42)	0.91 (±0.77)	355 (±224)	189 (±19)
27.02.2020	20:10:17	28.7	42	674 (±29)	1.13 (±0.94)	716 (±377)	151 (±4)
27.02.2020	20:19:02	31.9	35	650 (±35)	$0.83 (\pm 0.68)$	647 (±292)	199 (±4)
01.03.2020*	14:10:32	28.2	96	1217 (±93)	1.57 (±1.28)	1020 (±556)	113 (±4)
01.03.2020	15:00:51	37.2	74	361 (±19)	1.54 (±1.63)	372 (±197)	169 (±5)
01.03.2020*	16:02:06	36.7	51	769 (±41)	1.46 (±1.30)	818 (±721)	139 (±3)
06.03.2020	19:34:26	32.3	55	991 (±46)	0.99 (±0.73)	1367 (±958)	208 (±6)
06.03.2020	19:43:11	28.3	36	1788 (±109)	1.80 (±1.06)	1157 (±912)	100 (±3)
06.03.2020	20:15:59	29.9	49	1501 (±71)	1.84 (±1.06)	1014 (±742)	130 (±6)
06.03.2020*	20:24:44	34.7	33	945 (±53)	1.55 (±1.27)	397 (±358)	193 (±5)
08.03.2020	14:34:49	25.0	39	183 (±28)	$1.05 (\pm 0.88)$	434 (±228)	117 (±3)
08.03.2020	14:44:29	29.2	17	245 (±31)	1.35 (±0.68)	498 (±214)	135 (±3)
08.03.2020	15:11:45	28.7	112	164 (±26)	0.46 (±0.45)	208 (±93)	173 (±4)
08.03.2020	15:23:22	28.3	72	96 (±18)	0.95 (±0.98)	218 (±101)	163 (±4)
08.03.2020	15:52:58	30.1	56	196 (±27)	0.83 (±0.85)	386 (±212)	91 (±3)
08.03.2020	16:02:17	19.8	65	225 (±33)	1.52 (±1.34)	346 (±149)	129 (±4)
09.03.2020	17:27:27	28.6	26	291 (±34)	0.63 (±0.48)	208 (±146)	125 (±6)
09.03.2020	17:57:47	23.7	20	299 (±44)	0.61 (±0.44)	247 (±125)	121 (±4)
09.03.2020	18:41:47	17.5	18	335 (±46)	0.43 (±0.28)	215 (±114)	224 (±2)
09.03.2020	18:50:13	37.4	24	307 (±36)	0.64 (±0.56)	285 (±171)	196 (±11)

**Tabelle 6.1:** Alle verwendeten Paare der Winterkampagnenphase 2020 mit Datum, Uhrzeit  $(t_{inital}), L_{max}, t_W$ , sowie die Mittelwerte und Standardabweichung in Klammern von  $N_{CCN_{0.43\%}}$ , w,  $N_{flüssig}$  und  $h_{WU}$ . Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (2022).

Datum	<i>t</i> <sub>inital</sub>	$L_{\max}$	$t_{\mathrm{W}}$	$N_{\mathrm{CCN}_{0.43\%}}$	W	$N_{ m flüssig}$	$h_{ m WU}$
	UTC	km	S	$\mathrm{cm}^{-3}$	${\rm ms^{-1}}$	$\mathrm{cm}^{-3}$	m
11.03.2020	13:46:55	25.3	22	875 (±101)	0.45 (±0.46)	780 (±430)	62 (±2)
11.03.2020	14:26:13	23.3	10	986 (±134)	$0.26 (\pm 0.21)$	320 (±221)	42 (±3)
12.03.2020	14:43:10	25.2	19	586 (±84)	$1.64 (\pm 1.07)$	675 (±383)	141 (±4)
12.03.2020	14:51:22	27.4	30	500 (±91)	$0.77 (\pm 0.70)$	458 (±275)	140 (±4)
12.03.2020	15:19:57	21.2	42	587 (±102)	0.78 (±0.72)	654 (±418)	71 (±2)
12.03.2020	16:06:00	22.3	34	494 (±58)	$0.68 (\pm 0.48)$	559 (±255)	116 (±3)
12.03.2020	16:14:01	38.8	25	455 (±72)	0.69 (±0.57)	584 (±261)	124 (±46)
Ø		29.3	45	612	1.02	535	130

\* Ein einzelner CCN-100-Scan im Flugabschnitt unterhalb der Wolkenunterkante.

Paare mit einem inhomogenen  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Hintergrund werden aus der weiteren Analyse ausgeschlossen. Die Homogenität des  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Hintergrunds ist aus den kontinuierlichen N<sub>CCN0.437</sub>-Messungen oder dem Unterschied zweier CCN-100-Scans unterhalb der Wolkenunterkante ersichtlich. Paare, in denen die Homogenität des N<sub>CCN0.432</sub>-Hintergrunds aufgrund von einem einzelnen CCN-100-Scan unbestimmbar ist, sind in Tabelle 6.1 entsprechend gekennzeichnet und werden zugunsten der Statistik berücksichtigt, da die Auftrittswahrscheinlichkeit von Inhomogenität in den bestimmbaren Paaren <10 % ist. Beispielsweise wurde eine Luftmasse mit starker Inhomogenität der Aerosolteilchenkonzentration am 15.02.2020 zwischen 17:42 und 17:57 beprobt, welche in beiden Paaren des entsprechenden Ensembles beobachtet wurde und auf eine abgekapselte Aerosolfahne hinweist. In stark inhomogenen N<sub>CCN0.43%</sub>-Hintergründen ist die Verbindung von CCN und N<sub>flüssig</sub> durch Wolkenbildung fraglich. In Tabelle 6.1 sind insgesamt 39 Paare aus zehn Messflügen gezeigt, bei denen alle erforderlichen Daten für die Anwendung der PMM vorhanden sind. Alle Paare umfassen zusammen eine  $t_{\rm W}$  von 1786 s. Die mittleren  $N_{\rm CCN_{0.43\%}}$ -Werte der Hintergründe reichen von 96 cm<sup>-3</sup> unter sauberen Bedingungen bis zu 1788 cm<sup>-3</sup> in Umgebungen mit hoher Aerosolbelastung. Der Mittelwert von  $N_{\rm flüssig}$  liegt zwischen 200 und 1367 cm<sup>-3</sup> und der gemessene Mittelwert der w-Verteilung reicht von 0,26 bis 2,07 m s<sup>-1</sup>. Der maximale horizontale Abstand zwischen den Aerosolmessungen unterhalb der Wolkenunterkante und den Wolkenmessungen oberhalb der Wolkenunterkante ( $L_{max}$ ) liegt meist unter 30 km und überschreitet nie 40 km.

Das gleiche Filterverfahren wurde auf die im August gemessenen Paare der Sommerkampagnenphase 2020 angewandt. Zusätzlich sind alle Paare am 26.08.2020 von der Analyse ausgeschlossen, da hier eine großflächige Rauchschicht beobachtet wurde, die möglicherweise den Wolkenbildungsprozess verändert und nicht repräsentativ für die natürlichen

Datum	t <sub>inital</sub> UTC	L <sub>max</sub> km	t <sub>W</sub> s	${N_{ m CCN_{0.43\%}}\over  m cm^{-3}}$	$\frac{w}{m s^{-1}}$	$N_{ m fl\ddot{u}ssig}\  m cm^{-3}$	$h_{ m WU} \ { m m}$
13 Aug 2020	14:48:15	19.4	31	225 (±22)	0.55 (±0.32)	169 (±71)	129 (±13)
13 Aug 2020	16:59:29	25.1	55	267 (±30)	0.39 (±0.27)	145 (±68)	164 (±2)
17 Aug 2020	14:54:38	22.7	26	304 (±30)	$0.68 (\pm 0.37)$	208 (±87)	152 (±12)
17 Aug 2020*	15:01:12	36.7	18	372 (±22)	$0.64 (\pm 0.42)$	163 (±105)	$101 (\pm 10)$
17 Aug 2020*	15:34:01	27.0	31	122 (±10)	$0.87 (\pm 0.70)$	103 (±62)	71 (±16)
17 Aug 2020*	16:57:07	36.5	15	204 (±16)	$0.82 (\pm 0.54)$	173 (±66)	127 (±6)
20 Aug 2020	14:42:26	20.0	18	1744 (±110)	$0.89 (\pm 0.69)$	649 (±510)	94 (±3)
20 Aug 2020*	14:49:00	30.1	11	1586 (±82)	0.95 (±1.16)	$658 (\pm 605)$	79 (±2)
20 Aug 2020*	15:13:03	35.0	20	1291 (±54)	$0.78 (\pm 0.58)$	484 (±462)	123 (±4)
20 Aug 2020*	15:54:36	31.7	24	1113 (±76)	0.71 (±0.54)	557 (±449)	89 (±2)
20 Aug 2020	16:03:21	26.2	24	1266 (±47)	0.72 (±0.48)	739 (±537)	61 (±3)
21 Aug 2020	15:35:56	32.2	20	1261 (±78)	0.35 (±0.28)	458 (±373)	57 (±9)
25 Aug 2020	15:10:29	28.8	15	1627 (±101)	$0.84 (\pm 0.66)$	338 (±232)	129 (±4)
25 Aug 2020	15:19:14	16.1	10	1529 (±91)	$0.70 (\pm 0.65)$	440 (±324)	$136 (\pm 6)$
25 Aug 2020*	16:18:18	33.4	19	1794 (±89)	$0.59 (\pm 0.50)$	536 (±434)	82 (±3)
25 Aug 2020	16:27:02	35.3	23	1995 (±186)	0.35 (±0.27)	575 (±455)	105 (±3)
Ø		28.5	23	1044	0.68	400	106

**Tabelle 6.2:** Alle verwendeten Paare der Sommerkampagnenphase 2020 mit Datum, Uhrzeit  $(t_{inital})$ ,  $L_{max}$ ,  $t_W$ , sowie die Mittelwerte und Standardabweichung in Klammern von  $N_{CCN_{0.43\%}}$ , w,  $N_{flüssig}$  und  $h_{WI}$ . Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (2022).

\* Ein einzelner CCN-100-Scan im Flugabschnitt unterhalb der Wolkenunterkante.

Umgebungsbedingungen im NWA ist. Alle Paare, die den Filterkriterien entsprechen, sind in Tabelle 6.2 aufgeführt. Insgesamt werden 16 Paare aus fünf Messflügen mit  $t_{\rm W}$  von 360 s verwendet. Der vollständige Datensatz ist lediglich im August verfügbar, da keine N<sub>CCN</sub>-Messungen für September archiviert sind. Dies schränkt die Anzahl der verfügbaren Paare erheblich ein. Die geringere Durchschnitts- $t_{\rm W}$  von 23 s im Vergleich zu 45 s im Winter steht im Einklang mit dem in Unterabschnitt 5.2.2 gezeigten geringeren Wolkenanteil und Wolkenbreite im Sommer. Die mittleren  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Werte der Hintergründe reichen von 122 cm<sup>-3</sup> unter sauberen Bedingungen bis zu 1995 cm<sup>-3</sup> in Umgebungen mit hoher Aerosolbelastung. Die Paare im Sommer weisen eine bimodale Verteilung der N<sub>CCN0.43%</sub>-Hintergründe auf, welche innerhalb eines Tages ähnlich sind. Hohe N<sub>CCN0.43%</sub>-Hintergründe treten in einer höheren Frequenz als im Winter auf, und der Durchschnitts-N<sub>CCN043%</sub>-Hintergrund ist im Sommer mit 1044 cm $^{-3}$ über 70 % größer als im Winter. Der  $N_{\rm flüssig}$ -Mittelwert reicht von 103 bis 739 cm<sup>-3</sup>, und der Durchschnitts- $N_{\rm flüssig}$  von 400 cm<sup>-3</sup> ist im Vergleich zum Winter mit 535 cm<sup>-3</sup> um 25 % niedriger und in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen von Dadashazar et al. (2021b). Ein ähnlicher Trend ist bei den w-Messungen zu beobachten, bei denen der w-Mittelwert zwischen 0,35 bis 0,93 m s<sup>-1</sup> liegt. Der Vergleich der Durchschnitts-w von  $0,68 \text{ m s}^{-1}$  im Sommer zum Winter mit  $1,02 \text{ m s}^{-1}$  zeigt eine Verkleinerung von 30 %. Außerdem wurde eine geringere Variabilität in w mit einem Durchschnittswert von 0,53 m s<sup>-1</sup>



**Abbildung 6.3:** Wahrscheinlichkeitsverteilungen der niedrigen (L/blau), mittleren (M/orange) und hohen (H/rot)  $N_{CCN_{0.43\%}}$ -Hintergründe mit ihren Mittelwerten im Winter (a) und Sommer (b). Im Sommer wurden keine Paare im M-Hintergrund beobachtet. Die  $N_{CCN_{0.43\%}}$  sind in 30 cm<sup>-3</sup> breite Kanäle eingeteilt. Die Linien stellen eine Schätzung nach der Parzen-Fenster-Methode des Python-Pakets seaborn dar (Waskom, 2021). Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (2022).

(76 %) im Vergleich zu 0,76 m s<sup>-1</sup> (78 %) im Winter gemessen, dies deutet auf einen stärkeren dynamischen Einfluss und eine hohe Variabilität innerhalb eines Tages im Winter. Insgesamt zeigen die Messungen in der Wolkenbasis ein saisonal antizyklisches Verhalten zwischen  $N_{\rm flüssig}$  und  $N_{\rm CCN_{0.43\%}}$  und bestätigen die saisonal antizyklischen Beobachtungen von *AOD* und  $N_{\rm flüssig}$  von Dadashazar et al. (ebd.). Zusätzlich ist eine positive Korrelation zwischen  $N_{\rm flüssig}$  und w ersichtlich.

### 6.3 Dynamik: Aufwindgeschwindigkeit

Der Einfluss der Dynamik wird mit Hilfe der Korrelation von *w* und  $N_{\text{flüssig}}$  quantifiziert, die mit der PMM ermittelt wird. Für die Gewährleistung ähnlicher Umgebungsbedingungen, welche essenziell für die Anwendung der PMM sind, werden die Paare hinsichtlich ihrer mittleren  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$  in einen niedrigen (L), mittleren (M) und hohen (H)  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Hintergrund eingeteilt. Für einen adäquaten Vergleich teilen sich beide Jahreszeiten die Grenzwerte der L-, M- und H- $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Hintergründe, welche anhand der Minima zwischen den Moden der Verteilung aller mittleren  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Werte des Winters gewählt wurden. Der L-Hintergrund enthält  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$  vom gemessenen Minimum der Saison bis 372 cm<sup>-3</sup>, der M-Hintergrund erstreckt sich von 372 bis 769 cm<sup>-3</sup> und der H-Hintergrund ist über 769 cm<sup>-3</sup> bis zum jeweiligen Jahreszeitenmaximum definiert. In Abb. 6.3 sind die Wahrscheinlichkeitsverteilungen der  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Einzelmessungen der L-, M- und H-Hintergründe des Winters und Sommers 2020 dargestellt.

In Abb. 6.3a ist der Winter gezeigt. Die  $N_{\rm CCN_{0.43\%}}$ -Einzelmessungen des L-/M-/H-Hintergrunds erstrecken sich von 115 bis 451 cm<sup>-3</sup>/337 bis 941 cm<sup>-3</sup>/678 bis 1903 cm<sup>-3</sup> und haben einen Mittelwert von 251 cm<sup>-3</sup>/541 cm<sup>-3</sup>/1074 cm<sup>-3</sup>. Aufgrund der Verwendung von  $N_{\rm CCN_{0.43\%}}$ -Einzelmessungen gibt es Überlappungsbereiche zwischen den Hintergründen, welche einen kleinen Anteil der jeweiligen Gesamtmessungen darstellen. Deshalb ist die Trennung für die Anwendbarkeit der PMM ausreichend. Dasselbe gilt für den Sommer in Abb. 6.3b, wo nur Paare des L- und H-Hintergrunds gemessen wurden. Die  $N_{\rm CCN_{0.43\%}}$ -Einzelmessungen des L-/H-Hintergrunds im Sommer reichen von 181 bis 403 cm<sup>-3</sup>/971 bis 2275 cm<sup>-3</sup> mit einem Mittelwert von 273 cm<sup>-3</sup>/1513 cm<sup>-3</sup>. Der Minimalwert des Sommer-H-Hintergrunds ist im Vergleich zum Winter-H-Hintergrund erhöht, hat keinen deutlichen Spitzenwert und ist gleichmäßiger verteilt. Der H- $N_{\rm CCN_{0.43\%}}$ -Mittelwert ist im Sommer um 46 % gegenüber dem Winter erhöht, während die L-Hintergründe eine vergleichbare Form und Werteverteilung aufweisen. Interessanterweise wurde kein Paar des M-Hintergrunds im Sommer gemessen und die  $N_{\rm CCN_{0.43\%}}$ -Einzelmessungen zeigen entweder saubere oder hoch aerosolbelastete Bedingungen innerhalb eines Messflugs.

Abb. 6.4a zeigt die Anwendung der PMM auf alle  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Hintergründe des Winters 2020. Die Korrelation von  $N_{\text{flüssig}}$  zu w stellt den Anteil des zu Wolkentropfen aktivierten Aerosols aus der Aerosolgrößenverteilung für eine bestimmte w beziehungsweise *S* dar. Die Auswirkung ist aus der Steigung ersichtlich und daher wird die Suszeptibilität ( $\chi$ ) als Maß für den Einfluss von w auf  $N_{\text{flüssig}}$  herangezogen. Diese berechnet sich aus

$$\chi = \frac{\Delta N_{\rm flüssig}}{\Delta w}.$$
(6.1)

Als Schrittweite zur Bestimmung von  $\chi$  wurde  $\Delta w=0,2 \text{ m s}^{-1}$  verwendet. Der L-Hintergrund hat eine mittlere  $N_{\text{flüssig}}$  von  $(315 \pm 165) \text{ cm}^{-3}$  und zeigt die größten Auswirkungen von wauf  $N_{\text{flüssig}}$  bei niedrigen w und erreicht eine Sättigung für höhere w. Der M-Hintergrund hat einen ähnlichen Trend bei niedrigen w und einem Mittelwert von  $(518 \pm 304) \text{ cm}^{-3}$  der  $N_{\text{flüssig}}$ . Der Einfluss von w nimmt jedoch im Vergleich zum L-Hintergrund bei höheren wlangsamer ab und erreicht keine Sättigung. Dies ist aus dem gleichbleibenden Verlauf von  $\chi$  erkennbar. Der H-Hintergrund weist den stärksten Einfluss für  $w<1,8 \text{ m s}^{-1}$  auf und hat eine mittlere  $N_{\text{flüssig}}$  von  $(930 \pm 639) \text{ cm}^{-3}$ . Darüber hinaus gibt es eine zweite Mode mit einem starken Anstieg von  $N_{\text{flüssig}}$  für  $w>3 \text{ m s}^{-1}$ .

Die w>3 m s<sup>-1</sup> Mode des Winter-H-Hintergrunds könnte die Aktivierung kleinerer Aerosolpartikel aus der vorhandenen Aerosolpopulation darstellen. Da der kritische Durchmes-



**Abbildung 6.4:** Korrelation von  $N_{flüssig}$  zu w im Winter (a) und Sommer (b), die mit der PMM für den L-(blau), M-(orange) und H-Hintergrund (rot) abgeleitet wurden. Die schattierten Bereiche stellen die Messunsicherheit mit einem festen Beitrag von 20% und einem nach Haddad und Rosenfeld (1997) berechneten relativen Fehler, unter der Annahme, dass die Standardabweichung von  $N_{flüssig}$  in jeder Gruppe das Verhältnis der verrauschten Variation in den  $N_{flüssig}$ -Messungen zu der wahren Variation in  $N_{flüssig}$  darstellt, dar. Die  $S_{max}$ -Schätzung im Winter (c) und Sommer (d) für die jeweiligen  $N_{CCN_{0.43\%}}$ -Hintergründe, wobei die Unsicherheit als schraffierte Fläche dargestellt ist. Die vertikalen Linien entsprechen  $w_{eff}$  mit zugehörigen  $S_{max}$ . Die entsprechende Suszeptibilität von w auf  $N_{flüssig}$  im Winter (e) und Sommer (f) der  $N_{CCN_{0.43\%}}$ -Hintergründe. Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (2022).

ser der Aerosolaktivierung von *S* abhängt und bei höherer *S* zu kleineren Durchmessern verschoben wird, führt die positive Korrelation von *w* und *S* dazu, dass kleinere Aerosole bei höherem *w* aktiviert werden (Köhler, 1936; Dusek et al., 2006; Schulze et al., 2020). Die gemessenen  $N_{\text{flüssig}}$ -Mittelwerte sind etwas kleiner als die  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Durchschnittswerte der jeweiligen Hintergründe. Da die  $N_{\text{CCN}}$  bei einer künstlich eingestellten *S* von 0,43 % im CCN-100 gemessen wurden, deuten die niedrigeren  $N_{\text{flüssig}}$ -Mittelwerte gegenüber den

 $N_{\text{CCN}_{0.43\pi}}$ -Durchschnittswerten des H-Hintergrunds auf eine niedrigere mittlere *S* der Atmosphäre als im CCN-100 hin. Der L-Hintergrund weist einige Merkmale eines durch Aerosol begrenzten Regimes auf, in dem  $N_{\text{flüssig}}$  stark von der verfügbaren Aerosolpopulation abhängt, während der H-Hintergrund die Merkmale eines durch *w* begrenzten Regimes zeigt, in dem  $N_{\text{flüssig}}$  direkt proportional zu *w* ist (Reutter et al., 2009). Der M-Hintergrund liegt zwischen beiden Regimen und tendiert zu den Merkmalen eines durch *w* begrenzten Regimes, da  $N_{\text{flüssig}}$  bei hohem *w* keine Sättigung erreicht.

Die S<sub>max</sub>-Schätzwerte der w-Verteilung aller Winterhintergründe ist in Abb. 6.4c dargestellt. Die  $S_{\text{max}}$ -Werte bei  $w_{\text{eff}}$  nehmen mit zunehmender  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$  ab und betragen 0,27 %/0,24 %-/0,18 % im L-/M-/H-Hintergrund. Da die Variabilität von w mit größerem w höher ist, kann die lokale S von den abgeleiteten Smax-Schätzungen abweichen. Für den H-Hintergrund bestätigt die Smax-Schätzung eine geringere S als 0,43 %. Die Verringerung von Smax bei zunehmendem N<sub>CCN0.43%</sub> der Hintergründe zeigt die Wasserdampfkonkurrenz der aktivierten CCN. Eine hohe Teilchenkonzentration an CCN fungiert somit als Puffer und vermeidet höhere S, da die Wasserdampfkonkurrenz zu einem schnelleren Abbau des übersättigten Wasserdampfs beiträgt. Die mittlere Nflüssig des L-Hintergrunds liegt über der durchschnittlichen  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ , obwohl  $S_{\text{max}}$  nahe, aber für  $w < 3 \text{ m s}^{-1}$  unterhalb von 0,43 % liegt. Für  $w>3 \text{ m s}^{-1}$  nähert sich die  $S_{\text{max}}$ -Schätzung der CCN-100 S an. Eine mögliche Erklärung für die durchschnittlich größeren Nflüssig gegenüber N<sub>CCN0432</sub> ist ein größerer Beitrag des löslichen Aerosols der Aitkenmode einer bimodalen Aerosolgrößenverteilung des L-Hintergrunds (Pöhlker et al., 2021). Der L-Hintergrund kann mit einer abgelegenen Region mit geringem Beitrag von Aerosoltransport und der H-Hintergrund mit einer Region mit erhöhtem Aerosoltransport in Verbindung gesetzt werden. Nach Painemal et al. (2023) bestimmen vorrangig synoptische Bedingungen den Aerosoltransport in der marinen Grenzschicht des NWA. Der Aerosoltransport ausgehend von der Ostküste der USA verstärkt sich durch Westwinde in der marinen Grenzschicht, die durch eine nach Osten ziehende Tief-Hoch Front entstehen und bei einem Tief nördlich von Bermuda beständig bleiben. Dagegen treten Hochs vermehrt südlicher über oder südwestlich von Bermuda auf und bilden ein antizyklonales Windfeld aus, mit Nord-Nord-Westwinden parallel zur Küstenlinie, welche den Aerosoltransport auf den NWA vermindern (ebd.). Dementsprechend besteht der L-Hintergrund überwiegend aus marinem Aerosol, in dem ein großer Anteil an gut löslichem Meersalzaerosol in der Aitkenmode vorhanden sein kann, dies bestätigt die nähere Betrachtung in Abschnitt 6.4. Allgemein befinden sich die mittleren Nflüssig, unter Berücksichtigung der Messunsicherheiten und der Variabilität innerhalb der L-,M- und H-Hintergründe, in der Nähe der durchschnittlichen N<sub>CCN0,43%</sub>-Werte, mit dem Trend eines geringeren Anteils an aktiviertem Aerosol mit zunehmendem N<sub>CCN0 43%</sub>.

Abb. 6.4b zeigt die Anwendung der PMM auf die N<sub>CCN0.43%</sub>-Hintergründe des Sommers 2020.

Der L-/H-Hintergrund hat eine mittlere  $N_{\text{flüssig}}$  von  $(196 \pm 55) \text{ cm}^{-3}/(642 \pm 389) \text{ cm}^{-3}$ . Im L-Hintergrund hat der Einfluss von w auf N<sub>flüssig</sub> in beiden Saisons einen ähnlichen Trend bis zum maximal gemessenen w von 1,3 m s<sup>-1</sup> im Sommer. Allerdings zeigt ein Vergleich der maximalen  $\chi$ -Werte in Abb. 6.4e,f, dass  $\chi$  im Sommer kleiner ist. Dies spiegelt sich im Unterschied der Wertebereiche mit einem um 37 % reduzierten mittleren Nflüssig. Trotz der geringeren Statistik im Sommer stimmen die Beobachtungen von erniedrigten w nahe der Wolkenbasis gut mit den Ergebnissen der Untersuchung von Turbulenz und w der marinen Grenzschicht über dem NWA von Brunke et al. (2022) überein. Da die w-Verteilungen einen unterschiedlichen Größenbereich zwischen den Jahreszeiten abdecken, wird die maximale  $N_{\rm flüssig}$  von 293 cm<sup>-3</sup> im Sommer mit der  $N_{\rm flüssig}$  von 457 cm<sup>-3</sup> bei 1,3 m s<sup>-1</sup> im Winter verglichen. Der Unterschied stimmt mit dem der Mittelwerte überein. Die höheren Nflüssig im Winter stehen im Einklang mit höheren gemessenen horizontalen Windgeschwindigkeiten in den Flugabschnitten niedrigster Flughöhe (ebd.). Sie verhalten sich direkt proportional zur erwarteten Meersalz-Produktion und deuten auf ein erhöhtes Meersalzvorkommen im Winter hin. Im durch Aerosol begrenzten Regime des L-Hintergrunds könnten die horizontalen Windgeschwindigkeiten der limitierende Faktor für die erhöhten Nflüssig sein. Der H-Hintergrund weist einen nahezu konstanten Einfluss von w auf Nflüssig für den gesamten Wertebereich von wbis zu  $2\,{\rm m\,s^{-1}}$ auf und hat einen dem Winter ähnlichen Trend. Die maximale  $N_{\rm flüssig}$  ist im Sommer 1606 cm<sup>-3</sup> und die bei  $2 \,\mathrm{m \, s^{-1}}$  entsprechende  $N_{\rm flüssig}$  im Winter ist 1369 cm<sup>-3</sup> und damit im Sommer um 17 % erhöht. Unter Hinzunahme der  $S_{max}$ -Schätzung bei weff des Sommers in Abb. 6.4d, welche mit 0,11 % um 39 % geringer als im Winter ist, können die höheren  $N_{\text{flüssig}}$  bei  $2 \text{ m s}^{-1}$  im Sommer mit einem größeren CCN Aufkommen erklärt werden. Die N<sub>CCN0.43%</sub>-Mittelwerte der H-Hintergründe bestätigen dies mit einer um 46 % größeren  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$  im Sommer. Nichtsdestotrotz werden im Winter aufgrund von insgesamt höheren w<br/> höhere  $N_{\text{flüssig}}$  gemessen. Im Sommer wird der Effekt von größeren Aerosolteilchenkonzentrationen auf die  $N_{\rm flüssig}$  durch die niedrigeren w und damit korrelierenden kleineren S abgeschwächt, da ein kleinerer Anteil der vorhandenen Aerosolpopulation zu Wassertropfen aktiviert wird. Letztlich sind die w und korrespondierenden  $S_{\rm max}$  im Winter doppelt so groß und können den beobachteten Unterschied an  $N_{\rm flüssig}$  im H-Hintergrund erklären.

