

Berichte
des
Deutschen Wetterdienstes

Nr. 58
(Band 8)

DK 551.574.13

**Über die Eiskeimbildung in unterkühlten Wolken
in ihrer Abhängigkeit von atmosphärischem Aerosol**

von

Hans-Walter Georgii

(mit 33 Abbildungen im Text)

Offenbach a. M. 1959

Inhalt

	Seite
Zusammenfassung	3
Abstract	3
0. Einführung	3
1. Überblick über neuere Untersuchungen über die Eiskeimbildung in der Atmosphäre	5
2. Problemstellung der vorliegenden Arbeit	6
3. Beschreibung der instrumentellen Ausrüstung für die Gefrierkernuntersuchungen	6
3.1. Bestimmung der Eisteilchenkonzentration in der Kältekammer	8
3.2. Überprüfung des Zählverfahrens mit der Methode nach BIGG	8
4. Ergebnisse der Messungen	9
4.1. Messungen an kontinentalen Stationen	9
4.1.1. Der Jahresgang der Gefrierkernkonzentration in Frankfurt/M.	9
4.1.2. Einfluß meteorologischer Faktoren auf die Konzentration der Gefrierkerne	10
4.1.3. Vergleich der Frankfurter Meßreihe mit den Gefrierkernzählungen an anderen Stationen	11
4.1.4. Über die zeitliche Änderung der Gefrierkernkonzentration	14
4.1.5. Zusammenhang zwischen Gefrierkernkonzentration und Luftmasse	15
4.1.6. Der tägliche Gang der Gefrierkernkonzentration	16
4.2. Beziehungen zwischen Größe und Zahl der Kondensationskerne und der Konzentration und Aktivität der Gefrierkerne	19
4.2.1. Kondensationskerne über 0.2 μ Radius	19
4.2.2. Zusammenhang zwischen Konzentration der Riesenkerne und der „Schwellentemperatur“ der Eiskeimbildung	23
4.2.3. Kondensationskerne unter 0.2 μ Radius	24
4.3. Über die Bedeutung des maritimen Aerosols für den Gefriervorgang in unterkühlten Wolken	26
4.3.1. Frühere Untersuchungen über die Aktivität der Salzkerne als Gefrierkerne	26
4.3.2. Bericht über die Messungen in Valentia/Irland	28
4.4. Nachweis der Eiskeimwirkung des atmosphärischen Aerosols durch „direkte“ Methoden	31
4.4.1. Beschreibung eines Dreistufenkonimeters zur Abscheidung der „großen“ und Riesenkerne	32
4.4.2. Die Gefrierkernkonzentration nach Ausfilterung der „großen“ und der Riesenkerne	33
4.4.3. Die Gefrierkernkonzentration nach Ausfilterung der Riesenkerne ..	33
4.4.4. Direkte Methoden zum Nachweis der Eiskeimwirkung der Aitkenkerne	35
5. Deutung der Ergebnisse und Folgerungen	38
6. Literatur	42

Die Arbeit wurde von der Naturwissenschaftlichen Fakultät der Johann-Wolfgang-von-Goethe-Universität, Frankfurt/M. als Habilitationsschrift angenommen.

Anschrift des Verfassers:

Dr. H.-W. Georgii, Frankfurt/M., Feldbergstraße 47
Univ.-Institut für Meteorologie und Geophysik

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit behandelt die Ergebnisse paralleler Messungen der atmosphärischen Gefrierkerne und der Kondensationskerne, die an verschiedenen Orten in Deutschland und an der irischen Westküste vorgenommen wurden.

In einer vergleichenden Auswertung der Ergebnisse kommt der Einfluß klimatischer Faktoren und die Bedeutung des aktuellen Wettergeschehens auf die Aktivität und die Konzentration der Gefrierkerne deutlich zum Ausdruck. Die Untersuchungen zeigten die Existenz gewisser Zusammenhänge zwischen der Zahl der „großen“ Kondensationskerne und der im Temperaturbereich zwischen 0°C und -30°C aktiven Gefrierkerne, die an den drei kontinentalen Meßstellen aber auch durch direkte Verfahren — Filterung der Teilchen bestimmter Größe aus den Luftproben — nachgewiesen werden konnten. Es konnte außerdem gezeigt werden, daß die Aktivität der Aitkenkerne erst bei Temperaturen unter -30°C einsetzt. Im Gegensatz zum kontinentalen Aerosol kommen die Seesalzteilchen für eine Eiskeimwirkung oberhalb -30°C nicht in Frage. Abschließend werden die Ergebnisse auf der Grundlage der neueren Erkenntnisse über Größenverteilung und Konstitution des atmosphärischen Aerosols diskutiert.

Abstract

The paper contains the results of simultaneous measurements of atmospheric freezing nuclei and condensation nuclei carried out at different locations in Germany and at the west coast of Ireland.

A comparative evaluation of the results reveals the influence of climatic factors and of the actual weather situation on the activity and concentration of the freezing nuclei. The investigations show the existence of certain relations between the number of "large" condensation nuclei and the concentration of ice nuclei which are active at temperatures between 0° and -30°C. These relations are existent at the three continental stations and could be confirmed by direct methods, namely by the extraction of particles of certain size-ranges from air samples. The Aitken-nuclei are ineffective as freezing nuclei above -30°C. Contrary to the continental aerosols, the sea-salt particles do not participate in the ice-formation of supercooled clouds above -30°C. The results are finally discussed on the basis of recent research on the size distribution and constitution of the atmospheric aerosols.

0. Einführung

Wolken und Niederschläge gehören über weiten Gebieten der Erdoberfläche zu den eindrucksvollsten Erscheinungen des Wettergeschehens. Es ist daher nicht verwunderlich, daß sich schon früh die Aktivität vieler Wissenschaftler auf ihre Erforschung konzentrierte.

Über die Makrophysik der Wolken, über das Auftreten bestimmter Formen im Zusammenhang mit den verschiedenen Wetterlagen und dem Strömungsfeld der Atmosphäre haben sich bereits seit vielen Jahren recht klare Vorstellungen auf Grund des umfangreichen Beobachtungsmaterials gebildet. Ein Einblick in die

mikrophysikalischen Vorgänge, die bei dem Entstehen und der Auflösung der Wolken eine wesentliche Rolle spielen und auch für die Bildung von Niederschlägen von großer Bedeutung sind, gelang dagegen erst in jüngerer Zeit.

Die grundlegende Bedeutung, die unterkühlte Wassertröpfchen in Wolken für deren weitere Entwicklung haben, hat A. Wegener (1) bereits im Jahre 1911 klar erkannt. T. Bergeron (2) blieb es aber vorbehalten, 1933 eine wohlfundierte Theorie vorzulegen, in der in konsequenter Fortführung der Anschauungen Wegener's der Prozeß der Niederschlagsbildung auf Grund des gleichzeitigen Vorhandenseins vieler unterkühlter Wassertröpfchen und einiger weniger Eiskristalle in einer Wolke erklärt wird. Daß Wasser in kleinen Mengen, ebenso wie andere Schmelzen, unterkühlbar ist, war allerdings bereits lange vor A. Wegener's Ausführungen bekannt, und geht, soweit es sich in der Literatur verfolgen läßt, auf Beobachtungen Fahrenheit's aus dem Jahre 1724 zurück.

In seiner berühmt gewordenen Arbeit führt Bergeron aus, daß eine Voraussetzung zur Niederschlagsbildung die Verbreiterung des üblicherweise schmalen Größenspektrums der Wolkentröpfchen zu größeren Tropfen hin sei, wofür grundsätzlich folgende Prozesse verantwortlich gemacht werden können:

- a) unterschiedliche elektrische Ladung der Tröpfchen,
- b) Anziehungskräfte, die zwischen Tröpfchen mit nahezu gleicher Fallgeschwindigkeit auftreten,
- c) Kollision der Tröpfchen durch turbulente Luftbewegung.

Wenn diese drei Prozesse allein wirksam sind, so dauert es im allgemeinen sehr lange, bis die Wolkentröpfchen zu solcher Größe anwachsen, daß sie als Regentropfen ausfallen und ohne vorherige Verdampfung im wolkenfreien Raum die Erdoberfläche erreichen.

Bergeron formuliert daher als wesentliche Vorbedingung, daß eine Wolke, die zur Niederschlagsbildung heranreift, eine „Mischwolke“ sein müsse, bestehend aus unterkühlten Wassertröpfchen und Eisteilchen. Infolge der Dampfdruckdifferenz zwischen Wasser und Eis findet bei gleichzeitiger Verdampfung der Wassertröpfchen eine Sublimation an den Eisteilchen statt, so daß diese rasch anwachsen. Bei einer Temperatur von -10° C beträgt in mit Wasser gesättigter Luft die Übersättigung gegenüber Eis 10%, bei -20° C sogar 21%. Der von Bergeron diskutierte Mechanismus der Niederschlagsbildung konnte in den folgenden Jahren auch durch aerologische Beobachtungen gestützt werden und erhielt weiteren starken Auftrieb durch die Arbeiten W. Findeisen's (3).

Bereits A. Wegener vertrat die Ansicht, daß ebenso wie zur Kondensation auch zum Gefrieren der unterkühlten Wassertröpfchen Keimhilfen erforderlich sind, die nach der Meinung W. Findeisen's in Form der „Sublimationskerne“ als kleine kristalline Teilchen in der Atmosphäre suspendiert vorlägen. Diese „Sublimationskerne“ sollen bereits bei Eissättigung den Wasserdampf veranlassen, in den kristallinen Zustand überzugehen. Hiermit verband Findeisen die Vorstellung, daß es sich um Teilchen handele, die mit Eis isomorph sind, so daß bei Eissättigung echte Mischkristalle gebildet werden könnten. Flugzeugbeobachtungen in Wolken hatten ergeben, daß vornehmlich bei Temperaturen um -12° C die ersten Eiskristalle in

Wolken festzustellen sind, so daß man diese Temperatur als Grenztemperatur der Wirksamkeit der „Sublimationskerne“ ansah.

Die Theorie Findeisens basierte hauptsächlich auf der zwischen Eis und Quarz angenommenen Isomorphie, wodurch Quarzteilechen als echte Sublimationskerne hätten wirken können. Dies hat sich bei späteren genauen Untersuchungen der Kristallstruktur nicht bestätigt. Es wurde daher sehr schwierig, die Sublimationskerntheorie weiter aufrecht zu halten und genügend terrestrische Sublimationskernquellen zu finden, so daß Findeisen schließlich sogar dazu überging, extraterrestrische Quellen, wie Meteorstaub, als Ursache der „Sublimationskerne“ anzusehen, eine Vorstellung, die gerade in jüngster Zeit wieder von E. J. Bowen (4) aufgegriffen wird.

Theoretisch sind die Vorgänge bei der Eiskeimbildung nur dann geklärt, wenn man sich auf spontane Gefriervorgänge in homogenen Lösungen und auf die Eisbildung an einfach gebauten eis-isomorphen Kernen beschränkt.

Bei der spontanen Bildung von Keimen aus der übersättigten Mutterphase wird die zur Bildung eines im metastabilen Gleichgewicht stehenden Keimes erforderliche Übersättigung durch die Thomson-Gibbs Gleichung beschrieben:

$$p_r = p_{\infty} e^{\frac{2 \sigma M}{\rho R T r}} \rightarrow \log \frac{p_r}{p_{\infty}} = \frac{2 \sigma M}{\rho R T r}$$

Dabei bedeutet p_r den Dampfdruck über dem Keim vom Radius r , p_{∞} den Dampfdruck über einer ebenen Eisfläche, δ die Grenzflächenenergie flüssig/fest, M das Molekulargewicht der Mutterphase und ρ ihre Dichte.

Die Arbeit, die zur Bildung eines solchen Keimes aufgebracht werden muß, läßt sich in der Form

$$A = \frac{1}{3} \delta F$$

darstellen, wobei F ein von der Oberfläche des Keims abhängiger Formfaktor ist, der im einfachsten Fall einer Kugel $4 r^2 \pi$ und im Fall eines würfelförmigen Kristalles von der Kantenlänge $a = 6 a^2$ ist. Unter Berücksichtigung der Thomson-Gibbs-Gleichung wird die Keimbildungsarbeit eines kugelförmigen Keimes:

$$A_K = \frac{16 \pi \sigma^3 M^3}{3 \rho^2 R^2 T^2 \left(\log \frac{p_r}{p_{\infty}} \right)^2}$$

Für $p_r \rightarrow p_{\infty}$ geht die zur Keimbildung aufzubringende Arbeit gegen ∞ . Die Bildung von Keimen in einer homogenen Schmelze ist nach M. Volmer (5) eine typische statistische Schwankungserscheinung. Die Wahrscheinlichkeit für die Bildung eines Keimes und damit nach Volmer die Keimbildungsgeschwindigkeit ist:

$$J = c e^{-\frac{A}{k T}} \quad (k = \text{Boltzmann-Konstante})$$

Die Zahl der pro cm^3 und sec in der homogenen Schmelze gebildeten Keime erreicht die Größenordnung von $1/\text{cm}^3 \text{ sec}$ erst bei hohen Übersättigungen, die beispielsweise bei der Bildung von Flüssigkeitskeimen aus der Dampfphase eine Wasserdampfübersättigung von 400 bis 500% erfordern, Werte, die in der Atmosphäre keinesfalls vorkommen.

Für den im Zusammenhang dieser Arbeit interessierenden Fall der spontanen Eiskeimbildung läßt sich eine entsprechende Rechnung nur sehr grob durchführen, da die Grenzflächenenergie zwischen flüssiger und fester Phase beim Wasser weitgehend unbekannt ist. L. Krastanow (6) geht so vor, daß er zunächst die

Thomson-Gibbs-Gleichung wie folgt umformt:

$$R T \log (p_r/p_{\infty}) = Q \frac{T_s - T}{T_s} \quad Q = \text{molare Schmelzwärme}$$

$$\frac{T_s - T}{T_s} = \frac{2 \sigma M}{\rho Q r} \quad T_s = \text{Schmelzpunkt des Eises (273° K)}.$$

Er berechnet dann dem Vorschlage Volmer's folgend die Grenzflächenenergie

$$\delta = \frac{\text{Oberflächenspannung} \times \text{Schmelzwärme}}{\text{Verdampfungswärme}}$$

und erhält auf diese Weise einen Wert von 10 erg/cm^2 bei 0°C . Es ist klar, daß dieser Wert nur der Größenordnung nach richtig sein kann. In jüngerer Zeit hat W. Jacobi (7) auf Grund seiner Unterkühlungsversuche einen Wert von $23-24 \text{ erg/cm}^2$ bei 0°C und einen solchen von $15,1 \text{ erg/cm}^2$ bei -40°C gefunden. Setzt man den von Krastanow berechneten Wert zusammen mit den Zahlenwerten der übrigen Größen, die alle weitgehend bekannt sind, in die Thomson-Gibbs-Gleichung ein, so erhält man eine Beziehung zwischen erforderlicher Unterkühlung und Größe der gebildeten Keime, bzw. die Temperaturunterschreitung, die erforderlich ist, um einen eis-isomorphen Keim der betreffenden Größe zu aktivieren:

$$\Delta t = \frac{1.86 \cdot 10^{-6}}{r} \quad (t \text{ in Grad Celsius}).$$

Je kleiner der eis-isomorphe Kern, umso größer sollte die Unterkühlungsfähigkeit der Schmelze sein. Da diese Beziehung jedoch nur für Keime mit idealen Impeigenschaften gilt, ist ihr praktischer Wert gering. An Teilchen des atmosphärischen Aerosols wird stets eine Überschreitung der theoretischen Werte eintreten. Die Keimbildungsarbeit, die bei Vorhandensein von als Keimhilfe wirkenden Fremdpartikeln erforderlich ist, kann überhaupt nur bei eis-isomorphen Teilchen rechnerisch abgeschätzt werden. Hierbei wird Isomorphie I. Art gefordert, d. h. neben dem Molekülbau und den Abmessungen des Moleküls müssen die Bindungskräfte gleich sein, so daß echte Mischkristalle gebildet werden können. Eine Isomorphie II. Art, die lediglich eine geometrische Ähnlichkeit der Kristallstruktur voraussetzt, führt nur zu einem orientierten Wachstum des einen Kristalles auf dem anderen und läßt sich theoretisch nicht behandeln. Isomorphie II. Art existiert beispielsweise zwischen Eis und Silberjodidkristallen. Es ist somit auf keinen Fall zu erwarten, daß das atmosphärische Aerosol den Wasserdampf veranlassen wird, ohne Zwischenstadium der flüssigen Phase in den festen Zustand überzugehen, da die Kondensationskerne im besten Falle eine orientierende Wirkung auf die Wassermoleküle ausüben können. Die Größe der erforderlichen Keimbildungsarbeit läßt sich ebenfalls nicht abschätzen.

Die Arbeiten H. Weickmann's (8) haben später auch gezeigt, daß zum Einsetzen des Gefriervorganges in der Atmosphäre stets Wassersättigung, zum mindesten eine starke Eisübersättigung Voraussetzung ist. Die Eisbildung setzt an Teilchen an, die Weickmann als „Gefrierkerne“ oder „Eiskerne“ bezeichnete und die stets mehr oder weniger zahlreich in der Atmosphäre suspendiert sind. Über die Natur dieser Kerne hatte Weickmann allerdings noch keine klare Vorstellung. An den Gefrierkernen findet keine Sublimation statt, die Eisbildung ist nur über die Wasserphase möglich. Eine letzte Klarheit über die Frage, ob zur Eisbildung tatsächlich Wassersättigung erforderlich ist, oder ob eine gewisse Eisübersättigung ausreicht, konnte bis jetzt noch nicht erreicht werden. C. Junge (9) kommt auf Grund seiner Untersuchungen über die chemische Zusammensetzung des Aerosols zu dem Schluß, daß die meist als Lösungströpfchen vorliegenden Kerne

erst bei größerer Verdünnung der Kernlösung, d. h. erst nahe der Wassersättigung als Gefrierkerne wirksam werden können.

Von großem Interesse sind in diesem Zusammenhang die Arbeiten S. Birstein's (10), der kürzlich fand, daß bei Silberjodidteilchen, die infolge ihrer dem Eis ähnlichen Kristallstruktur als sehr gute Gefrierkerne bekannt sind, bereits die Adsorption einer mehrmolekularen Wasserhaut an der Kernoberfläche zu einer Aktivierung derselben führt. Birstein konnte experimentell nachweisen, daß bei unlöslichen Teilchen die Eiskeimbildung in der Hauptsache eine Oberflächenreaktion ist. Zur Aktivierung dieser Kerne ist keine Wassersättigung erforderlich, wenn — wie bei Ag J — die adsorbierten Wasserschichten in einer eisähnlichen Struktur auf der Oberfläche angeordnet werden. Allerdings lassen sich die an Silberjodidteilchen durchgeführten Versuche nicht ohne weiteres auf die Partikel des atmosphärischen Aerosols übertragen, die in der Atmosphäre als Gefrierkerne wirksam werden.

1. Überblick über neuere experimentelle Untersuchungen zur Eiskeimbildung in der Atmosphäre

Die Bedeutung der Eisphase für die Niederschlagsbildung, die durch die Bergeron-Findeisen-theorie herausgestellt wurde, rief in der Folgezeit, d. h. in den letzten 10 bis 15 Jahren, eine außerordentliche intensive Forschungstätigkeit auf dem Gebiet der experimentellen Wolkenphysik ins Leben.

Vor der Besprechung der eigenen Untersuchungen sollen in einer gedrängten Übersicht die verschiedenen Arbeitsrichtungen skizziert werden, die bei der experimentellen Bearbeitung dieses Problems verfolgt wurden. Gemäß der Zielsetzung der vorliegenden Arbeit soll dieser Überblick jedoch auf mikrophysikalische Laboruntersuchungen beschränkt bleiben. Es muß aber nachdrücklich betont werden, daß die Erkenntnisse, die H. J. aufm Kampe und H. Weickmann sowie H. Byers und H. Braham und andere auf vielen Forschungsflügen in der freien Atmosphäre gewonnen haben, ebenfalls bedeutsame Einblicke in die Entstehung und Entwicklung der Eisbildung in unterkühlten Wolken ermöglichen.

Bei den Laboruntersuchungen, die zur Klärung der mikrophysikalischen Vorgänge bei der Eisbildung in der Atmosphäre durchgeführt wurden, kann man folgende vier Hauptforschungsrichtungen unterscheiden:

- 1) Untersuchungen eingeschmolzener Wasser- und Lösungsproben in Hinblick auf die Temperatur des Einsetzens des Gefrierprozesses (Dorsey, Frl. Hollstein, Hosler und Spalding, Meyer und Pfaff, Tamann und Büchner).