### 6.4 Aerosol: Wolkenkondensationskerne und Aerosolspezies

Der Einfluss des Aerosols wird im Folgenden anhand der Aerosol-Partikelgrößenverteilung (PSD<sub>a</sub>) und der Zusammensetzung der Aerosolspezies diskutiert. Dazu werden die Variabilität und Unterschiede der L-/M-/H- $N_{\rm CCN_{0.43\%}}$ -Hintergründe im Winter und Sommer 2020



**Abbildung 6.5:**  $PSD_a$  aus der SMPS-LAS Kombination der niedrigen (L/blau), mittleren (M/orange) und hohen (H/rot)  $N_{CCN_{0.43\%}}$ -Hintergründe mit ihrer mittleren Verteilung und der transparenten Verteilungen für einzelne Paare im Winter (a) und Sommer (b) 2020. Whiskerdiagramme von  $N_{>85}$  mit dem durch ein Kreuz markierten Mittelwert für Winter (c) und Sommer (d). Kein Sommerpaar kann dem M- $N_{CCN_{0.43\%}}$ -Hintergrund zugeordnet werden und ist daher in b) und d) nicht dargestellt. Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (2022).

verglichen. Die Variabilität der PSD<sub>a</sub> und das Aufkommen der chemischen Spezies fungieren hierbei als weitere Kriterien zur Beurteilung der Homogenität der vorhandenen Aerosolpopulation in den in Abschnitt 6.3 verwendeten  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Hintergründen. Die zur Einteilung genutzte  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$  ist eine Teilmenge der verfügbaren Aerosolpopulation. Die PSD<sub>a</sub> des Winters 2020 ist in Abb. 6.5a dargestellt. Die saubere Meeresumgebung (L) zeigt eine ausgeprägte bimodale Verteilung, bestehend aus einer Aitkenmode, die ihr Maximum bei etwa 20 nm hat, und einer Akkumulationsmode mit einem lokalen Maximum bei 100 nm. Im Gegensatz dazu zeigt der H-Hintergrund eine unimodale Verteilung mit einem flachen Peak zwischen 40 und 100 nm mit ähnlichen  $dNdlogD_p$ -Konzentrationen wie die L- und M-Hintergründe. Zusätzlich hat der H-Hintergrund ein Plateau unterhalb von 20 nm, dies weist auf eine überlappende Nukleationsmode hin. Die integrierte Aerosolteilchenkonzentration für Partikel größer als 85 nm ( $N_{>85}$ ), welche unterhalb der Wolkenunterkante gemessen wurde, ist in Abb. 6.5c dargestellt und zeigt einen stetigen Anstieg von 472 cm<sup>-3</sup> (L) über 658 cm<sup>-3</sup> (M) auf 1108 cm<sup>-3</sup> (H). Der signifikante Anstieg von  $N_{>85}$  deutet auf Aerosol-Wachstumsprozesse,

wie Kondensation und Koagulation, sowohl für die Aitken- als auch für die Akkumulationsmode hin. Die unimodale PSDa des H-Hintergrunds könnte demnach durch eine Überlagerung von Aitken- und Akkumulationsmode entstanden sein. Die Zusammensetzung der Aerosolspezies der einzelnen Moden ist unbekannt. Es ist davon auszugehen, dass sich die Moden aus verschiedenen chemischen Spezien zusammensetzen, da sich die Bildungsprozesse der Spezien unterscheiden, vergleiche Unterabschnitt 2.2.2. Insbesondere die Verschiebung der Aitkenmode hin zu größeren Durchmessern deutet auf Alterungsprozesse hin, die in Verbindung mit einem Transport aus größerer Entfernung gebracht werden können. Der M-Hintergrund in Abb. 6.5a zeigt eine bimodale Verteilung mit einem Maximum der Aitkenmode bei etwa 15 nm und einem lokalen Maximum der Akkumulationsmode bei 100 nm. Besonders der hohe Anteil an Partikeln unter 20 nm könnte auf den Bildungsprozess neuer Partikel aus der Gasphase, welcher im Englischen als New Particle Formation (NPF) bezeichnet wird, hinweisen (G. Zheng et al., 2021). Corral et al. (2022a) haben gezeigt, dass NPF im NWA häufiger während des Winters 2020 vorkommt und vor allem CAO typische Bedingungen wie niedrige Temperaturen, trockene Luft und kontinentale Emissionen mit NPF-Vorläufergasen die Bildung begünstigen. Da die Hintergründe über die mittlere N<sub>CCN0.43%</sub> eingeteilt sind und die  $N_{>85}$  stets größer sind als die korrespondierenden  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ , liegen die kritischen Aktivierungsradien der Aerosole bei 0,43 % S wahrscheinlich zwischen 85 bis 93 nm für die M- und H-Hintergründe und um 106 nm für den L-Hintergrund. Die N<sub>CCN0.43%</sub>-Hintergründe unterscheiden sich im Winter für Partikel <40 nm, wobei diese insbesondere im L- und M-Hintergrund einen hohen Anteil der verfügbaren Aerosolpopulation ausmachen. Partikel <40 nm werden im Weiteren aufgrund der Kelvin-Barriere als irrelevant für den Wolkenbildungsprozess betrachtet, aber als kritisches Reservoir für die Akkumulationsmode angesehen, da sich das Aerosol durch chemische und physikalische Alterungsprozesse vergrößert. Dies spiegelt sich in der PSD<sub>a</sub> des H-Hintergrunds wider. Gleichwohl zeigen die PSD<sub>a</sub> für alle integrierten Aerosolteilchenkonzentrationen mit einem kritischen Aktivierungsdurchmesser >40 nm, dass der H-Hintergrund immer den höchsten Anteil an möglichen CCN aufweist, gefolgt vom M-Hintergrund und schließlich dem L-Hintergrund. Der Anteil an möglichen CCN wird hierbei über die Partikelgröße und unabhängig von den chemischen Eigenschaften der darin vertretenden Spezies festgelegt. Der Ansatz der Partikelgröße folgt dabei Dusek et al. (2006), die zeigen, dass die Partikelgröße der maßgebliche Faktor für die Wolkentropfenaktivierung darstellt und die chemischen Eigenschaften der Partikel eine untergeordnete Rolle spielen. Insgesamt sind die dNdlogD<sub>p</sub>-Konzentrationen der Maxima aller N<sub>CCN0.43%</sub>-Hintergründe im Winter 2020 vergleichbar und unterscheiden sich in der Form der PSDa. Dies weist auf Bildungs- und Alterungsprozesse von Aerosol gleichen Ursprungs hin.

In Abb. 6.5b sind die PSD<sub>a</sub> der L- und H-Hintergründe des Sommers 2020 dargestellt. Beide PSD<sub>a</sub> sind in ihrer Form vergleichbar und folgen einer unimodalen Verteilung, unterschei-

den sich jedoch deutlich in den dNdlogD<sub>p</sub>-Konzentrationen zwischen 10 und 400 nm. Die PSD<sub>a</sub> einzelner Paare des L-Hintergrunds besitzen ein schwach ausgeprägtes lokales Maximum der Akkumulationsmode bei 200 nm. Der Unterschied in dNdlogD<sub>p</sub> spiegelt sich in  $N_{>85}$  in Abb. 6.5d mit Mittelwerten von 241 cm<sup>-3</sup> (L) gegenüber 1418 cm<sup>-3</sup> (H) wider. Damit sind die mittleren  $N_{>85}$  im Sommer kleiner als die entsprechenden mittleren  $N_{CCN_{0.43\%}}$ . Dies deutet auf einen kritischen Aktivierungsdurchmesser der Aerosole unterhalb von 85 nm bei 0,43 % Übersättigung in beiden  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Hintergründen. Folglich haben die untersuchten Luftmassen im Sommer eine niedrigere *S* als die künstlich eingestellten 0,43 % des CCN-100. Die aus Beobachtungsdaten abgeleitete Übersättigung der Umgebung steht im Einklang mit den S<sub>max</sub>-Schätzungen im Sommer. Die unterschiedlichen dNdlogD<sub>p</sub>-Konzentrationen zwischen dem H- und L-Hintergrund sind nicht durch Alterungsprozesse, die die Partikelgröße der Aitken- und Akkumulationsmode erhöhen, erklärbar und deuten auf verschiedene Aerosolquellen im Sommer. Der NWA liegt im Winter direkt im Westwindband der Nordhemisphäre, das einen starken Aerosoltransport von der US-Ostküste fördert. Im Sommer beeinflusst überwiegend das antizyklonale Windfeld, angetrieben durch das Bermuda-Azoren-Hoch, die Messregion mit Süd-Süd-West Winden parallel zur Küstenlinie, welche den Aerosoltransport insbesondere auf die südliche Messregion des NWA abschwächen (Sorooshian et al., 2020; Dadashazar et al., 2021a; Painemal et al., 2021). Daher ändern sich die primären Aerosolquellen zwischen den Jahreszeiten.

**Tabelle 6.3:** Zusammensetzung der Aerosolspezies aller Paare unterhalb der Wolkenbasis während der Winterkampagnenphase 2020. Mittelwerte und Standardabweichungen in Klammern für OA,  $SO_4^{2-}$ ,  $NO_3^{-}$ ,  $NH_4^+$  aus HR-ToF-AMS-Messungen und Meersalz aus PILS-Messungen. Alle Messungen sind bei Standardtemperatur und -druck angegeben. Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (ebd.).

Datum	<i>t</i> <sub>inital</sub>	Meersalz	OA	$SO_4^{2-}$	$NO_3^-$	$\mathrm{NH}_4^+$
	UTC	$\mu gm^{-3}$				
01.03.2020	14:53:22	$1.97(\pm 0.35)$	$0.57(\pm 0.14)$	0.93(±0.05)	$0.06(\pm 0.04)$	$0.41(\pm 0.14)$
08.03.2020	14:32:31	$2.39(\pm 0.00)$	$0.35(\pm 0.20)$	$0.30(\pm 0.03)$	$0.05(\pm 0.02)$	$0.18(\pm 0.07)$
08.03.2020	14:41:44	4.23(±2.96)	$0.32(\pm 0.13)$	$0.35(\pm 0.05)$	$0.07(\pm 0.04)$	$0.06(\pm 0.04)$
08.03.2020	15:09:24	3.69(±0.00)	$0.15(\pm 0.10)$	$0.36(\pm 0.05)$	$0.02(\pm 0.03)$	$0.03(\pm 0.11)$
08.03.2020	15:50:27	$4.87(\pm 0.00)$	$0.42(\pm 0.08)$	$0.39(\pm 0.02)$	$0.07(\pm 0.03)$	$0.26(\pm 0.13)$
08.03.2020	15:59:48	$4.42(\pm 0.49)$	$0.43(\pm 0.12)$	$0.42(\pm 0.03)$	$0.04(\pm 0.05)$	$0.04(\pm 0.16)$
09.03.2020	17:25:14	$3.14(\pm 0.00)$	$0.16(\pm 0.08)$	$0.30(\pm 0.04)$	$0.04(\pm 0.03)$	$0.07(\pm 0.12)$
09.03.2020	17:55:32	$3.80(\pm 0.00)$	$0.08(\pm 0.16)$	$0.34(\pm 0.02)$	$0.03(\pm 0.04)$	$0.03(\pm 0.09)$
09.03.2020	18:39:22	$3.80(\pm 0.13)$	$0.27(\pm 0.19)$	$0.36(\pm 0.03)$	$0.02(\pm 0.02)$	$0.07(\pm 0.11)$
L	Ø	3.59	0.31	0.42	0.04	0.13
14.02.2020	17:19:21	$0.98(\pm 0.65)$	$1.20(\pm 0.31)$	$1.24(\pm 0.05)$	$2.07(\pm 0.28)$	$1.36(\pm 0.10)$
14.02.2020	17:28:38	$2.16(\pm 0.17)$	$1.26(\pm 0.19)$	$1.33(\pm 0.16)$	$1.94(\pm 0.23)$	$1.39(\pm 0.25)$

Datum	$t_{ m inital}$	Meersalz	OA	$SO_4^{2-}$	$NO_3^-$	$\mathrm{NH}_4^+$
	UTC	$\mu gm^{-3}$	$\mu gm^{-3}$	$\mu gm^{-3}$	$\mu g  m^{-3}$	$\mu gm^{-3}$
14.02.2020	17:56:27	$4.19(\pm 0.00)$	$0.92(\pm 0.12)$	0.89(±0.06)	$0.58(\pm 0.06)$	$0.54(\pm 0.16)$
14.02.2020	18:04:21	$5.84(\pm 0.00)$	$1.08(\pm 0.09)$	$0.96(\pm 0.07)$	$0.64(\pm 0.06)$	$0.72(\pm 0.13)$
15.02.2020	17:07:07	$1.89(\pm 0.93)$	$0.80(\pm 0.16)$	$0.66(\pm 0.06)$	$0.14(\pm 0.05)$	$0.29(\pm 0.09)$
15.02.2020	17:15:06	$3.22(\pm 0.25)$	$0.99(\pm 0.12)$	$0.66(\pm 0.05)$	$0.18(\pm 0.04)$	$0.37(\pm 0.16)$
15.02.2020	18:17:32	$4.20(\pm 1.28)$	$0.83(\pm 0.14)$	$0.82(\pm 0.05)$	$0.08(\pm 0.04)$	$0.37(\pm 0.20)$
15.02.2020	18:30:07	$5.51(\pm 0.84)$	$0.64(\pm 0.14)$	$0.82(\pm 0.05)$	$0.10(\pm 0.02)$	$0.16(\pm 0.11)$
27.02.2020	18:46:24	$3.65(\pm 0.37)$	$1.56(\pm 0.10)$	$1.16(\pm 0.07)$	$0.17(\pm 0.04)$	$0.35(\pm 0.12)$
27.02.2020	18:53:48	$3.29(\pm 0.76)$	$1.41(\pm 0.12)$	$1.07(\pm 0.02)$	$0.15(\pm 0.05)$	$0.32(\pm 0.17)$
27.02.2020	19:26:17	$2.51(\pm 0.00)$	$1.44(\pm 0.10)$	$1.05(\pm 0.07)$	$0.14(\pm 0.05)$	$0.30(\pm 0.20)$
27.02.2020	19:36:09	$2.42(\pm 0.14)$	$1.40(\pm 0.17)$	$0.71(\pm 0.06)$	$0.10(\pm 0.03)$	$0.35(\pm 0.10)$
27.02.2020	20:08:09	$2.03(\pm 0.00)$	$1.70(\pm 0.07)$	$1.04(\pm 0.05)$	$0.13(\pm 0.04)$	$0.35(\pm 0.15)$
27.02.2020	20:16:39	$2.80(\pm 0.00)$	$1.54(\pm 0.09)$	$1.01(\pm 0.04)$	$0.10(\pm 0.02)$	$0.48(\pm 0.15)$
01.03.2020	16:00:14	$1.48(\pm 0.12)$	$0.81(\pm 0.12)$	$0.73(\pm 0.04)$	$0.60(\pm 0.05)$	$0.58(\pm 0.12)$
12.03.2020	14:41:07	$1.94(\pm 0.00)$	$2.09(\pm 0.21)$	$0.81(\pm 0.04)$	$0.14(\pm 0.05)$	$0.37(\pm 0.12)$
12.03.2020	14:48:49	$2.39(\pm 0.00)$	$1.79(\pm 0.23)$	$0.87(\pm 0.05)$	$0.16(\pm 0.04)$	$0.36(\pm 0.13)$
12.03.2020	15:17:07	$1.90(\pm 0.00)$	$1.66(\pm 0.26)$	$0.68(\pm 0.04)$	$0.13(\pm 0.03)$	$0.25(\pm 0.10)$
12.03.2020	16:03:43	$1.00(\pm 0.03)$	$1.75(\pm 0.11)$	$0.78(\pm 0.05)$	$0.12(\pm 0.04)$	$0.31(\pm 0.06)$
12.03.2020	16:11:45	$0.99(\pm 0.04)$	$1.73(\pm 0.17)$	$0.84(\pm 0.04)$	$0.10(\pm 0.02)$	$0.40(\pm 0.05)$
М	Ø	2.72	1.33	0.91	0.39	0.48
17.02.2020	17:39:28	1.76(±0.59)	$2.94(\pm 0.18)$	$1.04(\pm 0.10)$	0.49(±0.04)	$0.66(\pm 0.18)$
01.03.2020	14:08:38	$1.27(\pm 0.00)$	$0.99(\pm 0.21)$	$0.66(\pm 0.09)$	$0.96(\pm 0.19)$	$0.62(\pm 0.17)$
06.03.2020	19:32:13	$3.65(\pm 0.00)$	$0.93(\pm 0.16)$	$0.64(\pm 0.06)$	$0.05(\pm 0.03)$	$0.07(\pm 0.06)$
06.03.2020	19:40:24	$6.72(\pm 0.00)$	$2.19(\pm 0.18)$	$0.91(\pm 0.04)$	$0.23(\pm 0.04)$	$0.45(\pm 0.08)$
06.03.2020	20:13:19	4.95(±1.45)	$1.93(\pm 0.16)$	$0.96(\pm 0.07)$	$0.13(\pm 0.04)$	$0.44(\pm 0.13)$
06.03.2020	20:22:54	$7.26(\pm 0.00)$	$0.81(\pm 0.10)$	$0.56(\pm 0.05)$	$0.03(\pm 0.04)$	$0.20(\pm 0.08)$
11.03.2020	13:44:36	$3.25(\pm 0.25)$	$1.25(\pm 0.12)$	$0.29(\pm 0.02)$	$0.18(\pm 0.03)$	$0.07(\pm 0.11)$
11.03.2020	14:23:48	$3.70(\pm 0.00)$	$1.70(\pm 0.15)$	$0.38(\pm 0.03)$	$0.18(\pm 0.05)$	$0.08(\pm 0.08)$
Н	Ø	4.07	1.59	0.68	0.28	0.32

Der Einfluss der Aerosolquellen wird anhand der Zusammensetzung der Aerosolspezies der  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Hintergründe erörtert. Dazu werden die in den Flugabschnitten unterhalb der Wolkenunterkante gemessenen Aerosolmassenkonzentrationen der chemischen Spezies OA, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup> und Meersalz herangezogen. Die Aerosolmassenkonzentrationen des Winters 2020 sind in Tabelle 6.3 aufgelistet. Meersalz ist die dominierende Art mit dem höchsten Massenanteil während des Winters und zeigt eine hohe Variabilität von

-		, ,				
Datum	$t_{\rm inital}$	Meersalz	OA	$SO_4^{2-}$	$NO_3^-$	$NH_4^+$
	UTC	$\mu g  m^{-3}$	$\mu gm^{-3}$	$\mu gm^{-3}$	$\mu g  m^{-3}$	$\mu gm^{-3}$
13.08.2020	14:43:44	-	$0.25(\pm 1.00)$	$1.32(\pm 0.11)$	$0.04(\pm 0.11)$	$0.26(\pm 0.21)$
13.08.2020	16:56:11	-	$0.78(\pm 0.62)$	$1.19(\pm 0.06)$	$0.07(\pm 0.04)$	$-0.13(\pm 0.63)$
17.08.2020	14:51:54	$1.62(\pm 0.00)$	$2.18(\pm 0.25)$	$1.31(\pm 0.14)$	$0.16(\pm 0.06)$	$0.48(\pm 0.37)$
17.08.2020	15:00:00	$4.32(\pm 0.00)$	$1.81(\pm 0.37)$	$1.39(\pm 0.14)$	$0.14(\pm 0.09)$	$-0.12(\pm 0.52)$
17.08.2020	16:55:16	$0.24(\pm 0.00)$	$1.22(\pm 0.21)$	$0.67(\pm 0.08)$	$0.08(\pm 0.04)$	$-0.27(\pm 0.28)$
L	Ø	2.06	1.25	1.17	0.10	0.04
20.08.2020	14:40:06	$0.75(\pm 0.20)$	$10.38(\pm 0.28)$	$3.24(\pm 0.15)$	$0.64(\pm 0.12)$	$1.29(\pm 0.43)$
20.08.2020	14:47:13	$0.44(\pm 0.24)$	$9.88(\pm 0.48)$	$3.50(\pm 0.13)$	$0.40(\pm 0.07)$	$1.31(\pm 0.33)$
20.08.2020	15:12:04	$0.60(\pm 0.00)$	$7.40(\pm 0.29)$	$2.53(\pm 0.08)$	$0.26(\pm 0.08)$	$0.78(\pm 0.31)$
20.08.2020	15:53:07	$1.71(\pm 0.00)$	$6.18(\pm 0.52)$	$2.28(\pm 0.10)$	$0.23(\pm 0.10)$	$1.08(\pm 0.22)$
20.08.2020	16:01:02	$6.25(\pm 0.00)$	$7.10(\pm 0.43)$	$2.55(\pm 0.07)$	$0.24(\pm 0.05)$	$1.05(\pm 0.21)$
21.08.2020	15:32:54	$0.41(\pm 0.00)$	$5.33(\pm 0.55)$	$2.45(\pm 0.08)$	$0.22(\pm 0.07)$	$1.05(\pm 0.33)$
25.08.2020	15:07:52	$3.53(\pm 0.00)$	$8.91(\pm 0.55)$	$1.84(\pm 0.08)$	$0.47(\pm 0.07)$	$0.77(\pm 0.48)$
25.08.2020	15:16:54	$4.25(\pm 0.00)$	9.03(±0.32)	$2.10(\pm 0.11)$	$0.44(\pm 0.09)$	$0.40(\pm 0.31)$
25.08.2020	16:16:47	$4.04(\pm 0.88)$	$9.66(\pm 0.41)$	$1.66(\pm 0.08)$	$0.48(\pm 0.05)$	$0.40(\pm 0.32)$
25.08.2020	16:24:52	$3.21(\pm 0.06)$	9.67(±0.58)	$1.71(\pm 0.09)$	$0.47(\pm 0.11)$	$0.72(\pm 0.21)$
Н	Ø	2.52	8.35	2.39	0.39	0.89

**Tabelle 6.4:** Zusammensetzung der Aerosolspezies aller Paare unterhalb der Wolkenbasis während der Kampagnenphase im August 2020. Mittelwerte und Standardabweichungen in Klammern für OA,  $SO_4^{2-}$ ,  $NO_3^{-}$ ,  $NH_4^+$  aus HR-ToF-AMS-Messungen und Meersalz aus PILS-Messungen. Alle Messungen sind bei Standardtemperatur und -druck angegeben. Quelle: adaptiert aus Kirschler et al. (2022).

Tag zu Tag und innerhalb eines Messfluges. Die höchsten Konzentrationen wurden in Paaren am 06.03.2020 während RF16 gemessen, welche dem H-Hintergrund zuzuordnen sind und dementsprechend hohe  $N_{\rm CCN_{0.43\%}}$  aufweisen. Es gibt keinen erkennbaren Trend in der Meersalzmassenkonzentration zwischen den  $N_{\rm CCN_{0.43\%}}$ -Hintergründen. Dagegen zeigt die OA-Massenkonzentration einen signifikanten Anstieg vom L- zum M-/H-Hintergrund. OA können beispielsweise von Aerosolquellen der US-Nord-Ostküste stammen (Corral et al., 2021) und deuten auf einen Aerosoltransport im M-/H-Hintergrund, während der L-Hintergrund als Repräsentant natürlicher lokaler Bedingungen verstanden werden kann. Die SO<sub>4</sub><sup>2–</sup> -, NO<sub>3</sub><sup>-</sup> - und NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-Massenkonzentrationen zeigen einen leichten Anstieg der natürlichen lokalen Bedingungen (L) hin zu Bedingungen mit erhöhten  $N_{\rm CCN_{0.43\%}}$  (M/H). RF01 am 14.02.2020 ist ein Ausreißer und zeigt die höchsten Werte, die im weiteren Flugverlauf abnehmen. SO<sub>4</sub><sup>2–</sup> ist ein NPF-Vorläufergas. Die mittlere Massenkonzentration ist im M-Hintergrund am höchsten und steht im Einklang mit der erhöhten Konzentration Partikel <40 nm der PSD<sub>a</sub>. Beides ist ein Indiz für verstärktes NPF.

In Tabelle 6.4 sind die Aerosolmassenkonzentrationen im August 2020 aufgelistet. Die Meer-

salzmassenkonzentration ist wie im Winter sehr variabel, mit niedrigeren mittleren Werten. Negative Werte für NH<sup>4</sup> bedeuten, dass die Massenkonzentration kleiner als die kalibrierte Hintergrundkonzentration ist. Ein signifikanter Anstieg vom L- zum H-Hintergrund wird für alle Spezies außer Meersalz gemessen und deutet auf höhere Aerosolkonzentrationen im Sommer. Die Meersalz-Produktion kann als lokale Aerosolquelle betrachtet werden. Die erhöhten Massenkonzentrationen der übrigen Spezies im H-Hintergrund bestärken die Annahme, dass Aersoltransport von der US-Ostküste eine entscheidende Aerosolquelle darstellt. Der Unterschied der Massenkonzentrationen vom L- zum H-Hintergrund ist nicht gleichmäßig verteilt, mit einer Verdopplungsrate für SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, gefolgt von einem Faktor von 4 für NO<sub>3</sub><sup>-</sup> und einem Faktor von mehr als 6(20) für OA(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>). Die einzelnen Spezien tragen unterschiedlich zur Wolkentropfenaktivierung bei, da die chemischen Eigenschaften den nötigen e zur Aktivierung erniedrigen können und dadurch den kritischen Aktivierungsdurchmesser der Aerosole verkleinern. Deshalb verändert die Zusammensetzung der Aerosolspezies die gemessenen N<sub>flüssig</sub> bei der Bildung der Wolkentropfen (Hoose und Möhler, 2012). Insbesondere die organischen Kohlenstoffarten der OA Spezies haben je nach Löslichkeit, Molekulargewicht und Oberflächenspannung unterschiedliche Einflüsse (Ervens et al., 2005).

# Kapitel 7

## Zusammenfassung

Das zentrale Thema dieser Arbeit ist die experimentelle Untersuchung der mikrophysikalischen Eigenschaften ozeanischer Grenzschichtwolken im Nordwestatlantik und die Beantwortung der Frage, inwieweit die Eisphase in Mischphasenwolken diese Eigenschaften gegenüber Flüssigwolken verändert sowie die Quantifizierung der Effekte von Dynamik und Aerosol auf die Wolkenbildung. Hierfür wurde ein umfangreicher in-situ Wolkendatensatz aus der Kombination des Streulichtspektrometers FCDP und des Schattenbilddetektors 2D-S aus 174 Messflügen während der ACTIVATE Messkampagne erstellt und ausgewertet. Die vorgestellten Beobachtungsdaten umfassen Schlüsselparameter, die in modernen Aerosol-Klimamodellen zur Beschreibung der durch Aerosole verursachten Wolkenveränderungen verwendet werden und sind daher eine wertvolle Grundlage für die Bewertung und weitere Verbesserung der Darstellung von Aerosol-Wolken-Strahlungs-Wechselwirkungen in Klimasimulationen ähnlich wie in Righi et al. (2020).

Zur Beantwortung der Frage, ob und wie die Eisbildung ozeanische Grenzschichtwolken beeinflusst, werden in dieser Arbeit zunächst die mikrophysikalischen Eigenschaften aller beobachteten Grenzschichtwolken mit der Temperatur und Höhe in Zusammenhang gesetzt. Da während ACTIVATE am häufigsten Cumuli beobachtet wurden, werden Wolkenereignisse verwendet, die einem repräsentativen Mittelwert einzelner Wolkenpassagen entsprechen. Eine saisonale Betrachtung der Dauer und Häufigkeit von Wolkenereignissen zeigt, dass sich die daraus abgeleiteten Bedeckungsgrade im Winter ähneln und höher sind als im Sommer. Dies stimmt mit MODIS und CALIPSO Satellitenbeobachtungen tiefer mariner Grenzsichtwolken im Nordwestatlantik überein (Painemal et al., 2021).

Die höhenaufgelöste Auftrittswahrscheinlichkeit von Wolkenereignissen zeigt, dass Wolken im Winter am häufigsten bei 1,3 km und im Sommer bei 0,5 km beobachtet wurden. Da sich die feste Flugstrategie an der Wolkenoberkante orientiert und diese in der marinen Grenzschicht meist durch eine Temperaturinversion gekappt ist, deutet der Höhenunterschied auf eine höhere marine Grenzschicht im Winter hin. Diese Beobachtung ist konsistent mit größeren Wärmeflüssen im Winter (ebd.), die durch den Temperaturunterschied zwischen kalten und trockenen Luftmassen aus dem Westen und dem warmen Golfstrom entstehen, der Aufwinde und Turbulenzen verstärkt und damit die marine Grenzschicht erhöht (Chelton et al., 2004; Small et al., 2008).

Der saisonale Vergleich von Flüssigwolken zeigt einen ähnlichen Anstieg des Flüssigwassergehalts mit der Höhe in beiden Saisons und höhere Wolkentropfenkonzentrationen bei kleineren effektiven Durchmessern über den gesamten Höhenbereich mariner Grenzschichtwolken im Winter. Letzteres unterdrückt durch niedrigere Stoßwahrscheinlichkeiten kleinerer Wassertropfen bei der Koaleszenz die Ausbildung von Niederschlag und verlängert die Lebensdauer der Wolken (Albrecht, 1989; Böhm, 1992b). Die Partikelgrößenverteilung bestätigt, dass im Sommer häufiger Wolkentropfen mit Durchmesser >100 µm gemessen wurden. Zudem stimmen die beobachteten höheren Wolkentropfenkonzentrationen im Winter mit MODIS und CALIPSO Satellitenbeobachtungen überein (Dadashazar et al., 2021b).

Die Auswirkung der Eisphase in Mischphasenwolken ist aus der Partikelgrößenverteilung ersichtlich und zeigt bis zu zwei Größenordnungen höhere Teilchenkonzentrationen für Wolkenpartikel mit Durchmesser >100  $\mu$ m. Die Vertikalprofile der Mischphasenwolken zeigen die Vereisung der Wolke durch die Zunahme aller Eisparameter mit der Höhe. Besonders nahe der Wolkenoberkante ist ein starkes Wachstum der Eispartikel zu beobachten, welches durch den Wegener-Bergeron-Findeisen Prozess erklärt werden kann, bei dem Eiskristalle zugunsten von Wassertropfen wachsen. Ein wichtiges Ergebnis dieser Arbeit ist, dass die Eisphase die Niederschlagsbildung begünstigt und dies ist schematisch in Abb. 7.1a dargestellt. Somit könnte die Eisbildung mit einem schnelleren Übergang von einer geschlossenen zu einer durchbrochenen Wolkendecke verbunden sein, der den Bedeckungsgrad zusätzlich modifiziert (Tornow et al., 2021).

Im zweiten Teil der Arbeit wurden die Effekte von Dynamik und Aerosol bei der Wolkenbildung ozeanischer Grenzschichtwolken quantifiziert. Hierzu wurden Wolken- und Windmessungen nahe der Wolkenbasis und Aerosolmessungen unterhalb der Wolkenunterkante verwendet. Die sorgfältige Kategorisierung des Datensatzes gewährleistet, dass die Wolkenbildung ohne Einflüsse von Niederschlag oder gegenüber einem variablen Aerosolhintergrund betrachtet wird. Die dynamischen Effekte wurden mittels der Relation zwischen Aufwindgeschwindigkeiten und Wolkentropfenkonzentrationen durch die statistische Methode des Wahrscheinlichkeitsabgleichs bestimmt. Die Effekte von Aerosol wurden durch eine Klassifizierung in verschiedene  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Hintergründe und durch die Analyse der Aerosol-Partikelgrößenverteilung und Zusammensetzung der Aerosolspezies erreicht.

Ein wichtiges Ergebnis dieser Arbeit ist, dass die Aufwindgeschwindigkeiten im Win-



**Abbildung 7.1:** Schematische Darstellung der Ergebnisse dieser Arbeit: (a) die begünstigte Niederschlagsbildung durch die Eisphase in Mischphasenwolken und (b) der dominierende saisonale Effekt von Aufwindgeschwindigkeiten auf die Wolkentropfenkonzentration bei der Wolkenbildung im Nordwestatlantik.

ter doppelt so groß sind und zu höheren Wolkentropfenkonzentrationen führen, obwohl die verfügbare  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$  geringer ist. Eine schematische Darstelltung dieses Ergebnisses ist in Abb. 7.1b gezeigt. Aufwindgeschwindigkeiten kleiner als  $1 \text{ m s}^{-1}$  zeigen eine große Suzeptibilität auf die Wolkentropfenkonzentrationen für niedrige und mittlere  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Hintergründe. Gleichwohl nimmt die Suzeptibiliät mit zunehmenden Aufwindgeschwindigkeiten für niedrige  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Hintergründe ab. Für einen hohen  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Hintergrund sind die Suszeptibilitäten durchwegs groß und deuten im Winter auf eine zweite Mode für Aufwindgeschwindigkeiten größer  $3 \text{ m s}^{-1}$ . Generell ist zu beobachten, dass die Suzeptibilität für höhere  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Hintergründe zunimmt. Das Ergebnis zeigt, dass die von Dadashazar et al. (2021b) beobachtete saisonale Antikorrelation zwischen Aerosolund Wolkenteilchenkonzentration durch die Dynamik erklärt werden kann. Die höheren Aufwindgeschwindigkeiten führen zu höheren Übersättigungen durch eine stärkere adiabatische Abkühlung, bei der kleinere Aerosolpartikel zu Wolkentropfen aktiviert werden. Folglich wird ein größerer Anteil des vorhandenen Aerosolbudgets umgesetzt.