Zumeist handelt es sich hierbei um Wasserproben zwischen 1 und 10 cm³, die in Glaskapseln eingeschmolzen, in einem Alkoholbad gekühlt wurden. Die Ergebnisse von E. Dorsey (11) zeigen, daß sich ein zunehmender Reinheitsgrad der Proben in einer Erniedrigung der Gefriertemperatur auswirkt (Leitungswasser —5° C, einfach destilliertes Wasser —7,6° C, vakuumdestilliertes Wasser —14,3° C). Weiterhin ergab sich aber, daß es möglich ist, den Gefrierereinsatz zu beeinflussen durch a) Erhitzen der Probe vor der Abkühlung, b) Altern der Probe. Dorsey ist der Ansicht, daß der Gefriervorgang durch in der Lösung suspendierte Teilchen eingeleitet wird, die durch das Erhitzen in ihrer Größe und Beschaffenheit verändert werden, während sie sich beim Altern am Boden absetzen. Beides führt zu einer Erniedrigung der Gefriertemperatur. Die

tiefste Temperatur erreichten mit größeren Mengen Wasser J. Meyer und W. Pfaff (12), die einige cm³ fünf-mal destillierten Wassers bis —33° C abkühlen konnten.

2. Untersuchung des Gefriervorganges an kleinen Tröpfchen, die auf einer festen Unterlage kondensiert werden.

(Brewer und Palmer, Fournier d'Albe, Hosler, Jacobi, McDonald, Rau, H. Weickmann).

Bei diesem Verfahren werden die Wassertröpfchen im allgemeinen auf einer hochglanz-verchromten, gekühlten Metallplatte erzeugt, der Erstarrungsvorgang wird an einzelnen Tröpfchen unter dem Mikroskop beobachtet. Der große Vorteil liegt darin, daß Größe und Erstarrungstemperatur einzelner Tröpfchen genau angebbare sind. Nachteilig wirkt sich jedoch unter Umständen aus, daß die Tröpfchen auf festen Oberflächen aufliegen, wobei aus der Metalloberfläche herausragende Kristallite als Gefrierkeime wirken können. Ebenso ist eine einwandfreie Reinigung der Platte nach dem Versuch nicht ganz einfach, vor allem, da kein Alkohol hierzu benutzt werden darf. W. Jacobi (7) fand, daß 1 µ-Tröpfchen mehrfach destillierten Wassers in gereinigter Umgebungsluft bei —39° C erstarren, eine Angabe, die mit den Ergebnissen anderer Autoren gut in Einklang steht und auch durch Wolkenkammerversuche bestätigt wird. Im allgemeinen wird eine gewisse Abhängigkeit der Gefriertemperatur von der Tröpfchengröße gefunden, wobei die Unterkühlung von 100 µ-Tröpfchen beispielsweise nur bis —34° C möglich ist. W. Rau (13) gelang es allerdings — soweit aus der Literatur zu ersehen ist als einzigem — Tröpfchen bis —72° C zu unterkühlen, die dann in einer kubischen Kristallmodifikation gefroren. Brewer und Palmer vermochten die Versuche Rau's mit einer nachgebauten Apparatur nicht zu bestätigen.

- 3) Untersuchung unterkühlter Wolken in Kältekammern.

a) Expansionskammern

(Bigg, Cwiling, Findeisen, Heavely, Palmer, Soulage, Warner)

b) Schichtwolkenkammern

(aufm Kampe und Weickmann, Rau, V. Schaefer, Smith und Heffernan, H. W. Georgii)

Diese Methode ermöglicht eine bessere Annäherung an die in der Atmosphäre tatsächlich herrschenden Bedingungen, soweit sie Temperatur, Feuchte und Aerosolgehalt betreffen. In der Literatur werden Kammern von 1 l bis zu 100 m³ Inhalt beschrieben. Einzelheiten über die Wirkungsweise der Geräte und über die von anderen Forschern erzielten Ergebnisse werden in einem späteren Kapitel im Zusammenhang mit den eigenen Versuchen beschrieben.

4. Untersuchung künstlich erzeugter Aerosole auf ihre Wirkung als Gefrierkeime bei der Eisbildung in unterkühlten Wolken.

(Birstein und Anderson, Hosler und Spalding, Mason, Pruppacher und Sanger, Serpolay)

Die Entdeckung Vonnegut's, daß Silberjodidkristalle schon bei Temperaturen um —5° C unterkühlte Wolkentröpfchen zum Gefrieren anregen und die mit diesem Verfahren im Jahre 1946 erstmalig erfolgreich geglückte künstliche Auslösung von Niederschlägen veranlaßte einige Forscher zu

einer systematischen Analyse der verschiedensten Salzteilchen im Hinblick auf ihre Wirkung als künstliche Gefrierkerne. Gleichzeitig erhoffte man sich mit diesen Versuchen einen Aufschluß darüber zu gewinnen, ob gewisse auch im atmosphärischen Aerosol enthaltene Partikel aktive Gefrierkerne darstellen.

2. Problemstellung der vorliegenden Arbeit

Die vorstehende Aufstellung läßt erkennen, daß in den vergangenen Jahren wesentliche Beiträge zur Deutung des Mechanismus der Eisbildung in unterkühlten Wolken geliefert wurden, die unser Wissen über die Konzentration und Aktivität der Gefrierkerne in Abhängigkeit von dem Grad der Unterkühlung bereichert haben. Trotz der zahlreichen Bemühungen blieben immer noch viele Fragen ungelöst. Vor allen Dingen wurde bisher versäumt, die Teilchen des natürlichen atmosphärischen Aerosols in diese Überlegungen einzubeziehen.

In den letzten Jahren wurden ebenfalls wesentliche neue Erkenntnisse über die Kondensationskerne gewonnen. Neben einer genauen Bestimmung des Zusammenhanges zwischen Größe und Konzentration der Kondensationskerne, deren Ergebnis das von C. Junge entdeckte sogenannte „Potenzverteilungsgesetz“ ist, gelangen auch erste Einblicke in die chemische Zusammensetzung der Kerne. Diese ließen erkennen, daß die Teilchen des atmosphärischen Aerosols über den Kontinenten im Größenbereiche 10^{-6} cm bis 10^{-3} cm vielfach Mischkerncharakter besitzen, d. h. aus einem Konglomerat aus löslichen und unlöslichen Bestandteilen zusammengesetzt sind. Diese Feststellung wird noch im Rahmen der vorliegenden Arbeit von Wichtigkeit sein. Mit diesen Arbeiten über das kontinentale Aerosol hat sich vor allem C. Junge (14) verdient gemacht. Gleichermaßen interessant sind die Untersuchungen von A. H. Woodcock (15) über die Entstehung und Verteilung der Seesalzkerne in der Atmosphäre. Diese zeigen in Verbindung mit Junge's Veröffentlichungen die Unterschiede zwischen der maritimen und kontinentalen Komponente des Aerosols und ermöglichen eine genaue Abgrenzung der beiden Anteile auch hinsichtlich der Größe der Teilchen maritimen und kontinentalen Ursprungs.

Trotz des Fortschrittes, der in den vergangenen Jahren sowohl auf dem Gebiet der Erforschung der Kondensationskerne wie auch der Gefrierkerne ganz eindeutig erzielt wurde, sind bisher beide Forschungsrichtungen stets von getrennten Zielsetzungen ausgegangen.

Parallele Messungen der Gefrier- und der Kondensationskerne wurden noch nicht bekannt, die Frage, ob und welche Beziehungen zwischen den Gefrierkernen und den Kondensationskernen bestehen, ist noch weitgehend ungeklärt, so daß es seither nicht möglich war, die Gefrierkerne in das allgemeine und übergeordnete Schema des atmosphärischen Aerosols einzuordnen.

Auf Grund der Ergebnisse der Arbeiten über das atmosphärische Aerosol aus den letzten Jahren war daher die Aufgabenstellung naheliegend, diese bisher noch bestehende Lücke durch gleichzeitige Untersuchung der Kondensationskerne und der Gefrierkerne zu schließen, wobei im Anschluß an Junges Arbeiten vor allem der Einfluß der Teilchengröße auf die erforderliche Unterkühlung bis zur Eisteilchenbildung in den Vordergrund der Erwägung gestellt werden sollte.

Soweit überhaupt in früheren Arbeiten Ansichten über eine bevorzugte Wirkung gewisser Kondensations-

kerne auch als Gefrierkerne geäußert wurden, so sind diese sehr widerspruchsvoll. W. Findeisen (3) vertrat die Auffassung, die „Sublimationskerne“ seien kleinste, kristalline Teilchen mit einem Radius von 10^{-6} cm, W. Rau (16) konnte dagegen bei einigen gleichzeitigen Messungen der Gefrierkerne und der Kondensationskerne im Größenbereich unter 10^{-5} cm Radius feststellen, daß der Gefrierkerngehalt der Luft offenbar von ihrem Gehalt an Kondensationskernen unabhängig ist.

Zum genaueren Studium des Einflusses von Konzentration und Größe der Kondensationskerne wurden diese in drei Größenbereiche unterteilt, deren Abgrenzung sich weitgehend an die von Junge vorgeschlagene hält:

- a) Riesenkerne Radius über 10^{-4} cm
- b) „große“ Kerne Radius zwischen 10^{-5} cm und 10^{-4} cm
- c) Aitkenkerne Radius unter 10^{-5} cm

Vergleichende Messungen der Gefrierkernkonzentration in der Ebene (Frankfurt/M.), im Mittelgebirge (Kleiner Feldberg/Taunus) und im Hochgebirge (Zugspitzobservatorium) sollten einen Aufschluß über das Verhalten der Gefrierkerne unter den verschiedenartigsten atmosphärischen Bedingungen erbringen, wobei die Untersuchungen auf der Zugspitze weitgehend den Verhältnissen in der freien Atmosphäre in Wolkenbildungshöhe entsprechen.

Messungen an der Westküste von Irland, die im Anschluß an die Messungen auf dem Kontinent durchgeführt wurden, sollten die Wirkung der Seesalzkerne als Gefrierkerne aufklären.

3. Beschreibung der instrumentellen Ausrüstung für die Gefrierkernuntersuchungen

Die Konzentration der Riesenkerne und der „großen“ Kerne wurden mit einem von Junge entwickelten „Doppelkonimeter“ bzw. mit einem vom Verfasser konstruierten Dreistufenkonimeter bestimmt. Das Dreistufenkonimeter wird in einem späteren Kapitel dieser Arbeit behandelt werden. Die Zahl der Aitkenkerne wurde mit zwei Kernzählern nach Scholz gemessen. Während eines längeren Zeitraumes stand durch das freundliche Entgegenkommen von Herrn Professor Dr. H. Israel, Aachen, auch ein automatisch registrierender Aitkenkernzähler nach Verzar zur Verfügung, mit dem außer den laufenden Messungen der Aitkenkerne auch einige Spezialuntersuchungen durchgeführt werden konnten.

Bei der Untersuchung der Eisteilchenbildung in Laborversuchen kennt man, wie in dem einleitenden Kapitel unter 3) geschildert, grundsätzlich zwei Verfahren, wobei in jedem Fall ein Luftvolumen bestimmter Größe in einer Kältekammer gekühlt wird. Bei der Expansionsmethode wird die in der Kammer eingeschlossene Luft entweder nach der Überdruckmethode von höherem Druck adiabatisch auf Atmosphärendruck gebracht, oder nach der Unterdruckmethode von Atmosphärendruck auf einen gewissen Unterdruck expandiert. Durch entsprechende Anpassung der Expansionsgeschwindigkeit können auf diese Weise die Verhältnisse in atmosphärischen Quellwolken und die in ihnen herrschenden Aufwindgeschwindigkeiten näherungsweise reproduziert werden. Allerdings wurde dies — soweit aus der Literatur hervorgeht — bisher nur von W. Findeisen und G. Schulz (17) verwirklicht, die eine 2 m^3 Luft fassende Kammer bauten, in der die Luft von 12 Atm. Überdruck auf Außen- druck expandiert wurde, wobei mit geringer Vorkühlung eine Temperaturdifferenz von 70°C erzielt wurde, und die Expansionsrate einer Vertikalgeschwindigkeit der Luft zwischen 5 und 20 m/s äquivalent war. Dieses

Gerät übertrifft die meisten später entwickelten Expansionskammern an Größe und technischem Aufwand. Es wurde am Ende des 2. Weltkrieges in Prag zerstört, jedoch in jüngster Zeit wiederhergestellt und in Betrieb genommen, wie man einer Arbeit von J. Podzimek (18) entnimmt. J. Warner (19) hat neuerdings eine kleinere Expansionskammer beschrieben, die als typisches Beispiel zahlreicher ähnlich gebauter Kammern aus den letzten Jahren angesehen werden kann. Das in diesem Gerät für die Untersuchung zur Verfügung stehende Luftvolumen beträgt nur rund 10 l und wird vor der Expansion mit einer Kältemischung auf -12°C vorgekühlt. Die Expansionsgeschwindigkeit ist wesentlich rascher als bei Findeisen und Schulz und führt innerhalb 40 sec. zu einer weiteren Temperaturerniedrigung von etwa 10°C . Bei -20°C wird dann die Eisteilchenzählung vorgenommen.

Die rasche Expansion der Luft in den kleineren Kammern läßt Rückwirkungen auf die Aerosolkonzentration in der darin eingeschlossenen Luftprobe befürchten. Die Druckverminderung beeinflusst die Diffusion und Koagulation der Teilchen, so daß man eine stärkere Verminderung der Teilchenzahl beobachtet, als sie allein durch die Entspannung der Luft eintreten dürfte. Dieser Effekt wurde bereits vor rund 20 Jahren von G. Schlarb (20) entdeckt und konnte in der Folgezeit von C. Junge und von F. Volz (21) bestätigt werden. Einen weiteren Nachteil der rasch arbeitenden Expansionskammern offenbarten kürzlich in den Vereinigten Staaten durchgeführte Vergleichsmessungen mit einer größeren Zahl unterschiedlicher Expansions- und Schichtwolkenkammern, wie ein Bericht des Advisory Committee on Weather Control in Pasadena zeigt (22). Die Eisteilchenzahl war in den Expansionskammern bei gleichen äußeren Bedingungen stets geringer als in den langsam arbeitenden Mischwolkenkammern. Der Abkühlungsvorgang in den Expansionskammern dürfte so rasch ablaufen, daß nicht alle vorhandenen Gefrierkerne aktiviert werden können.

Die oben beschriebenen Nachteile der Expansionskammern, aber auch der höhere finanzielle und technische Aufwand, der zum Betrieb einer größeren Kammer dieses Typs erforderlich ist, gaben den Ausschlag zum Bau einer Schichtwolkenkammer für die im Rahmen der vorliegenden Untersuchung geplanten Versuche. In einer Schichtwolkenkammer wird ein durch ihre Dimension gegebenes Luftvolumen mittels eines Kältebades mit vorgegebener Geschwindigkeit gekühlt. Da sich zumindest im obersten Bereich der Kammer stets eine Temperaturinversion, also eine sehr stabile Schichtung einstellt, können, wie schon der Name besagt, die Bedingungen in dieser Kammer denen in einer Schichtwolke angenähert werden. Die Abb. 1 zeigt eine schematische Darstellung der im Universitätsinstitut für Meteorologie und Geophysik installierten Kältekammer, die bereits an anderer Stelle von H. W. Georgii (23) eingehend beschrieben wurde. Der eigentliche Versuchsbehälter nimmt eine Luftprobe von 83 Litern auf und entspricht in seiner Größe weitgehend einem von E. J. Smith und K. J. Hefernan (24) konstruierten Gerät, das sich bei seiner praktischen Anwendung als sehr glückliche Lösung erwiesen hatte. Der Versuchsbehälter ist von einer in Bitumen eingebetteten Kühlschlange umgeben, die von Frigen 12 als Kühlmittel durchströmt wird. Die Kühlung erfolgt mittels eines Kompressors der Fa. Linde AG, Typ 31 C, Leistung 100 kcal bei -40°C und 25°C Außentemperatur. Der zeitliche Temperaturverlauf im Inneren der Kammer entspricht während des Kühlvorganges einer Exponentialfunktion. Das hat zur Folge, daß der Temperaturbereich nahe 0°C verhältnismäßig

rasch durchlaufen wird, die Kühlung unter -30°C bedeutend langsamer erfolgt. Die Minimaltemperatur beträgt -45°C und wird bei $+18^{\circ}\text{C}$ Außentemperatur in etwa 120 Minuten erreicht. Es darf am Rande vermerkt werden, daß sich diese Kammer im Verlauf der Messungen sehr bewährt hat, so daß bereits von anderen Instituten das gleiche Gerät in Auftrag gegeben wurde.

Einer Anregung V. Schaefer's (25) folgend, wurde die innere Wandung der Kammer matt schwarz gestrichen, um jede Lichtreflexion auszuschalten und im Abstand von 0,5 cm mit schwarzem Chiffonstoff bespannt. Diese Bespannung bleibt stets eisfrei. In unserem Falle blieben die untersten 10 cm der Wandung und der Boden ohne Bespannung (siehe Abb. 1). Hierdurch wird die Zirkulation der Luft in der Kammer begünstigt (absteigender Kaltluftstrom zwischen Wandung und Stoffbespannung). Zur Isolation wurde der innere Behälter mit 14 cm dicken Korksteinplatten umgeben. Der abnehmbare Deckel erhielt ebenfalls eine 10 cm dicke Isolierung. Er verschließt die Kammer luftdicht, was für einige Versuche Voraussetzung war. Der Deckel enthält zwei Durchbrüche aus schweißbarem wärmeisolierendem Kunststoff mit 8 cm bzw. 13 cm Durchmesser, die zur Beleuchtung und Beobachtung der unterkühlten Wolke in der Kammer dienen. Drei weitere Stützen sind zum Durchtritt der vertikal verschiebbaren Thermolemente zur Kontrolle der Lufttemperatur in der Kammer, weiterhin zur Aufnahme eines Rührwerkes zur Durchmischung der Luft in der Kammer und zum Eintritt der Frischluft vorgesehen. Die „Kammerluft“ wird mittels eines Gebläses durch den am Kammerboden angebrachten Stutzen abgesaugt, wodurch die Frischluft durch den Deckel nachströmt. Ein weites Glasrohr durch das Dach

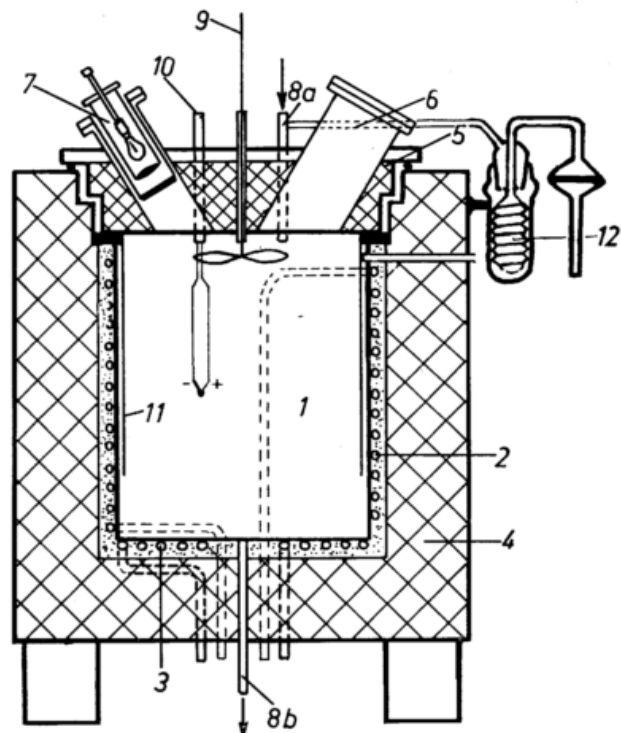


Abb. 1

Schnitzzeichnung der Mischwolkenkammer

- 1 = eigentliche Kältekammer (Vol. 83 ltr.)
- 2 = Kühlschlange im Bitumen eingegossen
- 3 = Spirale für Heizflüssigkeit
- 4 = Korkisolation (Dicke 14 cm)
- 5 = luftdicht schließender, isolierter Deckel
- 6 = Kunststoffrohr zur Beobachtung des Kammerinneren
- 7 = Kunststoffrohr für Kammerbeleuchtung
- 8 = a) Stutzen für Frischlufteintritt, b) Luftauslaßstutzen
- 9 = Durchbruch für Rührer
- 10 = Durchbruch für Thermolemente
- 11 = Chiffonbespannung in 0,5 cm Abstand von der Wandung
- 12 = Wasserdampfquelle

des Institutsgebäudes stellt die Verbindung zur Außenluft dar. Zur Beleuchtung der Kammer wurde eine 15 Volt = 8 Amp. Punktlampe gewählt. Ein Kondensor richtet den Lichtstrahl parallel, eine Blende ermöglicht eine Verkleinerung des parallelen Lichtbündels, was zur Auszählung hoher Eisteilchenkonzentrationen (bei Temperaturen unter -30°C) vorteilhaft ist. Die Lampe ist zur Vermeidung störenden Streulichtes teilweise im Beleuchtungsstutzen im Deckel versenkt.

Wie der Abb. 1 weiter zu entnehmen ist, wurde unter den Boden des Versuchsbehälters eine zweite Kupferschlange befestigt, durch die eine heiße Glysantlösung zirkuliert. Auf diese Weise wird die Wiedererwärmung der tief gekühlten gut isolierten Kammer beschleunigt, wenn eine Wiederholung der Messung wünschenswert erscheint.