Der saisonale Vergleich der Aerosol-Partikelgrößenverteilung zeigt im Winter für niedrige und mittlere  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Hintergründe eine bimodale Verteilung, die für hohe  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Hintergründe in eine unimodale Verteilung übergeht. Da die Gesamtkonzentrationen zwischen den  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Hintergründen vergleichbar sind, deutet der Übergang von einer bimodalen zu einer unimodalen Verteilung auf Kondensation und Koaleszenz. Im Gegensatz dazu zeigen der niedrige und hohe  $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$ -Hintergrund im Sommer eine unimodale Verteilung mit unterschiedlichen Aerosolteilchenkonzentrationen und deutet damit auf unterschiedliche Aerosolquellen.

Die Betrachtung der Zusammensetzung der Aerosolspezies zeigt, dass die Massenkonzentration von Meersalz im Winter höher ist. Dies weist auf eine effektivere Meersalzproduktion durch stärkere Oberflächenwinde. Die Massenkonzentrationen von organischem Aerosol,  $SO_4^{2-}$ ,  $NO_3^-$  und  $NH_4^+$  nehmen im Sommer bei höheren  $N_{CCN_{0.43\%}}$ -Hintergründen zu und deuten auf einen stärkeren Aerosoltransport von der US-Ostküste. Im Winter sind hier die Zunahmen der Massenkonzentrationen moderat.

Insgesamt konnte gezeigt werden, dass die Eisphase in Mischphasenwolken die Wolkenteilchenkonzentration von ozeanischen Grenzschichtwolken im Nordwestatlantik erhöht und die Niederschlagsbildung begünstigt. Weiterhin zeigen die Ergebnisse dieser Arbeit, dass dynamische Effekte die Wolkenbildung im Nordwestatlantik dominieren und Aerosol in Form verfügbarer  $N_{\text{CCN}_{0.432}}$  die möglichen Wolkentropfenkonzentrationen limitiert.

Teile dieser Arbeit wurden vorab in der Fachzeitschrift *Atmospheric Chemistry and Physics* veröffentlicht. Die beiden Artikel werden an den entsprechenden Stellen zitiert:

Kirschler, S., Voigt, C., Anderson, B., Campos Braga, R., Chen, G., Corral, A. F., Crosbie, E., Dadashazar, H., Ferrare, R. A., Hahn, V., Hendricks, J., Kaufmann, S., Moore, R., Pöhlker, M. L., Robinson, C., Scarino, A. J., Schollmayer, D., Shook, M. A., Thornhill, K. L., Winstead, E., Ziemba, L. D., and Sorooshian, A.: Seasonal updraft speeds change cloud droplet number concentrations in low-level clouds over the western North Atlantic, Atmos. Chem. Phys., 22, 8299–8319, https://doi.org/10.5194/acp-22-8299-2022, 2022.

Kirschler, S., Voigt, C., Anderson, B. E., Chen, G., Crosbie, E. C., Ferrare, R. A., Hahn, V., Hair, J. W., Kaufmann, S., Moore, R. H., Painemal, D., Robinson, C. E., Sanchez, K. J., Scarino, A. J., Shingler, T. J., Shook, M. A., Thornhill, K. L., Winstead, E. L., Ziemba, L. D., and Sorooshian, A.: Overview and statistical analysis of boundary layer clouds and precipitation over the wes-

tern North-Atlantic Ocean, EGUsphere [preprint], https://doi.org/10.5194/egusphere-2023-898, 2023.

Die Nutzung des in-situ Wolkendatensatzes führte zu Co-Autorschaften in folgenden Publikationen:

Brunke, M. A., Cutler, L., Urzua, R. D., Corral, A. F., Crosbie, E., Hair, J., Kirschler, S., Voigt, C., et al. (2022). Aircraft observations of turbulence in cloudy and cloud-free boundary layers over the western North Atlantic Ocean from ACTIVATE and implications for the Earth system model evaluation and development. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 127, e2022JD036480. https://doi.org/10.1029/2022JD036480.

Corral, A. F., Choi, Y., Crosbie, E., Dadashazar, H., DiGangi, J. P., Diskin, G. S., Kirschler, S., Voigt, C., et al. (2022). Cold air outbreaks promote new particle formation off the U.S. East Coast. Geophysical Research Letters, 49, e2021GL096073. https://doi.org/10.1029/2021GL096073.

Corral, A. F., Choi, Y., Crosbie, E., Dadashazar, H., DiGangi, J. P., Diskin, G. S., Kirschler, S., Moore, R. H., Nowak, J. B., Shook, M. A., Stahl, C. T., Thornhill, K. L., Voigt, C., Ziemba, L. D., Sorooshian, A.: Dimethyl Amines in Cloud Water: A Case Study Over the Northwest Atlantic Ocean, Environ. Sci.: Atmos., https://doi.org/10.1039/D2EA00117A, Environ. Sci.: Atmos., 2, 1534-1550, 2022.

Dadashazar, H., Painemal, D., Alipanah, M., Brunke, M., Chellappan, S., Corral, A. F., Crosbie, E., Kirschler, S., Liu, H., Moore, R. H., Robinson, C., Scarino, A. J., Shook, M., Sinclair, K., Thornhill, K. L., Voigt, C., Wang, H., Winstead, E., Zeng, X., Ziemba, L., Zuidema, P., and Sorooshian, A.: Cloud drop number concentrations over the western North Atlantic Ocean: seasonal cycle, aerosol interrelationships, and other influential factors, Atmos. Chem. Phys., 21, 10499–10526, https://doi.org/10.5194/acp-21-10499-2021, 2021.

Dadashazar, H., Alipanah, M., Hilario, M. R. A., Crosbie, E., Kirschler, S., Liu, H., Moore, R. H., Peters, A. J., Scarino, A. J., Shook, M., Thornhill, K. L., Voigt, C., Wang, H., Winstead, E., Zhang, B., Ziemba, L., and Sorooshian, A.: Aerosol responses to precipitation along North American air trajectories arriving at Bermuda, Atmos. Chem. Phys., 21, 16121–16141, htt-ps://doi.org/10.5194/acp-21-16121-2021, 2021.

Dadashazar, H.; Crosbie, E.; Choi, Y.; Corral, A.F.; DiGangi, J.P.; Diskin, G.S.; Dmitrovic, S.; Kirschler, S.; McCauley, K.; Moore, R.H.; Nowak, J.B.; Robinson, C.E.; Schlosser, J.; Shook, M.; Thornhill, K.L.; Voigt, C.; Winstead, E.L.; Ziemba, L.D.; Sorooshian, A. Analysis of MONARC and ACTIVATE Airborne Aerosol Data for Aerosol-Cloud Interaction Investigations: Efficacy of Stairstepping Flight Legs for Airborne In Situ Sampling. Atmosphere 2022, 13, 1242. htt-ps://doi.org/10.3390/atmos13081242.

Dadashazar, H., Corral, A. F., Crosbie, E., Dmitrovic, S., Kirschler, S., McCauley, K., Moore, R.,

Robinson, C., Schlosser, J. S., Shook, M., Thornhill, K. L., Voigt, C., Winstead, E., Ziemba, L., and Sorooshian, A.: Organic enrichment in droplet residual particles relative to out of cloud over the northwestern Atlantic: analysis of airborne ACTIVATE data, Atmos. Chem. Phys., 22, 13897–13913, https://doi.org/10.5194/acp-22-13897-2022, 2022.

Gonzalez, M. E., Corral, A. F., Crosbie, E., Dadashazar, H., Diskin, G. S., Edwards, E.-L., Kirschler, S., Moore, R. H., Nowak, J. B., Schlosser, J. S., Shook, M. A., Stahl, C., Thornhill, K. L., Voigt, C., Ziemba, L. D., Sorooshian, A.: Relationships between supermicrometer particle concentrations and cloud water sea salt and dust concentrations: Analysis of MONARC and ACTIVATE data, Environmental Research Letters, 2, 738-752, https://doi.org/10.1039/D2EA00049K, Environ. Sci.: Atmos., 2022.

Li, X., Wang, H., Chen, J., Endo, S., George, G., Cairns, B., Chellappan, S., Zeng, X., Kirschler, S., Voigt, C., Sorooshian, A., Crosbie, E., Chen, G., Ferrare, R. A., Gustafson, W. I., Jr., Hair, J. W., Kleb, M. M., Liu, H., Moore, R., Painemal, D., Robinson, C., Scarino, A. J., Shook, M., Shingler, T. J., Thornhill, K. L., Tornow, F., Xiao, H., Ziemba, L. D., and Zuidema, P. (2022). Large-Eddy Simulations of Marine Boundary Layer Clouds Associated with Cold-Air Outbreaks during the ACTIVATE Campaign. Part I: Case Setup and Sensitivities to Large-Scale Forcings, Journal of the Atmospheric Sciences, 79(1), 73-100. doi: https://doi.org/10.1175/JAS-D-21-0123.1

Li, X., Wang, H., Chen, J., Endo, S., Kirschler, S., Voigt, C., Crosbie, E., Ziemba, L. D., Painemal, D., Cairns, B., Hair, J. W., Corral, A. F., Robinson, C., Dadashazar, H., Sorooshian, A., Chen, G., Ferrare, R. A., Kleb, M. M., Liu, H., Moore, R., Scarino, A. J., Shook, M. A., Shingler, T. J., Thornhill, K. L., Tornow, F., Xiao, H. and Zeng, X. (2023). Large-Eddy Simulations of Marine Boundary Layer Clouds Associated with Cold-Air Outbreaks during the ACTIVATE Campaign. Part II: Aerosol–Meteorology–Cloud Interaction, Journal of the Atmospheric Sciences, 80(4), 1025-1045. doi: https://doi.org/10.1175/JAS-D-21-0324.1

Painemal, D., Chellappan, S., Smith, W. L., Spangenberg, D., Park, J. M., Ackerman, A., Chen, J., Crosbie, E., Ferrare, R., Hair, J., Kirschler, S., Li, X., McComiskey, A., Moore, R. H., Sanchez, K., Sorooshian, A., Tornow, F., Voigt, C., Wang, H., Winstead, E., Zeng, X., Ziemba, L. and Zuidema, P. (2023). Wintertime synoptic patterns of midlatitude boundary layer clouds over the western North Atlantic: Climatology and insights from in-situ ACTIVATE observations. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 128, e2022JD037725. https://doi.org/10.1029/2022JD037725

Sorooshian, A., Alexandrov, M. D., Bell, A. D., Bennett, R., Betito, G., Burton, S. P., Buzanowicz, M. E., Cairns, B., Chemyakin, E. V., Chen, G., Choi, Y., Collister, B. L., Cook, A. L., Corral, A. F., Crosbie, E. C., van Diedenhoven, B., DiGangi, J. P., Diskin, G. S., Dmitrovic, S., Edwards, E.-L., Fenn, M. A., Ferrare, R. A., van Gilst, D., Hair, J. W., Harper, D. B., Hilario, M. R. A., Hostetler, C. A., Jester, N., Jones, M., Kirschler, S., Kleb, M. M., Kusterer, J. M., Leavor, S., Lee, J. W., Liu, H., McCauley, K., Moore, R. H., Nied, J., Notari, A., Nowak, J. B., Painemal, D., Phillips, K. E., Robinson, C. E., Scarino, A. J., Schlosser, J. S., Seaman, S. T., Seethala, C., Shingler, T. J., Shook, M. A., Sinclair, K. A., Smith Jr., W. L., Spangenberg, D. A., Stamnes, S. A., Thornhill, K. L., Voigt, C.,

Vömel, H., Wasilewski, A. P., Wang, H., Winstead, E. L., Zeider, K., Zeng, X., Zhang, B., Ziemba, L. D., and Zuidema, P.: Spatially-coordinated airborne data and complementary products for aerosol, gas, cloud, and meteorological studies: The NASA ACTIVATE dataset, Earth Syst. Sci. Data Discuss. [preprint], https://doi.org/10.5194/essd-2023-109, in review, 2023.

Tornow, F., Ackerman, A. S., Fridlind, A. M., Cairns, B., Crosbie, E. C., Kirschler, S., Voigt, C., et al. (2022). Dilution of boundary layer cloud condensation nucleus concentrations by free tropospheric entrainment during marine cold air outbreaks. Geophysical Research Letters, 49, e2022GL098444. https://doi.org/10.1029/2022GL098444.

Die Beteiligung an der Auswertung einer weiteren Messkampagne führte zu Co-Autorschaften in folgenden Publikation, deren wissenschaftlichen Ergebnisse jedoch nicht Teil dieser Arbeit sind:

Wang, Z., Bugliaro, L., Jurkat-Witschas, T., Heller, R., Burkhardt, U., Ziereis, H., Dekoutsidis, G., Wirth, M., Groß, S., Kirschler, S., Kaufmann, S., and Voigt, C.: Observations of microphysical properties and radiative effects of a contrail cirrus outbreak over the North Atlantic, Atmos. Chem. Phys., 23, 1941–1961, https://doi.org/10.5194/acp-23-1941-2023, 2023.

De La Torre Castro, E., Jurkat-Witschas, T., Afchine, A., Grewe, V., Hahn, V., Kirschler, S., Krämer, M., Lucke, J., Spelten, N., Wernli, H., Zöger, M., and Voigt, C.: Differences in microphysical properties of cirrus at high and mid-latitudes, EGUsphere [preprint], https://doi.org/10.5194/egusphere-2023-374, 2023.

## KAPITEL 8

## Ausblick

Aus den Ergebnissen dieser Arbeit ergeben sich mögliche Anknüpfungspunkte für zukünftige Forschungsaktivitäten im Hinblick auf den Einsatz neuer Messmethoden, die Verbesserung der Datenqualität durch aktuelle Softwarelösungen und die Nutzung des umfangreichen in-situ Wolkendatensatzes. Dazu werden aktuelle Entwicklungen zu den einzelnen Themen vorgestellt und der mögliche Nutzen für die Klimaforschung gezeigt.

#### 8.1 Messmethoden

Zeitlich und räumlich hochaufgelöste Messungen sind weiterhin ein bedeutsamer Beitrag zur Forschung an Wolken. Sie ermöglichen die Erfassung von komplexen Wolkenstrukturen, den mikrophysikalischen Wolkenprozessen und werden durch neue Messmethoden kontinuierlich verbessert. Das Potenzial neuer Messmethoden wird in die Verwendung verbesserter Messinstrumente und den Einsatz nicht flugzeugbasierter Messplattformen unterschieden. Die FCDP ist ein modernes Streulichtspektrometer und bietet adäquate Lösungen für die auftretende Koinzidenz und Shattering des Vorgängermodells CDP. Dennoch bleibt die Ungenauigkeit der Größenbestimmung aufgrund der Mie-Mehrdeutigkeit bestehen und ist für Eiskristalle >10 µm besonders schwierig (Jang et al., 2022). Die Mie-Mehrdeutigkeit ist ein inhärentes Problem des Messprinzips und kann durch Verwendung von zwei unterschiedlichen Laserwellenlängen minimiert werden (Nagy et al., 2007). Das Messprinzip mit zwei Wellenlängen wird bereits für Aerosolmessungen erfolgreich genutzt (Nagy et al., 2016). Ein weiterer vielversprechender Ansatz ist die PDI Flight Probe von Artium, die auf dem Messprinzip eines Phasen-Doppler-Interferometers basiert. Hierbei wird ein Laserstrahl in zwei Strahlen gleicher Intensität aufgeteilt und die Dopplerfrequenz und Frequenzverschiebung gemessen (Strakey et al., 2000a,b). Dieses Messprinzip erlaubt die gleichzeitige Messung von Partikelgeschwindigkeit und Partikeldurchmesser. Dabei wird eine Messgenauigkeit von  $\pm 1$  % des gesamten Größenbereichs zwischen 0,3 und 2000 µm für sphärische Partikel angegeben (Sharma et al., 2020). Das Phasen-Doppler-Interferometer deckt einen für die Wolkenphysik interessanten Größenbereich ab und ist nach Angaben des Herstellers für Koinzidenz und verschiedene Partikeltrajektorien weniger empfindlich als bisherige Streulichtspektrometer. Die zweitgrößte Messunsicherheit der FCDP ist die Bestimmung der effektiven Messfläche, die in dieser Arbeit mit einer Genauigkeit von 7,1 % bestimmt werden konnte. Ein angepasster Laboraufbau des Tröpfchengenerators mit Durchmessern <10  $\mu$ m und schnelleren Partikelgeschwindigkeiten würde die Bestimmung der effektiven Messfläche verbessern.

Die 2D-S ermöglicht durch den zirkular verdreht angeordneten Aufbau von zwei Schattenbilddetektoren, die Dreidimensionalität von Partikeln im Überlappungsbereich der Laser zu untersuchen. Sie hat eine auf Geschwindigkeit optimierte Elektronik verbaut und kommt dadurch auf eine Ansprechzeit von 41 ns. Damit ist die 2D-S gut für die Detektion großer Partikel bei Fluggeschwindigkeiten >100 m s<sup>-1</sup> geeignet. Andere Schattenbilddetektoren, wie die anfänglich für das Experiment geplante Cloud Imaging Probe (CIP) von DMT, haben ab diesen Geschwindigkeiten zunehmend Schwierigkeiten mit der Verarbeitung und Speicherung der Informationsmenge (Gurganus und Lawson, 2018). Bei der 2D-S sind die Abbildungen auf ein Abschattungsniveau von 50 % beschränkt. Neuere bildgebende Messinstrumente, wie die High-Speed Imaging Flight Probe (HSI-FP) oder Particle Imaging Flight Probe (PI-FP) von Artium (Esposito et al., 2019), Particle Habit Imaging and Polar Scattering Probe (PHIPS-HALO) (Abdelmonem et al., 2016; Schnaiter et al., 2018) oder die PPS-Neuentwicklung von SPEC (Kommunikation mit Ewan Crosbie) verwenden hochaufgelöste Aufnahmen mit einer 8 Bit Grauabstufung. Die PHIPS-HALO kombiniert zwei um 120° zueinander verdrehte CCD-Kameras (von charge-coupled device) und ein Polarnephelometer (Crépel et al., 1997; Gayet et al., 1997), welches das gestreute Licht in einem Raumwinkel von 1 bis 170° misst und damit den Aggregatzustand des Partikels erfasst. Aus den Aufnahmen der CCD-Kameras lassen sich Rückschlüsse auf die dreidimensionale Struktur des Partikels ziehen. Die PI-FP verwendet sechs leicht zueinander verdrehte Laser, die im Messvolumen zusammenlaufen, um unfokussierte Partikel eindeutig bestimmen zu können. Die hohe Informationsdichte der Aufnahmen erlaubt eine spezifische Klassifizierung und erleichtert die Detektion von Wolkenprozessen wie Verreifung. Die PI-FP Aufnahmen werden mit einer kurzen Belichtungszeit von wenigen Nanosekunden erzeugt und unterscheiden sich dadurch von dem kontinuierlichen Messprinzip der Schattenbilddetektoren. Inwieweit diese Messinstrumente die Teilchenkonzentration und Partikelgrößenverteilung erfassen können, sollte durch Vergleichsmessungen mit etablierten Messinstrumenten, wie der 2D-S, untersucht werden. Holographische Methoden stellen eine weitere interessante Möglichkeit dar, da sie das gesamte Interferenzmuster aus dem vom Partikel gestreuten und dem einfallenden Licht aufzeichnen. Durch Rekonstruktion der Intensität und Phase des Wellenfeldes kann die dreidimensionale Struktur, die Größe, die genaue Position im Messvolumen und bei gepulsten Lasern auch die Geschwindigkeit bestimmt werden. Das
Holographic Droplet and Aerosol Recording system (HODAR) Instrument (Borrmann und Jaenicke, 1993; Borrmann et al., 1993) ist für in-situ Messungen von Wolkenpartikeln auf dem Boden ausgelegt und das Nachfolgemodell Holographic Detector for Clouds (HOLO-DEC) (Fugal et al., 2004; Fugal und Shaw, 2009) für flugzeuggetragene Messungen. Das HO-LODEC nimmt ähnlich der PI-FP Momentaufnahmen von Wolken auf und unterscheidet sich damit von Streulichtspektrometern und Schattenbilddetektoren, die mikrophysikalische Parameter aus einem Zeitintervall ableiten. Untersuchungen von Glienke et al. (2020) zeigen unter Verwendung von Momentaufnahmen die starke Inhomogenität von Stratocumuli. Die Rekonstruktion der Hologramme erfordert große Rechenkapazitäten (Glienke et al., 2017), die mit Hilfe neuronaler Netze drastisch reduziert werden konnten, bei gleichzeitiger Verbesserung der Partikelklassifikation (Schreck et al., 2022).

Die Vorbereitungszeit der Messinstrumente im Labor und die Flexibilität von flugzeuggetragenen in-situ Messungen sind durch strenge Auflagen und Sicherheitsvorschriften eingeschränkt. Sie sind mit einem großen Personal- beziehungsweise Dokumentationsaufwand verbunden und benötigen dadurch lange Vorlaufzeiten und haben hohe Kosten. Im letzten Jahrzehnt entstanden vermehrt Methoden, die auf der Verarbeitung großer Datenmengen basieren. Daher ist eine steigende Nachfrage nach statistisch relevanten Atmosphärenmessungen, insbesondere Wolkenmessungen, zu erwarten. Flugzeuggetragene in-situ Messungen decken durch ihre Reichweite und Geschwindigkeit eine Fläche ab, die Vergleiche mit Satelliten oder globalen Klimamodellen zulässt. Gleichwohl zeigen die flugzeuggetragenen in-situ Messungen, dass die mikrophysikalischen Eigenschaften von Wolken entlang des Flugweges sehr variabel sein können. Allerdings haben flugzeuggetragene Messungen durch ihre hohen Geschwindigkeiten ein limitiertes räumliches Auflösungsvermögen und sollten für räumlich kleinskalige Wolkenprozesse mit anderen Messplattformen komplementiert werden. Hier wäre die Verwendung einer mit dem Helikopter getragenen Messvorrichtung für Wolken-, Aerosol- und Windinstrumente, wie dem AIRcraft TOwed Sensor Shuttle (AIRTOSS) (Frey et al., 2009), oder die gleichzeitige Vermessung mit Hilfe eines Drohnenschwarms (Wetz et al., 2021), Fesselballons oder Drachensystems, sinnvoll. Diese können ein umfassendes mikrophysikalisches Bild bei gleichzeitig niedrigeren Kosten und hoher Flexibilität erstellen. Mit flexiblen und einfach einsetzbaren Messplatzformen können gezielt große und vor allem spezifische Datensätze generiert werden.

#### 8.2 Auswertesoftware

Hardware in Form von neuen Messinstrumenten benötigt aufgrund der hohen Zulassungsanforderungen für den Einsatz auf einem Flugzeug und Kosten mehrere Jahre bis zur vorgesehenen Nutzung. Gleichzeitig nimmt die Datennachfrage zu und fordert eine schnellere Bereitstellung eines qualitativ hochwertigen und evaluierten Datensatzes. Einfach zu bedienende Softwarelösungen mit hoher Flexibilität können die benötigte Auswertezeit verringern und gleichzeitig die Qualität erhöhen. Mit hoher Flexibilität ist gemeint, dass der/die Wissenschaftler/in aus den in Kapitel 3 vorgestellten Methoden die für die atmosphärischen Bedingungen optimale Auswertestrategie zusammenstellen kann. Die während dieser Arbeit betreute Masterarbeit hat sich mit der Regressionsanalyse von out-of-focus Partikeln mittels neuronaler Netze befasst und konnte zeigen, dass neuronale Netze schneller und präziser als die Korrolev-Korrektur sind, insbesondere für Partikel nahe dem DOF-Detektionslimit (Schollmayer, 2021). Die neuronalen Netze können darauf trainiert werden, Bildfehler automatisch zu korrigieren und funktionieren auch bei teilweise detektierten Partikeln, bei denen der implementierte Korrolev-Korrektur-Algorithmus nicht funktioniert. Zusätzlich ist es mit dem neuronalen Netz möglich, asphärische Partikel, wie säulenartige Eispartikel, zu korrigieren, für die keine analytische Lösung existiert (ebd.). Dadurch können die Unsicherheit in der Größenbestimmung von Eispartikeln bei Schattenbilddetektoren ähnlich wie für sphärische Partikel reduziert werden. Für die Anwendung muss zuvor eine verlässliche Methode zur Klassifikation unterschiedlicher Eiskristallformen vorhanden sein. Zudem ist unklar, wie gut das Beugungsbild eines nicht symmetrischen dreidimensionalen Partikels durch eine zweidimensionale Abbildung erfasst werden kann. Eine weiterführende Forschungsaktivität könnte unter anderem die Abhängigkeit der Partikelorientierung relativ zum Laserstrahl auf die gemessene Abbildung untersuchen.

Die in dieser Arbeit verwendeten 2D-S-Filtermethoden haben gezeigt, dass die Klassifikation der Abbildungen durch Verwendung mehrerer extrahierter Bildparameter verbessert werden kann. Neuronale Netze extrahieren eigene Bildparameter und gewichten diese durch gezieltes Training. Sie klassifizieren Abbildungen in einem Bruchteil der für die rechenintensive Extraktion der Bildinformation notwendigen Zeit. Erste Untersuchungen von O'Shea et al. (2016), Touloupas et al. (2019) und Xiao et al. (2019) verwenden neuronale Klassifikationsnetze für Eispartikel und zeigen hohe Zuordnungsgenauigkeiten von über 95 %. Sie können nicht nur für die Unterscheidung von Eispartikeln verwendet werden, sondern auch für die Erkennung von Messartefakten oder Koinzidenz. Somit sind sie eine schnell adaptierbare Softwarelösung zur Erhöhung der Datenqualität.

Die 2D-S mit ihrer zirkular verdrehten Bauweise ermöglicht die Erfassung der dreidimensionalen Struktur. Leider gibt es hierfür keine etablierte und getestete Softwarelösung. Im Rahmen dieser Arbeit wurden erste Schritte für eine entsprechende Softwarelösung unternommen. Mit Hilfe der Zeitstempel der Partikel können Paare von Abbildungen des vertikalen und horizontalen Schattenbilddetektors konstruiert werden, die dasselbe Partikel abbilden. Die Fläche, die sich aus dem Überlappungsbereich der Laser ergibt, ist klein im Vergleich zur möglichen Fläche zwischen den Detektorarmen, aber sehr aufschlussreich für die Trennung von runden und planaren Eiskristallformen. Außerdem kann durch die gleichzeitige Verwendung der beiden Schattenbilddetektoren der 2D-S die Messfläche verdoppelt und damit die Statistik verbessert werden. Dabei sollte darauf geachtet werden, dass Partikel im Überlappungsbereich der Laser nicht doppelt gezählt werden. Hier werden hauptsächlich Partikel <30 µm gemessen. Die meisten Wolkentypen haben in diesem Größenbereich das Maximum der Partikelgrößenverteilung. Dementsprechend ist die präzise Erfassung von Partikeln im Überlappungsbereich eine Grundvoraussetzung für die gleichzeitige Verwendung beider Schattenbilddetektoren.

Die Wahl der Auswertemethoden orientiert sich an den atmosphärischen Bedingungen und der gestellten Forschungsfrage. Zur Erforschung der Wolkenmikrophysik ist es sinnvoll, Rohdaten der Messkampagnen zu veröffentlichen. Während für Klimamodelle und Satellitenvergleiche evaluierte Daten herangezogen werden, können neue Methoden wie neuronale Netze oder andere Forschungsfragen eine neue Wahl der Auswertemethoden und Kriterien oder Parameter notwendig machen. Ein Zugang zu Rohdaten erhöht die Transparenz und erleichtert die retrospektive Analyse neuartiger Auswertemethoden. Dadurch können insbesondere Datensätze, auf welchen Modellparametrisierungen beruhen, leichter mit neuen Erkenntnissen untersucht werden.

#### 8.3 Prozessstudien

Die umfangreiche in-situ Wolken-, Aerosol- und Windinstrumentierung sowie die koordinierte Flugstrategie von zwei Flugzeugen während ACTIVATE ermöglichen präzise Vergleichsstudien mit aktiven und passiven Fernerkundungsmethoden. Im Folgenden werden Studien, die den in dieser Arbeit angefertigten in-situ Wolkendatensatz verwenden, vorgestellt. Tornow et al. (2021) stellen in einer LES-Studie fest, dass große verreifte Eiskristalle den Übergang von bedeckter zu durchbrochener Wolkendecke fördern. Überdies verdünnen Mischprozesse mit der freien Troposphäre die Aerosolkonzentration entlang der Windrichtung und beschleunigen diesen Übergang (Tornow et al., 2022). Um den Zusammenhang zwischen der Geschwindigkeit des Übergangs und der Eisphase zu quantifizieren, wurden die 2D-S in-situ Wolkendaten mit einer angepassten Filtermethode für Graupel prozessiert und dadurch eine Indikation und die Graupelkonzentration bestimmt. Zudem wurde das Verhältnis der Anzahl von Graupel zu anderen großen Eiskristallen extrahiert. Ein nächster Schritt ist der Vergleich der LES Daten mit den Graupelparametern, um den Einfluss der Eisphase auf den Bedeckungsgrad während eines CAO-Ereignisses zu ermitteln. Dadashazar et al. (2021a) zeigen, dass Wolken und Niederschlag im Sommer zu einer Reinigung der Atmosphäre durch das Aufsammeln von Aerosol durch Niederschlagspartikel führen. Die Aerosolkonzentration nimmt im Nordwestatlantik mit zunehmendem Abstand zur Küste ab. In einer weiterführenden Studie fanden Dadashazar et al. (2022a) einen erhöhten organischen Massenanteil in Wolkentropfenrückständen als unter- und oberhalb der Wolke. Die Analyse weist darauf, dass die Änderung der Zusammensetzung durch eine Prozessierung der Aerosole innerhalb von Wolkentropfen entsteht. Die Ergebnisse dieser Studie geben Anlass, der wolkeninternen Bildung von sauerstoffhaltigen organischen Stoffen im Nordwestatlantik mehr Aufmerksamkeit zu schenken.

Corral et al. (2022b) haben in einer weiteren Studie die saisonale Dimethylamin-Konzentration verglichen und fanden erhöhte Werte im Winter, insbesondere bei CAO-Bedingungen. Amide sind wie DMS wichtige Vorläufergase für NPF. Corral et al. (2022a) fanden im Nordwestatlantik ein verstärktes Aufkommen von NPF während CAO-Bedingungen im Winter. Eine andere Verwendung des in-situ Datensatzes konnte die FCDP Messungen außerhalb von Wolken in Verbindung mit Meersalz bringen (Gonzalez et al., 2022).

Dadashazar et al. (2021b) haben neben der saisonalen Antikorrelation von *AOD* und  $N_{\text{flüssig}}$  mit Satellitenbeobachtungen einen Zusammenhang zwischen der Zusammensetzung der Aerosolspezies und Konzentration mit dem Gradienten von  $N_{\text{flüssig}}$  bei zunehmendem Abstand zur Küste für ein CAO-Ereignis im Winter festgestellt. Painemal et al. (2023) konnten mit Satellitenbeobachtungen zeigen, dass die mikrophysikalischen Eigenschaften der Wolken von den synoptischen Bedingungen moduliert werden. 52 % der Winterflüge sind durch eine mittel troposphärische Troglage gekennzeichnet, die entweder den gesamten Nordwestatlantik umfasst oder auf den westlichen Teil des Nordwestatlantiks beschränkt ist. Diese Bedingungen sind günstig für die Bildung von tiefen Wolken und Niederschlägen in der Nähe des westlichen Sektors von Tiefdruckgebieten in mittleren Breiten (ebd.). Im Gegensatz dazu ist die synoptische Variabilität im Sommer weniger ausgeprägt und durch Störungen der geopotentiellen Höhe in mittleren Breiten gekennzeichnet, die um 50 % geringer sind als im Winter. Dies führt zu einem semipermanenten Hochdruckgebiet, das schwache thermische Turbulenzen an der Oberfläche verursacht und die Bildung von flachen Cumuli mit geringer räumlicher Bedeckung begünstigt (Painemal et al., 2021).

Der in-situ Wolkendatensatz umfasst Flüssig- und Mischphasenwolken und ist damit ideal für einen Vergleich gegenüber dem operationellen Satellitenprodukt lidDAR-raDAR (DARDAR) geeignet (Delanoë und Hogan, 2010; Mülmenstädt et al., 2015; Sourdeval et al., 2018). Insbesondere die Information über die thermodynamische Phase in den Wolken kann mit den DARDAR-Daten verglichen werden. Gleichwohl können die Aerosol-, Wind- und Wolkendaten durch die große zeitliche Abdeckung von drei Jahren bei unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen bestens für die Evaluation bestehender Satellitenmethoden zur Bestimmung der Wolkentropfenkonzentration und von Aerosol-Wolken-Wechselwirkungen verwendet werden (Quaas et al., 2020; Jia et al., 2022).

Die umfangreiche ACTIVATE Mission kann zudem als Vergleichsdatensatz gegenüber der Südhemisphäre herangezogen werden, die eine flächendeckende CMIP6 Multimodell-Mittelwertabweichung der bodennahen Lufttemperatur von bis zu 3 °C aufweist (Bock et al., 2020). Schuddeboom und McDonald (2021) haben gezeigt, dass erhebliche Unterschiede in der Darstellung von Stratocumuli zwischen den CMIP6-Modellen und Satellitenbeobachtungen existieren. Während bereits Vergleiche zwischen Nord- und Südhemisphäre für Zirren durchgeführt wurden (z.B. Patnaude et al., 2021; Williamson et al., 2021), ist die in-situ Datenmenge für tiefe ozeanische Wolken gegenüber der Anzahl an Messflügen während ACTIVATE gering. Ein Überblick über die bisherigen in-situ Messkampagnen über dem südlichen Ozean ist in McFarquhar et al. (2021) gegeben. Hierbei ist die Southern Ocean Cloud Radiation and Aerosol Transport Experimental Study (SOCRATES) Kampagne mit 15 Messflügen und der Messung der INP-Teilchenkonzentration hervorzuheben. Für die Erweiterung des SOCRATES Datensatzes ist die HALO-South Kampagne für September 2025 geplant. Insbesondere der Zeitpunkt von HALO-South ist von großem Interesse, da sich dieser mit dem Betrieb des Earth Clouds, Aerosol and Radiation Explorer (EarthCARE) Satelliten überschneidet (Wehr et al., 2023). Der EarthCARE-Satellit verspricht detaillierte Wolken-, Aerosol- und Niederschlagsmessungen durch eine höhere Auflösung von bis zu 285 m (Illingworth et al., 2015) und ist damit ideal für einen Vergleich mit flugzeuggetragenen Messungen geeignet.

#### 8.4 Verbesserung von Wetter- und Klimamodellen

Die stetige Veränderung des Klimas kann nur im Ganzen und großflächig betrachtet werden, um globale Zusammenhänge zu erfassen. Satellitenbeobachtungen, lokale und globale Wetter- und Klimamodelle benötigen einen großen und möglichst genauen Datensatz zur Evaluierung, insbesondere für die Erfassung der mikrophysikalischen und chemischen Prozesse. Li et al. (2022) zeigen unter Verwendung des in dieser Arbeit erstellten in-situ Wolkendatensatzes, dass LES in der Lage sind, die Meteorologie der marinen Grenzschicht während CAO-Ereignissen mit Hilfe von validierten flugzeuggetragenen Messungen zu reproduzieren. In einer weiterführenden Studie haben Li et al. (2023) die Aerosol-Wolken-Meteorologie-Interaktionen dieser LES während eines CAO-Ereignis mit Satellitendaten von ERA5, MERRA-2 und *Geostationary Operational Environmental Satellite* 16 (GOES-16) Daten verglichen und fanden für ERA5 und GOES-16 eine gute Übereinstimmung im Wol-



**Abbildung 8.1:** Vergleich der PMM-Korrelation von  $N_{flüssig}$  zu w aus in-situ Messungen (vergleiche Abb. 6.4) und Daten des globalen Klimamodells EMAC-MADE3.

kenbedeckungsgrad und dem Flüssigwasserpfad, der den Flüssigwassergehalt in einer Säule angibt. Ebenso macht die Studie deutlich, dass MERRA-2 sowohl den Wolkenbedeckungsgrad als auch den Flüssigwasserpfad deutlich unterschätzt. Außerdem konnten sie zeigen, dass die simulierten mikro- und makrophysikalischen Eigenschaften der Wolken sensitiv auf die in globalen Modellen hinterlegten Hygroskopizität des Hintergrundaerosols reagieren. Ein nächster Schritt ist der Vergleich mit einem Ein-Säulen-Erdsystemmodell, das mit aus den ACTIVATE und LES Daten abgeleiteten Randbedingungen initialisiert wird.

Ein Vergleich der ACTIVATE in-situ Daten mit dem globalen Klimamodell CAM6 zeigt, dass die Aerosolteilchenkonzentration unterhalb der Wolkenunterkante vergleichbar sind und sich die gemessene Turbulenz von der simulierten unterscheidet (Brunke et al., 2022). Da besonders die Aufwindgeschwindigkeit in die Parametrisierung der Wolken-Aerosol-Wechselwirkung einfließt, unterschätzt das globale CAM6-Modell die Wolkentropfenkonzentration. Diese Studie zeigt, dass der umfangreiche Datensatz für die Evaluierung von Parametrisierungen in globalen Klimamodellen geeignet ist. Der in dieser Arbeit dargestellte Zusammenhang zwischen der Wolkentropfenkonzentration und den Aufwindgeschwindigkeiten bei der Wolkenbildung für verschiedene  $N_{\rm CCN_{0.43\%}}$ -Hintergründe kann für einen Vergleich mit der verwendeten Parametrisierung in globalen Klimamodellen verwendet werden. Abb. 8.1 zeigt einen vorläufigen Vergleich zwischen in-situ Messungen von ACTIVATE und EMAC-MADE3-Daten, die den gleichen Zeitraum im Winter 2020 abdecken. Die Korrelation von  $N_{\rm flüssig}$  zu w aus den MADE-EMAC3 Daten wurde ebenfalls mit der PMM ermittelt. Das globale Klimamodell zeigt auch, dass für Hintergründe mit hohen Aerosolteilchen-konzentrationen (H) höhere Wolkentropfenkonzentrationen erreicht werden als für Hinter-

gründe mit niedrigen Aerosolteilchenkonzentrationen (L). Die Ergebnisse des globalen Modells zeigen höhere Aufwindgeschwindigkeiten und geringere Wolkentropfenkonzentrationen als die in-situ Messungen. Außerdem zeigen die L/H-Hintergründe von EMAC-MADE3 keine Sättigung bei hohen Aufwindgeschwindigkeiten. Ein nächster Schritt ist die Verbesserung des Vergleichs durch weitere Einschränkung der verwendeten EMAC-MADE3 Daten durch in-situ Daten und die Beantwortung der Frage, ob die niedrigen Wolkentropfenkonzentrationen aus einer Unterschätzung der Aerosolteilchenkonzentration oder aus der Parametrisierung der Wolkentropfenaktivierung resultieren. Außerdem eignen sich die in dieser Arbeit gezeigten Vertikalprofile durch die hohe Datenmenge und die große zeitliche Abdeckung der ACTIVATE Kampagne für einen Vergleich mit globalen Klimamodellen. Eine Forschungsfrage könnte untersuchen, wie gut globale Klimamodelle die Saisonalität und Vertikalstruktur von ozeanischen Grenzschichtwolken im Nordwestatlantik abbilden. Die erhöhte effektive Klimasensitivität gegenüber der globalen mittleren bodennahen Lufttemperatur in dieser Region weist auf Modellunterschiede hin (Bock et al., 2020) und könnte mit dem Auftreten von durchbrochenen Mischphasenwolken zusammenhängen. Insgesamt bietet der umfangreiche in-situ Wolkendatensatz eine ideale Grundlage für Vergleiche mit Fernerkundungsmethoden, für die Evaluierung von lokalen und globalen Wetter- und Klimamodellen sowie für die Untersuchung von Aerosol-Wolken-Wechselwirkungen.

## Akronyme und Symbole

#### Akronyme

- 2D-C . . . . . 2D-S-Vorgängermodell mit einem Schattenbilddetektor
- 2D-S . . . . . . Two-Dimensional Stereo
- ACTIVATE . . Aerosol Cloud meTeorology Interactions oVer the western ATlantic Experiment
- AIRTOSS . . . AIRcraft TOwed Sensor Shuttle
- CALIPSO . . . Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation
- CAO . . . . . Kaltluftausbruch
- CAPS . . . . . Cloud, Aerosol and Precipitation Spectrometer
- CCN . . . . . Wolkenkondensationskerne
- CDP . . . . . . Cloud Droplet Probe
- CIP . . . . . . Cloud Imaging Probe
- CMIP5 . . . . . Coupled Model Intercomparison Project Phase 5
- CMIP6 . . . . . Coupled Model Intercomparison Project Phase 6
- DMS . . . . . Dimethylsulfide
- DMT . . . . . Droplet Measurement Technologies

- DOF . . . . . . Tiefenschärfe bei Schattenbilddetektoren
- $\mathsf{DOF}_{\mathsf{VS}}$  . . . . Tiefenschärfekriterium bei Streulichtspektrometern
- EarthCARE . . Earth Clouds, Aerosol and Radiation Explorer
- ECMWF . . . . European Centre for Medium-Range Weather Forecasts model
- ERA5 . . . . . fünftes globale Reanalyse von ECMWF
- FCDP . . . . . Fast Cloud Droplet Probe
- FSSP . . . . . Forward Scattering Spectrometer Probe
- GOES-16 . . . . Geostationary Operational Environmental Satellite 16
- HODAR . . . . Holographic Droplet and Aerosol Recording system
- HOLODEC . . Holographic Detector for Clouds
- HR-ToF-AMS . High Resolution Time-of-Flight Aerosol-Massenspektrometer
- HSI-FP . . . . . High-Speed Imaging Flight Probe
- HSRL-2 . . . . High Spatial Resolution Lidar
- IAT . . . . . . *interarrivaltime*
- INP . . . . . Eisnukleationskerne
- IPCC . . . . . . Intergovernmental Panel on Climate Change
- LaRC . . . . . NASA Langley Research Centers
- LAS . . . . . Laser-Aerosol Spectrometer
- LES . . . . . . *Large-Eddy-*Simulationen
- MBLC . . . . marine Grenzschichtwolkenereignisse von marine boundary layer clouds

- MERRA-2 . . . Modern-Era Retrospective Analysis for Research and Applications-Version 2
- MODIS . . . . Moderate-resolution Imaging Spectroradiometer
- NIST . . . . . National Institute of Standards and Technology
- NPF . . . . . . New Particle Formation
- $NW\!A$  . . . . . . Nordwestatlantik
- OA . . . . . . organisches Aerosol
- OASIS . . . . . Optical Array Shadow Imaging Software
- PAS . . . . . probe air speed
- $\text{PAS}_a$  . . . . . angenommene PAS
- $\text{PAS}_r$  . . . . . . reale PAS
- PDI . . . . . Phasen-Doppler-Interferometer
- PHIPS-HALO . Particle Habit Imaging and Polar Scattering Probe
- PI-FP . . . . . Particle Imaging Flight Probe
- PILS . . . . . Particle-Into-Liquid Sampler
- PMM . . . . . Methode des Wahrscheinlichkeitsabgleichs
- PSD . . . . . Partikelgrößenverteilung
- $\text{PSD}_a$  . . . . . Aerosol-Partikelgrößenverteilung
- RF . . . . . . Messflug von research flight
- RSP . . . . . Research Scanning Polarimeter

SIP		•				•		sekundäre	Eisbildung
-----	--	---	--	--	--	---	--	-----------	------------

- SMPS . . . . . Scanning Mobility Particle Sizer
- SOCRATES . . Southern Ocean Cloud Radiation and Aerosol Transport Experimental Study
- SODA . . . . . System for Optical Array Probe Data Analysis
- SPEC . . . . . Stratton Park Engineering Company
- TAMMS .... Turbulent Air Motion Measurement System
- TAS .... Fluggeschwindigkeit relative zur Luftmasse von true air speed
- VS1 . . . . . . FCDP-Verstärkerstufe für Partikel <20  $\mu$ m
- VS2 . . . . . . FCDP-Verstärkerstufe für Partikel >20  $\mu$ m
- WBF . . . . . Wegener-Bergeron-Findeisen Prozess

### Symbole

- $2D-S_E$  . . . . . erster berücksichtigter 2D-S-Größenbereich
- $2D\text{-}S_{E,2D\text{-}S}$  . . . Anteil, der dem neu berechneten 2D-S-Größenbereich von 30 bis 40,25  $\mu m$  zugeschrieben wird
- $2\text{D-S}_{\text{E,FCDP}}$  . . . Anteil, der dem neu berechneten FCDP-Größenbereich von 27 bis 30  $\mu\text{m}$  zugeschrieben wird
- *A* . . . . . . . . . Fläche
- A<sub>2D-S</sub> . . . . . größenabhängie 2D-S Messfläche
- *a*<sub>Eis</sub> . . . . . . Eispartikelteilchenanzahl

$A_i$ generalisierte Messfläche
$a_i$ Anzahl Partikel im Größenbereich <i>i</i>
AOD optische Dicke von Aerosol
C thermodynamischer Parameter für $S_{\text{max}}$ -Bestimmung
$\chi$ Suszeptibilität von w auf $N_{ m flüssig}$
D Durchmesser
${\rm D}_{{\rm beide},p=2}$ Kalibrationsmethode unter Verwendung beider Verstärkerstufen und einem quadratischen Fit
$D_{\rm c}$ kritischer Durchmesser
$D_{\rm edge}$ Durchmesser des Beugungsbildes
$\Delta_{res}$ effektive Pixelauflösung
$\Delta t$ Zeitintervall
$D_{\mathrm{f}}$ flächenäquivalenter Durchmesser
$D_i$ arithmetische Mitte des Größenbereichs <i>i</i>
D <sub>i,o</sub> obere Größenbereichsgrenze
D <sub>i,u</sub> unter Größenbereichsgrenze
$D_K$ Kalibrationsdurchmesser
$D_{\max}$ Maximaldurchmesser
$D_p$ Partikeldurchmesser
$D_{sep,p=2}$ Kalibrationsmethode unter Verwendung beider Verstärkerstufen und ei-

150

nem quadratischen Fit

- D<sub>sep,p=28</sub> . . . . Kalibrationsmethode unter Verwendung beider Verstärkerstufen und einem Fit 28. Ordnung
- $D_{\text{spot}}$  . . . . . Durchmesser Poissonspot
- $D_T$  . . . . . . theoretische mittlere Durchmesser äquivalenter Wassertropfen
- $\varnothing$  . . . . . . Durchschnittliches Vorkommen an Wolkenereignissen pro Messflug
- $D_{\rm x}$  . . . . . . Durchmesser parallel zur Photodiodenreihe
- $D_{xy}$  . . . . . . . . gemitteler Durchmesser aus x- und y-Richtung
- $D_y$  . . . . . . Durchmesser parallel zur Flugrichtung
- *D*<sub>Z</sub> . . . . . . Durchmesser nach Korolev-Korrektur
- e . . . . . . . Wasserdampfpartial-/Dampfdruck
- *ED* . . . . . . effektiver Durchmesser
- ED<sub>Eis</sub> . . . . . effektiver Durchmesser aller Eispartikel
- ED<sub>flüssig</sub> . . . . effektiver Durchmesser aller flüssiger Partikel
- *e*<sub>Eis</sub> . . . . . . . Gleichgewichtswasserdampfdruck über Eis
- e<sub>Wasser</sub> . . . . . Gleichgewichtswasserdampfdruck über Wasser
- esat . . . . . . . Sättigungsdampfdruck
- esat,e . . . . . . Wasserdampfpartialdruck über Eis (eben)
- esat,w . . . . . . Wasserdampfpartialdruck über Wasser (eben)
- $e_{\rm sat,w}(D_p)$  . . . Sättigungsdampfdruck einer Lösung über einer gekrümmten Fläche mit Durchmesser  $D_p$
- $FCDP_L$  . . . . letzter berücksichtigter FCDP-Größenbereich ohne 2D-S<sub>E</sub>-Überlapp

- $FCDP_{L,U}$  . . . . letzter berücksichtigter FCDP-Größenbereich mit 2D-S<sub>E</sub>-Überlapp
- $\Delta_s H$  . . . . . molare Sublimations-/Resublimations enthalpie von Wasser (entgegengesetzte Vorzeichen)
- $\Delta_w H$  . . . . . . molare Verdampfungs-/Kondensationsenthalpie von Wasser (entgegengesetzte Vorzeichen)
- $h_{\rm WU}$  . . . . . Entfernung zur Wolkenunterkante
- i . . . . . . . Größenbereich
- *I*<sub>A</sub> . . . . . . . Leistung des einfallenden Lichts
- *IWC* . . . . . . Eiswassergehalt
- L . . . . . . . . Photodiodenreihenlänge
- $\lambda$  . . . . . . . . Wellenlänge
- $L_{\rm eff}$  . . . . . . effektive Photodiodenreihenlänge
- $L_{\max}$  . . . . . . maximaler Abstand der Aerosol- und Wolkenmessungen
- Lrec . . . . . . rekonstruierte Photodiodenreihenlänge für Randpartikel
- LWC . . . . . Flüssigwassergehalt
- LWC<sub>i</sub> . . . . . . Flüssigwassergehalt des Größenbereichs i
- m . . . . . . . . Photodiodenanzahl
- $M_{\rm Eis}$  . . . . . Eismasse
- ${\rm Mie}_o$ .... Abweichung eines Einzelpartikels durch Mie-Mehrdeutigkeit hin zu größeren Größenbereichen
- $\mathrm{Mie}_u$ .... Abweichung eines Einzelpartikels durch Mie-Mehrdeutigkeit hin zu kleineren Größenbereichen

- $\overline{M_{\rm Eis}}$  . . . . . . mittlere Eismasse der Partikel
- $M_{
  m w}$  . . . . . . . Molare Masse Wasser
- N . . . . . . . . . . . . . . . Teilchenkonzentration
- *n* . . . . . . . Brechungsindex
- $N_{>85}$  . . . . . . Aerosolteilchenkonzentration für Partikel >85 nm
- N<sub>CCN</sub> . . . . . . Teilchenkonzentration der CCN
- $N_{\text{CCN}_{0.43\%}}$  . . . . CCN Teilchenkonzentration bei 0.43% Übersättigung
- *N*<sub>Eis</sub> . . . . . . Teilchenkonzentration aller Eispartikel
- N<sub>flüssig</sub> . . . . . Teilchenkonzentration aller flüssiger Partikel
- $n_{\rm p}$  . . . . . . . Anzahl der Partikel in einem Messinterval
- $n_{\rm s}$  . . . . . . . gelöste Stoffmenge des Salzes
- v . . . . . . . . Anzahl der Ionen, in die ein Molekül dissoziiert
- $N_{\rm W}$  . . . . . . Wolkenteilchenkonzentration
- P<sub>Anzahl</sub> . . . . . Pixelanzahl
- P<sub>Auflösung</sub> . . . . effektive Pixelauflösung
- *P*<sub>streu</sub> . . . . . . gestreute Lichtleitstung
- *R* . . . . . . . . . Radius projizierter Kreisfläche
- r . . . . . . . . Radius des Beugungsbilds
- *RH* . . . . . . relative Feuchte
- $\rho_{\rm w}$   $\ .$  . . . . . . Dichte von Wasser

$\rho_{\rm wd}$ Dichte der Wasserdampfmoleküle
$RH_{\rm w}$ relative Feuchte gegenüber Wasser
$\mathcal{R}$ universelle Gaskonstante 8.31446261815324 $\frac{J}{molK}$
$R_{\rm wd}$ spezifische Gastkonstante von Wasserdampf
S Übersättigung
$SA_{\rm eff}$ effektive Messfläche
$S_{\rm c}$ kritische Übersättigung
$\sigma_{4-12^\circ}$ $\ .$ Strahlungsleistung im Raumwinkel 4 bis $12^\circ$
$\frac{\mathrm{d}\sigma}{\mathrm{d}\Omega}$ differenzieller Streuquerschnitt
$\sigma_{\rm e}$ Oberflächen energie von Eis
$\sigma_{\mathrm{total}}$ Streuquerschnitt
$\sigma_{\rm w}$ Oberflächenspannung von Wasser
$S_{\max}$ maximale Übersättigung
$S_{\rm e}$ Übersättigung gegenüber Eis
$S_{\rm w}$ Übersättigung gegenüber Wasser
T Temperatur
$\tau$ Ansprechzeit der Photodioden
$t_{\rm W}$
$u_{n_{\mathrm{p}}}$

- $U_p$  . . . . . . . gemessene Signalspannung des Partikels
- V . . . . . . . . . Volumen
- w . . . . . . . Aufwindgeschwindigkeit
- $w_{\rm eff}$  . . . . . . effektive Aufwindgeschwindigkeit
- $\overline{w}$  . . . . . . . . mittlerer Gewichtungsfaktor
- $w_p$  . . . . . . . Gewichtungsfaktor pro Partikel
- x . . . . . . . . Lorenz-Mie Größenfaktor
- $\xi$  . . . . . . . dimensions lose Koordinate
- Z . . . . . . . . Abstand zu Bildebene
- $Z_d$  . . . . . . dimensions lose Koordinate
- $Z_{\text{max}}$  . . . . . berechnete Tiefenschärfe (DOF)

# Abbildungsverzeichnis

1.1	CMIP6 Multimodell-Mittelwertabweichung der bodennahen Lufttempera- tur. Quelle: Bock et al. (2020)	3
2.1	Wolkenklassifizierungsschemata	8
2.2	Schematische Darstellung einer multimodalen Aerosol-Partikelgrößenverteilun	ıg
	und eine typische Wolkenpartikelverteilung.	13
2.3	Köhlerkurven für verschiedene $n_s$ an NaCl	17
2.4	Kondensation und Koaleszenz.	18
2.5	WBF, Verreifung und Aggregation.	20
2.6	Sekundäre Eisbildungsprozesse.	22
3.1	Debye-Reihe und Mie-Lösung für 50 µm Wassersphäre.	26
3.2	FCDP Aufbau.	29
3.3	FCDP Messprinzip.	30
3.4	Differenzieller Streuquerschnitt und detektierbarer FCDP Raumwinkel	31
3.5	Erweiterte und klassische Koinzidenz	34
3.6	2D-C Aufbau	36
3.7	Beugungsbild mit Koordinatensystem	37
3.8	Beugungsbild einer lichtundurchlässigen Kreisfläche und die daraus abge-	
	leitete größenabhängige Detektierbarkeit der 2D-S. Quelle: Vaillant de Gué-	
	lis et al. (2019)	38
3.9	Generierung der gemessenen Abbildung über Abtastung des Beugungsbildes.	39
3.10	Durchmesser einer idealen Sphäre und eines verformten Wassertropfens	40
3.12	Beugungsbilder und ihre vergrößerten Abbildungen eines säulenartigen	
	Partikels	41
3.11	Durchmesser eines unfokussierten säulenartigen Eispartikels	41
3.13	Methoden zur Bestimmung der Messvolumens	42
3.14	2D-S Shattering Abbildungen.	44
3.15	2D-S Koinzidenz Abbildungen Stereo Regentropfen.	44
3.16	Verzögerter Signalverlauf aus Strapp et al. (2001) und entsprechende 2D-S-	
	Abbildungen	45
3.17	Fehlerhafte Abbildungen durch Diodenfehler.	46
3.18	2D-S PAS-Korrektur eines gestauchten und gestreckten Wassertropfens	47
3.19	Deformation von Wassertropfen und Messartefakte durch externe Einflüsse.	47
4.1	Theoretische Mie-Kurven des $\sigma_{4-12^\circ}$ der Kalibrationskugeln. Software: Mie-	
	ConScat (Wiscombe, 1980; Rosenberg et al., 2012).	54
4.2	Die A/D-Werte Verteilung der verschiedenen Kalibrationskugeln im ge-	
	kennzeichneten Wertebereich der VS1 und VS2.	55
4.3	$\sigma_{4-12^\circ}\text{-}U_p$ Zusammenhang und die zugehörigen Wasser Mie-Kurven für VS1	
	und VS2	56
4.4	FCDP Messflächenkalibration.	60
4.5	2D-S Drehscheiben-Experiment.	62
4.6	2D-S Bestimmung der effektiven Pixelauflösung.	63

4.7	Größenabhängige 2D-S Messfläche A <sub>2D-S</sub>		64
4.8	2D-S mit Drehscheibenkonstruktion im Innenraum der Klimakammer.		65
4.9	Einfluss der Umgebungsbedingung auf 2D-S Größenbestimmung.		66
4.10	Einfluss der Umgebungsbedingungen auf Diodenfehler		67
4 1 1	Darstellung einzelner 2D-S Bildnarameter	•	70
4 1 2	Beisniele für aussortierte Abbildungen	•	72
1.12	Klassifikationsheisniele der Filterdefinitionen	•	72
4.13	Sahamatiasha Daratallung dar nau harashnatan Crößenharaisha im Ühar	•	75
4.14	lappungsbereich.		75
5.1	NWA-Karte. Quelle: Sorooshian et al. (2020)		84
5.2	Forschungsflugzeuge Falcon HU-25 und King Air.		85
5.3	Statistisches Flugprofil (Ensemble) und Rasterprofil der HU-25		86
5.4	Karte der Flugrouten der HU-25 während ACTIVATE. Quelle: Kirschler et		
	al. (2023).		87
5.5	Phasenräume und mittlere Partikelgrößenverteilung der Winterkampa-		
	gnenphasen. Quelle: Kirschler et al. (ebd.).		89
5.6	Phasenräume und mittlere Partikelgrößenverteilung der Sommerkampa-		
	gnenphasen. Ouelle: Kirschler et al. (ebd.).		90
5.7	Beispiele für große Bioaerosole im Frühsommer 2021 und 2022. Quelle: ad-		
017	aptiert aus Kirschler et al. (ebd.).		91
58	l'Iberblick der Wolkenereignisse Quelle: Kirschler et al. (ebd.)	•	94
5.9	Höhenaufgelöste Wahrscheinlichkeits- und Temperaturverteilung der Wol-	•	1
5.7	kenereignisse Quelle Kirschler et al (ebd.)		97
5 10	Reichiel 2D-S-Graunelmessungen über $0^{\circ}$ C Quelle: Kirschler et al. (ebd.)	•	08
J.10	Vartikalprofile mikronhygikaligeher Deremeter und mittlere Dertikalgrößen	•	90
J.11	vertikalprome mikrophysikalischer Farahleter und mittlere Farikeigroben-		100
E 10	Vertiltalprofile miltronbusiltalisaber Darameter und mittlere Dartiltalgrößen	•	100
5.12	vertikaipione mikrophysikaiischer Parameter und mittere Partikeigroben-		100
F 10	verteilung der Mischphasenwolkenereignisse. Quelle: Kirschler et al. (ebd.).	•	103
5.13	Haufigkeit von Niederschlag und Wolken wahrend ACTIVATE. Quelle:		107
		•	106
5.14	Raumliche Wolken- und Niederschlagsverteilung der Sommerkampagnen-		
	phasen. Quelle: Kirschler et al. (ebd.).	•	108
5.15	Raumliche Wolken- und Niederschlagsverteilung der Winterkampagnen-		
	phasen. Quelle: Kirschler et al. (ebd.).	•	109
61	Verwandete Paara aines Ensembles, Quelle: Kirschlar et al. (2022)		112
6.1	Verwendete Pare eines Ensembles. Quelle. Kirschler et al. (2022)	•	113
0.2	Welwenderer einer eines beispielpaars. Quelle. Kirschief et al. (ebu.).	•	114
0.5	wantscheinichkeitsvertenungen der $N_{\rm CCN_{0.43\%}}$ -Finnergrunde in 2020. Quei-		110
<i>(</i> <b>)</b>		•	119
6.4	Saisonale PMM-Korrelation von $N_{\text{flüssig}}$ zu w und $S_{\text{max}}$ -Schatzungen in 2020.		101
< <b>-</b>	Quelle: Kirschler et al. (ebd.).	•	121
6.5	SNIPS-LAS Aerosolpartikeigrobenverteilung und $N_{>85}$ unternalb der Wol-		104
	kenunterkante in 2020. Quelle: Kirschler et al. (ebd.).	•	124
7.1	Schematische Darstellung der Ergebnisse dieser Arbeit.	•	132
8.1	Vergleich von N <sub>flüssig</sub> zu w aus in-situ Messungen und EMAC-MADE3 Dater	1.	144