Zur Messung der Lufttemperatur in der Kältekammer sind Kupfer-Konstantanthermoelemente in einem Pertinaxrohr vertikal verschiebbar angebracht. Zur Anzeige der Temperatur wird ein Multiflex-Galvanometer Typ 0 der Firma Dr. B. Lange verwendet.

Die vertikale Temperaturschichtung in der Kammer wurde bei unterschiedlicher Innentemperatur mehrfach vermessen. Es ergab sich, daß die Schichtung vom Boden bis 35 cm Höhe isotherm ist, darüber bildet sich eine schwache Inversion aus. Die geringe Temperaturzunahme mit der Höhe und der große Bereich, in dem Isothermie herrscht, sind ein Vorteil der dem dicht schließenden und gut isolierten Deckel zuzuschreiben ist.

3.1. Bestimmung der Eisteilchenkonzentration in der Kältekammer

Die Bestimmung der Zahl der sich in der unterkühlten Wolke in der Kältekammer bildenden Eisteilchen, die der Zahl der bei der entsprechenden Temperatur aktiven Gefrierkerne entspricht, wurde bei allen Messungen folgendermaßen gehandhabt:

Während des Abkühlungsvorganges wird nach jeweils 3°C Temperaturerniedrigung (bei Temperaturen unter -24°C in Schritten von nur 2°C wegen der erhöhten Eisteilchenzahl) 1 Liter doppelt gefilterte Außenluft in die Kammer eingeleitet, nachdem sie eine Spiralwaschflasche mit erwärmtem destillierten Wasser (50°C) durchströmt hat. Durch die innige Berührung mit dem warmen Wasser reichert sich der Wasserdampfgehalt der Luftprobe derart an, daß in der Kältekammer Wasserdampfsättigung und Wolkenbildung eintritt. Das Einbringen des Wasserdampfes führt zu einer Temperaturerhöhung in der Kammer, die unter 0.5°C bleibt. Wie in einem früheren Abschnitt dieser Arbeit erwähnt wurde, ist zur Aktivierung der Gefrierkerne Eisübersättigung erforderlich.

Eingehende Versuche zeigten, daß eine in das Innere der Kältekammer eingebaute kontinuierlich Wasserdampf erzeugende Vorrichtung, wie sie z. B. von Smith und Heffernan oder von Serpolay benutzt wurde, wegen der gleichzeitig als Begleiterscheinung hervorgerufenen Turbulenz in der Kammer, wenig geeignet ist. Auch das von Rau vorgeschlagene Verfahren, die Außenluft vor Eintritt in die Kältekammer durch ein Wasserbad zu leiten, erscheint nicht unbedenklich, da die Gefahr besteht, daß Aerosolteilchen in dem Wasserbehälter absorbiert werden, bevor sie in die Kältekammer gelangen können. Dies geht auch deutlich aus den Untersuchungen von H. Remy (26) über die Filterung von Aerosolen in Flüssigkeiten hervor.

Die Eiskristallkonzentration wird in einem von einem parallelen Lichtbündel ausgeleuchteten Luftvolumen von 1 — 1.5 Liter Inhalt ausgezählt. Die Eis-

teilchen heben sich von den milchig aussehenden Wassertropfchen durch ihr kristallisches Glitzern und ihre rasch anwachsende Fallgeschwindigkeit ab und lassen sich bis zu einer Temperatur von -32°C ohne großen Fehler auszählen. Bei hoher Eisteilchenzahl kann durch vorgesetzte Blenden das beleuchtete Zählvolumen verkleinert werden. Bei tieferen Temperaturen als -32°C ist der Anstieg der Eisteilchenkonzentration allerdings so stark, daß deren Zahl nur noch geschätzt werden kann, wobei man zweckmäßigerweise den Abstand zwischen zwei Kristallen zugrundelegt. Der Verfasser hat sich im Rahmen dieser Untersuchung meist auf die oberhalb -30°C bzw. -32°C aktiven Gefrierkerne beschränkt, die für die meteorologischen Prozesse von Interesse sind.

3.2. Überprüfung des Zählverfahrens mit der Methode nach Bigg

Nach Abschluß wesentlicher Teile der vorliegenden Arbeit wurde ein neuartiges Verfahren zur Bestimmung der Gefrierkernkonzentration bekannt, das mit gewissen Einschränkungen eine objektive und fehlerfreie Zählung der in einer Luftprobe gebildeten Eisteilchen ermöglicht. Die von E. K. Bigg (27) entwickelte Methode besteht darin, daß auf den Boden der Kältekammer eine flache Schale mit konzentrierter Zuckerlösung gestellt wird, in die die Eiskristalle hineinfallen. Sie wachsen in der Lösung als individuelle Eisteilchen weiter, ohne daß die gesamte Flüssigkeit spontan gefriert. Voraussetzung ist allerdings, und darin liegt die Beschränkung des Verfahrens, daß dieses kontrollierte Kristallwachstum nur im Temperaturbereich zwischen etwa -12°C und -18°C stattfindet. Bei höheren Temperaturen sind Eisteilchen in der Lösung überhaupt nicht zu entdecken, wogegen sie bei tieferen Temperaturen so rasch größer werden, daß die gesamte Lösung innerhalb kürzester Frist kristallisiert. Innerhalb des Temperaturbereiches mit optimalen Wachstumsbedingungen erreichen die Kristalle in 2 Minuten eine Größe von rund 3 — 4 mm, so daß sie ohne Schwierigkeit erkannt und ausgezählt werden können.

Um diese Bedingungen auszunutzen, hat Bigg bei seinen Untersuchungen die Gefrierkernkonzentration bei fest vorgegebener Temperatur und nicht wie wir in Abhängigkeit von der Temperatur bestimmt. Außerdem war am Boden seiner Kältekammer eine Vorrichtung zum raschen Wechsel der Schale mit der Lösung während des Versuches vorgesehen.

Die Veröffentlichung Bigg's erfolgte erst im Jahre 1957, somit war es nicht mehr möglich, seine Zählmethode bei längeren Meßreihen anzuwenden, ohne unter Umständen die Vergleichbarkeit mit früher gewonnenen Ergebnissen zu gefährden. Abgesehen davon ließ sich die Beschränkung auf ein Temperaturintervall von rund 6 Grad nicht mit den Zielsetzungen der vorliegenden Arbeit vereinbaren. Immerhin bot sich die willkommene Gelegenheit, Vergleichsmessungen der Gefrierkernkonzentration nach beiden Verfahren durchzuführen, um zumindest im Temperaturbereich zwischen -12°C und -18°C die Ergebnisse auf Übereinstimmung zu überprüfen.

Zu diesem Zweck wurden 22 Gefrierkernzählungen vorgenommen, wobei auf dem Boden der Kältekammer eine mattschwarze flache Schale mit konzentrierter Zuckerlösung, 1.2 kg Zucker in 1000 ccm destilliertem Wasser gelöst, gestellt wurde. Der Durchmesser dieser Schale war so bemessen, daß die Eisteilchen aus einem Luftvolumen von 10 Litern stammen, wenn sie in die Schale fallen. Nach Abkühlung der Luftprobe in der Kältekammer auf -15°C , -18° und -21°C (was einer Temperatur der sich langsamer abkühlenden Lö-

sung von -12°C bis -16°C entsprach) wurde eine Wolke in der Kältekammer erzeugt und die sich in ihr bildenden Eisteilchen nach beiden Verfahren ausgezählt.

Es ergab sich folgendes Verhältnis zwischen der Gefrierkernkonzentration, die durch visuelle Beobachtung der Eisteilchenzahl in dem parallelen Lichtstrahl festgestellt wurde, und der Auszählung der in der Zuckerlösung angewachsenen Kristalle:

Temperatur	visuelle Beobachtung : Zuckerlösung	
-15°C	1	: 3.3
-18°C	1	: 4.7
-21°C	1	: 4.7

Die Werte sind Mittel aus 22 Vergleichsmessungen.

Die Abb. 2 zeigt eine photographische Aufnahme der mit Zuckerlösung gefüllten Schale auf dem Boden der Kältekammer, in der man deutlich die Eiskristalle erkennen kann. Die ungleiche Größenverteilung ist auf Temperaturunterschiede innerhalb der Lösung zurückzuführen. Man sieht aber, daß die in der Zuckerlösung gewachsenen Gebilde den Schneekristallen durchaus ähnlich sind. Neben Plättchen treten vereinzelt auch stäbchenförmige Kristalle auf.

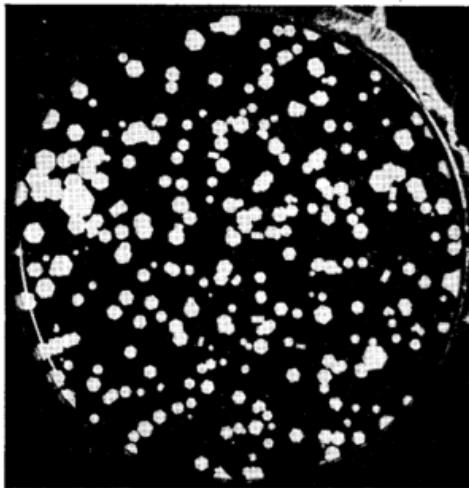


Abb. 2

Aufnahme von Eiskristallen, die in Zuckerlösung wachsen

Das angegebene Verhältnis der beobachteten Eiskristallkonzentrationen von 1:4.7 entspricht nicht ganz dem zu erwartenden Wert von 1:6 bis 1:8, wie er sich aus den Luftvolumina, die auf Eisteilchen untersucht werden, ergäbe. Der niedrige Wert von nur 1:3.3 bei -15°C läßt sich an Hand sorgfältiger Beobachtungen dadurch erklären, daß die Zuckerlösung noch nicht die zum Wachstum der Eiskristalle erforderliche niedrige Temperatur erreicht hat. Daß auch bei -18°C und -21°C zu niedrige Eisteilchenkonzentrationen in der Zuckerlösung beobachtet werden, hat zwei Ursachen: 1) Einige Eisteilchen verdampfen während des Falles durch die Kältekammer, bevor sie in die Zuckerlösung gelangen, und 2) herrscht in der Kältekammer stets eine schwache Luftbewegung, wodurch bei der visuellen Beobachtung die Eisteilchenzahl in einer größeren Luftmenge bestimmt wird, als es den äußeren Abmessungen des zylindrischen Lichtbündels entspricht. Das Ausmaß dieser Mikroturbulenz wurde mit einem hochempfindlichen Hitzdrahtanemometer bestimmt und beträgt einige cm/sec. Dieser Einfluß der Mikroturbulenz dürfte in unserem Falle für die Abweichung vom erwarteten Wert ausschlaggebend gewesen sein. Das Ergebnis erlaubt die Schlußfolgerung, daß die im weiteren Verlauf dieser Arbeit angegebenen Eisteilchenkonzentrationen einem Luftvolumen von rund 2 Litern entstammen. Es bestätigt darüber hinaus, daß die angewandte Beobachtungstechnik durchaus befriedigende

und vertrauenswürdige Zählungen der Eisteilchenzahl in der unterkühlten Wolke erlaubt, die die Konzentration nicht nur in der Größenordnung richtig angeben, sondern auch geringe Schwankungen der Zahl, die von Messung zu Messung auftreten, sicher erkennen läßt. Im Rahmen der vorliegenden Untersuchung spielt es eine völlig untergeordnete Rolle, ob die Eisteilchenzahl einem Luftvolumen von 1.5 oder 2 Litern entstammt, solange die Vergleichbarkeit der Messungen untereinander gesichert ist. Die repräsentative Bedeutung des einzelnen Meßwertes ist ohnedies durch die Begrenzung des untersuchten Luftvolumens und durch die Veränderlichkeit meteorologischer Größen eingeschränkt.

4. Ergebnisse der Messungen

4.1. Messungen an kontinentalen Stationen

4.1.1. Der Jahresgang der Gefrierkernkonzentration in Frankfurt/M.

Bisher lagen nur sehr wenige Messungen der Gefrierkernkonzentration der Atmosphäre vor, die über einen längeren Zeitraum ohne Unterbrechung ausgedehnt wurden. Die längste Meßreihe wurde von V. Schaefer (28) auf dem Mt. Washington (USA) während der Jahre 1948 — 1954 vorgenommen. Sie ist allerdings mit dem Nachteil behaftet, daß Schaefer die Gefrierkernkonzentration lediglich bei einer konstanten Temperatur — durchschnittlich -20°C — und in einer offenen Kammer mit großen vertikalen Temperaturunterschieden bestimmt hat. W. Rau (29) hat bisher als einziger über Messungen der Gefrierkernkonzentration in Abhängigkeit von der Temperatur der gekühlten Luftprobe berichtet, die er in den Jahren 1953/54 in Weissenau/Süddeutschland durchgeführt hat. Dieser Mangel an Daten über die Konzentration der Gefrierkerne im Ablauf des Jahres und in Abhängigkeit von den jahreszeitlichen Witterungseinflüssen bestimmte den Verfasser, im Frankfurter Universitätsinstitut für Meteorologie und Geophysik Gefrierkernbeobachtungen ohne Wechsel des Orts vom Mai 1956 bis einschließlich Mai 1957 laufend vorzunehmen. Das so gewonnene Material sollte als Grundlage für weitere spezielle Auswertungen zur Verfügung stehen. Erstmals wurde dabei gleichzeitig der Gehalt der Luft an „großen“ Kondensationskernen und Aitkenkernen mitbestimmt.

Die Abb. 3 gibt einen ersten Überblick über den Verlauf der Gefrierkernkonzentration während des Meßjahres 1956/57 in Frankfurt. Neben den Monatsmittelwerten der im Temperaturbereich zwischen 0° und -30°C aktiven Gefrierkerne wurden die Mittelwerte der Konzentration der „großen“ Kerne eingetragen, sowie die von M. Röttschke (30) auf dem Collenberg bei Leipzig im Jahre 1935 ermittelten Werte der „großen“ Kerne. Bei den oberhalb -30°C aktiven Gefrierkernen ist ein deutlicher Jahresgang mit einem Maximum während der Wintermonate und einem Minimum im Sommer zu erkennen. Eine gewisse Parallelität zum Jahresgang der „großen“ Kerne ist zu erkennen, ein Problem, dem in späteren Kapiteln dieser Arbeit noch eingehend Beachtung geschenkt wird. Der starke Anstieg der Zahl der „großen“ Kerne während des Winters, vor allem im Oktober, ist zweifellos mit dem Beginn der Heizperiode in Zusammenhang zu bringen, die zu einer starken Produktion künstlicher Aerosole führt. Außerdem trägt der im Winter herabgesetzte Vertikalaustausch zu einer Akkumulation von Kernen in der bodennahen Luftschicht bei. Es muß aber bereits an dieser Stelle betont werden, daß die industriellen Aerosole im allgemeinen schlechte Gefrierkerne sind, die erst bei Temperaturen um -25°C

für die Eisteilchenbildung wirksam werden. Auch diese Regel wird jedoch durch Ausnahmen bestätigt: J. v. Kienle (31) berichtete über einen stadtbegrenzten, örtlich eng begrenzten Schneefall über Mannheim, bei dem die ausschneidende Wolkendecke 400 m dick und nicht kälter als -4°C bis -5°C gewesen sein kann.

Der Jahresgang der „großen“ Kerne kann als typisch angesehen werden. Neben Röttschke und den eigenen Messungen sind in diesem Zusammenhang noch die Kernzählungen von E. Effenberger (32) aus dem Jahre 1939 zu nennen, die ebenfalls den gleichen Verlauf des Jahresganges zeigen.

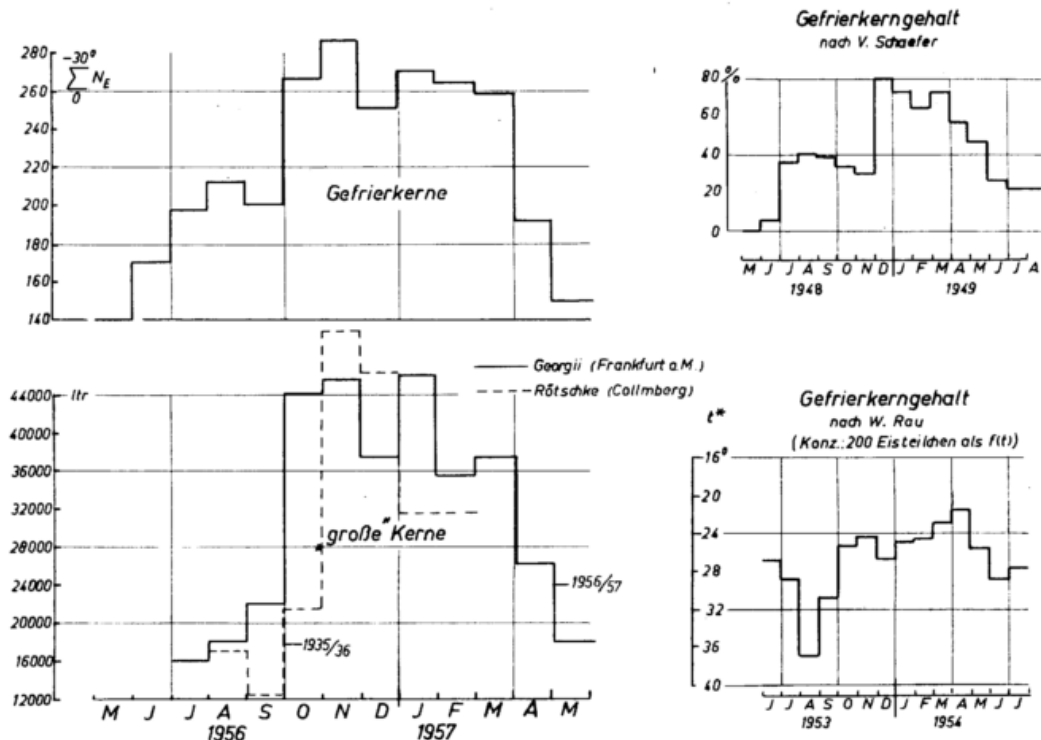


Abb. 3
Jahresgang der Gefrierkernkonzentration und der Konzentration der „großen Kerne“. Rechte Seite: Zum Vergleich die Meßergebnisse von V. Schaefer und W. Rau

Auf der rechten Seite der Abb. 3 sind noch die von V. Schaefer auf dem Mt. Washington und W. Rau in Süddeutschland gemessenen Gefrierkernzahlen eingetragen, die eine befriedigende Übereinstimmung der Ergebnisse mit den eigenen erkennen lassen. Daß die an verschiedenen Orten beobachteten Jahresgänge in Einzelheiten größere Abweichungen voneinander aufweisen, ist zu erwarten, da die örtlichen Bedingungen und die Einflüsse der Witterung die Aktivität und die Konzentration der Gefrierkerne maßgeblich beeinflussen. Zum Verständnis der Angaben in Abb. 3 muß erwähnt werden, daß V. Schaefer von einer maximal erreichten Gefrierkernkonzentration ausgeht, die gleich 100% gesetzt wird und alle Werte auf diesen bezieht. W. Rau dagegen summiert die in seiner Kältekammer mit sinkender Temperatur beobachteten Eisteilchen bis zu einem Wert von 200/l und gibt die Temperatur, bei der diese Summe erreicht wird, als Kenngröße an. Hohe Temperaturwerte weisen in dieser Klassifizierung somit auf hohe Aktivität der Gefrierkerne hin.

4.1.2. Einfluß meteorologischer Faktoren auf die Konzentration der Gefrierkerne

Die Konzentration und Aktivität der Gefrierkerne zeigte sich in starkem Maße von den Einflüssen der Witterung zur Zeit der jeweiligen Gefrierkernmessung abhängig. Die große Zahl der in Frankfurt durchgeführten Gefrierkernzählungen erlaubten eine Analyse der Beziehungen, die zwischen gewissen Wettererscheinungen und der Konzentration der Gefrierkerne bestehen. Die Abb. 4 enthält eine Zusammenstellung, in die neben dem Monatsmittel der Gefrierkernkonzentration die durchschnittlichen Werte eingetragen sind,

die an Tagen mit bestimmtem Wettergepräge gemessen wurden, und zwar: an Strahlungstagen, Tagen mit Schauertätigkeit, Nebeltagen, Tagen mit langanhaltenden Aufgleitniederschlägen, sowie Tagen mit starker Advektion frischer Luftmassen in der Höhe.

Die Abb. 4 läßt folgende Ergebnisse klar erkennen: Beim Vorliegen folgender meteorologischer Ereignisse während der Gefrierkernzählung ist die Konzentration der Eiskeime im Temperaturbereich zwischen 0° und -30°C überdurchschnittlich hoch:

- a) während und nach Schauern, sowie bei kräftigem Vertikalaustausch (Rückseitenwetter).
Eine Erklärung für diese Beobachtung ist darin zu suchen, daß durch die Schauertätigkeit eine hohe Zahl besonders aktiver Gefrierkerne in die bodennahe Luftschicht transportiert wird, vor allem solche, die bereits bei der Bildung des Schauers in höheren Atmosphärenschichten als Gefrierkerne beteiligt waren. Häufig behalten solche Eiskeime noch bei Temperaturen über dem Gefrierpunkt eine eisähnliche Struktur an ihrer Oberfläche zurück, die sie befähigt, bereits bei geringen Unterschreitungen des Gefrierpunktes erneut wirksam zu werden. Diese Ansicht konnte auch von S. C. Mossop (33) experimentell bestätigt werden.