# Tabellenverzeichnis

4.1	Evaluierungstabelle verschiedener Kalibrationsmethoden	57
4.2	FCDP Größenbereichsdefinition und Mie-Mehrdeutigkeit von Einzelpartikel.	58
4.3	Auflistung der aus den Abbildungen extrahierten Parameter.	69
4.4	Filterdefinitionen zur Detektion fehlerhafter Abbildungen mit den logischen	
	Operatoren UND ( $\land$ ), ODER ( $\lor$ ) und NICHT ( $\neg$ ).	71
4.5	Filterdefinitionen zur Klassifikation der Partikel mit den logischen Opera-	
	toren UND ( $\land$ ) und ODER ( $\lor$ ).	73
4.6	Messunsicherheiten von N, LWC, ED und IWC für die Messinstrumente	
	FCDP, 2D-S und deren Kombination in Wolken und Niederschlag $\ldots$ .	78
<b>F</b> 1		0.0
5.1		83
5.2	Statistik der Wolkenereignisse wahrend ACTIVATE. Quelle: Kirschler et al.	05
	(2023)	95
6.1	Alle verwendeten Paare der Winterkampagnenphase 2020. Ouelle: Kirschler	
	et al. (2022). $\ldots$	116
6.2	Alle verwendeten Paare der Sommerkampagnenphase 2020. Quelle: Kirsch-	
	ler et al. (ebd.).	118
6.3	Zusammensetzung der Aerosolspezies aller Paare der Winterkampagnen-	
	phase 2020. Quelle: Kirschler et al. (ebd.).	126
6.4	Zusammensetzung der Aerosolspezies aller Paare der Sommerkampagnen-	
	phase 2020. Quelle: Kirschler et al. (ebd.).	128

#### Literatur

- Abdelmonem, A., E. Järvinen, D. Duft, E. Hirst, S. Vogt, T. Leisner und M. Schnaiter (Juli 2016). "PHIPS-HALO: The Airborne Particle Habit Imaging and PolarScattering Probe Part 1: Design and Operation". In: *Atmospheric Measurement Techniques* 9, S. 3131–3144. ISSN: 1867-8548. DOI: 10.5194/amt-9-3131-2016. URL: https://amt.copernicus.org/articles/ 9/3131/2016/ (besucht am 17.04.2023).
- Abdul-Razzak, H. und S. J. Ghan (2000). "A Parameterization of Aerosol Activation: 2. Multiple Aerosol Types". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 105, S. 6837–6844. ISSN: 2156-2202. DOI: 10.1029/1999JD901161. URL: https://agupubs.onlinelibrary.wiley. com/doi/abs/10.1029/1999JD901161 (besucht am 03.09.2021).
- Abel, S. J., P. A. Barrett, P. Zuidema, J. Zhang, M. Christensen, F. Peers, J. W. Taylor, I. Crawford, K. N. Bower und M. Flynn (Apr. 2020). "Open Cells Exhibit Weaker Entrainment of Free-Tropospheric Biomass Burning Aerosol into the South-East Atlantic Boundary Layer". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 20, S. 4059–4084. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-20-4059-2020. URL: https://acp.copernicus.org/articles/20/4059/2020/ (besucht am 10.01.2023).
- Ahn, E., Y. Huang, S. T. Siems und M. J. Manton (2018). "A Comparison of Cloud Microphysical Properties Derived From MODIS and CALIPSO With In Situ Measurements Over the Wintertime Southern Ocean". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 123, S. 11, 120–11, 140. ISSN: 2169-8996. DOI: 10.1029/2018JD028535. URL: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2018JD028535 (besucht am 10.01.2023).
- Albrecht, B. A. (Sep. 1989). "Aerosols, Cloud Microphysics, and Fractional Cloudiness". In: *Science* 245, S. 1227–1230. ISSN: 0036-8075, 1095-9203. DOI: 10.1126/science.245.4923.1227.
   URL: https://science.sciencemag.org/content/245/4923/1227 (besucht am 13. 04. 2021).
- Andrews, T., J. M. Gregory und M. J. Webb (Feb. 2015). "The Dependence of Radiative Forcing and Feedback on Evolving Patterns of Surface Temperature Change in Climate Models".
  In: *Journal of Climate* 28, S. 1630–1648. ISSN: 0894-8755, 1520-0442. DOI: 10.1175/JCLI-D-14-00545.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/clim/28/4/jcli-d-14-00545.1.xml (besucht am 26.05.2021).
- Baker, B. und R. P. Lawson (Sep. 2006). "Improvement in Determination of Ice Water Content from Two-Dimensional Particle Imagery. Part I: Image-to-Mass Relationships". In: *Journal of Applied Meteorology and Climatology* 45, S. 1282–1290. ISSN: 1558-8432, 1558-

8424. doi: 10.1175/JAM2398.1. url: https://journals.ametsoc.org/jamc/article/45/9/1282/ 12723/Improvement-in-Determination-of-Ice-Water-Content (besucht am 08.07.2020).

- Bateman, H. (1915). The Mathematical Analysis of Electrical and Optical Wave-motion on the Basis of Maxwell's Equations: By H. Bateman... University press.
- Baumgardner, D., S. J. Abel, D. Axisa, R. Cotton, J. Crosier, P. Field, C. Gurganus, A. Heymsfield, A. Korolev, M. Krämer, P. Lawson, G. McFarquhar, Z. Ulanowski und J. Um (Jan. 2017). "Cloud Ice Properties: In Situ Measurement Challenges". In: *Meteorological Monographs* 58, S. 9.1–9.23. DOI: 10.1175/AMSMONOGRAPHS-D-16-0011.1. URL: https: //journals.ametsoc.org/view/journals/amsm/58/1/amsmonographs-d-16-0011.1.xml (besucht am 21.03.2022).
- Baumgardner, D. und A. Korolev (1997). "Airspeed Corrections for Optical Array Probe Sample Volumes". In: *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 14, S. 1224–1229.
- Baumgardner, D., W. Strapp und J. E. Dye (Dez. 1985). "Evaluation of the Forward Scattering Spectrometer Probe. Part II: Corrections for Coincidence and Dead-Time Losses". In: *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 2, S. 626–632. ISSN: 0739-0572, 1520-0426. DOI: 10.1175/1520-0426(1985)002<0626:EOTFSS>2.0.CO;2. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atot/2/4/1520-0426\_1985\_002\_0626\_eotfss\_2\_0\_co\_2.xml (besucht am 07.06. 2021).
- Behrenfeld, M. J., R. H. Moore, C. A. Hostetler, J. Graff, P. Gaube, L. M. Russell, G. Chen, S. C. Doney, S. Giovannoni, H. Liu, C. Proctor, L. M. Bolaños, N. Baetge, C. Davie-Martin, T. K. Westberry, T. S. Bates, T. G. Bell, K. D. Bidle, E. S. Boss, S. D. Brooks, B. Cairns, C. Carlson, K. Halsey, E. L. Harvey, C. Hu, L. Karp-Boss, M. Kleb, S. Menden-Deuer, F. Morison, P. K. Quinn, A. J. Scarino, B. Anderson, J. Chowdhary, E. Crosbie, R. Ferrare, J. W. Hair, Y. Hu, S. Janz, J. Redemann, E. Saltzman et al. (2019). "The North Atlantic Aerosol and Marine Ecosystem Study (NAAMES): Science Motive and Mission Overview". In: *Frontiers in Marine Science* 6. ISSN: 2296-7745. DOI: 10.3389/fmars.2019.00122. URL: https://www.frontiersin.org/articles/10.3389/fmars.2019.00122/full (besucht am 13.07.2021).
- Bergeron, T. (1935). "On the Physics of Clouds and Precipitation". In: *Proc. 5th Assembly UGGI, Lisbon, Portugal, 1935*, S. 156–180.
- Berry, E. X. und R. L. Reinhardt (Okt. 1974). "An Analysis of Cloud Drop Growth by Collection: Part I. Double Distributions". In: *Journal of the Atmospheric Sciences* 31, S. 1814–1824.
  ISSN: 0022-4928, 1520-0469. DOI: 10.1175/1520-0469(1974)031<1814:AAOCDG>2.0.CO;2.
  URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atsc/31/7/1520-0469\_1974\_031\_1814\_aaocdg\_2\_0\_co\_2.xml (besucht am 10.01.2023).
- Bi, L., W. Lin, Z. Wang, X. Tang, X. Zhang und B. Yi (2018). "Optical Modeling of Sea Salt Aerosols: The Effects of Nonsphericity and Inhomogeneity". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 123, S. 543–558. ISSN: 2169-8996. DOI: 10.1002/2017JD027869. URL: https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/2017JD027869 (besucht am 19.03.2021).

- Bock, L., A. Lauer, M. Schlund, M. Barreiro, N. Bellouin, C. Jones, G. A. Meehl, V. Predoi, M. J. Roberts und V. Eyring (2020). "Quantifying Progress Across Different CMIP Phases With the ESMValTool". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 125, e2019JD032321. ISSN: 2169-8996. DOI: 10.1029/2019JD032321. URL: https://agupubs.onlinelibrary.wiley. com/doi/abs/10.1029/2019JD032321 (besucht am 19.05.2021).
- Böhm, J. P. (1992a). "A General Hydrodynamic Theory for Mixed-Phase Microphysics. Part I: Drag and Fall Speed of Hydrometeors". In: *Atmospheric research* 27, S. 253–274.
- (1992b). "A General Hydrodynamic Theory for Mixed-Phase Microphysics. Part II: Collision Kernels for Coalescence". In: *Atmospheric research* 27, S. 275–290.
- (1992c). "A General Hydrodynamic Theory for Mixed-Phase Microphysics. Part III: Riming and Aggregation". In: *Atmospheric research* 28, S. 103–123.
- Bohren, C. F. und D. R. Huffman (1983). *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. New York: Wiley. ISBN: 978-0-471-05772-7.
- Borrmann, S. und R. Jaenicke (Juni 1993). "Application Of Microholography for Groundbased In Situ Measurements in Stratus Cloud Layers: A Case Study". In: *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 10, S. 277–293. ISSN: 0739-0572, 1520-0426. DOI: 10.1175/ 1520-0426(1993)010<0277:AOMFGB>2.0.CO;2. URL: https://journals.ametsoc.org/view/ journals/atot/10/3/1520-0426\_1993\_010\_0277\_aomfgb\_2\_0\_co\_2.xml (besucht am 22.06.2023).
- Borrmann, S., R. Jaenicke und P. Neumann (Mai 1993). "On Spatial Distributions and Inter-Droplet Distances Measured in Stratus Clouds with in-Line Holography". In: *Atmospheric Research* 29, S. 229–245. ISSN: 01698095. DOI: 10.1016/0169-8095(93)90005-9. URL: https: //linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/0169809593900059 (besucht am 22. 06. 2023).
- Borrmann, S., B. Luo und M. Mishchenko (Juli 2000). "APPLICATION OF THE T-MATRIX METHOD TO THE MEASUREMENT OF ASPHERICAL (ELLIPSOIDAL) PARTICLES WITH FORWARD SCATTERING OPTICAL PARTICLE COUNTERS". In: *Journal of Aerosol Science* 31, S. 789–799. ISSN: 0021-8502. DOI: 10.1016/S0021-8502(99)00563-7. URL: https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0021850299005637 (besucht am 24.11.2022).
- Bowen, H. J. M. (1979). *Environmental Chemistry of the Elements*. London: Academic press. ISBN: 978-0-12-120450-1.
- Braga, R. C., B. Ervens, D. Rosenfeld, M. O. Andreae, J.-D. Förster, D. Fütterer, L. Hernández Pardo, B. A. Holanda, T. Jurkat-Witschas, O. O. Krüger, O. Lauer, L. A. T. Machado, C. Pöhlker, D. Sauer, C. Voigt, A. Walser, M. Wendisch, U. Pöschl und M. L. Pöhlker (Dez. 2021). "Cloud Droplet Formation at the Base of Tropical Convective Clouds: Closure between Modeling and Measurement Results of ACRIDICON–CHUVA". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 21, S. 17513–17528. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-21-17513-2021. URL: https://acp.copernicus.org/articles/21/17513/2021/ (besucht am 17. 12. 2021).

- Braga, R. C., D. Rosenfeld, R. Weigel, T. Jurkat, M. O. Andreae, M. Wendisch, M. L. Pöhlker, T. Klimach, U. Pöschl, C. Pöhlker, C. Voigt, C. Mahnke, S. Borrmann, R. I. Albrecht, S. Molleker, D. A. Vila, L. A. T. Machado und P. Artaxo (Juni 2017a). "Comparing Parameterized versus Measured Microphysical Properties of Tropical Convective Cloud Bases during the ACRIDICON–CHUVA Campaign". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 17, S. 7365–7386. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-17-7365-2017. URL: https://acp.copernicus.org/articles/17/7365/2017/ (besucht am 18.01.2021).
- Braga, R. C., D. Rosenfeld, R. Weigel, T. Jurkat, M. O. Andreae, M. Wendisch, U. Pöschl, C. Voigt, C. Mahnke, S. Borrmann, R. I. Albrecht, S. Molleker, D. A. Vila, L. A. T. Machado und L. Grulich (Dez. 2017b). "Further Evidence for CCN Aerosol Concentrations Determining the Height of Warm Rain and Ice Initiation in Convective Clouds over the Amazon Basin". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 17, S. 14433–14456. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-17-14433-2017. URL: https://acp.copernicus.org/articles/17/14433/2017/ (besucht am 31.08.2021).
- Bretherton, C. S. (Nov. 2015). "Insights into Low-Latitude Cloud Feedbacks from High-Resolution Models". In: *Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 373, S. 20140415. DOI: 10.1098/rsta.2014.0415. URL: https://royalsocietypublishing.org/doi/10.1098/rsta.2014.0415 (besucht am 05.01.2023).
- Brooks, S. D. und D. C. Thornton (2018). "Marine Aerosols and Clouds". In: *Annual Review* of Marine Science 10, S. 289–313. DOI: 10.1146/annurev-marine-121916-063148. URL: https://doi.org/10.1146/annurev-marine-121916-063148 (besucht am 17.12.2021).
- Brown, P. R. A. und P. N. Francis (Apr. 1995). "Improved Measurements of the Ice Water Content in Cirrus Using a Total-Water Probe". In: *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 12, S. 410–414. ISSN: 0739-0572, 1520-0426. DOI: 10.1175/1520-0426(1995) 012<0410:IMOTIW>2.0.CO;2. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atot/12/2/1520-0426\_1995\_012\_0410\_imotiw\_2\_0\_co\_2.xml (besucht am 24.08.2022).
- Brunke, M. A., L. Cutler, R. D. Urzua, A. F. Corral, E. Crosbie, J. Hair, C. Hostetler, S. Kirschler, V. Larson, X.-Y. Li, P.-L. Ma, A. Minke, R. Moore, C. E. Robinson, A. J. Scarino, J. Schlosser, M. Shook, A. Sorooshian, K. Lee Thornhill, C. Voigt, H. Wan, H. Wang, E. Winstead, X. Zeng, S. Zhang und L. D. Ziemba (2022). "Aircraft Observations of Turbulence in Cloudy and Cloud-Free Boundary Layers Over the Western North Atlantic Ocean From ACTIVA-TE and Implications for the Earth System Model Evaluation and Development". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 127, e2022JD036480. ISSN: 2169-8996. DOI: 10. 1029/2022JD036480. URL: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2022JD036480 (besucht am 11.01.2023).
- Calheiros, R. V. und I. Zawadzki (Jan. 1987). "Reflectivity-Rain Rate Relationships for Radar Hydrology in Brazil". In: *Journal of Applied Meteorology and Climatology* 26, S. 118–132. ISSN: 1520-0450. DOI: 10.1175/1520-0450(1987)026<0118:RRRFR>2.0.CO;2. URL: https:

//journals.ametsoc.org/view/journals/apme/26/1/1520-0450\_1987\_026\_0118\_rrrrfr\_2\_0\_ co\_2.xml (besucht am 21.04.2021).

- Cecchini, M. A., L. A. T. Machado, M. O. Andreae, S. T. Martin, R. I. Albrecht, P. Artaxo, H. M. J. Barbosa, S. Borrmann, D. Fütterer, T. Jurkat, C. Mahnke, A. Minikin, S. Molleker, M. L. Pöhlker, U. Pöschl, D. Rosenfeld, C. Voigt, B. Weinzierl und M. Wendisch (Aug. 2017). "Sensitivities of Amazonian Clouds to Aerosols and Updraft Speed". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 17, S. 10037–10050. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-17-10037-2017. URL: https://acp.copernicus.org/articles/17/10037/2017/ (besucht am 30. 08. 2021).
- Ceppi, P., F. Brient, M. D. Zelinka und D. L. Hartmann (2017). "Cloud Feedback Mechanisms and Their Representation in Global Climate Models". In: *WIREs Climate Change* 8, e465. ISSN: 1757-7799. DOI: 10.1002/wcc.465. URL: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10. 1002/wcc.465 (besucht am 26.05.2021).
- Chelton, D. B., M. G. Schlax, M. H. Freilich und R. F. Milliff (Feb. 2004). "Satellite Measurements Reveal Persistent Small-Scale Features in Ocean Winds". In: *Science* 303, S. 978–983. DOI: 10.1126/science.1091901. URL: https://www.science.org/doi/full/10.1126/science. 1091901 (besucht am 03.03.2023).
- Chin, M., T. Diehl, Q. Tan, J. M. Prospero, R. A. Kahn, L. A. Remer, H. Yu, A. M. Sayer, H. Bian, I. V. Geogdzhayev, B. N. Holben, S. G. Howell, B. J. Huebert, N. C. Hsu, D. Kim, T. L. Kucsera, R. C. Levy, M. I. Mishchenko, X. Pan, P. K. Quinn, G. L. Schuster, D. G. Streets, S. A. Strode, O. Torres und X.-P. Zhao (Apr. 2014). "Multi-Decadal Aerosol Variations from 1980 to 2009: A Perspective from Observations and a Global Model". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 14, S. 3657–3690. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-14-3657-2014. URL: https://acp.copernicus.org/articles/14/3657/2014/ (besucht am 22. 08. 2022).
- Corral, A. F., R. A. Braun, B. Cairns, V. A. Gorooh, H. Liu, L. Ma, A. H. Mardi, D. Painemal, S. Stamnes, B. van Diedenhoven, H. Wang, Y. Yang, B. Zhang und A. Sorooshian (2021). "An Overview of Atmospheric Features Over the Western North Atlantic Ocean and North American East Coast – Part 1: Analysis of Aerosols, Gases, and Wet Deposition Chemistry". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 126, e2020JD032592. ISSN: 2169-8996. DOI: 10.1029/2020JD032592. URL: https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/ doi/abs/10.1029/2020JD032592 (besucht am 14.07.2021).
- Corral, A. F., Y. Choi, E. Crosbie, H. Dadashazar, J. P. DiGangi, G. S. Diskin, M. Fenn, D. B. Harper, S. Kirschler, H. Liu, R. H. Moore, J. B. Nowak, A. J. Scarino, S. Seaman, T. Shingler, M. A. Shook, K. L. Thornhill, C. Voigt, B. Zhang, L. D. Ziemba und A. Sorooshian (2022a). "Cold Air Outbreaks Promote New Particle Formation Off the U.S. East Coast". In: *Geophysical Research Letters* 49, e2021GL096073. ISSN: 1944-8007. DOI: 10.1029/2021GL096073. URL: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2021GL096073 (besucht am 27.06.2022).
- Corral, A. F., Y. Choi, B. L. Collister, E. Crosbie, H. Dadashazar, J. P. DiGangi, G. S. Diskin, M. Fenn, S. Kirschler, R. H. Moore, J. B. Nowak, M. A. Shook, C. T. Stahl, T. Shingler, K.

L. Thornhill, C. Voigt, L. D. Ziemba und A. Sorooshian (2022b). "Dimethylamine in Cloud Water: A Case Study over the Northwest Atlantic Ocean". In: *Environmental Science: Atmospheres* 2, S. 1534–1550. DOI: 10.1039/D2EA00117A. URL: https://pubs.rsc.org/en/content/articlelanding/2022/ea/d2ea00117a (besucht am 10.03.2023).

- Crépel, O., J.-F. Gayet, J.-F. Fournol und S. Oshchepkov (1997). "A New Airborne Polar Nephelometer for the Measurement of Optical and Microphysical Cloud Properties. Part II: Preliminary Tests". In: Annales Geophysicae 15, S. 460–470. DOI: 10.1007/s00585-997-0460-0. URL: https://angeo.copernicus.org/articles/15/460/1997/.
- Dadashazar, H., M. Alipanah, M. R. A. Hilario, E. Crosbie, S. Kirschler, H. Liu, R. H. Moore, A. J. Peters, A. J. Scarino, M. Shook, K. L. Thornhill, C. Voigt, H. Wang, E. Winstead, B. Zhang, L. Ziemba und A. Sorooshian (Nov. 2021a). "Aerosol Responses to Precipitation along North American Air Trajectories Arriving at Bermuda". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 21, S. 16121–16141. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-21-16121-2021. URL: https://acp.copernicus.org/articles/21/16121/2021/ (besucht am 09. 02. 2022).
- Dadashazar, H., A. F. Corral, E. Crosbie, S. Dmitrovic, S. Kirschler, K. McCauley, R. Moore, C. Robinson, J. S. Schlosser, M. Shook, K. L. Thornhill, C. Voigt, E. Winstead, L. Ziemba und A. Sorooshian (Okt. 2022a). "Organic Enrichment in Droplet Residual Particles Relative to out of Cloud over the Northwestern Atlantic: Analysis of Airborne ACTIVATE Data". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 22, S. 13897–13913. ISSN: 1680-7324. DOI: 10.5194/acp-22-13897-2022. URL: https://acp.copernicus.org/articles/22/13897/2022/ (besucht am 10.03. 2023).
- Dadashazar, H., E. Crosbie, Y. Choi, A. F. Corral, J. P. DiGangi, G. S. Diskin, S. Dmitrovic, S. Kirschler, K. McCauley, R. H. Moore, J. B. Nowak, C. E. Robinson, J. Schlosser, M. Shook, K. L. Thornhill, C. Voigt, E. L. Winstead, L. D. Ziemba und A. Sorooshian (Aug. 2022b). "Analysis of MONARC and ACTIVATE Airborne Aerosol Data for Aerosol-Cloud Interaction Investigations: Efficacy of Stairstepping Flight Legs for Airborne In Situ Sampling". In: *Atmosphere* 13, S. 1242. ISSN: 2073-4433. DOI: 10.3390/atmos13081242. URL: https://www.mdpi.com/2073-4433/13/8/1242 (besucht am 13. 12. 2022).
- Dadashazar, H., D. Painemal, M. Alipanah, M. Brunke, S. Chellappan, A. F. Corral, E. Crosbie, S. Kirschler, H. Liu, R. H. Moore, C. Robinson, A. J. Scarino, M. Shook, K. Sinclair, K. L. Thornhill, C. Voigt, H. Wang, E. Winstead, X. Zeng, L. Ziemba, P. Zuidema und A. Sorooshian (Juli 2021b). "Cloud Drop Number Concentrations over the Western North Atlantic Ocean: Seasonal Cycle, Aerosol Interrelationships, and Other Influential Factors". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 21, S. 10499–10526. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-21-10499-2021. URL: https://acp.copernicus.org/articles/21/10499/2021/ (besucht am 20.06.2022).
- Dalton, J. (1802). "Experimental Essays on the Constitution of Mixed Gases". In: *Manchester Literary and Philosophical Society Memo* 5, S. 535–602.

- Debye, P. (1908). "The Electromagnetic Field Surrounding a Cylinder and the Theory of the Rainbow". In: *Physik Z.* 9, S. 775–778.
- DeCarlo, P. F., J. R. Kimmel, A. Trimborn, M. J. Northway, J. T. Jayne, A. C. Aiken, M. Gonin, K. Fuhrer, T. Horvath, K. S. Docherty, D. R. Worsnop und J. L. Jimenez (Dez. 2006). "Field-Deployable, High-Resolution, Time-of-Flight Aerosol Mass Spectrometer". In: *Analytical Chemistry* 78, S. 8281–8289. ISSN: 0003-2700. DOI: 10.1021/ac061249n. URL: https://doi.org/10.1021/ac061249n (besucht am 21.01.2022).
- Delanoë, J. und R. J. Hogan (2010). "Combined CloudSat-CALIPSO-MODIS Retrievals of the Properties of Ice Clouds". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 115. ISSN: 2156-2202. DOI: 10.1029/2009JD012346. URL: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2009JD012346 (besucht am 30.06.2023).
- DeMott, P. J., A. J. Prenni, X. Liu, S. M. Kreidenweis, M. D. Petters, C. H. Twohy, M. S. Richardson, T. Eidhammer und D. C. Rogers (Juni 2010). "Predicting Global Atmospheric Ice Nuclei Distributions and Their Impacts on Climate". In: *Proceedings of the National Academy of Sciences* 107, S. 11217–11222. ISSN: 0027-8424, 1091-6490. DOI: 10.1073/pnas. 0910818107. URL: http://www.pnas.org/cgi/doi/10.1073/pnas.0910818107 (besucht am 29.03. 2021).
- DeMott, P. J., T. C. J. Hill, C. S. McCluskey, K. A. Prather, D. B. Collins, R. C. Sullivan, M. J. Ruppel, R. H. Mason, V. E. Irish, T. Lee, C. Y. Hwang, T. S. Rhee, J. R. Snider, G. R. McMeeking, S. Dhaniyala, E. R. Lewis, J. J. B. Wentzell, J. Abbatt, C. Lee, C. M. Sultana, A. P. Ault, J. L. Axson, M. D. Martinez, I. Venero, G. Santos-Figueroa, M. D. Stokes, G. B. Deane, O. L. Mayol-Bracero, V. H. Grassian, T. H. Bertram, A. K. Bertram, B. F. Moffett und G. D. Franc (Mai 2016). "Sea Spray Aerosol as a Unique Source of Ice Nucleating Particles". In: *Proceedings of the National Academy of Sciences* 113, S. 5797–5803. ISSN: 0027-8424, 1091-6490. DOI: 10.1073/pnas.1514034112. URL: https://www.pnas.org/content/113/21/5797 (besucht am 19.03.2021).
- DMT (2013). Optical Array Shadow Imaging Software (OASIS) 1.0, User Manual DOC-0350 B-5.
- Dusek, U., G. P. Frank, L. Hildebrandt, J. Curtius, J. Schneider, S. Walter, D. Chand, F. Drewnick, S. Hings, D. Jung, S. Borrmann und M. O. Andreae (Juni 2006). "Size Matters More Than Chemistry for Cloud-Nucleating Ability of Aerosol Particles". In: *Science* 312, S. 1375–1378. DOI: 10.1126/science.1125261. URL: https://www.science.org/doi/full/10. 1126/science.1125261 (besucht am 15.02.2022).
- Dye, J. E. und D. Baumgardner (Dez. 1984). "Evaluation of the Forward Scattering Spectrometer Probe. Part I: Electronic and Optical Studies". In: *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 1, S. 329–344. ISSN: 0739-0572, 1520-0426. DOI: 10.1175/1520-0426(1984) 001<0329:EOTFSS>2.0.CO;2. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atot/1/4/1520-0426\_1984\_001\_0329\_eotfss\_2\_0\_co\_2.xml (besucht am 07.06.2021).

- Eastman, R., S. G. Warren und C. J. Hahn (Nov. 2011). "Variations in Cloud Cover and Cloud Types over the Ocean from Surface Observations, 1954–2008". In: *Journal of Climate* 24, S. 5914–5934. ISSN: 0894-8755, 1520-0442. DOI: 10.1175/2011JCLI3972.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/clim/24/22/2011jcli3972.1.xml (besucht am 21.06.2022).
- Ervens, B., G. Feingold und S. M. Kreidenweis (2005). "Influence of Water-Soluble Organic Carbon on Cloud Drop Number Concentration". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 110. ISSN: 2156-2202. DOI: 10.1029/2004JD005634. URL: https://agupubs. onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2004JD005634 (besucht am 21.07.2021).
- Esposito, B. M., W. D. Bachalo, D. Leroy, A. Schwarzenboeck, T. Jurkat, C. Voigt und S. Bansmer (Juni 2019). Wind Tunnel Measurements of Simulated Glaciated Cloud Conditions to Evaluate Newly Developed 2D Imaging Probes. SAE Technical Paper. Warrendale, PA: SAE International. DOI: 10.4271/2019-01-1981. URL: https://www.sae.org/publications/technical-papers/content/2019-01-1981/ (besucht am 17.05.2023).
- Farren, N. J., R. E. Dunmore, M. I. Mead, M. S. Mohd Nadzir, A. A. Samah, S.-M. Phang, B. J. Bandy, W. T. Sturges und J. F. Hamilton (Feb. 2019). "Chemical Characterisation of Water-Soluble Ions in Atmospheric Particulate Matter on the East Coast of Peninsular Malaysia". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 19, S. 1537–1553. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-19-1537-2019. URL: https://acp.copernicus.org/articles/19/1537/2019/ (besucht am 09. 02. 2022).
- Feingold, G. und A. J. Heymsfield (Dez. 1992). "Parameterizations of Condensational Growth of Droplets for Use in General Circulation Models". In: *Journal of the Atmospheric Sciences* 49, S. 2325–2342. ISSN: 0022-4928, 1520-0469. DOI: 10.1175/1520-0469(1992)049<2325: POCGOD>2.0.CO;2. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atsc/49/23/1520-0469\_1992\_049\_2325\_pocgod\_2\_0\_co\_2.xml (besucht am 18.07.2022).
- Field, P. R., A. J. Heymsfield und A. Bansemer (Okt. 2006). "Shattering and Particle Interarrival Times Measured by Optical Array Probes in Ice Clouds". In: *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 23, S. 1357–1371. ISSN: 0739-0572, 1520-0426. DOI: 10.1175/JTECH1922.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atot/23/10/jtech1922\_1. xml (besucht am 09. 06. 2021).
- Field, P. R., R. P. Lawson, P. R. A. Brown, G. Lloyd, C. Westbrook, D. Moisseev, A. Miltenberger, A. Nenes, A. Blyth, T. Choularton, P. Connolly, J. Buehl, J. Crosier, Z. Cui, C. Dearden, P. DeMott, A. Flossmann, A. Heymsfield, Y. Huang, H. Kalesse, Z. A. Kanji, A. Korolev, A. Kirchgaessner, S. Lasher-Trapp, T. Leisner, G. McFarquhar, V. Phillips, J. Stith und S. Sullivan (Jan. 2017a). "Secondary Ice Production: Current State of the Science and Recommendations for the Future". In: *Meteorological Monographs* 58, S. 7.1–7.20. DOI: 10.1175/AMSMONOGRAPHS-D-16-0014.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/amsm/58/1/amsmonographs-d-16-0014.1.xml (besucht am 04.01.2023).

- Field, P. R., R. Wood, P. R. A. Brown, P. H. Kaye, E. Hirst, R. Greenaway und J. A. Smith (Feb. 2003). "Ice Particle Interarrival Times Measured with a Fast FSSP". In: *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 20, S. 249–261. ISSN: 0739-0572, 1520-0426. DOI: 10. 1175/1520-0426(2003)020<0249:IPITMW>2.0.CO;2. URL: https://journals.ametsoc.org/ view/journals/atot/20/2/1520-0426\_2003\_020\_0249\_ipitmw\_2\_0\_co\_2.xml (besucht am 31.08.2021).
- Field, P. R., R. Brožková, M. Chen, J. Dudhia, C. Lac, T. Hara, R. Honnert, J. Olson, P. Siebesma, S. de Roode, L. Tomassini, A. Hill und R. McTaggart-Cowan (2017b). "Exploring the Convective Grey Zone with Regional Simulations of a Cold Air Outbreak". In: *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 143, S. 2537–2555. ISSN: 1477-870X. DOI: 10.1002/qj.3105. URL: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/qj.3105 (besucht am 18.08.2022).
- Findeisen, W. (1938). "Kolloid-Meteorologische Vorgänge Bei Neiderschlags-bildung". In: Meteor. Z 55, S. 121–133.
- Flamant, C., P. Knippertz, A. H. Fink, A. Akpo, B. Brooks, C. J. Chiu, H. Coe, S. Danuor, M. Evans, O. Jegede, N. Kalthoff, A. Konaré, C. Liousse, F. Lohou, C. Mari, H. Schlager, A. Schwarzenboeck, B. Adler, L. Amekudzi, J. Aryee, M. Ayoola, A. M. Batenburg, G. Bessardon, S. Borrmann, J. Brito, K. Bower, F. Burnet, V. Catoire, A. Colomb, C. Denjean, K. Fosu-Amankwah, P. G. Hill, J. Lee, M. Lothon, M. Maranan, J. Marsham, R. Meynadier, J.-B. Ngamini, P. Rosenberg, D. Sauer et al. (Jan. 2018). "The Dynamics–Aerosol–Chemistry–Cloud Interactions in West Africa Field Campaign: Overview and Research Highlights". In: *Bulletin of the American Meteorological Society* 99, S. 83–104. ISSN: 0003-0007, 1520-0477. DOI: 10.1175/BAMS-D-16-0256.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/bams/99/1/bams-d-16-0256.1.xml (besucht am 25.05.2021).
- Fletcher, J., S. Mason und C. Jakob (März 2016). "The Climatology, Meteorology, and Boundary Layer Structure of Marine Cold Air Outbreaks in Both Hemispheres". In: *Journal of Climate* 29, S. 1999–2014. ISSN: 0894-8755, 1520-0442. DOI: 10.1175/JCLI-D-15-0268.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/clim/29/6/jcli-d-15-0268.1.xml (besucht am 10.01.2023).
- Formenti, P., B. D'Anna, C. Flamant, M. Mallet, S. J. Piketh, K. Schepanski, F. Waquet, F. Auriol, G. Brogniez, F. Burnet, J.-P. Chaboureau, A. Chauvigné, P. Chazette, C. Denjean, K. Desboeufs, J.-F. Doussin, N. Elguindi, S. Feuerstein, M. Gaetani, C. Giorio, D. Klopper, M. D. Mallet, P. Nabat, A. Monod, F. Solmon, A. Namwoonde, C. Chikwililwa, R. Mushi, E. J. Welton und B. Holben (Juli 2019). "The Aerosols, Radiation and Clouds in Southern Africa Field Campaign in Namibia: Overview, Illustrative Observations, and Way Forward". In: *Bulletin of the American Meteorological Society* 100, S. 1277–1298. ISSN: 0003-0007, 1520-0477. DOI: 10.1175/BAMS-D-17-0278.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/bams/100/7/bams-d-17-0278.1.xml (besucht am 25.05.2021).

- Freud, E. und D. Rosenfeld (2012). "Linear Relation between Convective Cloud Drop Number Concentration and Depth for Rain Initiation". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 117, S. D02207. ISSN: 2156-2202. DOI: 10.1029/2011JD016457. URL: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2011JD016457 (besucht am 29.10.2021).
- Freud, E., D. Rosenfeld und J. R. Kulkarni (Dez. 2011). "Resolving Both Entrainment-Mixing and Number of Activated CCN in Deep Convective Clouds". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 11, S. 12887–12900. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-11-12887-2011. URL: https://acp.copernicus.org/articles/11/12887/2011/ (besucht am 13. 04. 2021).
- Frey, W., H. Eichler, M. de Reus, R. Maser, M. Wendisch und S. Borrmann (2009). "A New Airborne Tandem Platform for Collocated Measurements of Microphysical Cloud and Radiation Properties". In: *Atmospheric Measurement Techniques* 2, S. 147–158. DOI: 10. 5194/amt-2-147-2009. URL: https://amt.copernicus.org/articles/2/147/2009/.
- Fugal, J. P. und R. A. Shaw (2009). "Cloud Particle Size Distributions Measured with an Airborne Digital In-Line Holographic Instrument". In: *Atmos. Meas. Tech.*
- Fugal, J. P., R. A. Shaw, E. W. Saw und A. V. Sergeyev (Nov. 2004). "Airborne Digital Holographic System for Cloud Particle Measurements". In: *Applied Optics* 43, S. 5987–5995. DOI: 10.1364/AO.43.005987. URL: https://opg.optica.org/ao/abstract.cfm?URI=ao-43-32-5987.
- Garratt, J. R. (Okt. 1994). "Review: The Atmospheric Boundary Layer". In: *Earth-Science Reviews* 37, S. 89–134. ISSN: 0012-8252. DOI: 10.1016/0012-8252(94)90026-4. URL: https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0012825294900264 (besucht am 19. 05. 2023).
- Gayet, J. F., O. Crépel, J. F. Fournol und S. Oshchepkov (1997). "A New Airborne Polar Nephelometer for the Measurements of Optical and Microphysical Cloud Properties. Part I: Theoretical Design". In: *Annales Geophysicae* 15, S. 451–459. DOI: 10.1007/s00585-997-0451-1. URL: https://angeo.copernicus.org/articles/15/451/1997/.
- Ghan, S. J., H. Abdul-Razzak, A. Nenes, Y. Ming, X. Liu, M. Ovchinnikov, B. Shipway, N. Meskhidze, J. Xu und X. Shi (2011). "Correction to "Droplet Nucleation: Physically-based Parameterizations and Comparative Evaluation"". In: *Journal of Advances in Modeling Earth Systems* 3. ISSN: 1942-2466. DOI: 10.1029/2011MS000107. URL: https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2011MS000107 (besucht am 03.08.2021).
- Glienke, S., A. Kostinski, J. Fugal, R. A. Shaw, S. Borrmann und J. Stith (2017). "Cloud Droplets to Drizzle: Contribution of Transition Drops to Microphysical and Optical Properties of Marine Stratocumulus Clouds". In: *Geophysical Research Letters* 44, S. 8002–8010. ISSN: 1944-8007. DOI: 10.1002/2017GL074430. URL: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10. 1002/2017GL074430 (besucht am 21.06.2023).
- Glienke, S., A. B. Kostinski, R. A. Shaw, M. L. Larsen, J. P. Fugal, O. Schlenczek und S. Borrmann (Jan. 2020). "Holographic Observations of Centimeter-Scale Nonuniformities within Marine Stratocumulus Clouds". In: *Journal of the Atmospheric Sciences* 77, S. 499–512. ISSN: 0022-4928, 1520-0469. DOI: 10.1175/JAS-D-19-0164.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atsc/77/2/jas-d-19-0164.1.xml (besucht am 19. 06. 2023).

- Goff, J. A. und S. Gratch (1946). "Low Pressure Properties of Acontribution to the Classical Theory". In: *Quart. J. Roy. Meteor. water from-160 to* 212, S. 95–121.
- Gonzalez, E. M., A. F. Corral, E. Crosbie, H. Dadashazar, G. S. Diskin, E.-L. Edwards, S. Kirschler, R. H. Moore, C. E. Robinson, J. S. Schlosser, M. Shook, C. Stahl, K. L. Thornhill, C. Voigt, E. Winstead, L. D. Ziemba und A. Sorooshian (2022). "Relationships between Supermicrometer Particle Concentrations and Cloud Water Sea Salt and Dust Concentrations: Analysis of MONARC and ACTIVATE Data". In: *Environmental Science: Atmospheres* 2, S. 738–752. DOI: 10.1039/D2EA00049K. URL: https://pubs.rsc.org/en/content/articlelanding/2022/ea/d2ea00049k (besucht am 10.03.2023).
- Grosvenor, D. P., O. Sourdeval, P. Zuidema, A. Ackerman, M. D. Alexandrov, R. Bennartz, R. Boers, B. Cairns, J. C. Chiu, M. Christensen, H. Deneke, M. Diamond, G. Feingold, A. Fridlind, A. Hünerbein, C. Knist, P. Kollias, A. Marshak, D. McCoy, D. Merk, D. Painemal, J. Rausch, D. Rosenfeld, H. Russchenberg, P. Seifert, K. Sinclair, P. Stier, B. van Diedenhoven, M. Wendisch, F. Werner, R. Wood, Z. Zhang und J. Quaas (2018). "Remote Sensing of Droplet Number Concentration in Warm Clouds: A Review of the Current State of Knowledge and Perspectives". In: *Reviews of Geophysics* 56, S. 409–453. ISSN: 1944-9208. DOI: 10.1029/2017RG000593. URL: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2017RG000593 (besucht am 19.04.2022).
- Gryspeerdt, E., J. Quaas und N. Bellouin (2016). "Constraining the Aerosol Influence on Cloud Fraction". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 121, S. 3566–3583. ISSN: 2169-8996. DOI: 10.1002/2015JD023744. URL: https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/2015JD023744 (besucht am 26.05.2021).
- Gryspeerdt, E., J. Quaas, S. Ferrachat, A. Gettelman, S. Ghan, U. Lohmann, H. Morrison, D. Neubauer, D. G. Partridge, P. Stier, T. Takemura, H. Wang, M. Wang und K. Zhang (Mai 2017). "Constraining the Instantaneous Aerosol Influence on Cloud Albedo". In: *Proceedings of the National Academy of Sciences* 114, S. 4899–4904. DOI: 10.1073/pnas.1617765114. URL: https://www.pnas.org/doi/10.1073/pnas.1617765114 (besucht am 19. 04. 2022).
- Grythe, H., J. Ström, R. Krejci, P. Quinn und A. Stohl (Feb. 2014). "A Review of Sea-Spray Aerosol Source Functions Using a Large Global Set of Sea Salt Aerosol Concentration Measurements". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 14, S. 1277–1297. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-14-1277-2014. URL: https://acp.copernicus.org/articles/14/1277/2014/ (besucht am 10.01.2023).
- Gurganus, C. und P. Lawson (2018). "Laboratory and Flight Tests of 2D Imaging Probes: Toward a Better Understanding of Instrument Performance and the Impact on Archived Data". In: *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 35, S. 1533–1553. URL: https: //journals.ametsoc.org/doi/pdf/10.1175/JTECH-D-17-0202.1.
- Haddad, Z. S. und D. Rosenfeld (1997). "Optimality of Empirical Z-R Relations". In: *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 123, S. 1283–1293. ISSN: 1477-870X. DOI: 10.

1002/qj.49712354107. URL: https://rmets.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/qj. 49712354107 (besucht am 18.01.2021).

- Hahn, V. (2019). Investigation of Aerosol-Cloud-Effects from Low Level Cloud Measurements with the CAS-DPOL in West Africa during the DACCIWA Campaign and Setup of a Sampling Area Calibration Stand for Cloud Droplet Spectrometers.
- Hahn, V., R. Meerkötter, C. Voigt, S. Gisinger, D. Sauer, V. Catoire, V. Dreiling, H. Coe, C. Flamant, S. Kaufmann, J. Kleine, P. Knippertz, M. Moser, P. Rosenberg, H. Schlager, A. Schwarzenboeck und J. Taylor (Nov. 2022). *Pollution Slightly Enhances Atmospheric Cooling by Low-Level Clouds in Tropical West Africa*. Preprint. Clouds and Precipitation/Field Measurements/Troposphere/Physics (physical properties and processes). DOI: 10.5194/acp-2022-795. URL: https://acp.copernicus.org/preprints/acp-2022-795/ (besucht am 21.03.2023).
- Hallett, J. und S. C. Mossop (Mai 1974). "Production of Secondary Ice Particles during the Riming Process". In: *Nature* 249, S. 26–28. ISSN: 1476-4687. DOI: 10.1038/249026a0. URL: https://www.nature.com/articles/249026a0 (besucht am 13.07.2021).
- Hansen, J. E. und L. D. Travis (Okt. 1974). "Light Scattering in Planetary Atmospheres". In: *Space Science Reviews* 16, S. 527–610. ISSN: 1572-9672. DOI: 10.1007/BF00168069. URL: https://doi.org/10.1007/BF00168069 (besucht am 24.08.2022).
- Hartmann, D. L., M. E. Ockert-Bell und M. L. Michelsen (Nov. 1992). "The Effect of Cloud Type on Earth's Energy Balance: Global Analysis". In: *Journal of Climate* 5, S. 1281–1304.
  ISSN: 0894-8755, 1520-0442. DOI: 10.1175/1520-0442(1992)005<1281:TEOCTO>2.0.CO;2.
  URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/clim/5/11/1520-0442\_1992\_005\_1281\_teocto\_2\_0\_co\_2.xml (besucht am 17.08.2022).
- Hayman, M., K. J. McMenamin und J. B. Jensen (Dez. 2016). "Response Time Characteristics of the Fast-2D Optical Array Probe Detector Board". In: *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 33, S. 2569–2583. ISSN: 0739-0572, 1520-0426. DOI: 10.1175/JTECH-D-16-0062.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atot/33/12/jtech-d-16-0062\_1.xml (besucht am 12.08.2022).
- Hersey, S. P., A. Sorooshian, S. M. Murphy, R. C. Flagan und J. H. Seinfeld (Apr. 2009). "Aerosol Hygroscopicity in the Marine Atmosphere: A Closure Study Using High-Time-Resolution, Multiple-RH DASH-SP and Size-Resolved C-ToF-AMS Data". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 9, S. 2543–2554. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-9-2543-2009. URL: https://acp.copernicus.org/articles/9/2543/2009/ (besucht am 25. 05. 2021).
- Heymsfield, A. J. und J. L. Parrish (1978). "A Computational Technique for Increasing the Effective Sampling Volume of the PMS1 Two-Dimensional Particle Size Spectrometer". In: *Journal of Applied Meteorology (1962-1982)* 17, S. 1566–1572. ISSN: 0021-8952. URL: https: //www.jstor.org/stable/26178547 (besucht am 28.04.2022).
- Hilario, M. R. A., E. Crosbie, M. Shook, J. S. Reid, M. O. L. Cambaliza, J. B. B. Simpas, L. Ziemba, J. P. DiGangi, G. S. Diskin, P. Nguyen, F. J. Turk, E. Winstead, C. E. Robinson, J. Wang,

J. Zhang, Y. Wang, S. Yoon, J. Flynn, S. L. Alvarez, A. Behrangi und A. Sorooshian (März 2021). "Measurement Report: Long-range Transport Patterns into the Tropical Northwest Pacific during the CAMP<sup>2</sup>Ex Aircraft Campaign: Chemical Composition, Size Distributions, and the Impact of Convection". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 21, S. 3777–3802. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-21-3777-2021. URL: https://acp.copernicus.org/articles/21/3777/2021/ (besucht am 21.01.2022).

- Hoose, C. und O. Möhler (Okt. 2012). "Heterogeneous Ice Nucleation on Atmospheric Aerosols: A Review of Results from Laboratory Experiments". In: Atmospheric Chemistry and Physics 12, S. 9817–9854. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-12-9817-2012. URL: https://acp.copernicus.org/articles/12/9817/2012/ (besucht am 09.04.2021).
- Howard, L. (1803). "I. On the Modifications of Clouds, and on the Principles of Their Production, Suspension, and Destruction; Being the Substance of an Essay Read before the Askesian Society in the Session 1802–3". In: *The Philosophical Magazine* 17, S. 5–11.
- Huygens, C. (1912). "1690: Treatise on Light". In: Trans., SP Tompson.
- Illingworth, A. J., H. W. Barker, A. Beljaars, M. Ceccaldi, H. Chepfer, N. Clerbaux, J. Cole, J. Delanoë, C. Domenech, D. P. Donovan, S. Fukuda, M. Hirakata, R. J. Hogan, A. Huenerbein, P. Kollias, T. Kubota, T. Nakajima, T. Y. Nakajima, T. Nishizawa, Y. Ohno, H. Okamoto, R. Oki, K. Sato, M. Satoh, M. W. Shephard, A. Velázquez-Blázquez, U. Wandinger, T. Wehr und G.-J. van Zadelhoff (Aug. 2015). "The EarthCARE Satellite: The Next Step Forward in Global Measurements of Clouds, Aerosols, Precipitation, and Radiation". In: *Bulletin of the American Meteorological Society* 96, S. 1311–1332. ISSN: 0003-0007, 1520-0477. DOI: 10.1175/BAMS-D-12-00227.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/bams/96/8/bams-d-12-00227.1.xml (besucht am 11.04.2023).
- IPCC (2013). 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, United Kingdom and New York, NY, USA: Cambridge University Press. ISBN: ISBN 978-1-107-66182-0. DOI: 10.1017/CBO9781107415324. URL: www.climatechange2013.org.
- (2021). "Climate Change 2021 the Physical Science Basis". In: Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Masson-Delmotte, v., 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 and b. Zhou (Eds.)] Cambridge. Cambridge University Press, S. 1535.
- Jang, S., J. Kim, G. M. McFarquhar, S. Park, S. S. Lee, C. H. Jung, S. S. Park, J. W. Cha, K. Lee und J. Um (Jan. 2022). "Theoretical Calculations of Directional Scattering Intensities of Small Nonspherical Ice Crystals: Implications for Forward Scattering Probes". In: *Remote Sensing* 14, S. 2795. ISSN: 2072-4292. DOI: 10.3390/rs14122795. URL: https://www.mdpi. com/2072-4292/14/12/2795 (besucht am 24. 11. 2022).

- Jia, H., J. Quaas, E. Gryspeerdt, C. Böhm und O. Sourdeval (2022). "Addressing the Difficulties in Quantifying Droplet Number Response to Aerosol from Satellite Observations". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 22, S. 7353–7372. DOI: 10.5194/acp-22-7353-2022. URL: https://acp.copernicus.org/articles/22/7353/2022/.
- Karalis, M., G. Sotiropoulou, S. J. Abel, E. Bossioli, P. Georgakaki, G. Methymaki, A. Nenes und M. Tombrou (Okt. 2022). "Effects of Secondary Ice Processes on a Stratocumulus to Cumulus Transition during a Cold-Air Outbreak". In: *Atmospheric Research* 277, S. 106302. ISSN: 0169-8095. DOI: 10.1016/j.atmosres.2022.106302. URL: https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0169809522002885 (besucht am 16.02.2023).
- Keinert, A., D. Spannagel, T. Leisner und A. Kiselev (Aug. 2020). "Secondary Ice Production upon Freezing of Freely Falling Drizzle Droplets". In: *Journal of the Atmospheric Sciences* 77, S. 2959–2967. ISSN: 0022-4928, 1520-0469. DOI: 10.1175/JAS-D-20-0081.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atsc/77/8/jasD200081.xml (besucht am 13.07.2021).
- Ketcham, W. M. und P. V. Hobbs (Juni 1969). "An Experimental Determination of the Surface Energies of Ice". In: *The Philosophical Magazine: A Journal of Theoretical Experimental and Applied Physics* 19, S. 1161–1173. ISSN: 0031-8086. DOI: 10.1080/14786436908228641. URL: https://doi.org/10.1080/14786436908228641 (besucht am 13. 02. 2023).
- Kirschler, S., C. Voigt, B. Anderson, R. Campos Braga, G. Chen, A. F. Corral, E. Crosbie, H. Dadashazar, R. A. Ferrare, V. Hahn, J. Hendricks, S. Kaufmann, R. Moore, M. L. Pöhlker, C. Robinson, A. J. Scarino, D. Schollmayer, M. A. Shook, K. L. Thornhill, E. Winstead, L. D. Ziemba und A. Sorooshian (Juni 2022). "Seasonal Updraft Speeds Change Cloud Droplet Number Concentrations in Low-Level Clouds over the Western North Atlantic". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 22, S. 8299–8319. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-22-8299-2022. URL: https://acp.copernicus.org/articles/22/8299/2022/ (besucht am 30.06.2022).
- Kirschler, S., C. Voigt, B. E. Anderson, G. Chen, E. C. Crosbie, R. A. Ferrare, V. Hahn, J. W. Hair, S. Kaufmann, R. H. Moore, D. Painemal, C. E. Robinson, K. J. Sanchez, A. J. Scarino, T. J. Shingler, M. A. Shook, K. L. Thornhill, E. L. Winstead, L. D. Ziemba und A. Sorooshian (Mai 2023). "Overview and Statistical Analysis of Boundary Layer Clouds and Precipitation over the Western North-Atlantic Ocean". In: *EGUsphere*, S. 1–29. DOI: 10.5194/egusphere-2023-898. URL: https://egusphere.copernicus.org/preprints/2023/egusphere-2023-898/ (besucht am 11.05.2023).
- Kleine, J., C. Voigt, D. Sauer, H. Schlager, M. Scheibe, T. Jurkat-Witschas, S. Kaufmann, B. Kärcher und B. E. Anderson (2018). "In Situ Observations of Ice Particle Losses in a Young Persistent Contrail". In: *Geophysical Research Letters* 45, S. 13, 553–13, 561. ISSN: 1944-8007. DOI: 10.1029/2018GL079390. URL: https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2018GL079390 (besucht am 05. 08. 2021).
- Knippertz, P., H. Coe, J. C. Chiu, M. J. Evans, A. H. Fink, N. Kalthoff, C. Liousse, C. Mari, R. P. Allan, B. Brooks, S. Danour, C. Flamant, O. O. Jegede, F. Lohou und J. H. Marsham

(Sep. 2015). "The DACCIWA Project: Dynamics–Aerosol–Chemistry–Cloud Interactions in West Africa". In: *Bulletin of the American Meteorological Society* 96, S. 1451–1460. ISSN: 0003-0007, 1520-0477. DOI: 10.1175/BAMS-D-14-00108.1. URL: https://journals.ametsoc. org/view/journals/bams/96/9/bams-d-14-00108.1.xml (besucht am 25. 05. 2021).

- Knollenberg, R. G. (1970). "The Optical Array: An Alternative to Extinction and Scattering for Particle Size Measurements". In: *J. Appl. Meteor* 9, S. 86–103.
- Knop, I., S. E. Bansmer, V. Hahn und C. Voigt (März 2021). "Comparison of Different Droplet Measurement Techniques in the Braunschweig Icing Wind Tunnel". In: *Atmospheric Measurement Techniques* 14, S. 1761–1781. ISSN: 1867-1381. DOI: 10.5194/amt-14-1761-2021.
  URL: https://amt.copernicus.org/articles/14/1761/2021/ (besucht am 19. 04. 2021).
- Koehler, K. A., S. M. Kreidenweis, P. J. DeMott, A. J. Prenni, C. M. Carrico, B. Ervens und G. Feingold (März 2006). "Water Activity and Activation Diameters from Hygroscopicity Data Part II: Application to Organic Species". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 6, S. 795–809. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-6-795-2006. URL: https://acp.copernicus.org/articles/6/795/2006/ (besucht am 23.03.2021).
- Köhler, H. (1936). "The Nucleus in and the Growth of Hygroscopic Droplets". In: *Transactions of the Faraday Society* 32, S. 1152–1161.
- Korolev, A. V. (Sep. 2007a). "Limitations of the Wegener–Bergeron–Findeisen Mechanism in the Evolution of Mixed-Phase Clouds". In: *Journal of the Atmospheric Sciences* 64, S. 3372–3375. ISSN: 0022-4928, 1520-0469. DOI: 10.1175/JAS4035.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atsc/64/9/jas4035.1.xml (besucht am 19. 08. 2022).
- (März 2007b). "Reconstruction of the Sizes of Spherical Particles from Their Shadow Images. Part I: Theoretical Considerations". In: *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 24, S. 376–389. ISSN: 0739-0572, 1520-0426. DOI: 10.1175/JTECH1980.1. URL: https:// journals.ametsoc.org/view/journals/atot/24/3/jtech1980\_1.xml (besucht am 07. 12. 2020).
- (2008). "Rates of Phase Transformations in Mixed-Phase Clouds". In: *Quarterly Journal* of the Royal Meteorological Society 134, S. 595–608. ISSN: 1477-870X. DOI: 10.1002/qj.230. URL: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/qj.230 (besucht am 11.01.2023).
- Korolev, A. V., M. P. Bailey, J. Hallett und G. A. Isaac (Apr. 2004). "Laboratory and In Situ Observation of Deposition Growth of Frozen Drops". In: *Journal of Applied Meteorology and Climatology* 43, S. 612–622. ISSN: 1520-0450, 0894-8763. DOI: 10.1175/1520-0450(2004) 043<0612:LAISOO>2.0.CO;2. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/apme/43/4/1520-0450\_2004\_043\_0612\_laisoo\_2.0.co\_2.xml (besucht am 16. 02. 2023).
- Korolev, A. V., E. F. Emery, J. W. Strapp, S. G. Cober und G. A. Isaac (Nov. 2013a). "Quantification of the Effects of Shattering on Airborne Ice Particle Measurements". In: *Journal* of Atmospheric and Oceanic Technology 30, S. 2527–2553. ISSN: 0739-0572, 1520-0426. DOI: 10.1175/JTECH-D-13-00115.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atot/30/ 11/jtech-d-13-00115\_1.xml (besucht am 13.01.2023).

- Korolev, A. V., E. Emery und K. Creelman (Apr. 2013b). "Modification and Tests of Particle Probe Tips to Mitigate Effects of Ice Shattering". In: *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 30, S. 690–708. ISSN: 0739-0572, 1520-0426. DOI: 10.1175/JTECH-D-12-00142.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atot/30/4/jtech-d-12-00142\_1.xml (besucht am 31.05.2022).
- Korolev, A. V. und G. A. Isaac (Mai 2005). "Shattering during Sampling by OAPs and HVPS. Part I: Snow Particles". In: *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 22, S. 528–542. ISSN: 0739-0572, 1520-0426. DOI: 10.1175/JTECH1720.1. URL: https://journals.ametsoc. org/view/journals/atot/22/5/jtech1720\_1.xml (besucht am 28.04.2022).
- Korolev, A. V., S. V. Kuznetsov, Y. E. Makarov und V. S. Novikov (Aug. 1991). "Evaluation of Measurements of Particle Size and Sample Area from Optical Array Probes". In: *Journal* of Atmospheric and Oceanic Technology 8, S. 514–522. ISSN: 0739-0572, 1520-0426. DOI: 10.1175/1520-0426(1991)008<0514:EOMOPS>2.0.CO;2. URL: https://journals.ametsoc. org/view/journals/atot/8/4/1520-0426\_1991\_008\_0514\_eomops\_2\_0\_co\_2.xml (besucht am 21.03.2022).
- Korolev, A. V. und T. Leisner (Okt. 2020). "Review of Experimental Studies of Secondary Ice Production". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 20, S. 11767–11797. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-20-11767-2020. URL: https://acp.copernicus.org/articles/20/11767/2020/ (besucht am 04. 01. 2023).
- Korolev, A. V., G. McFarquhar, P. R. Field, C. Franklin, P. Lawson, Z. Wang, E. Williams, S. J. Abel, D. Axisa, S. Borrmann, J. Crosier, J. Fugal, M. Krämer, U. Lohmann, O. Schlenczek, M. Schnaiter und M. Wendisch (Jan. 2017). "Mixed-Phase Clouds: Progress and Challenges". In: *Meteorological Monographs* 58, S. 5.1–5.50. DOI: 10.1175/AMSMONOGRAPHS-D-17-0001.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/amsm/58/1/amsmonographs-d-17-0001.1.xml (besucht am 31.03.2021).
- Korolev, A. V. und J. Milbrandt (2022). "How Are Mixed-Phase Clouds Mixed?" In: *Geophysical Research Letters* 49, e2022GL099578. ISSN: 1944-8007. DOI: 10.1029/2022GL099578. URL: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2022GL099578 (besucht am 10.01.2023).
- Korolev, A. V., J. W. Strapp und G. A. Isaac (Juni 1998). "Evaluation of the Accuracy of PMS Optical Array Probes". In: *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 15, S. 708–720. ISSN: 0739-0572, 1520-0426. DOI: 10.1175/1520-0426(1998)015<0708:EOTAOP>2.0.CO;2. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atot/15/3/1520-0426\_1998\_015\_0708\_eotaop\_2\_0\_co\_2.xml (besucht am 19.04.2022).
- Koutsoyiannis, D. (Jan. 2012). "Clausius–Clapeyron Equation and Saturation Vapour Pressure: Simple Theory Reconciled with Practice". In: *European Journal of Physics* 33, S. 295. ISSN: 0143-0807. DOI: 10.1088/0143-0807/33/2/295. URL: https://dx.doi.org/10.1088/0143-0807/33/2/295 (besucht am 07.02.2023).
- Lamb, D. und J. Verlinde (2011). *Physics and Chemistry of Clouds*. Cambridge University Press.
- Lance, S., C. A. Brock, D. Rogers und J. A. Gordon (Dez. 2010). "Water Droplet Calibration of the Cloud Droplet Probe (CDP) and in-Flight Performance in Liquid, Ice and Mixed-Phase Clouds during ARCPAC". In: *Atmospheric Measurement Techniques* 3, S. 1683–1706. ISSN: 1867-1381. DOI: 10.5194/amt-3-1683-2010. URL: https://amt.copernicus.org/articles/3/1683/2010/ (besucht am 02. 06. 2021).
- Lance, S., A. Nenes, J. Medina und J. N. Smith (Apr. 2006). "Mapping the Operation of the DMT Continuous Flow CCN Counter". In: *Aerosol Science and Technology* 40, S. 242–254. ISSN: 0278-6826. DOI: 10.1080/02786820500543290. URL: https://doi.org/10.1080/02786820500543290 (besucht am 10.06.2021).
- Lance, S. (Okt. 2012). "Coincidence Errors in a Cloud Droplet Probe (CDP) and a Cloud and Aerosol Spectrometer (CAS), and the Improved Performance of a Modified CDP". In: *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 29, S. 1532–1541. ISSN: 0739-0572, 1520-0426. DOI: 10.1175/JTECH-D-11-00208.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atot/29/10/jtech-d-11-00208\_1.xml (besucht am 19.04.2022).
- Laven, P. (Nov. 2021). "MiePlot". In: url: http://philiplaven.com/mieplot.htm (besucht am 31.03.2022).
- Lawson, R. P., A. V. Korolev, P. J. DeMott, A. J. Heymsfield, R. T. Bruintjes, C. A. Wolff, S. Woods, R. J. Patnaude, J. B. Jensen, K. A. Moore, I. Heckman, E. Rosky, J. Haggerty, R. J. Perkins, T. Fisher und T. C. J. Hill (Jan. 2023). "The Secondary Production of Ice in Cumulus Experiment (SPICULE)". In: *Bulletin of the American Meteorological Society* 104, E51–E76. ISSN: 0003-0007, 1520-0477. DOI: 10.1175/BAMS-D-21-0209.1. URL: https: //journals.ametsoc.org/view/journals/bams/104/1/BAMS-D-21-0209.1.xml (besucht am 16.02.2023).
- Lawson, R. P., D. O'Connor, P. Zmarzly, K. Weaver, B. Baker, Q. Mo und H. Jonsson (Nov. 2006). "The 2D-S (Stereo) Probe: Design and Preliminary Tests of a New Airborne, High-Speed, High-Resolution Particle Imaging Probe". In: *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 23, S. 1462–1477. ISSN: 1520-0426, 0739-0572. DOI: 10.1175/JTECH1927.1. URL: https://journals.ametsoc.org/jtech/article/23/11/1462/2691/The-2DS-Stereo-Probe-Design-and-Preliminary-Tests (besucht am 08.07.2020).
- Lenschow, D. H. (1986). "Aircraft Measurements in the Boundary Layer". In: *Probing the Atmospheric Boundary Layer*. Hrsg. von D. H. Lenschow. Boston, MA: American Meteorological Society, S. 39–55. ISBN: 978-1-944970-14-7. DOI: 10.1007/978-1-944970-14-7\_5. URL: https://doi.org/10.1007/978-1-944970-14-7\_5 (besucht am 13.07.2021).
- Li, X.-Y., H. Wang, J. Chen, S. Endo, G. George, B. Cairns, S. Chellappan, X. Zeng, S. Kirschler, C. Voigt, A. Sorooshian, E. Crosbie, G. Chen, R. A. Ferrare, W. I. Gustafson, J. W. Hair, M. M. Kleb, H. Liu, R. Moore, D. Painemal, C. Robinson, A. J. Scarino, M. Shook, T. J. Shingler, K. L. Thornhill, F. Tornow, H. Xiao, L. D. Ziemba und P. Zuidema (Jan. 2022). "Large-Eddy Simulations of Marine Boundary Layer Clouds Associated with Cold-Air Outbreaks during the ACTIVATE Campaign. Part I: Case Setup and Sensitivities to Large-

Scale Forcings". In: *Journal of the Atmospheric Sciences* 79, S. 73–100. ISSN: 0022-4928, 1520-0469. DOI: 10.1175/JAS-D-21-0123.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atsc/79/1/JAS-D-21-0123.1.xml (besucht am 27.06.2022).