- b) Nebel in Auflösung.

Sehr hohe Werte der Gefrierkernkonzentration wurden jeweils an Tagen mit Nebel gefunden, in erster Linie dann, wenn sich dieser in Auflösung befand. Die Aktivierung der Kerne dürfte mit ihrer Abtrocknung zusammenhängen. H. Weickmann (mündlich geäußerte Meinung) konnte ähnliche Beobachtungen machen und vertrat die Meinung, daß

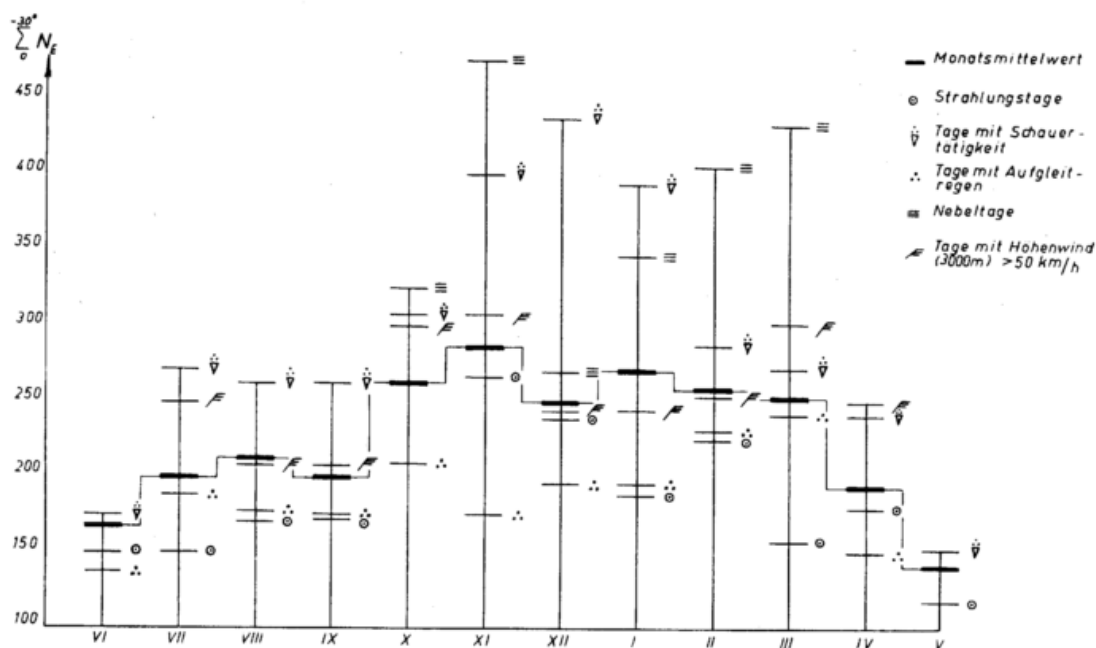


Abb. 4
Einfluß der Witterung auf die Gefrierkernkonzentration
in Frankfurt a. M., Juni 1956 — Mai 1957

nicht völlige Abtrocknung der Kerne, sondern ein Stadium, in dem noch eine mehrmolekulare Wasserschicht auf der Oberfläche der Kerne vorhanden ist, zu ihrer verstärkten Gefrieraktivität beitrage. Möglicherweise sind auch elektrische Erscheinungen an der Kernoberfläche, die nach jüngsten Versuchen von R. Mühleisen (34) beim Verdampfen von Tröpfchen auftreten, entscheidend.

c) Luftmassen polarer Herkunft.

In diesem Falle ist die hohe Zahl aktiver Gefrierkerne bedingt durch die Advektion zahlreicher trockener kristalliner Teilchen kontinentalen Ursprungs und durch die gleichzeitig im Frankfurter Raum stark herabgesetzte Konzentration industrieller Luftverunreinigungen durch die starke Durchmischung der Atmosphäre bei Polarlufteinbrüchen.

d) Hohe Windgeschwindigkeit in höheren Schichten.

Die starke Höhenströmung wirkt sich meist auch am Boden durch kräftigeren Wind aus und führt damit zu einem Abtransport der im Rhein-Main-Gebiet erzeugten Luftverunreinigungen, die die Aktivität der Gefrierkerne herabsetzen.

Die Gefrierkernkonzentration in der bodennahen Luftschicht ist dagegen bemerkenswert niedrig.

a) an Sommertagen mit Strahlungswetter.

Die Konvektion führt zu einem nach oben gerichteten Strom der Aerosolteilchen, während die aus Kontinuitätsgründen aus der Höhe absteigenden Luftpakete einen geringeren Aerosolgehalt haben.

b) an Tagen mit lang anhaltenden Aufgleitniederschlägen.

Diese führen zu einem Auswaschen der Kerne.

Diese an Hand der Abb. 4 beschriebenen Einflüsse der verschiedenen Witterungselemente auf die Konzentration der im Temperaturbereich zwischen 0°C und -30°C aktiven Gefrierkerne in der bodennahen Luftschicht werden in Abb. 5 zusammengefaßt.

Der Jahresmittelwert der 308 von Mai 1956 bis Mai 1957 in Frankfurt/M. durchgeführten Gefrierkernzählungen wurde = 100% gesetzt. Auf diese Angabe wurden die übrigen Mittelwerte bezogen, die sich auf die Tage beziehen, an denen die oben beschriebenen me-

teorologischen Ereignisse eingetreten waren. Man erkennt, daß an Tagen mit sich auflösendem Nebel, an Tagen mit Schauern und an Tagen mit starker Advektion frischer Luftmassen in der Höhe die Gefrierkernkonzentration überdurchschnittlich hoch war und 138 bzw. 127 und 109% des Jahresmittelwertes betrug.

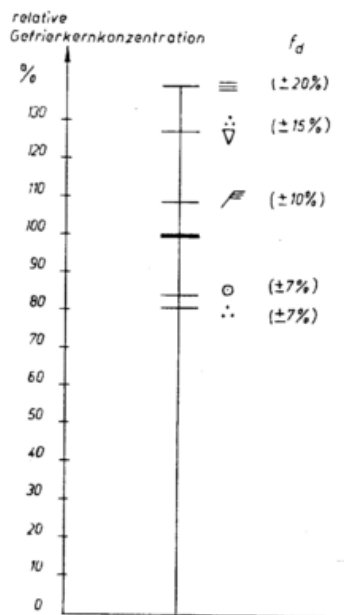


Abb. 5
Einfluß der Witterung auf die Gefrierkernkonzentration
in Frankfurt a. M., Jahresmittel 1956/57

Dagegen beträgt die Konzentration an Tagen mit Aufgleitregen nur 80% und an Tagen mit ungestörtem Strahlungswetter nur 84% des Jahresdurchschnittes. Die mittlere Streuung der Einzelwerte wurde ebenfalls berechnet und in Abb. 5 eingetragen. Man erkennt, daß die Ergebnisse durchaus überzufällig sind.

4.1.3. Vergleich der Frankfurter Meßreihe mit den Gefrierkernzählungen an weiteren Stationen

Die in den Abbildungen 4 und 5 dargestellten Ergebnisse zeigen deutlich die witterungsbedingten

Schwankungen des Gefrierkerngehaltes der Luft im Frankfurter Raum. Es war nun von Interesse zu untersuchen, wie sich der Einfluß der Witterung auf die Gefrierkernkonzentration an Orten auswirkt, die sich klimatisch sehr stark von Frankfurt unterscheiden.

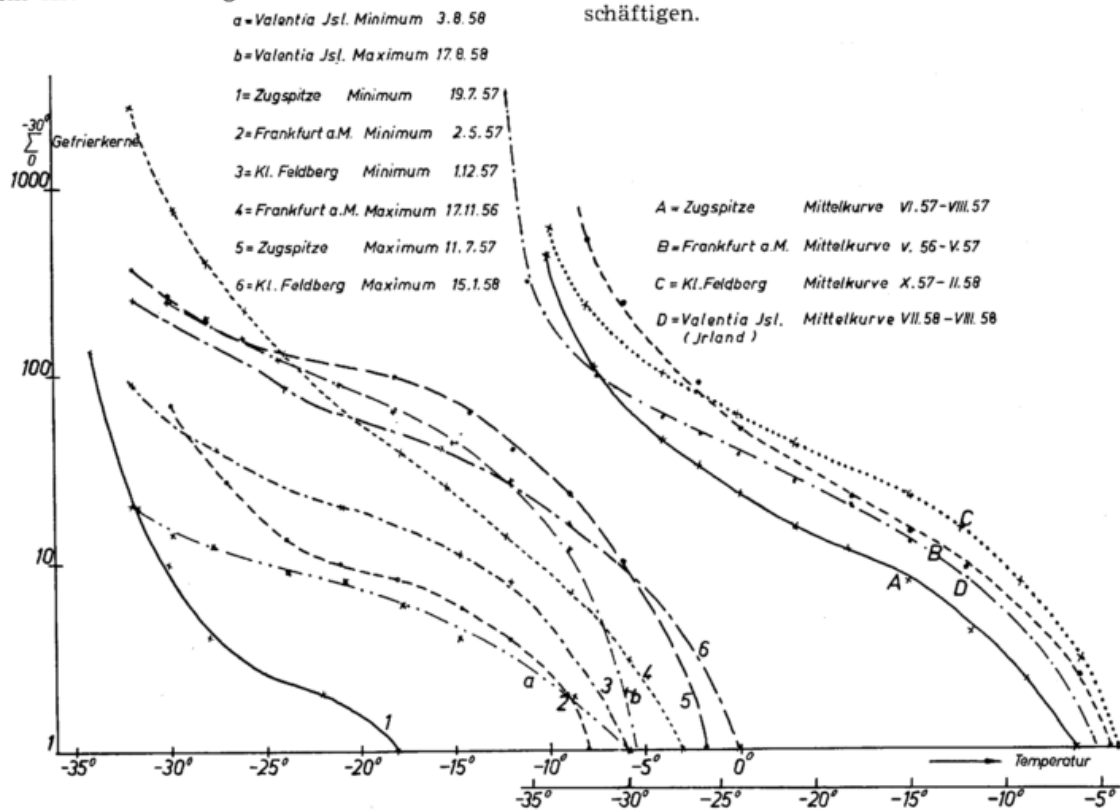
Zu diesem Zweck wurden, wie in der Einleitung bereits kurz erwähnt, außer in Frankfurt/M. auch Untersuchungen auf dem Zugspitzobservatorium in 3000 Meter Höhe von Juni — August 1957 durchgeführt. Die klimatischen Verhältnisse in dieser Höhe entsprechen weitgehend denjenigen in der freien Atmosphäre in einem Niveau, wo sich Wolken im allgemeinen bilden.

Weiterhin wurde von November 1957 bis Februar 1958 der Gefrierkerngehalt der Luft auf dem Taunusobservatorium Kleiner Feldberg, in 800 m Höhe und etwa 20 km Luftlinie von Frankfurt entfernt, bestimmt. Die Lage des Taunusobservatoriums ist dem Einfluß der Anreicherungen anthropogener und industrieller Aerosole in der Mainebene weitgehend entzogen, die Wetterlage ist jedoch meist mit der in Frankfurt herrschenden vergleichbar. Ein besonders günstiger Begleitumstand der Höhenlage des Taunusobservatoriums ist die Tatsache, daß der Kleiner Feldberg bei den im Winter in der Mainebene häufigen Inversionslagen zeitweise über, manchmal aber auch unterhalb der Inversion liegt. Während im ersten Fall die Inversion den Austausch und Transport der Luftverunreinigungen aus der Mainebene unterbindet, macht sich im zweiten Fall das dann besonders konzentrierte Industrieaerosol auch in Höhe des Taunuskammes bemerkbar, so daß seine Wirkung bei der Eiskeimbildung an diesem Meßort besonders gut studiert werden kann. Sowohl auf der Zugspitze wie auch auf dem Kleinen Feldberg wurde parallel mit den Gefrierkernen wiederum die Konzentration der atmosphärischen Kondensationskerne („große“ Kerne und Aitkenkerne getrennt) gemessen. Während des Aufenthaltes auf dem Kleinen Feldberg wurde zusätzlich die Kon-

zentration gewisser Spurengase in der Atmosphäre bestimmt, die ein empfindlicher Indikator für einen Luftaustausch mit der Mainebene sind.

In Ergänzung zu den Untersuchungen an den drei vorgenannten kontinentalen Meßplätzen konnte im Sommer 1958 in Zusammenarbeit mit Herrn Professor Dr. L. W. Pollak, dem Direktor der School of Cosmic Physics, Dublin, eine weitere Meßreihe an der irischen Westküste durchgeführt werden. Dort sollte die Gültigkeit der früheren Ergebnisse durch zusätzliche Messungen unter rein maritimen klimatischen Verhältnissen, jedoch bei Verwendung des gleichen Instrumentariums wie auf dem Kontinent, überprüft werden. In Sonderheit interessierte naturgemäß die Aktivität der Seesalzteilchen bei dem Gefrierprozeß in unterkühlten Wolken. Einzelheiten über dieses Unternehmen sind einem späteren Kapitel dieser Arbeit vorbehalten.

Einen zusammenfassenden Überblick über die Ergebnisse an den vier verschiedenen Meßstationen gibt die Abb. 6. In den rechten Teil der Darstellung sind die vier Summenkurven eingetragen, die die Mittelwerte der Gefrierkernkonzentration in Abhängigkeit von der Temperatur in der Kältekammer repräsentieren. Man erkennt, daß der Verlauf aller Kurven — in Abb. 6 in einem einfach-logarithmischen Koordinatensystem — ähnlich ist. Zunächst erfolgt ein etwas steilerer Anstieg, dann ein etwa lineares Zwischenstück (es ist zu beachten, daß eine Gerade in dieser Darstellung den Verlauf einer Exponentialfunktion wiedergibt) und schließlich bei Temperaturen unter -30°C bzw. -32°C ein sehr starker Anstieg der Zahl der Gefrierkerne. Diese starke Zunahme des Gefrierkerngehaltes der Luft bei Temperaturen unter -30°C ist charakteristisch für alle Messungen auf dem Kontinent, sie tritt jedoch in Valentia, der maritimen Meßstelle, nur in sehr abgeschwächter Form und meist erst unterhalb -34°C auf. Die Erklärung dieser Beobachtung wird uns im weiteren Verlauf der Arbeit noch näher beschäftigen.



Mittlere Gefrierkernkonzentration an verschiedenen Meßorten in Abhängigkeit von der Temperatur
Linke Seite: Maxima- und Minimalkurven
Rechte Seite: Durchschnittsverteilungen

Die ersten Eisteilchen werden im Durchschnitt in Frankfurt (Kurve B) und auf dem Kleinen Feldberg/Taunus (Kurve C) bei etwa -3° bis -4° C, auf der Zugspitze (Kurve A) und in Valentia (Kurve D) dagegen zwischen -5° C und -7° C festgestellt. Betrachtet man die Summe der bis einschließlich -30° C aktiven Gefrierkerne, so ist diese in Frankfurt am höchsten, es folgt der Kleine Feldberg und danach Zugspitze und Valentia. Der Gefrierkerngehalt der Luft auf der Zugspitze entspricht im Temperaturbereich bis -30° C dem in Valentia angetroffenen. Dies ist leicht daran zu erkennen, daß sich Kurve A und D bei -30° C kreuzen. Große Bedeutung darf auch dem Ergebnis beigemessen werden, daß die Gefrierkernkonzentration im Temperaturbereich 0° C bis -20° C — also bei den ganz besonders aktiven Gefrierkernen — auf dem Kleinen Feldberg absolut höher ist als in Frankfurt. In Frankfurt wird ein großer Teil der Kerne erst bei tieferen Temperaturen als -20° C für die Eisteilchenbildung aktiviert. Man kann von einer Verzögerung der Eiskeimbildung gegenüber dem Feldberg sprechen.

Im linken Teil der Abb. 6 sind diejenigen Messungen in Abhängigkeit von der Temperatur eingetragen, die als Extremwerte an den verschiedenen Meßorten beobachtet wurden. Dabei wurde für die Festlegung des „Extremwertes“ ebenfalls der Temperaturbereich bis -30° C herangezogen. Aus diesen Kurven erkennt man die Größe des Schwankungsbereiches der Konzentration der Gefrierkerne in der Atmosphäre und damit auch die unterschiedliche „Qualität“ der Kerne hinsichtlich ihrer Wirkung bei der Eisbildung. Die Temperatur des Einsetzens des Gefriervorganges, d. h. der Beobachtung der ersten Eisteilchen in der unterkühlten Wolke schwankt zwischen 0° und -18° C, die Konzentration bei -30° C etwa um den Faktor 100, wenn man das Minimum der Zugspitze mit dem Maximum in Frankfurt vergleicht. Wiederum wird die höhere Zahl besonders aktiver Gefrierkerne auf dem Feldberg, auf der Zugspitze und in Valentia gefunden — alles Stationen, wo künstliche Luftverunreinigungen weitgehend ausgeschlossen sind — und nicht in Frankfurt, obwohl hier das Angebot an Aerosolteilchen wesentlich größer ist. Der Gesamtverlauf der Summenkurven der Gefrierkerne in Abhängigkeit von der Temperatur entspricht in guter Näherung den bereits früher von anderen Autoren (W. Rau (29), W. Finden (17)) veröffentlichten Messungen.

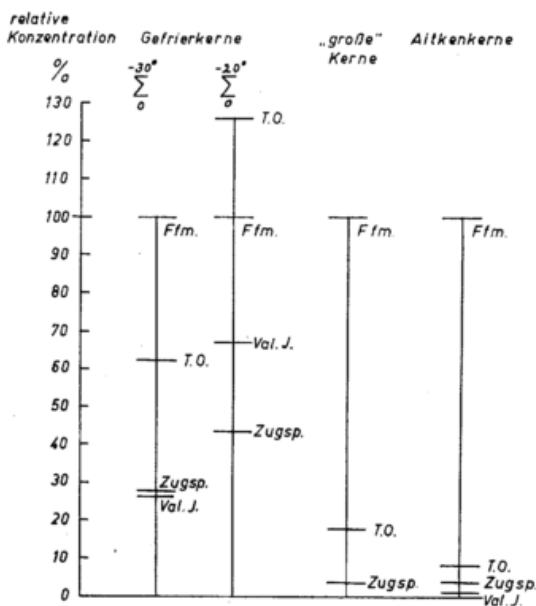


Abb. 7

Vergleich der Konzentration der Gefrier- und der Kondensationskerne an verschiedenen Meßorten

Die Ergebnisse der Abb. 6 sind in der Abb. 7 nochmals unter einem anderen Gesichtspunkt zusammengestellt, wobei den Werten der Gefrierkerne die der gleichzeitig gemessenen Kondensationskerne gegenübergestellt wurden. Hier eröffnet sich ein interessanter Einblick. Wenn man, wie es in Abb. 7 geschehen ist, die in Frankfurt gefundenen durchschnittlichen Werte = 100% setzt und die Mittelwerte der anderen Stationen auf diesen Wert bezieht, so erkennt man, daß die Gefrierkernkonzentration im Temperaturbereich 0° bis -30° C auf dem Kleinen Feldberg 63%, auf der Zugspitze 28% und in Valentia 27% des Frankfurter Wertes beträgt. Im Temperaturbereich 0° bis -20° C ist dagegen die mittlere Konzentration auf dem Kleinen Feldberg mit 125% höher als in Frankfurt. Für Valentia ergeben sich 65% und für die Zugspitze 44%. Es mögen unter Umständen witterungsbedingte Einflüsse in geringem Maße das Ergebnis beeinflussen, da die Meßperiode auf dem Kleinen Feldberg nur 3 Monate, auf der Zugspitze 6 Wochen und in Valentia 4 Wochen dauerte, wodurch die Untersuchungen nicht bei allen denkbaren Wetterlagen durchgeführt werden konnten. Allein, das durchschnittliche Ergebnis sollte sich nicht grundsätzlich ändern.

Die Verteilung der Aerosolkonzentration an den vier Stationen weicht wesentlich von der der Gefrierkernkonzentration ab. Bei den „großen“ Kernen (r über 0.2μ) beträgt die Konzentration auf dem Kleinen Feldberg 18%, auf der Zugspitze sogar nur 4% der in Frankfurt gemessenen, während bei den kleinen Aitkenkernen die entsprechenden Werte 9% und 4% betragen. Während des Aufenthaltes in Valentia an der irischen Westküste wurde anstelle der Messungen der „großen“ Kerne der Seesalzgehalt der Luft von A. L. Metnieks bestimmt. Die Aitkenkernzahl betrug in Valentia durchschnittlich 2% der in Frankfurt/M. Die Gegenüberstellung der Gefrierkerne und der Kondensationskerne zeigt, daß in der Höhe der Zugspitze und bereits in Feldberghöhe der Anteil der Aerosolteilchen, die aktiv die Eiskeimbildung bewirken, ganz beträchtlich höher ist als in der bodennahen Luftschicht des Rhein-Maintales.