- Li, X.-Y., H. Wang, J. Chen, S. Endo, S. Kirschler, C. Voigt, E. Crosbie, L. D. Ziemba, D. Painemal, B. Cairns, J. W. Hair, A. F. Corral, C. Robinson, H. Dadashazar, A. Sorooshian, G. Chen, R. A. Ferrare, M. M. Kleb, H. Liu, R. Moore, A. J. Scarino, M. A. Shook, T. J. Shingler, K. L. Thornhill, F. Tornow, H. Xiao und X. Zeng (März 2023). "Large-Eddy Simulations of Marine Boundary Layer Clouds Associated with Cold-Air Outbreaks during the AC-TIVATE Campaign. Part II: Aerosol–Meteorology–Cloud Interaction". In: *Journal of the Atmospheric Sciences* 80, S. 1025–1045. ISSN: 0022-4928, 1520-0469. DOI: 10.1175/JAS-D-21-0324.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atsc/80/4/JAS-D-21-0324.1.xml (besucht am 14. 04. 2023).
- Lohmann, U. und C. Hoose (Nov. 2009). "Sensitivity Studies of Different Aerosol Indirect Effects in Mixed-Phase Clouds". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 9, S. 8917–8934. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-9-8917-2009. URL: https://acp.copernicus.org/articles/9/8917/2009/ (besucht am 03.02.2022).
- Lohmann, U., P. Stier, C. Hoose, S. Ferrachat, S. Kloster, E. Roeckner und J. Zhang (Juli 2007). "Cloud Microphysics and Aerosol Indirect Effects in the Global Climate Model ECHAM5-HAM". In: Atmospheric Chemistry and Physics 7, S. 3425–3446. ISSN: 1680-7316. DOI: 10. 5194/acp-7-3425-2007. URL: https://acp.copernicus.org/articles/7/3425/2007/ (besucht am 03.02.2022).
- Lorenz, L. V. (1890). "Upon the Light Reflected and Refracted by a Transparent Sphere". In: *Vidensk. Selsk. Shrifter* 6, S. 1–62.
- Lu, M.-L., W. C. Conant, H. H. Jonsson, V. Varutbangkul, R. C. Flagan und J. H. Seinfeld (2007). "The Marine Stratus/Stratocumulus Experiment (MASE): Aerosol-cloud Relationships in Marine Stratocumulus". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 112, S. D10209. ISSN: 2156-2202. DOI: 10.1029/2006JD007985. URL: https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2006JD007985 (besucht am 25.05.2021).
- Luke, E. P., F. Yang, P. Kollias, A. M. Vogelmann und M. Maahn (März 2021). "New Insights into Ice Multiplication Using Remote-Sensing Observations of Slightly Supercooled Mixed-Phase Clouds in the Arctic". In: *Proceedings of the National Academy of Sciences* 118, e2021387118. DOI: 10.1073/pnas.2021387118. URL: https://www.pnas.org/doi/abs/10. 1073/pnas.2021387118 (besucht am 16.02.2023).
- Ma, L., H. Dadashazar, M. R. A. Hilario, M. O. Cambaliza, G. R. Lorenzo, J. B. Simpas, P. Nguyen und A. Sorooshian (Jan. 2021). "Contrasting Wet Deposition Composition between Three Diverse Islands and Coastal North American Sites". In: *Atmospheric Environment* 244, S. 117919. ISSN: 1352-2310. DOI: 10.1016/j.atmosenv.2020.117919. URL: https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1352231020306531 (besucht am 09.02.2022).

- Maxwell, J. C. (Jan. 1865). "VIII. A Dynamical Theory of the Electromagnetic Field". In: *Philosophical Transactions of the Royal Society of London* 155, S. 459–512. DOI: 10.1098/rstl. 1865.0008. URL: https://royalsocietypublishing.org/doi/abs/10.1098/rstl.1865.0008 (besucht am 09. 12. 2021).
- McComiskey, A. und G. Feingold (Jan. 2012). "The Scale Problem in Quantifying Aerosol Indirect Effects". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 12, S. 1031–1049. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-12-1031-2012. URL: https://acp.copernicus.org/articles/12/1031/2012/ (besucht am 19. 04. 2022).
- McCoy, I. L., C. S. Bretherton, R. Wood, C. H. Twohy, A. Gettelman, C. G. Bardeen und D. W. Toohey (2021). "Influences of Recent Particle Formation on Southern Ocean Aerosol Variability and Low Cloud Properties". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 126, e2020JD033529. ISSN: 2169-8996. DOI: 10.1029/2020JD033529. URL: https: //onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2020JD033529 (besucht am 03.02.2022).
- McCoy, I. L., D. T. McCoy, R. Wood, L. Regayre, D. Watson-Parris, D. P. Grosvenor, J. P. Mulcahy, Y. Hu, F. A.-M. Bender, P. R. Field, K. S. Carslaw und H. Gordon (Aug. 2020). "The Hemispheric Contrast in Cloud Microphysical Properties Constrains Aerosol Forcing". In: *Proceedings of the National Academy of Sciences* 117, S. 18998–19006. ISSN: 0027-8424, 1091-6490. DOI: 10.1073/pnas.1922502117. URL: https://www.pnas.org/content/117/32/18998 (besucht am 03.02.2022).
- McFarquhar, G. M., C. S. Bretherton, R. Marchand, A. Protat, P. J. DeMott, S. P. Alexander, G. C. Roberts, C. H. Twohy, D. Toohey, S. Siems, Y. Huang, R. Wood, R. M. Rauber, S. Lasher-Trapp, J. Jensen, J. L. Stith, J. Mace, J. Um, E. Järvinen, M. Schnaiter, A. Gettelman, K. J. Sanchez, C. S. McCluskey, L. M. Russell, I. L. McCoy, R. L. Atlas, C. G. Bardeen, K. A. Moore, T. C. J. Hill, R. S. Humphries, M. D. Keywood, Z. Ristovski, L. Cravigan, R. Schofield, C. Fairall, M. D. Mallet, S. M. Kreidenweis, B. Rainwater, J. D'Alessandro, Y. Wang et al. (Apr. 2021). "Observations of Clouds, Aerosols, Precipitation, and Surface Radiation over the Southern Ocean: An Overview of CAPRICORN, MARCUS, MICRE, and SOCRATES". In: *Bulletin of the American Meteorological Society* 102, E894–E928. ISSN: 0003-0007, 1520-0477. DOI: 10.1175/BAMS-D-20-0132.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/bams/102/4/BAMS-D-20-0132.1.xml (besucht am 22.02.2023).
- McFarquhar, G. M. und A. J. Heymsfield (Juni 1998). "The Definition and Significance of an Effective Radius for Ice Clouds". In: *Journal of the Atmospheric Sciences* 55, S. 2039–2052. ISSN: 0022-4928, 1520-0469. DOI: 10.1175/1520-0469(1998)055<2039:TDASOA>2.0.CO;2. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atsc/55/11/1520-0469\_1998\_055\_2039\_ tdasoa\_2.0.co\_2.xml (besucht am 24. 08. 2022).
- McFarquhar, G. M., G. Zhang, M. R. Poellot, G. L. Kok, R. McCoy, T. Tooman, A. Fridlind und A. J. Heymsfield (2007). "Ice Properties of Single-Layer Stratocumulus during the Mixed-Phase Arctic Cloud Experiment: 1. Observations". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 112.

- McNaughton, C. S., A. D. Clarke, S. G. Howell, M. Pinkerton, B. Anderson, L. Thornhill, C. Hudgins, E. Winstead, J. E. Dibb, E. Scheuer und H. Maring (Feb. 2007). "Results from the DC-8 Inlet Characterization Experiment (DICE): Airborne Versus Surface Sampling of Mineral Dust and Sea Salt Aerosols". In: *Aerosol Science and Technology* 41, S. 136–159. ISSN: 0278-6826. DOI: 10.1080/02786820601118406. URL: https://doi.org/10.1080/02786820601118406 (besucht am 08.02.2022).
- Merikanto, J., D. V. Spracklen, K. J. Pringle und K. S. Carslaw (Jan. 2010). "Effects of Boundary Layer Particle Formation on Cloud Droplet Number and Changes in Cloud Albedo from 1850 to 2000". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 10, S. 695–705. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-10-695-2010. URL: https://acp.copernicus.org/articles/10/695/2010/ (besucht am 10. 01. 2023).
- Mie, G. (1908). "Beiträge Zur Optik Trüber Medien, Speziell Kolloidaler Metallösungen". In: *Annalen der physik* 330, S. 377–445.
- Mitchell, D. L. (Aug. 2002). "Effective Diameter in Radiation Transfer: General Definition, Applications, and Limitations". In: *Journal of the Atmospheric Sciences* 59, S. 2330–2346. ISSN: 0022-4928, 1520-0469. DOI: 10.1175/1520-0469(2002)059<2330:EDIRTG>2.0.CO;2. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atsc/59/15/1520-0469\_2002\_059\_2330\_ edirtg\_2.0.co\_2.xml (besucht am 24.08.2022).
- Mitchell, D. L., R. Zhang und R. L. Pitter (Feb. 1990). "Mass-Dimensional Relationships for Ice Particles and the Influence of Riming on Snowfall Rates". In: *Journal of Applied Meteorology and Climatology* 29, S. 153–163. ISSN: 1520-0450, 0894-8763. DOI: 10.1175/1520-0450(1990)029<0153: MDRFIP > 2.0.CO; 2. URL: https://journals.ametsoc.org/view/ journals/apme/29/2/1520-0450\_1990\_029\_0153\_mdrfip\_2\_0\_co\_2.xml (besucht am 24.08.2022).
- Moore, R. H. und A. Nenes (Nov. 2009). "Scanning Flow CCN Analysis—A Method for Fast Measurements of CCN Spectra". In: *Aerosol Science and Technology* 43, S. 1192– 1207. ISSN: 0278-6826. DOI: 10.1080/02786820903289780. URL: https://doi.org/10.1080/ 02786820903289780 (besucht am 22.02.2021).
- Moore, R. H., K. L. Thornhill, B. Weinzierl, D. Sauer, E. D'Ascoli, J. Kim, M. Lichtenstern, M. Scheibe, B. Beaton, A. J. Beyersdorf, J. Barrick, D. Bulzan, C. A. Corr, E. Crosbie, T. Jurkat, R. Martin, D. Riddick, M. Shook, G. Slover, C. Voigt, R. White, E. Winstead, R. Yasky, L. D. Ziemba, A. Brown, H. Schlager und B. E. Anderson (März 2017). "Biofuel Blending Reduces Particle Emissions from Aircraft Engines at Cruise Conditions". In: *Nature* 543, S. 411–415. ISSN: 1476-4687. DOI: 10.1038/nature21420. URL: https://www.nature.com/articles/nature21420 (besucht am 31.08.2021).
- Moore, R. H., E. B. Wiggins, A. T. Ahern, S. Zimmerman, L. Montgomery, P. Campuzano Jost, C. E. Robinson, L. D. Ziemba, E. L. Winstead, B. E. Anderson, C. A. Brock, M. D. Brown, G. Chen, E. C. Crosbie, H. Guo, J. L. Jimenez, C. E. Jordan, M. Lyu, B. A. Nault, N. E. Rothfuss, K. J. Sanchez, M. Schueneman, T. J. Shingler, M. A. Shook, K. L. Thorn-

hill, N. L. Wagner und J. Wang (Juni 2021). "Sizing Response of the Ultra-High Sensitivity Aerosol Spectrometer (UHSAS) and Laser Aerosol Spectrometer (LAS) to Changes in Submicron Aerosol Composition and Refractive Index". In: *Atmospheric Measurement Techniques* 14, S. 4517–4542. ISSN: 1867-1381. DOI: 10.5194/amt-14-4517-2021. URL: https://amt.copernicus.org/articles/14/4517/2021/ (besucht am 21.01.2022).

- Mülmenstädt, J. und G. Feingold (März 2018). "The Radiative Forcing of Aerosol–Cloud Interactions in Liquid Clouds: Wrestling and Embracing Uncertainty". In: *Current Climate Change Reports* 4, S. 23–40. ISSN: 2198-6061. DOI: 10.1007/s40641-018-0089-y. URL: https://doi.org/10.1007/s40641-018-0089-y (besucht am 28.02.2023).
- Mülmenstädt, J., O. Sourdeval, J. Delanoë und J. Quaas (2015). "Frequency of Occurrence of Rain from Liquid-, Mixed-, and Ice-Phase Clouds Derived from A-Train Satellite Retrievals". In: *Geophysical Research Letters* 42, S. 6502–6509. ISSN: 1944-8007. DOI: 10.1002/2015GL064604. URL: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/2015GL064604 (besucht am 30.06.2023).
- Myhre, G., D. Shindell, F.-M. Bréon, W. Collins, J. Fuglestvedt, J. Huang, D. Koch, J.-F. Lamarque, D. Lee, B. Mendoza, T. Nakajima, A. Robock, G. Stephens, T. Takemura und H. Zhang (2013). "Anthropogenic and Natural Radiative Forcing". In: *Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Hrsg. von T. Stocker, D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex und P. Midgley. Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA: Cambridge University Press. Kap. 8, S. 659–740. ISBN: ISBN 978-1-107-66182-0. DOI: 10.1017/CBO9781107415324.018. URL: www.climatechange2013.org.
- Nagy, A., W. W. Szymanski, P. Gál, A. Golczewski und A. Czitrovszky (Apr. 2007). "Numerical and Experimental Study of the Performance of the Dual Wavelength Optical Particle Spectrometer (DWOPS)". In: *Journal of Aerosol Science* 38, S. 467–478. ISSN: 0021-8502. DOI: 10.1016/j.jaerosci.2007.02.005. URL: https://www.sciencedirect.com/science/article/ pii/S0021850207000286 (besucht am 08. 03. 2023).
- Nagy, A., A. Czitrovszky, A. Kerekes, M. Veres und W. W. Szymanski (2016). "Real-Time Determination of Absorptivity of Ambient Particles in Urban Aerosol in Budapest, Hungary". In: Aerosol and Air Quality Research 16, S. 1–10. ISSN: 2071-1409. DOI: 10.4209/aaqr. 2015.05.0356. URL: https://aaqr.org/articles/aaqr-15-05-0a-0356 (besucht am 08. 03. 2023).
- NCAR/MMM (2013). SODA-2 Data Processing Software, Manual. URL: https://github.com/ abansemer/soda2.
- O'Connor, D., B. Baker und R. P. Lawson (Juli 2008). "Upgrades to the FSSP-100 Electronics". In: *Proc. 15th Int. Conf. on Clouds and Precipitation.* Cancun, P13.7.
- O'Shea, S., T. W. Choularton, G. Lloyd, J. Crosier, K. N. Bower, M. Gallagher, S. J. Abel,R. J. Cotton, P. R. A. Brown, J. P. Fugal, O. Schlenczek, S. Borrmann und J. C. Pickering (2016). "Airborne Observations of the Microphysical Structure of Two Contrasting Cirrus

Clouds". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 121, S. 13, 510–13, 536. ISSN: 2169-8996. DOI: 10.1002/2016JD025278. URL: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10. 1002/2016JD025278 (besucht am 21.03.2022).

- O'Shea, S., J. Crosier, J. Dorsey, L. Gallagher, W. Schledewitz, K. Bower, O. Schlenczek, S. Borrmann, R. Cotton, C. Westbrook und Z. Ulanowski (März 2021). "Characterising Optical Array Particle Imaging Probes: Implications for Small-Ice-Crystal Observations". In: *Atmospheric Measurement Techniques* 14, S. 1917–1939. ISSN: 1867-1381. DOI: 10.5194/amt-14-1917-2021. URL: https://amt.copernicus.org/articles/14/1917/2021/ (besucht am 18.07.2022).
- Oseen, C. W. (1915). "Über Die Wechselwirkung Zwischen Zwei Elektrischen Dipolen Und Üer Die Drehung Der Polarisationsebene in Kristallen Und Flüssigkeiten". In: *Annalen der Physik* 353, S. 1–56. ISSN: 1521-3889. DOI: 10.1002/andp.19153531702. URL: https: //onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/andp.19153531702 (besucht am 26.09.2022).
- Ostwald, W. (Feb. 1897). "Studien über die Bildung und Umwandlung fester Körper: 1. Abhandlung: Übersättigung und Überkaltung". In: *Zeitschrift für Physikalische Chemie* 22U, S. 289–330. ISSN: 2196-7156. DOI: 10.1515/zpch-1897-2233. URL: https://www.degruyter. com/document/doi/10.1515/zpch-1897-2233/html (besucht am 13. 02. 2023).
- Painemal, D., F.-L. Chang, R. Ferrare, S. Burton, Z. Li, W. L. Smith Jr., P. Minnis, Y. Feng und M. Clayton (Juni 2020). "Reducing Uncertainties in Satellite Estimates of Aerosol–Cloud Interactions over the Subtropical Ocean by Integrating Vertically Resolved Aerosol Observations". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 20, S. 7167–7177. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-20-7167-2020. URL: https://acp.copernicus.org/articles/20/7167/2020/ (besucht am 31. 05. 2021).
- Painemal, D., S. Chellappan, W. L. Smith Jr., D. Spangenberg, J. M. Park, A. Ackerman, J. Chen, E. Crosbie, R. Ferrare, J. Hair, S. Kirschler, X.-Y. Li, A. McComiskey, R. H. Moore, K. Sanchez, A. Sorooshian, F. Tornow, C. Voigt, H. Wang, E. Winstead, X. Zeng, L. Ziemba und P. Zuidema (Apr. 2023). "Wintertime Synoptic Patterns of Midlatitude Boundary Layer Clouds over the Western North Atlantic: Climatology and Insights from in-Situ ACTIVATE Observations". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* In press, e2022JD037725. ISSN: 2169-8996. DOI: 10.1029/2022JD037725. URL: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2022JD037725 (besucht am 27. 04. 2023).
- Painemal, D., A. F. Corral, A. Sorooshian, M. A. Brunke, S. Chellappan, V. A. Gorooh, S.-H. Ham, L. O'Neill, W. L. Smith, G. Tselioudis, H. Wang, X. Zeng und P. Zuidema (2021). "An Overview of Atmospheric Features Over the Western North Atlantic Ocean and North American East Coast—Part 2: Circulation, Boundary Layer, and Clouds". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 126, e2020JD033423. ISSN: 2169-8996. DOI: 10. 1029/2020JD033423. URL: https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2020JD033423 (besucht am 14.07.2021).

- Parol, F., J. C. Buriez, G. Brogniez und Y. Fouquart (Juli 1991). "Information Content of AVHRR Channels 4 and 5 with Respect to the Effective Radius of Cirrus Cloud Particles". In: *Journal of Applied Meteorology and Climatology* 30, S. 973–984. ISSN: 1520-0450, 0894-8763. DOI: 10.1175/1520-0450-30.7.973. URL: https://journals.ametsoc.org/view/ journals/apme/30/7/1520-0450-30\_7\_973.xml (besucht am 24.08.2022).
- Patnaude, R., M. Diao, X. Liu und S. Chu (Feb. 2021). "Effects of Thermodynamics, Dynamics and Aerosols on Cirrus Clouds Based on in Situ Observations and NCAR CAM6". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 21, S. 1835–1859. ISSN: 1680-7324. DOI: 10.5194/acp-21-1835-2021. URL: https://acp.copernicus.org/articles/21/1835/2021/ (besucht am 11.04.2023).
- Penner, J. E., L. Xu und M. Wang (Aug. 2011). "Satellite Methods Underestimate Indirect Climate Forcing by Aerosols". In: *Proceedings of the National Academy of Sciences* 108, S. 13404–13408. ISSN: 0027-8424, 1091-6490. DOI: 10.1073/pnas.1018526108. URL: https://www.pnas.org/content/108/33/13404 (besucht am 26.05.2021).
- Pinnick, R. G. und H. J. Auvermann (Jan. 1979). "Response Characteristics of Knollenberg Light-Scattering Aerosol Counters". In: *Journal of Aerosol Science* 10, S. 55–74. ISSN: 0021-8502. DOI: 10.1016/0021-8502(79)90136-8. URL: https://www.sciencedirect.com/science/ article/pii/0021850279901368 (besucht am 16. 11. 2021).
- Pinsky, M., A. Khain, I. Mazin und A. Korolev (2012). "Analytical Estimation of Droplet Concentration at Cloud Base". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 117, S. D18211.
  ISSN: 2156-2202. DOI: 10.1029/2012JD017753. URL: https://agupubs.onlinelibrary.wiley. com/doi/abs/10.1029/2012JD017753 (besucht am 28.05.2021).
- Pinsky, M., A. Khain und M. Shapiro (März 2000). "Stochastic Effects of Cloud Droplet Hydrodynamic Interaction in a Turbulent Flow". In: *Atmospheric Research* 53, S. 131–169.
  ISSN: 0169-8095. DOI: 10.1016/S0169-8095(99)00048-4. URL: https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0169809599000484 (besucht am 10.01.2023).
- Pöhlker, M. L., M. Zhang, R. Campos Braga, O. O. Krüger, U. Pöschl und B. Ervens (Aug. 2021). "Aitken Mode Particles as CCN in Aerosol- and Updraft-Sensitive Regimes of Cloud Droplet Formation". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 21, S. 11723–11740. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-21-11723-2021. URL: https://acp.copernicus.org/articles/21/11723/2021/ (besucht am 01.02. 2022).
- Prabhakaran, P., A. S. M. Shawon, G. Kinney, S. Thomas, W. Cantrell und R. A. Shaw (Juli 2020). "The Role of Turbulent Fluctuations in Aerosol Activation and Cloud Formation". In: *Proceedings of the National Academy of Sciences* 117, S. 16831–16838. ISSN: 0027-8424, 1091-6490. DOI: 10.1073/pnas.2006426117. URL: https://www.pnas.org/content/117/29/ 16831 (besucht am 28.05.2021).
- Pruppacher, H. R. und K. V. Beard (1970). "A wind tunnel investigation of the internal circulation and shape of water drops falling at terminal velocity in air". In: *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 96, S. 247–256. ISSN: 1477-870X. DOI: 10.1002/qj.

49709640807. URL: https://rmets.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/qj.49709640807 (besucht am 15. 01. 2021).

- Pruppacher, H. und J. Klett (2010). "Microstructure of Atmospheric Clouds and Precipitation". In: *Microphysics of Clouds and Precipitation*. Hrsg. von H. Pruppacher und J. Klett. Atmospheric and Oceanographic Sciences Library. Dordrecht: Springer Netherlands, S. 10– 73. ISBN: 978-0-306-48100-0. DOI: 10.1007/978-0-306-48100-0\_2. URL: https://doi.org/10. 1007/978-0-306-48100-0\_2 (besucht am 18.01.2022).
- Quaas, J., A. Arola, B. Cairns, M. Christensen, H. Deneke, A. M. L. Ekman, G. Feingold, A. Fridlind, E. Gryspeerdt, O. Hasekamp, Z. Li, A. Lipponen, P.-L. Ma, J. Mülmenstädt, A. Nenes, J. E. Penner, D. Rosenfeld, R. Schrödner, K. Sinclair, O. Sourdeval, P. Stier, M. Tesche, B. van Diedenhoven und M. Wendisch (2020). "Constraining the Twomey Effect from Satellite Observations: Issues and Perspectives". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 20, S. 15079–15099. DOI: 10.5194/acp-20-15079-2020. URL: https://acp.copernicus.org/articles/20/15079/2020/.
- Quaas, J., O. Boucher, N. Bellouin und S. Kinne (2008). "Satellite-Based Estimate of the Direct and Indirect Aerosol Climate Forcing". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 113, S. D05204. ISSN: 2156-2202. DOI: 10.1029/2007JD008962. URL: https://agupubs. onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2007JD008962 (besucht am 26.05.2021).
- Randall, D. A., J. A. Coakley, C. W. Fairall, R. A. Kropfli und D. H. Lenschow (Dez. 1984). "Outlook for Research on Subtropical Marine Stratiform Clouds". In: *Bulletin of the American Meteorological Society* 65, S. 1290–1301. ISSN: 0003-0007, 1520-0477. DOI: 10.1175/1520-0477(1984)065<1290: OFROSM > 2.0. CO; 2. URL: https://journals.ametsoc.org/view/ journals/bams/65/12/1520-0477\_1984\_065\_1290\_ofrosm\_2\_0\_co\_2.xml (besucht am 14.01.2021).
- Rauber, R. M., B. Stevens, H. T. Ochs, C. Knight, B. A. Albrecht, A. M. Blyth, C. W. Fairall, J. B. Jensen, S. G. Lasher-Trapp, O. L. Mayol-Bracero, G. Vali, J. R. Anderson, B. A. Baker, A. R. Bandy, E. Burnet, J.-L. Brenguier, W. A. Brewer, P. R. A. Brown, R. Chuang, W. R. Cotton, L. D. Girolamo, B. Geerts, H. Gerber, S. Göke, L. Gomes, B. G. Heikes, J. G. Hudson, P. Kollias, R. R. Lawson, S. K. Krueger, D. H. Lenschow, L. Nuijens, D. W. O'Sullivan, R. A. Rilling, D. C. Rogers, A. P. Siebesma, E. Snodgrass, J. L. Stith, D. C. Thornton, S. Tucker et al. (Dez. 2007). "Rain in Shallow Cumulus Over the Ocean: The RICO Campaign". In: *Bulletin of the American Meteorological Society* 88, S. 1912–1928. ISSN: 0003-0007, 1520-0477. DOI: 10.1175/BAMS-88-12-1912. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/bams/88/12/bams-88-12-1912.xml (besucht am 10.01.2023).
- Reuter, A. und S. Bakan (Okt. 1998). "Improvements of Cloud Particle Sizing with a 2D-Grey Probe". In: *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 15, S. 1196–1203. ISSN: 0739-0572, 1520-0426. DOI: 10.1175/1520-0426(1998)015<1196:IOCPSW>2.0.CO;2. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atot/15/5/1520-0426\_1998\_015\_1196\_iocpsw\_2\_0\_co\_2.xml (besucht am 31. 10. 2022).