Die von uns gemessene vertikale Abnahme der Teilchenzahl des atmosphärischen Aerosols befindet sich in guter Übereinstimmung mit früheren Untersuchungen. Nicht nur der Verlauf, sondern auch die Absolutwerte unserer Messungen bestätigen sehr gut die Ergebnisse, die bei Flugzeugaufstiegen in 3000 m Höhe in der freien Atmosphäre gewonnen wurden. Derartige Meßflüge mit Zählungen der „großen“ Kerne hat in den Jahren 1942 — 1944 K. Dreisbach (35) in Oberbayern unternommen, während über Vertikalverteilungen der Aitkenkerne in jüngster Zeit von H. Weickmann (36) berichtet wird. R. Reiter (37) hat in den Jahren 1955 und 1956 im Rahmen luftelektrischer Untersuchungen auf dem Zugspitzplatt (300 m unterhalb des Gipfels) Zählungen der Aitkenkerne ausgeführt und dabei Werte gefunden, die mit den unseren durchaus in Einklang stehen.

Die in diesem Kapitel vorgelegten Ergebnisse bestätigen die früheren Messungen anderer Autoren einmal in Bezug auf die starke Abnahme der Kondensationskerne mit der Höhe und dann zeigen sie eindeutig, daß die Zahl der Gefrierkerne — vor allem der sehr aktiven — mit zunehmender Höhe wesentlich langsamer abnimmt als die Zahl der Aerosolteilchen. Das heißt aber, daß die den Phasenübergang zur Eisphase begünstigenden Eigenschaften der Kerne sich mit der Höhe verstärken. Bei den in dieser Arbeit beschriebenen Untersuchungen kann der Temperatur kein maßgebender Einfluß zukommen, da alle Messungen, auch die auf der Zugspitze, bei Außentemperaturen oberhalb -10° durchgeführt wurden.

Diese Feststellung führt zu folgenden Überlegungen:

- 1) Die industriellen und anthropogenen Aerosole, die ein Bestandteil des Aerosols der bodennahen Luftschicht sind, können im allgemeinen als schlechte Gefrierkerne angesehen werden.
- 2) Die hohe Konzentration gewisser Spurengase im Frankfurter Raum (z. B. NH_3 , SO_2 , NO_2) führt zu einer Vergiftung der Oberfläche der Kerne und damit zu einer Inaktivierung. Die Eiskeimbildung setzt dadurch erst bei tieferen Temperaturen ein. In der freien Atmosphäre ist die Konzentration dieser Gase stark herabgesetzt.
- 3) Die tiefe Lufttemperatur in größerer Höhe begünstigt die Eiskeimbildung in folgender Weise. Sie ermöglicht einem Kern, der bereits einmal als Gefrierkern gewirkt hatte, über einen langen Zeitraum eine oft nur wenige Moleküllagen dicke Eisschicht an seiner Oberfläche zu konservieren, so daß er bereits bei Eissättigung als „echter Sublimationskern“ wirken kann. Auf den die Eiskeimbildung begünstigenden Einfluß tiefer Temperaturen dürfte folgende Beobachtung zurückzuführen sein. In einer 1954 erschienenen Arbeit berichteten Smith und Heffernan (24) erstmals über Gefrierkernzählungen aus der freien Atmosphäre. Ihre Ergebnisse haben allgemein Erstaunen ausgelöst, da die Verfasser unerwartet hohe Gefrierkernkonzentrationen in Höhen von etwa 5000 m gefunden hatten. In dieser Höhe herrschen Temperaturen um -30°C . Man hatte auf Grund der Kenntnis der Vertikalverteilung der Kondensationskerne nicht erwartet, ein derart großes Angebot aktiver Gefrierkerne in großen Höhen anzutreffen. Der Wert der Angaben von Smith und Heffernan wird allerdings etwas eingeschränkt, da sie versäumt hatten, gleichzeitige Vergleichsmessungen der Kondensationskerne durchzuführen und auch die Gefrierkerne nicht am Boden oder in Abhängigkeit von der Höhe zu zählen, woraus man eine genaue vertikale Verteilungskurve hätte gewinnen können.

4.1.4. Über die zeitliche Änderung der Gefrierkernkonzentration

Die große Schwankungsbreite zwischen den Maximum- und Minimumverteilungen des Gefrierkerngehaltes an den jeweiligen Meßstellen (siehe Abb. 6) und der beträchtliche Einfluß meteorologischer Faktoren auf die Zahl aktiver Gefrierkerne, wie er aus Abb. 4 hervorgeht, lassen nicht nur eine langperiodische Änderung der Gefrierkernzahl — den auf S. 9 behandelten Jahresgang — sondern auch eine stärkere Schwankung von Tag zu Tag erwarten. Dies wurde auch an allen vier Meßstellen beobachtet. Am Beispiel der im Sommer 1957 auf dem Gipfel der Zugspitze vorgenommenen Messungen soll in Abb. 8 ein kurzer Überblick über die unperiodischen täglichen Schwankungen der Gefrierkernkonzentrationen gegeben werden.

Man sieht in Abb. 8, daß die Zahl der im Temperaturbereich zwischen 0° und -30°C ansprechenden Gefrierkerne etwa im Verhältnis 1:7 schwankt, ein ähnlicher Schwankungsbereich wird auch von den „großen“ Kernen eingenommen. Man erkennt weiterhin, daß der Verlauf der Änderung der Konzentration der Gefrierkerne und der „großen“ Kerne einen gewissen Zusammenhang zeigt, wogegen die Schwankungen der Aitkenkerne offensichtlich unabhängig hiervon verlaufen. Häufig verlaufen auf der Zugspitze Gefrierkernkonzentration und Aitkenkernkonzentration sogar invers zueinander. Diese Feststellung ist für alle drei kontinentalen Stationen gültig, nicht jedoch für die Messungen auf der Insel Valentia. Die Schwankungen der Gefrierkernkonzentration ebenso wie die der anderen Aerosolkomponenten können nicht als einfache statistische Verteilung angesehen werden, sondern werden vielmehr durch die Wetterbedingungen und die Luftmassenherkunft gesteuert. Im unteren Teil der Abb. 8 sind die Symbole für das zur Zeit der Messung herrschende Wetter eingetragen. Die nach oben zeigenden Pfeile an verschiedenen Tagen bedeuten, daß Konvektion geherrscht hat, die meistens einen Vertikaltransport von Aerosolteilchen aus der Niederung des Tales von Garmisch-Partenkirchen bis in Gipfelhöhe verursachte. Dieser vertikale Teilchenstrom

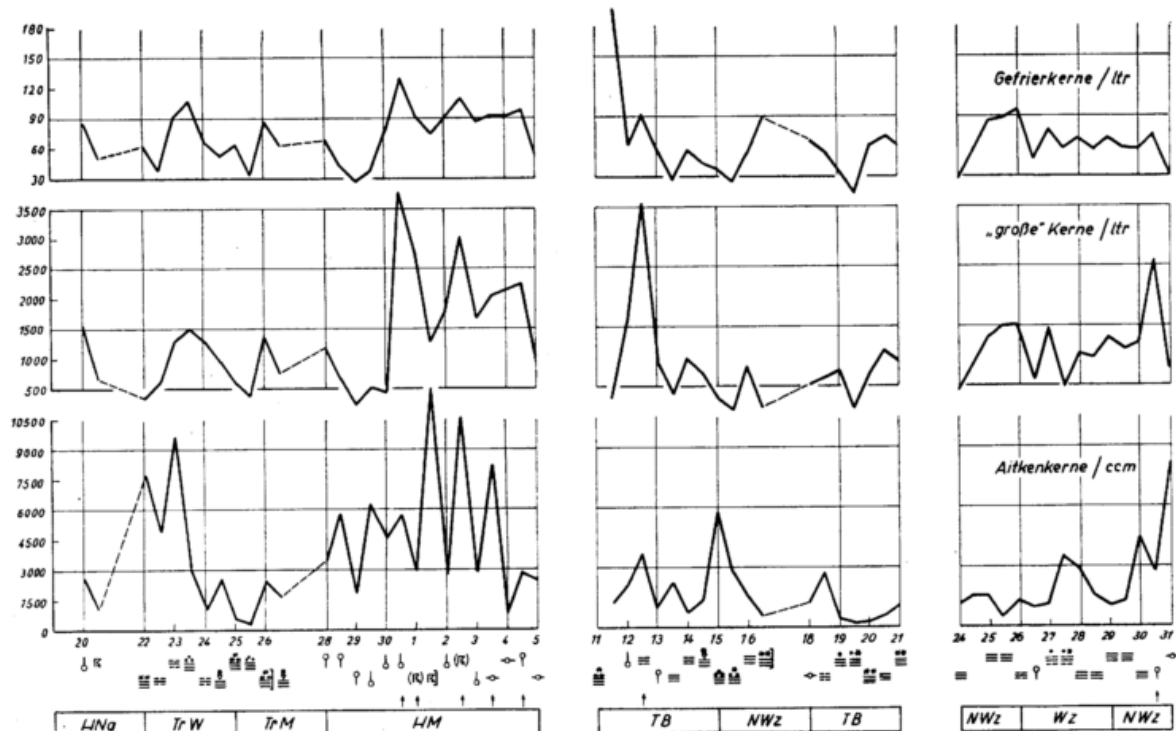


Abb. 8
Übersicht über die Messungen auf der Zugspitze,
Juni — Juli 1957

von unten hebt sich deutlich in dem Anstieg der Aitkenkernzahl, abgeschwächt auch bei den „großen“ Kernen und den Gefrierkernen ab. An jedem Tag wurden auf der Zugspitze mindestens zwei Messungen der verschiedenen Komponenten vorgenommen, an mehreren ausgewählten Tagen bis zu acht, die aber der Übersichtlichkeit halber nicht alle in Abb. 8 eingetragen wurden. Schließlich wurden noch die Großwetterlagen vermerkt, die in Mitteleuropa während des Zeitraumes Juni—Juli 1957 herrschten. Sie wurden den vom Deutschen Wetterdienst herausgegebenen Monatsberichten „Die Großwetterlagen Mitteleuropas“ entnommen. Es bedeuten: HNa = Hoch über Nordeuropa, in Mitteleuropa antizyklonal, TrW = Troglage über Westeuropa, TrM = Troglage über Mitteleuropa, HM = Hochdruckkern über Mitteleuropa, TB = Tief über den Britischen Inseln, NWz = Nordwestlage, in Mitteleuropa zyklonal, Wz = Westwetterlage, in Mitteleuropa zyklonal. Wie zu erwarten, läßt sich jedoch kein besonders charakteristischer Einfluß der Großwetterlage auf die Gefrierkernzahl feststellen. Die im Verlauf der HM-Lage erhöhte Aerosolkonzentration ist lokal bedingt und durch die starke Konvektion während der Hitzeperiode Ende Juni—Anfang Juli 1957 zu erklären.

Bemerkenswert ist schließlich noch das Ergebnis der Messung am 11. 7. 57 nachmittags, als eine sehr hohe Gefrierkernzahl bei sehr niedriger Aerosolkonzentration gefunden wurde. Diese kommt dadurch zustande, daß die Messung bei Temperaturen unter Null Grad und bei heftigem Schneefall vorgenommen wurde, wodurch möglicherweise einige Eisteilchen in die Kältekammer eingebracht sind, die dann als Sublimationskerne wirken konnten. Dieser Vorgang entspricht dem in der Atmosphäre häufig zu beobachtenden Impfen von Wasserwolken durch ausfallende Eisteilchen aus höheren Eisschichten (Bergeron-Effekt).

4.1.5. Zusammenhang zwischen Gefrierkernkonzentration und Luftmasse

Eine Beziehung zwischen Herkunft der Luftmasse und Konzentration der in ihr enthaltenen Gefrierkerne konnte bereits von W. R a u (16) nicht nur bei Extremfällen, sondern auch im Mittelwert aller Fälle nachgewiesen werden. R a u fand, daß maritim-subtropische Luft am wenigsten, kontinental-polare Luft am meisten Gefrierkerne enthält. Nach den Worten R a u's „liegen die übrigen Luftmassen dazwischen, wie es auch bezüglich ihrer sonstigen Eigenschaften der Fall ist. Eine Ausnahme macht nur die selten angetroffene kontinentale Subtropikluft mit sehr hohem Gefrierkerngehalt“.

Die im Sommer 1957 auf der Zugspitze gewonnenen Meßergebnisse wurden in entsprechender Weise auf einen Zusammenhang mit der Luftmasse untersucht, wobei die Definition der Luftmasse dem täglichen Bericht des Wetteramtes München entnommen wurde. Als ein Maß für die „Qualität“ der in der betreffenden Luftmasse vorhandenen Gefrierkerne wurde der Quotient

$$\frac{\text{Zahl der „großen“ Kondensationskerne}}{\text{Zahl der oberhalb } -30^{\circ}\text{C aktiven Gefrierkerne}} = \frac{\sum N_K}{\sum_{-30}^0 N_E}$$

gebildet, der im folgenden Abschnitt als „Aktivitätsmaß“ bezeichnet wird. Wie sich im Verlauf der Untersuchungen herausstellte, ist nämlich nicht die Absolutzahl der anwesenden Gefrierkerne eine eindeutige Zustandsgröße. Deren Wirksamkeit wird besser durch das oben angegebene Verhältnis charakterisiert, wobei als späteres Ergebnis dieser Arbeit vorweggenommen sei, daß vorwiegend die „großen“ Kerne als Gefrier-

kerne aktiviert werden. Hohe Zahlenwerte des „Aktivitätsmaßes“ bedeuten also verhältnismäßig schlechte „Qualität“ der Gefrierkerne und umgekehrt.

Die Auswertung der Messungen auf der Zugspitze ist in folgender Tabelle zusammengefaßt:

Luftmasse	„Aktivitätsmaß“	Konzentration der „großen“ Kerne	Aitkenkerne	Zahl der Fälle
polar-maritim	13	730/l	1600/ccm	(18)
maritim (frisch)	16	1080	2500	(20)
maritim (gealtert)	25	1500	2600	(10)
tropisch	22	1900	4500	(10)
maritim-tropisch	14	550	3400	(7)

Eine entsprechende Auswertung wurde für die im Winter 1957/58 auf dem Kleinen Feldberg/Taunus vorgenommene Meßserie durchgeführt, die nachstehende Tabelle zeigt. Es muß hierzu bemerkt werden, daß den Luftmassenbezeichnungen für den Kleinen Feldberg die Übersicht des Zentralamtes des Deutschen Wetterdienstes zugrundeliegt. Es bedeuten:

mPa = arktische Polarluft, Herkunft: östlich von Island, mP = maritime Polarluft, Herkunft: meist westlich Island, mPt = gemäßigte Polarluft, Herkunft: Polargebiet, Zugbahn: über den Atlantik südlich 50° Br., mT = maritime Tropikluft, Herkunft: Azorenggebiet, mTp = maritime gemäßigte Tropikluft, Herkunftsgebiet: Nordatlantik.

Luftmasse	„Aktivitätsmaß“	Konzentration der „großen“ Kerne	Aitkenkerne	Zahl der Fälle
mPa	28	5600/l	6650/ccm	(10)
mPt	34	3600	5300	(19)
mP	44	6700	5200	(23)
mT	47	5100	7400	(5)
mTp	67	8400	12100	(6)

Es ist bei der Beurteilung der beiden Übersichten zu bedenken, daß der Weg der Luftmasse meist nicht direkt vom Ursprungsort nach Mitteleuropa führt, daß die Driftgeschwindigkeit sehr starken Schwankungen unterliegt, und daß sich daher die charakteristischen Eigenschaften der Luftmasse mit zunehmender Entfernung vom Ursprungsort mehr und mehr verwischen.

Die Zuordnung der Meßergebnisse der Gefrierkerne von Zugspitze und Kleinem Feldberg zur Luftmasse am Ort stimmen mit den Angaben R a u's gut überein, mit Ausnahme der auf der Zugspitze gefundenen hohen Aktivität der Gefrierkerne in der maritimen Tropikluft. Es muß aber berücksichtigt werden, daß es sich bei den angeführten 7 Fällen um Messungen an drei aufeinanderfolgenden Tagen gehandelt hat, so daß hieraus kein weitgehender Schluß auf das allgemeine Verhalten der Gefrierkerne in maritimer Tropikluft zulässig ist, insbesondere, da sich die Messungen auf dem Kleinen Feldberg besser in das zu erwartende Bild einfügen. Grundsätzlich ist die Aktivität der Gefrierkerne auf der Zugspitze („Aktivitätsmaß“ zwischen 13 und 25) höher als auf dem Kleinen Feldberg („Aktivitätsmaß“ zwischen 28 und 67), was wiederum auf die mit der Höhe zunehmende Wirksamkeit der Gefrierkerne hinweist, die bereits auf Seite 13 hervorgehoben wurde. Hinsichtlich der Zahl der „großen“ und der Aitkenkerne ist aus den Tabellen für Zugspitze und Kl. Feldberg ebenfalls ein Anstieg von den Luftmassen polarer zu tropischer Herkunft festzustellen. Dieses Ergebnis wird durch die älteren Arbeiten von M. R ö t s c h k e und E. E f f e n b e r g e r ebenfalls bestätigt. So entnimmt man z. B. der Arbeit R ö t s c h k e s folgende Zusammenstellung:

Luftmasse	Zahl der „großen“ Kerne/l
maritim-arktische Kaltluft	1000 — 4000
maritim-polare Kaltluft	6000 — 8000
maritim-polare Warmluft	10000 — 20000
Tropikluft	15000 — 30000
Mischluft	20000 — 40000

Die Messungen R ö t s c h k e's wurden in den Jahren 1935/36 am Observatorium Collnberg bei Leipzig vorgenommen.

Für die Frankfurter Messungen der Gefrierkerne und Kondensationskerne während der Jahre 1956/57 erbrachte die Luftmassenanalyse keinen klaren Zusammenhang, weder mit der Aktivität der Gefrierkerne noch mit der Konzentration der „großen“ Kerne oder der Aitkenkerne. Diese Tatsache ist nicht verwunderlich, da die bodennahe Luftschicht beim Überstreichen von Städten und Industriegebieten mit Aerosolpartikeln, die bei technischen Prozessen und Verbrennungsvorgängen entstehen, angereichert wird, wodurch ihr ursprünglicher Charakter in Bezug auf den Aerosolgehalt verwischt wird. Die Anreicherungen anthropogener Aerosole treten in Niederungen wie dem Rhein-Main-Becken infolge geringer Windgeschwindigkeiten und häufig verminderter Austauschmöglichkeiten noch stärker in den Vordergrund, so daß sie hier fast zu einer Dauererscheinung werden.

4.1.6. Der „tägliche Gang“ der Gefrierkernkonzentration

Die technischen Einrichtungen der oben beschriebenen Kältekammer gestatten es, im Verlauf eines Tages in einem Abstand von etwa 3 Std. Wiederholungen der Gefrierkernzählungen durchzuführen. Diese zeitliche Häufung der Messungen ermöglichte erstmalig die interessante Beobachtung, daß die Gefrierkernkonzentration im Laufe von 24 Stunden keineswegs konstant bleibt, sondern eine ausgeprägte tagesperiodische Schwankung aufweist.

Aus früheren Untersuchungen war das Auftreten eines „Tagesganges“ bei den Kondensationskernen bekannt. Die periodischen Schwankungen der Zahl der „großen“ Kerne wurden zuerst von M. R ö t s c h k e (30) entdeckt und untersucht, während E. Effenberger (32) in Fortführung der Arbeiten R ö t s c h k e's fand, daß der tägliche Gang der Aitkenkerne und der „großen“ Kerne fast invers zueinander verläuft. Während die Maximalkonzentration der „großen“ Kerne in der bodennahen Luftschicht in die späten Nachtstunden, meist kurz vor Sonnenaufgang, fällt, tritt die Konzentrationspitze bei den Aitkenkernen in den Vormittagsstunden, meist zwischen 9 und 12 Uhr auf. Die meßtechnischen Fortschritte der letzten Jahre, vor allem die Entwicklung des automatischen Kernzählers durch F. Verzar (38) erlaubten die mühevolle Durchführung von Reihenuntersuchungen. M. Bider und F. Verzar (39) haben im Verlauf von Serienmessungen, die kontinuierlich während mehrerer Monate an verschiedenen Orten in der Schweiz durchgeführt wurden, dem täglichen Gang der Aitkenkerne besondere Beachtung geschenkt, vor allem dem plötzlichen Anstieg der Aitkenkernzahl in den frühen Morgenstunden nach Sonnenaufgang, dessen vollständige Erklärung jedoch noch aussteht.

Soweit die eigenen Messungen die Konzentrationschwankungen der Aitkenkerne und der „großen“ Kerne im Ablauf des Tages betreffen, stehen sie in guter Übereinstimmung mit den hier zitierten Autoren. Über eine Tagesschwankung der Gefrierkernzahl wurde bisher von anderer Seite noch nicht berichtet.

Das Auftreten eines starken Tagesganges war eine regelmäßige Begleiterscheinung aller windschwachen Strahlungstage. Darüber hinaus wird er an allen Tagen mit weitgehend ungestörtem Witterungsablauf, wenn auch in abgeschwächter Form, beobachtet. Der tägliche Gang der Gefrierkernkonzentration wurde systematisch an vielen Tagen untersucht und soll zunächst an drei Beispielen der Frankfurter Messungen demonstriert werden.

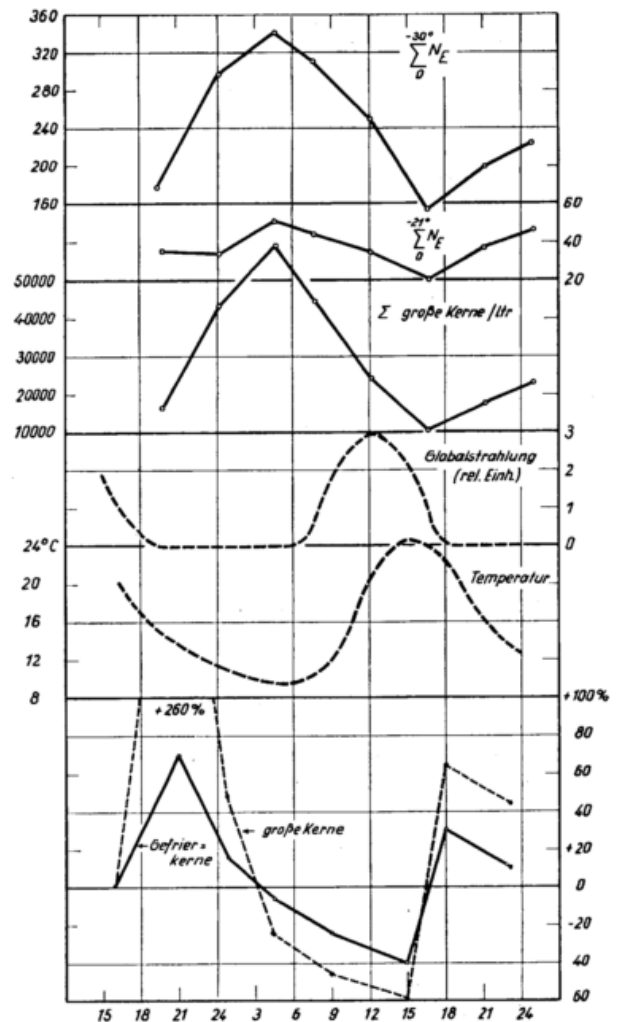


Abb. 9
Täglicher Gang der Gefrierkernkonzentration bei ungestörtem Strahlungswetter (20./21. 9. 1956)

Die Abb. 9 zeigt den Verlauf an einem ungestörten windstillen Strahlungstag. Die Anreicherung industrieller Aerosole in der Atmosphäre aus Hausbrand war zu dieser Zeit noch gering. Neben dem Gang des Kerngehaltes der Luft wurden einige weitere meteorologische Elemente (Temperatur und die mit einem Sternpyranometer nach Linke gemessene Globalstrahlung) in die Abbildung eingetragen, um den Witterungscharakter des betreffenden Tages zu charakterisieren. Die Konzentration der Gefrierkerne verläuft mit den „großen“ Kernen weitgehend parallel. Die Maximalwerte wurden nach Mitternacht erreicht, das Minimum am frühen Nachmittag zur Zeit des stärksten Vertikalaustausches, wenn die kernreiche Luft in höhere Schichten der Atmosphäre transportiert wird, wobei aus Kontinuitätsgründen kernärmere aus größerer Höhe in Bodennähe verfrachtet wird. Im unteren Teil der Abb. 9 wurde die relative Schwankung der Konzentration mit der Zeit ($\Delta c / \Delta t$) eingetragen, die ein recht empfindlicher Indikator dafür ist, ob eine Beziehung zwischen zwei Größen existiert. Auch hier zeigt

sich eine weitgehende Übereinstimmung des Verlaufes der beiden Kurvenzüge.

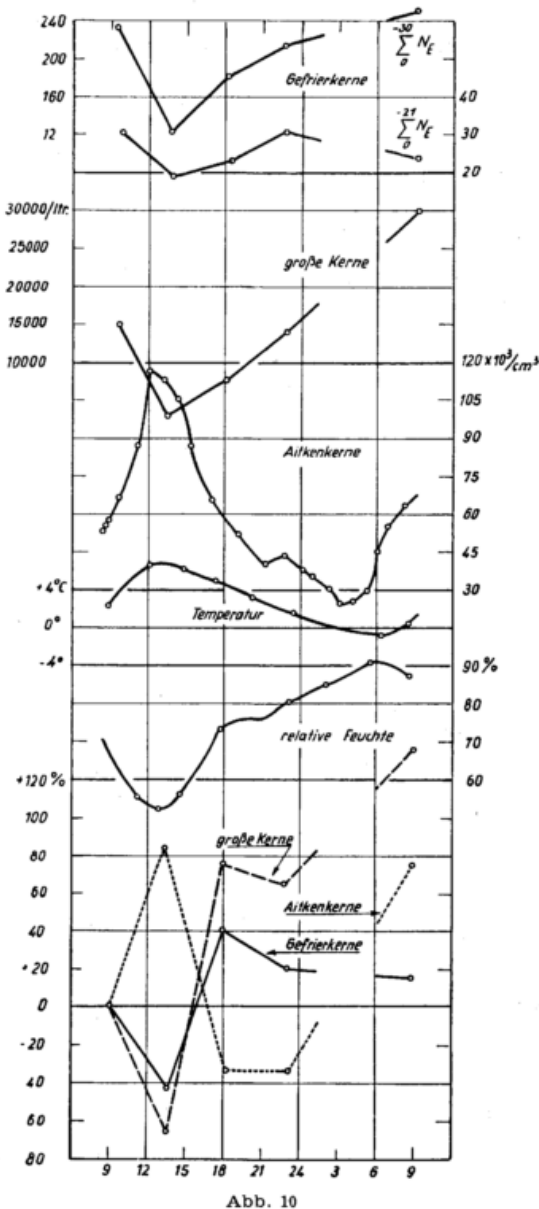


Abb. 10
Tagesgang des Aerosols und der Gefrierkerne am 18./19. 2. 1957

Der Abb. 10 entnimmt man, daß die Amplitude der Schwankung an einem Strahlungstag im Winter kleiner ist. Neben der Gefrierkernkonzentration und der Zahl der „großen“ Kerne ist in diese Darstellung zur Vervollständigung auch der Verlauf des Aitkenkerngehaltes der Luft eingetragen, wie er sich aus Messungen mit einem photoelektrischen Kernzähler nach Verzar ergibt. Wiederum wird der enge Zusammenhang zwischen Gefrierkernkonzentration und Konzentration der „großen“ Kerne deutlich und ebenso klar ist der Abbildung zu entnehmen, daß ein solcher mit den Aitkenkernen nicht vorhanden ist. Da die Gefrierkernzählungen während der Nachtstunden ausgesetzt wurden, ist anzunehmen, daß bei der Messung um 23 Uhr das Maximum der Konzentration noch nicht erreicht war. Die Darstellung der relativen Konzentrationsschwankung zeigt eindrucksvoll, daß die Konzentrationsänderung der Aitkenkerne (Kurve 3) praktisch invers zu der der beiden anderen Komponenten verläuft. In guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen der oben zitierten Autoren wurde bei unseren Frankfurter Messungen der Aitkenkernzahl das Maximum um etwa 12 Uhr, das Minimum dagegen in den

Nachtstunden gefunden. Die Angaben der Aitkenkernkonzentration sind Stundenmittelwerte, gebildet aus den in Abständen von 10 Minuten registrierten Aitkenkernzahlen.

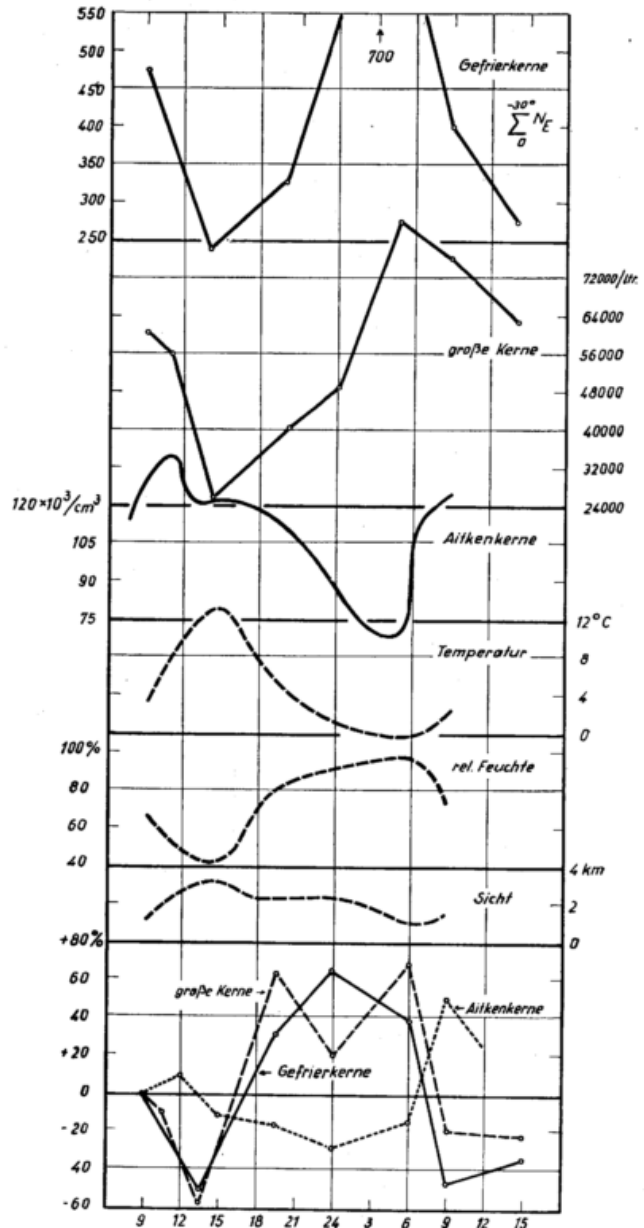


Abb. 11
Tagesgang des Aerosols und der Gefrierkerne am 4./5. 3. 1957

Ein drittes Beispiel der Untersuchungen des „täglichen Ganges“ ist in Abb. 11 wiedergegeben. Die Messungen am 4./5. März 1957 wurden wiederum bei sonnigem, wenn auch dunstigem Wetter (Sicht meist unter 2 km!) vorgenommen. Sie bestätigen im wesentlichen die bisherigen Ausführungen und zeigen ebenfalls den parallelen Gang der zwischen 0° und -30° C aktiven Gefrierkerne und der „großen“ Kerne sowie den hierzu inversen Gang der Aitkenkernkonzentration. Wenn der Gehalt der Luft an Aitkenkernen im Ansteigen begriffen ist, nimmt die Zahl der „großen“ Kerne und der Gefrierkerne ab und umgekehrt.

Nicht immer jedoch läuft die tagesperiodische Schwankung an Strahlungstagen mit dieser Regelmäßigkeit ab. Eine Abweichung wurde beispielsweise am 17./18. September 1956 beobachtet. An diesem Tag wurde der an Strahlungstagen übliche „tägliche Gang“ vollkommen unterdrückt. Das Einfließen kälterer Luft-

massen aus NE, die sich ohne Niederschlag und Bewölkungsaufzug im Rhein-Main-Gebiet durchsetzten, hatten einen gleichmäßigen und stetigen Anstieg der Gefrierkerne, aber auch der Konzentration der „großen“ Kerne zur Folge, der den ganzen Tag über anhielt. An diesem Konzentrationsanstieg sind vermutlich das Auffrischen des Windes und die Advektion kontinentaler Aerosole beteiligt.

Zusammenfassend kann über die Frankfurter Messungen des täglichen Ganges folgendes gesagt werden: Die hier wiedergegebenen und zahlreiche weitere Beispiele zeigen eindeutig, daß die Konzentration der im Temperaturbereich zwischen 0° und -30° C aktiv werdenden Gefrierkerne eine einfache periodische Schwan-

kung mit einem Maximum während der Nachtstunden und einem Minimum am frühen Nachmittag aufweist, die dem aus der Literatur bekannten „täglichen Gang“ der „großen“ Kondensationskerne parallel läuft. Dieser wird durch den Einfluß der Konvektion bei Tag und des Absinkens der Teilchen während der Nacht — auch „Rückkehrkonvektion“ genannt — erklärt. Die Amplitude des täglichen Ganges ist bei Gefrierkernen und „großen“ Kernen am ausgeprägtesten an wind-schwachen Strahlungstagen im Sommer. Der tägliche Gang der „Aitkenkerne“ zeigt oft eine inverse Beziehung zu dem der beiden anderen Komponenten. Die Differenzenquotienten mit der Zeit verlaufen bei Gefrierkernen und „großen“ Kernen stets gleichsinnig, was ebenfalls auf eine positive Korrelation hinweist.

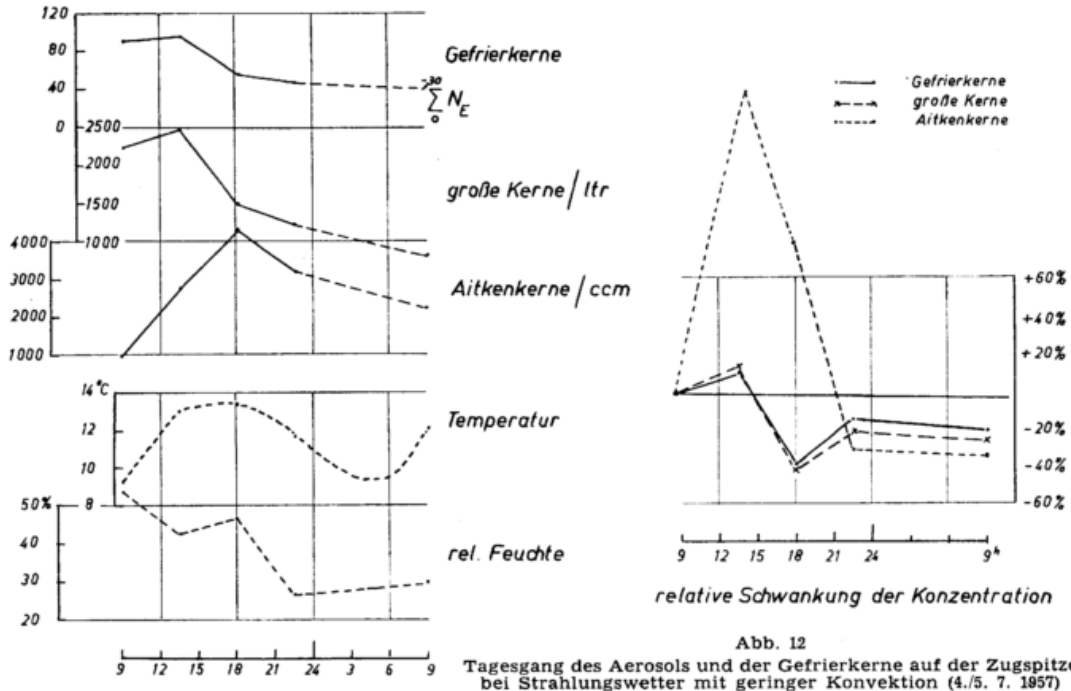


Abb. 12
Tagesgang des Aerosols und der Gefrierkerne auf der Zugspitze bei Strahlungswetter mit geringer Konvektion (4./5. 7. 1957)

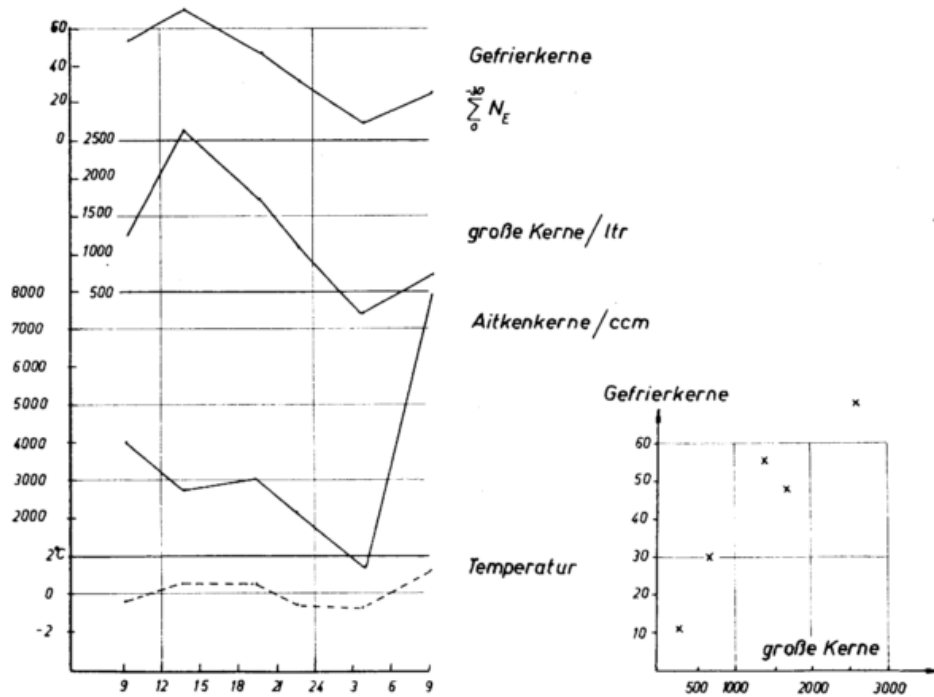


Abb. 13
Tagesgang des Aerosols und der Gefrierkerne auf der Zugspitze bei Hochdruckwetter — Gipfel oberhalb der Inversion (30./31. 7. 1957)

Die Messungen des „täglichen Ganges“ auf der Zugspitze fügen sich sinnvoll in das bisher gewonnene Bild ein, wie die Abbildungen 12 und 13 zeigen. Abb. 12 ist die Darstellung eines windschwachen wolkenlosen Strahlungstages mit Sichtweiten über 120 km. Man sieht, daß auch in einer Höhe von 3 000 m der tägliche Gang der Gefrierkerne und der „großen“ Kerne parallel verläuft, wogegen der der Aitkenkerne, wenngleich nicht invers, so doch in der Amplitude um Stunden verschoben ist. Die relative Schwankung der Gefrierkerne und der „großen“ Kerne zeigt eine ausgezeichnete Übereinstimmung. Die Amplitude ist schwächer ausgeprägt als bei den Frankfurter Messungen, was in Einklang mit der allgemeinen Beobachtung steht, daß mit zunehmender Höhe die Amplitude periodischer Schwankungen der Konzentration des Aerosols abnimmt. Besondere Beachtung verdient die Tatsache, daß auf der Zugspitze das Maximum der Gefrierkernkonzentration und das der „großen“ Kerne in die frühen Nachmittagsstunden fällt, das Minimum dagegen in die Nacht. Das bedeutet eine Verschiebung der Periode um 180° gegenüber der Ebene und ist ein Beweis, daß der „tägliche“ Gang des Aerosols und der Gefrierkerne im wesentlichen durch einen vertikalen Transport der Teilchen aus der bodennahen Luftschicht in größere Höhen verursacht wird, der während der Sonneneinstrahlung nach oben und während der Nachtstunden nach unten gerichtet ist. Bei den Aitkenkernen ist neben dem Transport von unten eine Neubildung von Teilchen in der Höhe unter Einfluß der kurzwelligen Sonnenstrahlung denkbar, die von F. Verzar und Y. Kunz (40) auch bereits beobachtet und in den Schweizer Alpen systematisch untersucht worden ist. Eine vollständige Klärung des Effektes steht jedoch noch aus.

Der zweite hier wiedergegebene Fall aus der Reihe unserer Zugspitzuntersuchungen (Abb. 13) wurde an einem Strahlungstag gewonnen, an dem sich nach dem Einfließen frischer Polarluft ein Hochdruckgebiet ausgebildet hatte, und eine Inversion unterhalb des Zugspitzgipfels lag, die erst im Verlauf des 31. Juli 1957 von der Konvektion durchbrochen werden konnte. Der bemerkenswert starke Anstieg der Aitkenkernzahl am Vormittag des 31. Juli dürfte mit der Auflösung der Inversion in Zusammenhang stehen. Im rechten Teil der Abb. 13 wurden die Ergebnisse der Zählungen der Gefrierkerne und der „großen“ Kerne aus den Messungen dieser beiden Tage gegenübergestellt, aus denen der gleichzeitige Anstieg der beiden Größen deutlich hervorgeht. Die Beziehung ist in diesem Beispiel in erster Näherung linear, was damit zusammenhängt, daß sich die äußeren Bedingungen, wie Luftmasse, Art, Zusammensetzung und Beschaffenheit des Aerosols, Feuchte und Windverhältnisse, die alle die Aktivität der Kerne für die Eiskeimbildung beeinflussen, innerhalb der Meßzeit von 24 Stunden nur wenig geändert haben. Dehnt man die Messungen über einen längeren Zeitraum aus, so bleibt der lineare Zusammenhang meist nicht gewahrt.