- Reutter, P., H. Su, J. Trentmann, M. Simmel, D. Rose, S. S. Gunthe, H. Wernli, M. O. Andreae und U. Pöschl (Sep. 2009). "Aerosol- and Updraft-Limited Regimes of Cloud Droplet Formation: Influence of Particle Number, Size and Hygroscopicity on the Activation of Cloud Condensation Nuclei (CCN)". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 9, S. 7067–7080. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-9-7067-2009. URL: https://acp.copernicus.org/articles/9/7067/2009/ (besucht am 27. 04. 2021).
- Righi, M., J. Hendricks, U. Lohmann, C. G. Beer, V. Hahn, B. Heinold, R. Heller, M. Krämer, M. Ponater, C. Rolf, I. Tegen und C. Voigt (März 2020). "Coupling Aerosols to (Cirrus) Clouds in the Global EMAC-MADE3 Aerosol–Climate Model". In: *Geoscientific Model Development* 13, S. 1635–1661. ISSN: 1991-959X. DOI: 10.5194/gmd-13-1635-2020. URL: https://gmd.copernicus.org/articles/13/1635/2020/ (besucht am 03.02.2022).
- Roberts, G. C. und A. Nenes (März 2005). "A Continuous-Flow Streamwise Thermal-Gradient CCN Chamber for Atmospheric Measurements". In: *Aerosol Science and Technology* 39, S. 206–221. ISSN: 0278-6826. DOI: 10.1080/027868290913988. URL: https://doi. org/10.1080/027868290913988 (besucht am 10. 06. 2021).
- Rosenberg, P. D., A. R. Dean, P. I. Williams, J. R. Dorsey, A. Minikin, M. A. Pickering und A. Petzold (Mai 2012). "Particle Sizing Calibration with Refractive Index Correction for Light Scattering Optical Particle Counters and Impacts upon PCASP and CDP Data Collected during the Fennec Campaign". In: *Atmospheric Measurement Techniques* 5, S. 1147–1163. ISSN: 1867-1381. DOI: 10.5194/amt-5-1147-2012. URL: https://amt.copernicus.org/articles/5/1147/2012/ (besucht am 08.03.2021).
- Rosenfeld, D., E. Amitai und D. B. Wolff (Jan. 1995). "Improved Accuracy of Radar WPMM Estimated Rainfall upon Application of Objective Classification Criteria". In: *Journal of Applied Meteorology and Climatology* 34, S. 212–223. ISSN: 1520-0450, 0894-8763. DOI: 10. 1175/1520-0450-34.1.212. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/apme/34/1/ 1520-0450-34\_1\_212.xml (besucht am 19.01.2021).
- Rosenfeld, D., B. Fischman, Y. Zheng, T. Goren und D. Giguzin (2014). "Combined Satellite and Radar Retrievals of Drop Concentration and CCN at Convective Cloud Base". In: *Geophysical Research Letters* 41, S. 3259–3265. ISSN: 1944-8007. DOI: 10.1002/2014GL059453. URL: https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/2014GL059453 (besucht am 03. 02. 2021).
- Rosenfeld, D., D. B. Wolff und E. Amitai (Juni 1994). "The Window Probability Matching Method for Rainfall Measurements with Radar". In: *Journal of Applied Meteorology and Climatology* 33, S. 682–693. ISSN: 1520-0450, 0894-8763. DOI: 10.1175/1520-0450(1994) 033<0682:TWPMMF>2.0.CO;2. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/apme/ 33/6/1520-0450\_1994\_033\_0682\_twpmmf\_2\_0\_co\_2.xml (besucht am 19.01.2021).
- Rosenfeld, D., Y. Zheng, E. Hashimshoni, M. L. Pöhlker, A. Jefferson, C. Pöhlker, X. Yu, Y. Zhu, G. Liu, Z. Yue, B. Fischman, Z. Li, D. Giguzin, T. Goren, P. Artaxo, H. M. J. Barbosa, U. Pöschl und M. O. Andreae (Mai 2016). "Satellite Retrieval of Cloud Condensation

Nuclei Concentrations by Using Clouds as CCN Chambers". In: *Proceedings of the National Academy of Sciences* 113, S. 5828–5834. ISSN: 0027-8424, 1091-6490. DOI: 10.1073/pnas. 1514044113. URL: https://www.pnas.org/content/113/21/5828 (besucht am 08. 02. 2022).

- Rosenfeld, D., Y. Zhu, M. Wang, Y. Zheng, T. Goren und S. Yu (Feb. 2019). "Aerosol-Driven Droplet Concentrations Dominate Coverage and Water of Oceanic Low-Level Clouds". In: *Science* 363, eaav0566. ISSN: 0036-8075, 1095-9203. DOI: 10.1126/science.aav0566. URL: https://science.sciencemag.org/content/363/6427/eaav0566 (besucht am 04. 12. 2020).
- Russell, L. M., A. Sorooshian, J. H. Seinfeld, B. A. Albrecht, A. Nenes, L. Ahlm, Y.-C. Chen, M. Coggon, J. S. Craven, R. C. Flagan, A. A. Frossard, H. Jonsson, E. Jung, J. J. Lin, A. R. Metcalf, R. Modini, J. Mülmenstädt, G. Roberts, T. Shingler, S. Song, Z. Wang und A. Wonaschütz (Mai 2013). "Eastern Pacific Emitted Aerosol Cloud Experiment". In: *Bulletin of the American Meteorological Society* 94, S. 709–729. DOI: 10.1175/BAMS-D-12-00015.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/bams/94/5/bams-d-12-00015.1.xml (besucht am 25. 05. 2021).
- Schnaiter, M., E. Järvinen, A. Abdelmonem und T. Leisner (Jan. 2018). "PHIPS-HALO: The Airborne Particle Habit Imaging and Polar Scattering Probe – Part 2: Characterization and First Results". In: *Atmospheric Measurement Techniques* 11, S. 341–357. ISSN: 1867-8548. DOI: 10.5194/amt-11-341-2018. URL: https://amt.copernicus.org/articles/11/341/2018/ (besucht am 17. 04. 2023).
- Schollmayer, D. (2021). A Neural Network for Particle Size Retrieval in Optical Array Probe Image Data Analysis.
- Schreck, J. S., G. Gantos, M. Hayman, A. Bansemer und D. J. Gagne (Okt. 2022). "Neural Network Processing of Holographic Images". In: *Atmospheric Measurement Techniques* 15, S. 5793–5819. ISSN: 1867-8548. DOI: 10.5194/amt-15-5793-2022. URL: https://amt. copernicus.org/articles/15/5793/2022/ (besucht am 21.06.2023).
- Schuddeboom, A. J. und A. J. McDonald (2021). "The Southern Ocean Radiative Bias, Cloud Compensating Errors, and Equilibrium Climate Sensitivity in CMIP6 Models". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 126, e2021JD035310. ISSN: 2169-8996. DOI: 10.1029/2021JD035310. URL: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2021JD035310 (besucht am 11.04.2023).
- Schulze, B. C., S. M. Charan, C. M. Kenseth, W. Kong, K. H. Bates, W. Williams, A. R. Metcalf, H. H. Jonsson, R. Woods, A. Sorooshian, R. C. Flagan und J. H. Seinfeld (2020). "Characterization of Aerosol Hygroscopicity Over the Northeast Pacific Ocean: Impacts on Prediction of CCN and Stratocumulus Cloud Droplet Number Concentrations". In: *Earth* and Space Science 7, e2020EA001098. ISSN: 2333-5084. DOI: 10.1029/2020EA001098. URL: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2020EA001098 (besucht am 15. 02. 2022).
- Seelig, T., H. Deneke, J. Quaas und M. Tesche (2021). "Life Cycle of Shallow Marine Cumulus Clouds From Geostationary Satellite Observations". In: *Journal of Geophysical Research:*

*Atmospheres* 126, e2021JD035577. ISSN: 2169-8996. DOI: 10.1029/2021JD035577. URL: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2021JD035577 (besucht am 30.06.2023).

- Seinfeld, J. H., C. Bretherton, K. S. Carslaw, H. Coe, P. J. DeMott, E. J. Dunlea, G. Feingold, S. Ghan, A. B. Guenther, R. Kahn, I. Kraucunas, S. M. Kreidenweis, M. J. Molina, A. Nenes, J. E. Penner, K. A. Prather, V. Ramanathan, V. Ramaswamy, P. J. Rasch, A. R. Ravishankara, D. Rosenfeld, G. Stephens und R. Wood (Mai 2016). "Improving Our Fundamental Understanding of the Role of Aerosol-cloud Interactions in the Climate System". In: *Proceedings of the National Academy of Sciences* 113, S. 5781–5790. DOI: 10.1073/pnas.1514043113. URL: https://www.pnas.org/doi/abs/10.1073/pnas.1514043113 (besucht am 19. 04. 2022).
- Seinfeld, J. H. und S. N. Pandis (2016). *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution* to Climate Change. John Wiley & Sons.
- Sharma, N., W. D. Bachalo und A. K. Agarwal (Feb. 2020). "Spray Droplet Size Distribution and Droplet Velocity Measurements in a Firing Optical Engine". In: *Physics of Fluids* 32, S. 023304. ISSN: 1070-6631. DOI: 10.1063/1.5126498. URL: https://aip.scitation.org/doi/10. 1063/1.5126498 (besucht am 08. 03. 2023).
- Slingo, A. (Mai 1989). "A GCM Parameterization for the Shortwave Radiative Properties of Water Clouds". In: *Journal of the Atmospheric Sciences* 46, S. 1419–1427. ISSN: 0022-4928, 1520-0469. DOI: 10.1175/1520-0469(1989)046<1419: AGPFTS > 2.0.CO; 2. URL: https: //journals.ametsoc.org/view/journals/atsc/46/10/1520-0469\_1989\_046\_1419\_agpfts\_2\_0\_ co\_2.xml (besucht am 24.08.2022).
- Small, R. J., S. P. deSzoeke, S. P. Xie, L. O'Neill, H. Seo, Q. Song, P. Cornillon, M. Spall und S. Minobe (Aug. 2008). "Air–Sea Interaction over Ocean Fronts and Eddies". In: *Dynamics* of Atmospheres and Oceans. OCEANIC FRONTS 45, S. 274–319. ISSN: 0377-0265. DOI: 10. 1016/j.dynatmoce.2008.01.001. URL: https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/ S0377026508000341 (besucht am 03.03. 2023).
- Sor, S. und A. García-Magariño (2015). "Modeling of Droplet Deformation Near the Leading Edge of an Airfoil". In: *Journal of Aircraft* 52, S. 1838–1846. DOI: 10.2514/1.C033086. URL: https://doi.org/10.2514/1.C033086 (besucht am 15.01.2021).
- Sorooshian, A., M. D. Alexandrov, A. D. Bell, R. Bennett, G. Betito, S. P. Burton, M. E. Buzanowicz, B. Cairns, E. V. Chemyakin, G. Chen, Y. Choi, B. L. Collister, A. L. Cook, A. F. Corral, E. C. Crosbie, B. van Diedenhoven, J. P. DiGangi, G. S. Diskin, S. Dmitrovic, E.-L. Edwards, M. A. Fenn, R. A. Ferrare, D. van Gilst, J. W. Hair, D. B. Harper, M. R. A. Hilario, C. A. Hostetler, N. Jester, M. Jones, S. Kirschler, M. M. Kleb, J. M. Kusterer, S. Leavor, J. W. Lee, H. Liu, K. McCauley, R. H. Moore, J. Nied, A. Notari, J. B. Nowak et al. (März 2023). "Spatially-Coordinated Airborne Data and Complementary Products for Aerosol, Gas, Cloud, and Meteorological Studies: The NASA ACTIVATE Dataset". In: *Earth System Science Data Discussions*, S. 1–79. DOI: 10.5194/essd-2023-109. URL: https://essd.copernicus.org/preprints/essd-2023-109/ (besucht am 25.04.2023).

- Sorooshian, A., B. Anderson, S. E. Bauer, R. A. Braun, B. Cairns, E. Crosbie, H. Dadashazar, G. Diskin, R. Ferrare, R. C. Flagan, J. Hair, C. Hostetler, H. H. Jonsson, M. M. Kleb, H. Liu, A. B. MacDonald, A. McComiskey, R. Moore, D. Painemal, L. M. Russell, J. H. Seinfeld, M. Shook, W. L. Smith, K. Thornhill, G. Tselioudis, H. Wang, X. Zeng, B. Zhang, L. Ziemba und P. Zuidema (Aug. 2019). "Aerosol–Cloud–Meteorology Interaction Airborne Field Investigations: Using Lessons Learned from the U.S. West Coast in the Design of ACTIVATE off the U.S. East Coast". In: *Bulletin of the American Meteorological Society* 100, S. 1511–1528. ISSN: 0003-0007, 1520-0477. DOI: 10.1175/BAMS-D-18-0100.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/bams/100/8/bams-d-18-0100.1.xml (besucht am 15. 02. 2021).
- Sorooshian, A., F. J. Brechtel, Y. Ma, R. J. Weber, A. Corless, R. C. Flagan und J. H. Seinfeld (Juli 2006). "Modeling and Characterization of a Particle-into-Liquid Sampler (PILS)". In: Aerosol Science and Technology 40, S. 396–409. ISSN: 0278-6826. DOI: 10.1080/02786820600632282. URL: https://doi.org/10.1080/02786820600632282 (besucht am 21.01.2022).
- Sorooshian, A., A. F. Corral, R. A. Braun, B. Cairns, E. Crosbie, R. Ferrare, J. Hair, M. M. Kleb, A. H. Mardi, H. Maring, A. McComiskey, R. Moore, D. Painemal, A. J. Scarino, J. Schlosser, T. Shingler, M. Shook, H. Wang, X. Zeng, L. Ziemba und P. Zuidema (2020). "Atmospheric Research Over the Western North Atlantic Ocean Region and North American East Coast: A Review of Past Work and Challenges Ahead". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 125, e2019JD031626. ISSN: 2169-8996. DOI: 10.1029/2019JD031626. URL: https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2019JD031626 (besucht am 19.04.2021).
- Sorooshian, A., A. B. MacDonald, H. Dadashazar, K. H. Bates, M. M. Coggon, J. S. Craven, E. Crosbie, S. P. Hersey, N. Hodas, J. J. Lin, A. Negrón Marty, L. C. Maudlin, A. R. Metcalf, S. M. Murphy, L. T. Padró, G. Prabhakar, T. A. Rissman, T. Shingler, V. Varutbangkul, Z. Wang, R. K. Woods, P. Y. Chuang, A. Nenes, H. H. Jonsson, R. C. Flagan und J. H. Seinfeld (Feb. 2018). "A Multi-Year Data Set on Aerosol-Cloud-Precipitation-Meteorology Interactions for Marine Stratocumulus Clouds". In: *Scientific Data* 5, S. 180026. ISSN: 2052-4463. DOI: 10.1038/sdata.2018.26. URL: https://www.nature.com/articles/sdata201826 (besucht am 19.04. 2022).
- Sourdeval, O., E. Gryspeerdt, M. Krämer, T. Goren, J. Delanoë, A. Afchine, F. Hemmer und J. Quaas (2018). "Lee Crystal Number Concentration Estimates from Lidar–Radar Satellite Remote Sensing – Part 1: Method and Evaluation". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 18, S. 14327–14350. DOI: 10.5194/acp-18-14327-2018. URL: https://acp.copernicus.org/ articles/18/14327/2018/.
- Spanu, A., M. Dollner, J. Gasteiger, T. P. Bui und B. Weinzierl (Apr. 2020). "Flow-Induced Errors in Airborne in Situ Measurements of Aerosols and Clouds". In: *Atmospheric Mea*-

*surement Techniques* 13, S. 1963–1987. ISSN: 1867-1381. DOI: 10.5194/amt-13-1963-2020. URL: https://amt.copernicus.org/articles/13/1963/2020/ (besucht am 07. 12. 2021).

- SPEC inc (2011). 2D-S Technical Manual Rev. 3.1, A Two Dimensional, Stereo, Particle Imaging Probe.
- Strakey, P. A., D. G. Talley, S. V. Sankar und W. D. Bachalo (Aug. 2000a). "Phase-Doppler Interferometry with Probe-to-Droplet Size Ratios Less than Unity. I. Trajectory Errors". In: *Applied Optics* 39, S. 3875–3886. DOI: 10.1364/AO.39.003875. URL: https://opg.optica. org/ao/abstract.cfm?URI=ao-39-22-3875.
- (Aug. 2000b). "Phase-Doppler Interferometry with Probe-to-Droplet Size Ratios Less than Unity. II. Application of the Technique". In: *Applied Optics* 39, S. 3887–3893. DOI: 10.1364/ AO.39.003887. URL: https://opg.optica.org/ao/abstract.cfm?URI=ao-39-22-3887.
- Strapp, J. W., F. Albers, A. Reuter, A. V. Korolev, U. Maixner, E. Rashke und Z. Vukovic (Juli 2001). "Laboratory Measurements of the Response of a PMS OAP-2DC". In: *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 18, S. 1150–1170. ISSN: 0739-0572, 1520-0426. DOI: 10.1175/1520-0426(2001)018<1150:LMOTRO>2.0.CO;2. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atot/18/7/1520-0426\_2001\_018\_1150\_lmotro\_2\_0\_co\_2.xml (besucht am 12. 08. 2022).
- Tang, I. N., A. C. Tridico und K. H. Fung (1997). "Thermodynamic and Optical Properties of Sea Salt Aerosols". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 102, S. 23269–23275.
  ISSN: 2156-2202. DOI: 10.1029/97JD01806. URL: https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/97JD01806 (besucht am 19. 03. 2021).
- Thornhill, K. L., B. E. Anderson, J. D. W. Barrick, D. R. Bagwell, R. Friesen und D. H. Lenschow (2003). "Air Motion Intercomparison Flights during Transport and Chemical Evolution in the Pacific (TRACE-P)/ACE-ASIA". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 108, S. 9001. ISSN: 2156-2202. DOI: 10.1029/2002JD003108. URL: https://agupubs. onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2002JD003108 (besucht am 13.07.2021).
- Tornow, F., A. S. Ackerman, A. M. Fridlind, B. Cairns, E. C. Crosbie, S. Kirschler, R. H. Moore, D. Painemal, C. E. Robinson, C. Seethala, M. A. Shook, C. Voigt, E. L. Winstead, L. D. Ziemba, P. Zuidema und A. Sorooshian (2022). "Dilution of Boundary Layer Cloud Condensation Nucleus Concentrations by Free Tropospheric Entrainment During Marine Cold Air Outbreaks". In: *Geophysical Research Letters* 49, e2022GL098444. ISSN: 1944-8007. DOI: 10. 1029/2022GL098444. URL: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2022GL098444 (besucht am 27. 06. 2022).
- Tornow, F., A. S. Ackerman und A. M. Fridlind (Feb. 2021). "Preconditioning of Overcast-to-Broken Cloud Transitions by Riming in Marine Cold Air Outbreaks". In: *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, S. 1–25. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-2021-82. URL: https://acp.copernicus.org/preprints/acp-2021-82/ (besucht am 07.07.2021).

- Touloupas, G., A. Lauber, J. Henneberger, A. Beck, T. Hofmann und A. Lucchi (2019). "A Convolutional Neural Network for Classifying Cloud Particles Recorded by Imaging Probes". In: Atmospheric Measurement Techniques.
- Tselioudis, G., W. Rossow, Y. Zhang und D. Konsta (Okt. 2013). "Global Weather States and Their Properties from Passive and Active Satellite Cloud Retrievals". In: *Journal of Climate* 26, S. 7734–7746. ISSN: 0894-8755, 1520-0442. DOI: 10.1175/JCLI-D-13-00024.1. URL: https: //journals.ametsoc.org/view/journals/clim/26/19/jcli-d-13-00024.1.xml (besucht am 15.07.2022).
- Twomey, S. (Mai 1959). "The Nuclei of Natural Cloud Formation Part II: The Supersaturation in Natural Clouds and the Variation of Cloud Droplet Concentration". In: *Geofisica pura e applicata* 43, S. 243–249. ISSN: 1420-9136. DOI: 10.1007/BF01993560. URL: https://doi.org/ 10.1007/BF01993560 (besucht am 28.05.2021).
- (Juli 1977). "The Influence of Pollution on the Shortwave Albedo of Clouds". In: *Journal of the Atmospheric Sciences* 34, S. 1149–1152. ISSN: 0022-4928, 1520-0469. DOI: 10.1175/1520-0469(1977)034<1149:TIOPOT>2.0.CO;2. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atsc/34/7/1520-0469\_1977\_034\_1149\_tiopot\_2\_0\_co\_2.xml (besucht am 28.05.2021).
- Twomey, S. und J. Warner (1967). "Comparison of Measurements of Cloud Droplets and Cloud Nuclei". In: *Journal of the Atmospheric Sciences* 24, S. 702–703.
- Vaillant de Guélis, T., A. Schwarzenböck, V. Shcherbakov, C. Gourbeyre, B. Laurent, R. Dupuy, P. Coutris und C. Duroure (Apr. 2019). "Study of the Diffraction Pattern of Cloud Particles and the Respective Responses of Optical Array Probes". In: *Atmospheric Measurement Techniques* 12, S. 2513–2529. ISSN: 1867-1381. DOI: 10.5194/amt-12-2513-2019. URL: https://amt.copernicus.org/articles/12/2513/2019/ (besucht am 21.03.2022).
- Vargas, M. und A. Feo (Jan. 2011). *Experimental Observations on the Deformation and Breakup of Water Droplets Near the Leading Edge of an Airfoil*. Techn. Ber. URL: https://ntrs.nasa. gov/citations/20110006379 (besucht am 23. 08. 2022).
- Vergara-Temprado, J., B. J. Murray, T. W. Wilson, D. O'Sullivan, J. Browse, K. J. Pringle, K. Ardon-Dryer, A. K. Bertram, S. M. Burrows, D. Ceburnis, P. J. DeMott, R. H. Mason, C. D. O'Dowd, M. Rinaldi und K. S. Carslaw (März 2017). "Contribution of Feldspar and Marine Organic Aerosols to Global Ice Nucleating Particle Concentrations". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 17, S. 3637–3658. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-17-3637-2017. URL: https://acp.copernicus.org/articles/17/3637/2017/ (besucht am 06.04.2021).
- W.M.O. World-Meteorological-Organization (2021). Guide to Instruments and Methods of Observation (WMO-No. 8). 2021 edition. Bd. Measurement of Meteorological Variables.
  WMO. Geneva: WMO. ISBN: 978-92-63-10008-5. URL: https://library.wmo.int/doc\_num. php?explnum\_id=11386 (besucht am 05. 02. 2023).
- Wang, P. K. (2013). *Physics and Dynamics of Clouds and Precipitation*. Cambridge University Press.

- Warren, S. G., C. J. Hahn, J. London, R. M. Chervin und R. L. Jenne (Dez. 1988). *Global Distribution of Total Cloud Cover and Cloud Type Amounts over the Ocean*. Techn. Ber. USDOE Office of Energy Research, Washington, DC (USA). Carbon Dioxide Research Div.; National Center for Atmospheric Research, Boulder, CO (USA). DOI: 10.2172/5415329. URL: https://www.osti.gov/biblio/5415329 (besucht am 18.08.2022).
- Waskom, M. L. (Apr. 2021). "Seaborn: Statistical Data Visualization". In: Journal of Open Source Software 6, S. 3021. ISSN: 2475-9066. DOI: 10.21105/joss.03021. URL: https://joss. theoj.org/papers/10.21105/joss.03021 (besucht am 13.04.2022).
- Wegener, A. (1911). Thermodynamik Der Atmosphäre. JA Barth.
- Wehr, T., T. Kubota, G. Tzeremes, K. Wallace, H. Nakatsuka, Y. Ohno, R. Koopman, S. Rusli, M. Kikuchi, M. Eisinger, T. Tanaka, M. Taga, P. Deghaye, E. Tomita und D. Bernaerts (Feb. 2023). "The EarthCARE Mission & ndash; Science and System Overview". In: *EGUsphere*, S. 1–47. DOI: 10.5194/egusphere-2022-1476. URL: https://egusphere.copernicus.org/preprints/2023/egusphere-2022-1476/ (besucht am 11.04.2023).
- Weigel, R., P. Spichtinger, C. Mahnke, M. Klingebiel, A. Afchine, A. Petzold, M. Krämer, A. Costa, S. Molleker, P. Reutter, M. Szakáll, M. Port, L. Grulich, T. Jurkat, A. Minikin und S. Borrmann (Okt. 2016). "Thermodynamic Correction of Particle Concentrations Measured by Underwing Probes on Fast-Flying Aircraft". In: *Atmospheric Measurement Techniques* 9, S. 5135–5162. ISSN: 1867-1381. DOI: 10.5194/amt-9-5135-2016. URL: https://amt.copernicus.org/articles/9/5135/2016/ (besucht am 19. 04. 2022).
- Wendisch, M., U. Pöschl, M. O. Andreae, L. A. T. Machado, R. Albrecht, H. Schlager, D. Rosenfeld, S. T. Martin, A. Abdelmonem, A. Afchine, A. C. Araùjo, P. Artaxo, H. Aufmhoff, H. M. J. Barbosa, S. Borrmann, R. Braga, B. Buchholz, M. A. Cecchini, A. Costa, J. Curtius, M. Dollner, M. Dorf, V. Dreiling, V. Ebert, A. Ehrlich, F. Ewald, G. Fisch, A. Fix, F. Frank, D. Fütterer, C. Heckl, F. Heidelberg, T. Hüneke, E. Jäkel, E. Järvinen, T. Jurkat, S. Kanter, U. Kästner, M. Kenntner, J. Kesselmeier et al. (Okt. 2016). "ACRIDICON–CHUVA Campaign: Studying Tropical Deep Convective Clouds and Precipitation over Amazonia Using the New German Research Aircraft HALO". In: *Bulletin of the American Meteorological Society* 97, S. 1885–1908. ISSN: 0003-0007, 1520-0477. DOI: 10.1175/BAMS-D-14-00255.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/bams/97/10/bams-d-14-00255.1.xml (besucht am 27.01.2021).
- Wetz, T., N. Wildmann und F. Beyrich (Mai 2021). "Distributed Wind Measurements with Multiple Quadrotor Unmanned Aerial Vehicles in the Atmospheric Boundary Layer". In: *Atmospheric Measurement Techniques* 14, S. 3795–3814. ISSN: 1867-8548. DOI: 10.5194/amt-14-3795-2021. URL: https://amt.copernicus.org/articles/14/3795/2021/ (besucht am 09.03.2023).
- Williamson, C. J., A. Kupc, A. Rollins, J. Kazil, K. D. Froyd, E. A. Ray, D. M. Murphy, G. P. Schill, J. Peischl, C. Thompson, I. Bourgeois, T. B. Ryerson, G. S. Diskin, J. P. DiGangi, D. R. Blake, T. P. V. Bui, M. Dollner, B. Weinzierl und C. A. Brock (Juni 2021). "Large Hemisphe-

ric Difference in Nucleation Mode Aerosol Concentrations in the Lowermost Stratosphere at Mid- and High Latitudes". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 21, S. 9065–9088. ISSN: 1680-7324. DOI: 10.5194/acp-21-9065-2021. URL: https://acp.copernicus.org/articles/21/9065/2021/ (besucht am 11.04.2023).

- Wiscombe, W. J. (Mai 1980). "Improved Mie Scattering Algorithms". In: *Applied Optics* 19, S. 1505–1509. ISSN: 2155-3165. DOI: 10.1364/AO.19.001505. URL: https://opg.optica.org/ao/abstract.cfm?uri=ao-19-9-1505 (besucht am 06. 09. 2022).
- Wood, R., C. R. Mechoso, C. S. Bretherton, R. A. Weller, B. Huebert, F. Straneo, B. A. Albrecht, H. Coe, G. Allen, G. Vaughan, P. Daum, C. Fairall, D. Chand, L. Gallardo Klenner, R. Garreaud, C. Grados, D. S. Covert, T. S. Bates, R. Krejci, L. M. Russell, S. de Szoeke, A. Brewer, S. E. Yuter, S. R. Springston, A. Chaigneau, T. Toniazzo, P. Minnis, R. Palikonda, S. J. Abel, W. O. J. Brown, S. Williams, J. Fochesatto, J. Brioude und K. N. Bower (Jan. 2011). "The VA-MOS Ocean-Cloud-Atmosphere-Land Study Regional Experiment (VOCALS-REx): Goals, Platforms, and Field Operations". In: *Atmospheric Chemistry and Physics* 11, S. 627–654. ISSN: 1680-7316. DOI: 10.5194/acp-11-627-2011. URL: https://acp.copernicus.org/articles/11/627/2011/ (besucht am 25. 05. 2021).
- Wu, W. und G. M. McFarquhar (Mai 2016). "On the Impacts of Different Definitions of Maximum Dimension for Nonspherical Particles Recorded by 2D Imaging Probes". In: *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 33, S. 1057–1072. ISSN: 0739-0572, 1520-0426. DOI: 10.1175/JTECH-D-15-0177.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atot/33/5/jtech-d-15-0177\_1.xml (besucht am 18.07.2022).
- Wyser, K. (Juli 1998). "The Effective Radius in Ice Clouds". In: *Journal of Climate* 11, S. 1793–1802. ISSN: 0894-8755, 1520-0442. DOI: 10.1175/1520-0442(1998)011<1793:TERIIC>2.0.CO;
  2. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/clim/11/7/1520-0442\_1998\_011\_1793\_teriic\_2.0.co\_2.xml (besucht am 24.08.2022).
- Xiao, H., F. Zhang, Q. He, P. Liu, F. Yan, L. Miao und Z. Yang (2019). "Classification of Ice Crystal Habits Observed From Airborne Cloud Particle Imager by Deep Transfer Learning". In: *Earth and Space Science* 6, S. 1877–1886. ISSN: 2333-5084. DOI: 10.1029/2019EA000636. URL: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2019EA000636 (besucht am 21.03.2022).
- Yang, F., M. Ovchinnikov und R. A. Shaw (2015). "Long-Lifetime Ice Particles in Mixed-Phase Stratiform Clouds: Quasi-steady and Recycled Growth". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 120, S. 11, 617–11, 635. ISSN: 2169-8996. DOI: 10.1002/2015JD023679. URL: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/2015JD023679 (besucht am 11.01.2023).
- Zelinka, M. D., T. Andrews, P. M. Forster und K. E. Taylor (2014). "Quantifying Components of Aerosol-Cloud-Radiation Interactions in Climate Models". In: *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 119, S. 7599–7615. ISSN: 2169-8996. DOI: 10.1002/2014JD021710.

URL: https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/2014JD021710 (besucht am 26.05.2021).

- Zelinka, M. D., D. A. Randall, M. J. Webb und S. A. Klein (Okt. 2017). "Clearing Clouds of Uncertainty". In: *Nature Climate Change* 7, S. 674–678. ISSN: 1758-6798. DOI: 10. 1038/nclimate3402. URL: https://www.nature.com/articles/nclimate3402 (besucht am 19.04.2021).
- Zheng, G., Y. Wang, R. Wood, M. P. Jensen, C. Kuang, I. L. McCoy, A. Matthews, F. Mei, J. M. Tomlinson, J. E. Shilling, M. A. Zawadowicz, E. Crosbie, R. Moore, L. Ziemba, M. O. Andreae und J. Wang (Jan. 2021). "New Particle Formation in the Remote Marine Boundary Layer". In: *Nature Communications* 12, S. 527. ISSN: 2041-1723. DOI: 10.1038/s41467-020-20773-1. URL: https://www.nature.com/articles/s41467-020-20773-1 (besucht am 07.04.2021).
- Zheng, Y., D. Rosenfeld und Z. Li (Juni 2015). "Satellite Inference of Thermals and Cloud-Base Updraft Speeds Based on Retrieved Surface and Cloud-Base Temperatures". In: *Journal of the Atmospheric Sciences* 72, S. 2411–2428. ISSN: 0022-4928, 1520-0469. DOI: 10.1175/JAS-D-14-0283.1. URL: https://journals.ametsoc.org/view/journals/atsc/72/6/jas-d-14-0283.1.xml (besucht am 17.03.2022).
- Zieger, P., O. Väisänen, J. C. Corbin, D. G. Partridge, S. Bastelberger, M. Mousavi-Fard, B. Rosati, M. Gysel, U. K. Krieger, C. Leck, A. Nenes, I. Riipinen, A. Virtanen und M. E. Salter (Juli 2017). "Revising the Hygroscopicity of Inorganic Sea Salt Particles". In: *Nature Communications* 8, S. 15883. ISSN: 2041-1723. DOI: 10.1038/ncomms15883. URL: https://www.nature.com/articles/ncomms15883 (besucht am 01.04.2021).