Unter Hinweis auf die früheren Ausführungen auf Seite 13 sei nochmals darauf aufmerksam gemacht, daß die Gefrierkernkonzentration gegenüber den Frankfurter Messungen nur um den Faktor 2—3 niedriger liegt, die Zahl der „großen“ und der Aitkenkerne dagegen um den Faktor 10—20, ein Ergebnis, das auch in den Einzelbeispielen dieses Abschnittes zum Ausdruck kommt.

Die Abbildungen 12 und 13, vor allem der auf der rechten Seite der Abb. 13 dargestellte Zusammenhang, verstärken die Vermutung, daß die „großen“ Kerne des atmosphärischen Aerosols mit den im Temperaturbereich zwischen 0° C und —30° C ansprechenden Gefrierkernen identisch sind.

4.2. Beziehungen zwischen Größe und Zahl der Kondensationskerne und der Konzentration und Aktivität der Gefrierkerne.

Die an den verschiedenen Meßstellen auf dem Kontinent durchgeführten simultanen Untersuchungen der Gefrierkerne und der Kondensationskerne wurden unter dem Gesichtspunkt ausgewertet, ob sich den Ergebnissen Zusammenhänge zwischen Teilchengröße und Aktivität der Gefrierkerne entnehmen lassen. Es sollte hierdurch die Allgemeingültigkeit der Beziehungen überprüft werden, die durch die Messungen des „täglichen“ Ganges an einzelnen Tagen aufgedeckt wurden.

4.2.1. Kondensationskerne über 0.2 µ Radius („große“ und Riesenkerne)

Zählungen der „großen“ Kerne wurden in Frankfurt/M. parallel mit den Gefrierkernzählungen vom 15. Juni 1956 bis 31. Mai 1957 durchgeführt. Insgesamt liegen 308 Messungen vor, die in Abb. 14 in Abhängigkeit von der Konzentration der im Bereich zwischen 0° und —30° C aktiven Gefrierkerne eingetragen sind. Der Zusammenhang zwischen beiden Größen kommt deutlich und einwandfrei zum Ausdruck. Die Streuung ist nicht übermäßig groß, wenn man berücksichtigt, daß die Größe eines Teilchens natürlich nur eine charakteristische Eigenschaft unter vielen ist, die die Wirkung eines Teilchens als Eiskeim beeinflussen. Oberflächenbeschaffenheit, Kristallstruktur und Löslichkeit spielen ebenfalls eine nicht zu unterschätzende Rolle. Es ist weiterhin zu bedenken, daß die Streuung in Abb. 14 weniger durch Beobachtungsfehler als durch die natürliche, witterungsbedingte Mannigfaltigkeit der Zusammensetzung des atmosphärischen Aerosols zustandekommt. Der Abb. 14 entnimmt man weiterhin, daß die Beziehung zwischen „großen“ Kernen und Gefrierkernen in guter Näherung durch den einfachen Ausdruck

$$\sum_{-30}^{0} N_E = \text{const} \sqrt{\sum N_K}$$

wiedergegeben werden kann, wobei N_E die Zahl der oberhalb —30° C aktiv werdenden Gefrierkerne und N_K die Konzentration der „großen“ Kerne bedeutet. Durch die doppellogarithmische Darstellungsweise der Abb. 14 wurde der Zusammenhang zwischen Gefrierkernkonzentration und Konzentration der „großen“ Kerne in eine quasi-lineare Form gebracht. Die Güte dieses Zusammenhanges kann durch den Korrelationskoeffizienten ausgedrückt werden, der sich in vorliegendem Fall zu $R = 0.94$ errechnet, ein außerordentlich hoher und weit überzufälliger Wert. Das Bestimmtheitsmaß $B = R^2$ beträgt 0.88 und besagt, daß eine Änderung der einen Komponente mit 88% Wahrscheinlichkeit eine entsprechende Änderung der anderen Komponente bedingt. Es ist zunächst überraschend, daß die Gefrierkernkonzentration im Mittel über einen längeren Zeitraum betrachtet nicht der Konzentration der „großen“ Kerne linear proportional ist, sondern daß vielmehr ein schwächerer Zusammenhang in der oben angegebenen Form, d. h. Proportionalität mit der Wurzel aus der Konzentration der „großen“ Kerne gefunden wurde. Eine lineare Zunahme kann in einzelnen Fällen, z. B. bei der Auswertung mehrerer am gleichen Tage gewonnener Messungen durchaus vorkommen, wie das in Abb. 13 angeführte Beispiel zeigt. Zweifellos spielt für das Zustandekommen des nicht linearen Zusammenhanges folgender übergeordneter Einfluß der Wittersituation eine Rolle: Im Rhein-Main-Gebiet führen Wetterlagen, die mit hohen Werten der „großen“ Kerne verknüpft sind, meist zu einer Stagnierung der Luftmassen in der Niederung, wobei die Ebene oftmals unter einer Inversion liegt. Hieraus resultieren starke Anreicherungen von Aerosolen industriell-

ler Herkunft, die jedoch als Gefrierkerne weitgehend inaktiv sind. Die Gefrierkernkonzentration bleibt somit im Vergleich zur Zahl der vorhandenen „großen“ Kerne relativ niedrig. Umgekehrt werden in der bodennahen Luftschicht niedrige Werte der „großen“ Kerne vor allem bei Wetterlagen mit kräftiger Advektion, Kaltfrontdurchgängen oder starkem Vertikalaustausch gefunden. Bei diesem Wetter bleibt der relative Anteil anthropogener Aerosole gering, die Zahl der vorhandenen Gefrierkerne dagegen, bezogen auf die Gesamt-

aerosolkonzentration, hoch. Die die Konzentration und Beschaffenheit des Aerosols steuernde Wirkung der Wetterlage dürfte somit für die hier speziell vorliegende Form des Zusammenhanges zwischen Gefrierkernen und „großen“ Kondensationskernen verantwortlich sein. Allerdings bleibt dadurch die Gültigkeit der für Frankfurt gefundenen „Wurzelbeziehung“ regional beschränkt, wie die Ergebnisse der vergleichenden Untersuchungen auf der Zugspitze und auf dem Kleinen Feldberg/Taunus zeigen.

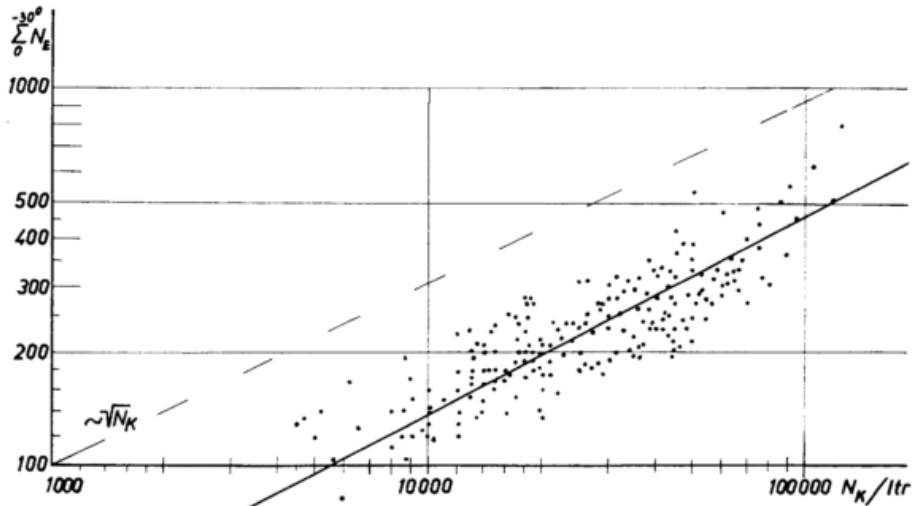


Abb. 14
Zusammenhang zwischen Konzentration der Gefrierkerne und der „großen“ Kerne in Frankfurt a. M.

Die Auswertung der Untersuchungen auf der Zugspitze bestätigt im wesentlichen unsere bisherigen Ergebnisse, soweit sie sich auf den Zusammenhang zwischen der Konzentration der im Temperaturbereich zwischen 0° und -30° C aktiven Gefrierkerne und der Zahl der in der Atmosphäre suspendierten „großen“ Kerne beziehen, wie die Abb. 15 zeigt. Auch diese Darstellung ist wiederum mit doppellogarithmischer Skalenteilung versehen. Auf die im Mittel niedrigere Konzentration der Gefrierkerne und vor allem der „großen“ Kerne in 3 000 m Höhe gegenüber den Frankfurter Messungen war bereits früher hingewiesen worden. In Abb. 15 haben wir zusätzlich die zur Zeit der

betreffenden Gefrierkernzählung herrschende Wetterlage markiert, weil durch diese Charakterisierung unter Umständen der Einfluß des Witterungszustandes auf das Ergebnis verständlich wird. Man erkennt auch sofort, daß an Meßtagen mit Strahlungswetter und starker Konvektionsströmung die Gefrierkernkonzentration zu unterdurchschnittlichen Werten abweicht. Dies trifft für sämtliche neun Fälle dieser Art zu. Diese Abweichung findet ihre Erklärung durch die Beteiligung von Aerosolen, die aus der bodennahen verunreinigten Luftschicht, nämlich dem Tal von Garmisch-Partenkirchen zur Zugspitzhöhe hinaufverfrachtet werden.

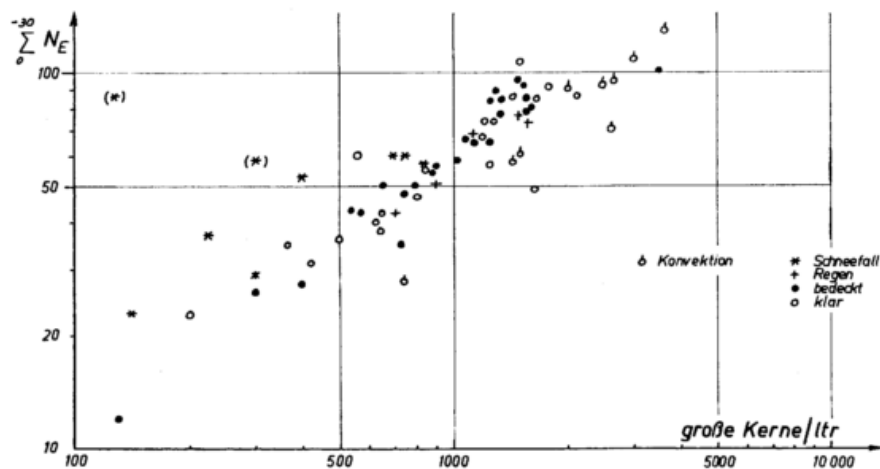


Abb. 15
Zusammenhang zwischen Konzentration der Gefrierkerne und der „großen“ Kerne auf der Zugspitze

Im Gegensatz hierzu werden überdurchschnittliche Gefrierkernzahlen bei all den Messungen festgestellt, die in polar-maritimer Luftmasse meist während Schneefall durchgeführt wurden. Drei dieser Meß-

ergebnisse wurden in Abb. 15 eingeklammert, da es nicht ganz ausgeschlossen erscheint, daß diese Werte durch das Eindringen von Schneekristallen in die Kältekammer verfälscht wurden. Es waren zwar Vorkeh-

rungen getroffen, den Eintritt von Eisteilchen zu verhindern (Heizung des Lufteintrittsstutzen), doch können unter Umständen einzelne wenige Schneekristalle das spontane Gefrieren vieler Tröpfchen der unterkühlten Wolke in der Kältekammer verursachen. Es ist bei den drei fraglichen Beispielen weiterhin durchaus möglich, daß die in die Kältekammer eingebrachten Gefrierkerne trotz Erwärmung der Luft über den Gefrierpunkt eine eisähnliche Orientierung der Wassermoleküle in der Adsorptionsschicht auf ihrer Oberfläche beibehielten, die sie befähigt, bei erneuter Abkühlung bereits bei Temperaturen um -1° bis -3° C die Eisteilchenbildung in der Tröpfchenwolke einzuleiten. Solche „trainierten Gefrierkerne“ („trained nuclei“ nach B. J. Mason) wurden in einigen Ausnahmefällen von A. R. Kassander, L. L. Sims und J. McDonald (41) bei Flügen über dem Südwesten der Vereinigten Staaten angetroffen. Hierbei wurden Luftproben aus Eiswolken entnommen, in einer Kältekammer zunächst auf $+10^{\circ}$ C erwärmt und erneut abgekühlt. Bereits bei -1° C wurde eine Eisteilchenkonzentration von etwa 100/ltr. beobachtet, die unterhalb -10° C durch aus der Wolke ausfallende Eiskriställchen zurückging und erst wieder bei Temperaturen unter -25° C zu höheren Werten als 100/ltr anstieg. Bei Laborversuchen gelang es schließlich, die Wirksamkeit der „trainierten Gefrierkerne“ bei hohen Temperaturen über einen Zeitraum von mehreren Stunden zu konservieren. Es sei in diesem Zusammenhang auch nochmals auf die Übersichtsdarstellung der Zugspitzmessungen in Abb. 8 zurückverwiesen, wo am 11. Juli 1957 eine extrem hohe Gefrierkernkonzentration bei gleichzeitig sehr niedriger Zahl der „großen“ Kerne beobachtet wurde. Da die Messung mit starkem Schneefall und Außentemperaturen unter 0° C zusammenfiel, liegt eine Verfälschung durch eindringende Eisteilchen im Bereich des Möglichen.

Die für den Zusammenhang zwischen Gefrierkernen und „großen“ Kernen in Frankfurt gefundene „Wurzelbeziehung“

$$\sum_0^{-30} N_E \sim (\sum N_K)^{0.5}$$

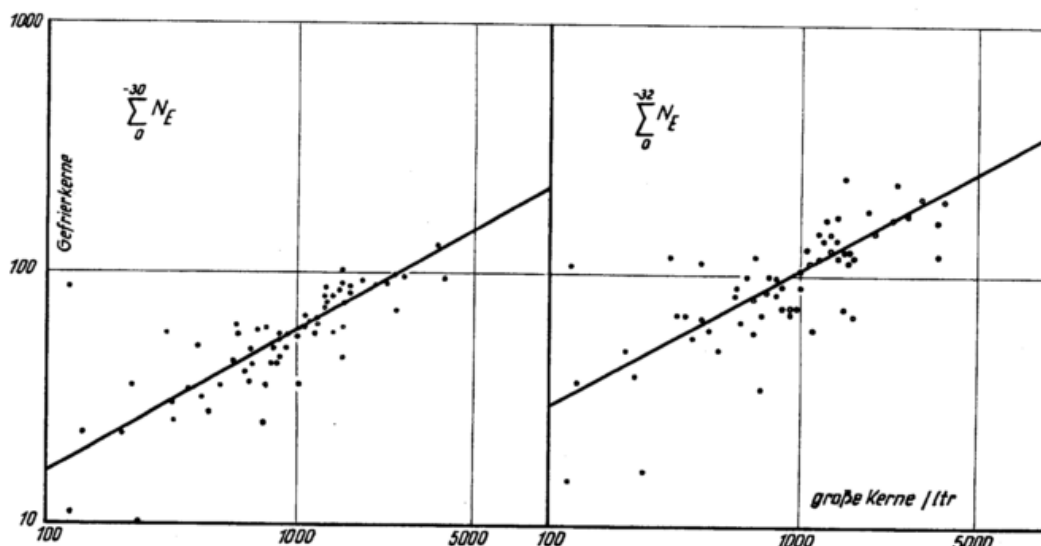


Abb. 16
Zusammenhang zwischen Konzentration und Gefrierkerne im Temperaturbereich 0° C bis -30° C und 0° C bis -32° C und der Zahl der „großen“ Kerne auf der Zugspitze

bruar 1958 ebenfalls simultane Messungen der Gefrierkerne, der „großen“ Kerne und der Aitkenkerne vorgenommen. Die Auswertung dieser Messungen ließ nun im Vergleich zu den in Frankfurt und auf der Zugspitze durchgeführten Untersuchungen zunächst keinen ähnlich strammen Zusammenhang zwischen der Kon-

gilt indes für die Meßserie auf der Zugspitze nicht. Wie man der Abb. 15 entnimmt, verläuft die Regressionsgerade steiler, die Neigung entspricht in der doppellogarithmischen Darstellung einem Exponenten 0.65, so daß etwa der Zusammenhang

$$\sum_0^{-30} N_E \sim (\sum N_K)^{0.65}$$

besteht. Wenn man die drei eingeklammerten Werte ausschließt, ergibt sich ein Korrelationskoeffizient von $R = 0.90$, dem ein Bestimmtheitsmaß von $B = 0.81$ entspricht. Diese Korrelation ist ebenfalls sehr gut und liegt bei weitem über dem Zufallshöchstwert, der bei 60 Wertepaaren 0.38 beträgt.

Die Strammheit des Zusammenhanges der im Temperaturbereich zwischen 0° und -30° C ansprechenden Gefrierkerne und der Konzentration der „großen“ Kerne wurde auch dadurch nachgewiesen, daß neben der in Abb. 15 bereits gezeigten Zusammenstellung ebenfalls die Summe der im Temperaturbereich 0° bis -32° C ansprechenden Gefrierkerne in Abhängigkeit von der Zahl der „großen“ Kerne aufgetragen wurde. Abb. 16 zeigt diese Gegenüberstellung, aus der man klar erkennt, daß der beste Zusammenhang tatsächlich mit den oberhalb -30° C ansprechenden Gefrierkernen besteht (linker Teil der Abb. 16), während bei den oberhalb -32° C aktiv werdenden Gefrierkernen die Streuung erheblich größer ist (rechter Teil der Abb. 16). Wie oben ausgeführt, beträgt der Korrelationskoeffizient für die rechte Darstellung dagegen nur 0.75 (Bestimmtheitsmaß nur 0.56). Aus der Abbildung und aus der Berechnung der Korrelationskoeffizienten wird deutlich, daß unterhalb -30° C, d. h. zwischen -30° und -32° C, offensichtlich andere Teilchen als Gefrierkerne wirksam zu werden beginnen, die für die Eiskeimbildung oberhalb -30° C noch keine Rolle spielen. Wie aus der weiteren Bearbeitung hervorgehen wird, handelt es sich um die beginnende Aktivierung der Aitkenkerne.

Im Winter 1957/58 wurden auf dem Taunusobservatorium Kleiner Feldberg von Oktober 1957 bis Fe-

zentration der „großen“ Kerne und der Summe der bis -30° C aktiv werdenden Gefrierkerne erkennen. Man gewinnt jedoch ein weitaus klareres Bild, wenn man die Gesamtzahl der Messungen, die auf dem Taunus-Observatorium durchgeführt wurden, nach folgendem Gesichtspunkt in zwei Gruppen aufteilt:

- a) Messungen bei Wetterlagen, bei denen der Feldberggipfel über einer Inversion lag, bzw. in die Wolken eintauchte und
- b) Messungen, bei denen der Feldberg unterhalb der Wolkenuntergrenze lag, bzw. unterhalb einer Inversionsgrenze.

Der wesentliche Unterschied dieser beiden Typen liegt darin, daß im Fall a) ein Transport von Luftverunreinigungen, d. h. von Aerosolen anthropogener Herkunft, sowie von Teilchen des natürlichen atmosphärischen Aerosols, deren Oberfläche durch die Adsorption von gewissen Spurengasen, die in hohen Konzentrationen in der bodennahen Luftschicht auftreten, vergiftet werden, praktisch ausgeschlossen ist. Im Falle b) besteht die Möglichkeit eines Vertikaltransportes aus dem Rhein-Mainbecken bis in Gipfelhöhe des Feldberges unbehindert. In allen Fällen, bei denen der Gipfel des Kleinen Feldberges bereits in Wolken steckte, die Wolkengrenze jedoch unterhalb des Gipfels lag und

die Ebene wolkenfrei war, war der Einfluß des Industrieaerosols aus der Ebene trotz des Fehlens einer Sperrschicht oder einer Inversion auf dem Feldberg nicht mehr wahrnehmbar. Wahrscheinlich wirkt die Wolke, vor allem ihre Untergrenze, gleichsam als Filter und fängt das aus der Ebene antreibende Aerosol ab.

In Abb. 17 wurde in üblicher Darstellungsweise der Zusammenhang zwischen der Konzentration der „großen“ Kerne und der Gefrierkerne aufgetragen, wobei eine Aufteilung der Messungen in zwei Gruppen gemäß der eben geschilderten Fragestellung vorgenommen wurde. Die linke Darstellung in Abb. 17 enthält alle Meßtage, an denen ein ungehinderter Vertikal-austausch zwischen Ebene und Gipfel möglich war, während in der rechten Darstellung alle Fälle eingetragen wurden, bei denen entweder eine Inversion unterhalb des Gipfels ausgebildet war, oder dieser in die Wolken eintauchte. Der Zusammenhang ist in beiden Gruppen überzufällig.

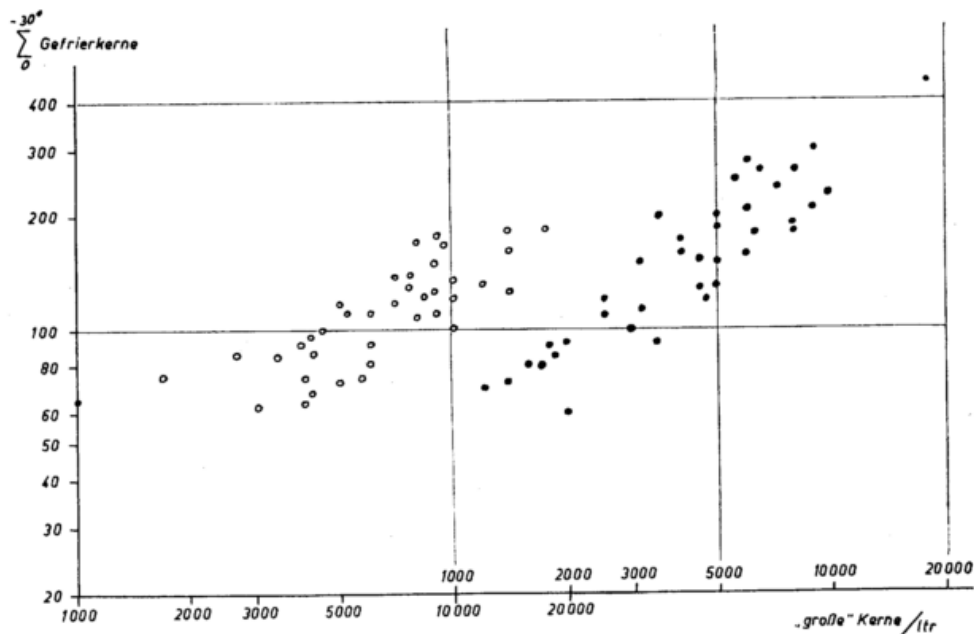


Abb. 17
Zusammenhang zwischen Konzentration der Gefrierkerne und der „großen“ Kerne auf dem Kl. Feldberg/Taunus (Winter 1957/58)
a) Wolkenuntergrenze oberhalb des Feldberggipfels bzw. bei Strahlungswetter besteht keine Austauschbehinderung zwischen Mainebene und Gipfel (○)
b) Feldberggipfel über einer Inversion bzw. in Wolken (●)

Die Korrelationskoeffizienten betragen $R = 0.79$ für die linke Seite und $R = 0.9$ für die rechte Seite der Abb. 17. Bemerkenswert ist die Tatsache, daß der Exponent, der das Maß der Linearität des Zusammenhanges zwischen Konzentration der Gefrierkerne und der „großen“ Kerne ausdrückt, die für unter a) angegebenen Fälle 0.6 ist und damit von der gleichen Größenordnung wie in Frankfurt (0.51) und auf der Zugspitze (0.65), währenddessen sich für die unter b) zusammengefaßten Messungen ein Exponent von 0.82 ergibt. Dieser hohe Wert, der bei der Auswahl von Meßtagen mit geringem Anteil von Industrieaerosolen auftritt, festigt die weiter oben bei der Besprechung der Frankfurter Meßergebnisse bereits begründete Annahme, daß sich in dem Wert des Exponenten „Qualitätsunterschiede“ des Aerosols hinsichtlich seiner Wirkung für den Gefriervorgang in Wolken ausdrücken. Der Grad der Abweichung des Exponenten von 1 gibt den Einfluß von für die Eiskeimbildung wenig geeigneten Teilchen wieder. Dieser Einfluß ist jedoch erfahrungsgemäß besonders hoch bei Wetterlagen mit hohen Kernzahlen, für deren Zustandekommen die Beteiligung der

anthropogen erzeugten Teilchen in starkem Maße verantwortlich ist. Der höhere Exponent des in der rechten Darstellung wiedergegebenen Zusammenhanges spricht dafür, daß die Aerosolteilchen hinsichtlich ihrer „Qualität“ einheitlicher sind. Dieser Einheitlichkeit sind durch die unterschiedliche Herkunft der Kerne natürliche Grenzen gesetzt, die sich in der Streuung ausdrücken.

Es wurde daher versucht, noch einen Schritt weiterzugehen und alle Fälle auszusondern, für die 1) die unter b) angeführten Bedingungen zutreffen und 2) für die eine möglichst einheitliche Luftmasse gesichert war, was am besten für die von NW den Gebirgskamm anströmende maritime Polarluft zutrifft. Die Abb. 18 ist eine Darstellung der Fälle, die diesen Anforderungen genügen. Sie zeigt den Zusammenhang zwischen der Gefrierkernkonzentration und der Konzentration der „großen“ Kerne in maritimer Polarluft (mPt). Während der Meßperiode auf dem Kleinen Feldberg überflutete maritime Polarluft mehrere Male Mitteleuropa und beherrschte den Witterungscharakter jedes Mal

für 3 oder 4 aufeinanderfolgende Tage, d. h. für 6—8 Messungen. Man erkennt aus Abb. 18, daß innerhalb einer einheitlichen Luftmasse und bei weitgehender Ausschaltung anthropogener Aerosole, die Wirksamkeit der in der Luftmasse mitgeführten Aerosolteilchen für den Gefriervorgang bereits weitgehend vereinheitlicht ist. Der Zusammenhang zwischen Konzentration der „großen“ Kerne und der der Gefrierkerne ist praktisch linear. Die in Abb. 18 für mPt-Luft wiedergegebene Beziehung wurde auch für mTp- und

mPa-Luftmasse überprüft und bestätigt, doch ist die Zahl der für diese Auswertung zur Verfügung stehenden Fälle wesentlich geringer und daher nicht sehr überzeugend. Die Ergebnisse der Messungen auf dem Kleinen Feldberg runden das Bild unserer bisherigen Resultate über den Zusammenhang zwischen „großen“ Kernen und Gefrierkernen ab. Sie helfen bei der Klärung des Einflusses der verschiedenartigen Faktoren, die die Wirksamkeit der Aerosolteilchen als Gefrierkerne bestimmen.

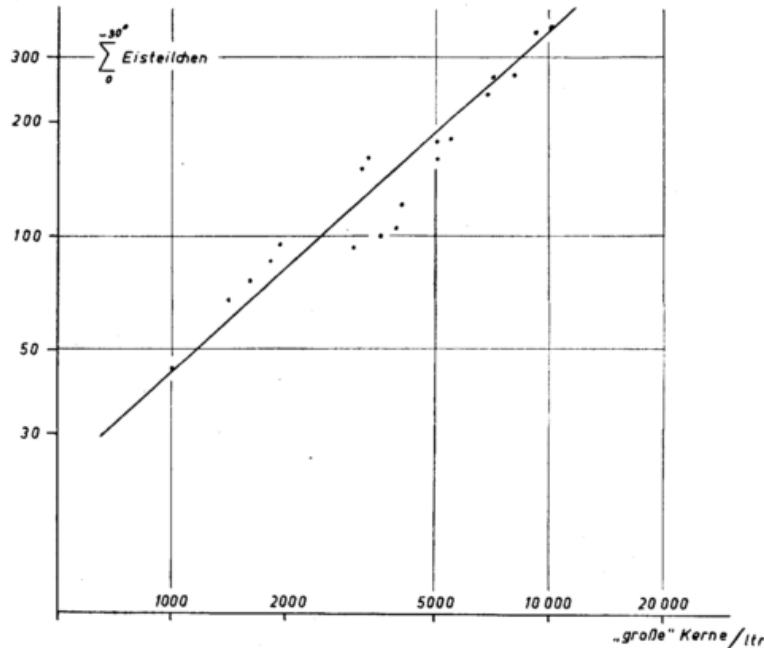


Abb. 18
Zusammenhang zwischen Konzentration der Gefrierkerne und der „großen“ Kerne in einheitlicher Luftmasse (mPt) auf dem Kleinen Feldberg

4.2.2. Zusammenhang zwischen Konzentration der „Riesenkern“ und der „Schwellentemperatur“ der Eiskeimbildung

Nach der Definition von C. Junge werden Teilchen mit Radien über 1μ als „Riesenkern“ bezeichnet. Diese „Riesenkern“ sind vor allem in den letzten Jahren durch die Untersuchungen A. H. Woodcock's (42) bekannt geworden, der bei zahlreichen Untersuchungen über dem Atlantik fand, daß als Folge der Wellen- und Schaumbildung über den Ozeanen eine große Zahl Riesenkern als Verdampfungsrückstände kleiner Sprühtropfen gebildet werden. Diese über den Ozeanen aus Seesalz bestehenden Kerne sind eine notwendige Voraussetzung für die Ausbildung jener Niederschläge, die ohne Beteiligung von Eisteilchen bei Temperaturen über 0°C zustandekommen und in der Tat für Küstengebiete und das Meer einen wesentlichen Anteil des jährlichen Niederschlages darstellen.

Auch über den Kontinenten werden — in allerdings geringerer Zahl als über den Ozeanen — Teilchen über 1μ Radius gefunden, die nur zum kleinen Teil aus Meersalz bestehen, größtenteils dagegen „Mischkerne“, die ein Gemisch löslicher und unlöslicher Bestandteile darstellen, oder Teilchen vorwiegend kristalliner Struktur sind, d. h. vom Wind aufgewirbelte Erdteilchen.

Die bisher dargelegten Ergebnisse unserer Untersuchungen über den Zusammenhang zwischen Teilchen $> 0.2 \mu$ und der Gefrierkernkonzentration beinhalten die Möglichkeit, daß den kontinentalen „Riesenkernen“ unter Umständen eine besondere Bedeutung bei der Bildung der Eisphase in unterkühlten Wolken zufällt. Im Rahmen der weiteren Arbeiten hat der Verfasser

daher die Riesenkern im Hinblick darauf untersucht, ob sie für das Einsetzen der Eisteilchenbildung verantwortlich sind, d. h. ob die bei der Unterschreitung des Gefrierpunktes sich zuerst bildenden Eisteilchen an Riesenkernen wachsen. Diese Untersuchung wurde wiederum so ausgeführt, daß die Konzentration der Riesenkern in der Außenluft bestimmt wurde und gleichzeitig die Temperatur möglichst genau festgelegt wurde, bei der die ersten Eisteilchen in der unterkühlten Wolke in der Kältekammer auftraten. Um Zufallsergebnisse durch das Vorhandensein einzelner besonders aktiver Gefrierkerne auszuschalten, wurden die ersten fünf Eisteilchen beobachtet und die Mitteltempe-

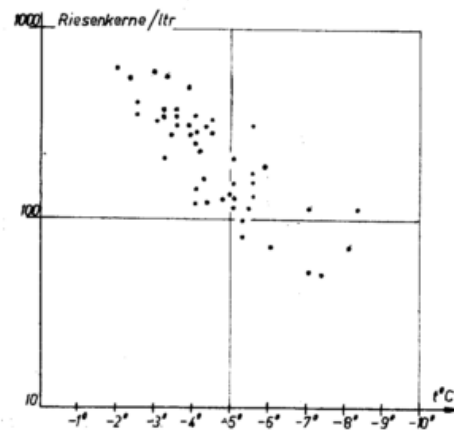


Abb. 19
Temperatur des Auftretens der ersten Eisteilchen in der unterkühlten Wolke in Abhängigkeit von der Konzentration kontinentaler Riesenkern

ratur ihres Auftretens als Bezugswert gebildet. Diese kann man als „Schwellentemperatur“ der Eisbildung in der unterkühlten Wolke bezeichnen. Die Ergebnisse dieser parallelen Messungen sind in Abb. 19 dargestellt. Die Ordinate in logarithmischer Teilung gibt die Konzentration der Riesenkerne in der Außenluft in Frankfurt/M. zur Zeit der Eisteilchenbeobachtung an, während man der Abszisse — in linearer Teilung — die „Schwellentemperatur“ der Eisbildung entnehmen kann. Trotz größerer Streubreite ist der Zusammenhang vorhanden, wonach bei hoher Konzentration der Riesenkerne in der Außenluft die Eisteilchenbildung bei höherer Temperatur einsetzt als bei geringer Zahl der Riesenkerne. Es sei darauf aufmerksam gemacht, daß sich die Angaben in Abb. 19 auf die Zahl der Teilchen größer als 1.2μ Radius beziehen, entsprechend der Grenzgröße der mit dem verwendeten Konimeter abgefangenen Teilchen. Das Ergebnis der Abb. 19 läßt sich in der Richtung deuten, daß mit wachsender Zahl der Riesenkerne in der Atmosphäre die Wahrscheinlichkeit zunimmt, daß sich darunter einige von besonders hoher Aktivität befinden, die bereits bei geringer Unterschreitung des Gefrierpunktes wirksam werden. Auf Grund dieses Befundes scheint die Bedeutung der Riesenkerne kontinentalen Ursprunges für die Niederschlagsbildung, die unter Beteiligung der Eisphase ausgelöst wird, erwiesen.

4.2.3. Kondensationskerne unter 0.2μ Radius (Aitkenkerne)

Bei unseren in Frankfurt/M., auf der Zugspitze und auf dem Kleinen Feldberg/Taunus durchgeführten simultanen Messungen der Gefrierkerne und der Kondensationskerne wurde stets auch die Zahl der Aitkenkerne bestimmt. Wie bereits oben mitgeteilt, wurden hierfür zwei kleine Kernzähler nach Scholz verwendet. Während zweier Meßperioden von acht Wochen stand uns in Frankfurt auch ein kontinuierlich registrierender Kernzähler nach Verzar zur Verfügung. Dieses Gerät war uns freundlicherweise von Herrn Professor Dr. H. Israel, Aachen, leihweise überlassen worden.

Während Februar und März 1957 wurden täglich vergleichende Messungen der Aitkenkernzahl mit dem Verzar-Automaten und dem kleinen Kernzähler nach Scholz vorgenommen. Die mittlere Aitkenkonzentration für diesen Zeitraum war folgende:

Aitkenkernzahl gemessen mit:	Kernzahl/ccm
Verzar - Automat mit Eichkurve nach Verzar	75 000
Kleiner Kernzähler nach Scholz	88 500
Verzar - Automat mit Eichkurve nach Metnieks	96 500

Während die Angaben nach der Original-Eichkurve von Verzar um 15% unter den Scholz-Werten liegen, ist die mittlere Abweichung nach der Eichkurve von Metnieks 9% zu höheren Werten gegenüber dem Scholz-Zähler. A. L. Metnieks (43) hat den Verzar-Automaten einer gründlichen Überprüfung unterworfen und das Dubliner Standardgerät angeschlossen. Seine Eichwerte erscheinen sehr vertrauenswürdig, so daß wir sie bei der endgültigen Festlegung der Meßwerte des automatischen Kernzählers nach Verzar zugrundegelegt haben.

Durch diese vergleichenden Messungen mit verschiedenen Kernzählern konnte eindeutig sichergestellt werden, daß das Ergebnis der gleichzeitig durchgeführten Gefrierkern- und Aitkenkernzahlungen nicht durch die Wahl eines bestimmten Kernzählers beeinflusst wird. Diese Feststellung ist im Hinblick auf kritische Betrachtungen, die C. J. Thams und W. Wieland (44) kürzlich über den Kernzähler nach Scholz anstellten, besonders wichtig. Thams und Wieland fanden, daß es bei der Expansion zu Wirbelbildungen im Rezipienten kommt, die eine ungleichmäßige Verteilung der nach der Expansion entstehenden Tröpfchen auf der Bodenplatte zur Folge haben. Sie empfehlen daher zur Erhöhung der Genauigkeit die im Kernzähler zu untersuchende Luftmenge so zu dosieren, daß nicht mehr als 9 Tröpfchen auf ein Feld des Zählquadrats fallen und das Meßergebnis stets als Mittel aus mindestens 20 Einzelmessungen zu bilden. Außerdem solle langsam dilatiert werden, um Wirbelbildung weitgehend auszuschalten. Diesen Vorschlägen haben wir uns angeschlossen und recht gut vergleichbare Meßergebnisse mit verhältnismäßig geringer Streuung innerhalb der Serie der Einzelmessungen erhalten. Die Streuung war besonders gering bei den Messungen auf der Zugspitze und auf dem Kleinen Feldberg, wo die Zahl der Aitkenkerne bei weitem nicht so hoch ist wie in Frankfurt.

Die Auswertung der simultanen Messungen zeigt die Abb. 20, 21 und 22. Alle Darstellungen sind wiederum im doppellogarithmischen Maßstab gezeichnet. Die Ab-

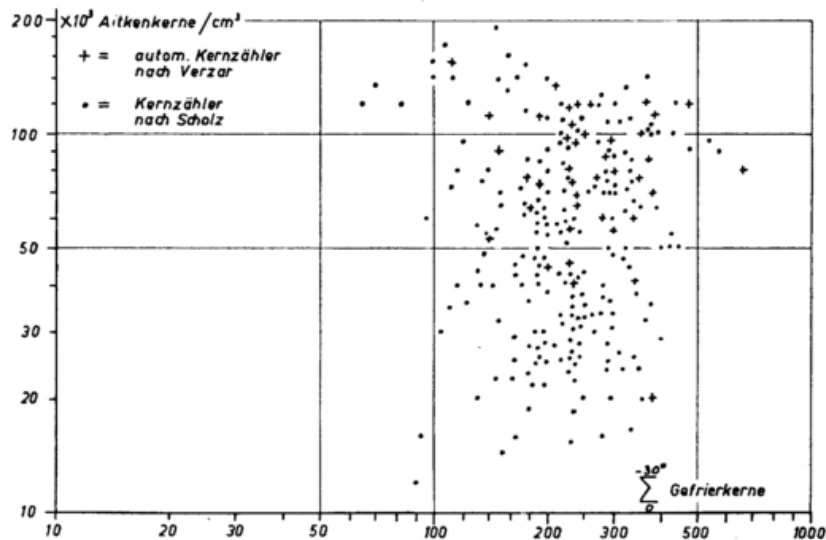


Abb. 20
Zusammenhang zwischen Konzentration der Gefrierkerne und der Aitkenkerne in Frankfurt a. M. (Mai 1956 — Mai 1957)

szisse gibt die Konzentration der im Temperaturbereich zwischen 0° und -30°C ansprechenden Gefrierkerne, die Ordinate die Zahl der Aitkenkerne. Man erkennt auf den ersten Blick, daß im Gegensatz zu den „großen“ Kernen keinerlei Zusammenhang zwischen der Konzentration der Gefrierkerne und der Aitkenkerne vorhanden ist, weder in Frankfurt noch auf der Zugspitze oder auf dem Kleinen Feldberg. — Über die simultanen Messungen in Valentia/Irland wird im folgenden Kapitel berichtet. — Hohe Werte der Gefrierkernzahl gehen mit hohen oder mit niedrigen Werten der Aitkenkernzahl einher. Wie die Abb. 20 für die Frankfurter Messungen zeigt, gilt diese Regel, gleichgültig, ob die Aitkenkernmessungen mit dem Kernzähler nach Scholz oder mit dem automatischen Kernzähler nach Verzar durchgeführt wurden.

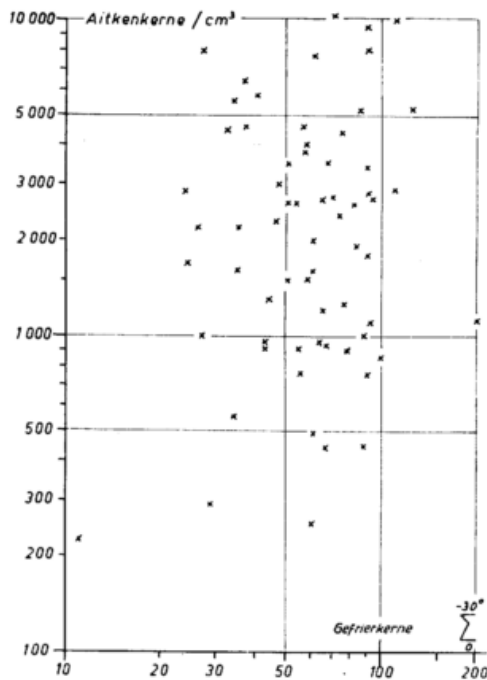


Abb. 21

Zusammenhang zwischen Konzentration der Gefrierkerne und der Aitkenkerne auf der Zugspitze (Sommer 1937)

Das Ergebnis, das sich aus den Abb. 20, 21 und 22 ableitet, legt den Schluß nahe, daß die Aitkenkerne

nicht für die Eisteilchenbildung bei Temperaturen über -30°C verantwortlich sind. Der hier erbrachte Nachweis der Unwirksamkeit der Aitkenkerne für den Gefriervorgang bestätigt die Ergebnisse von W. Rau (16), der während kurzer Zeit Parallelmessungen der Gefrierkerne und der Aitkenkerne durchführte und fand, daß der Gefrierkerngehalt der Luft vom Kondensationskerngehalt unabhängig ist. Allerdings können wir uns den Folgerungen Rau's aus diesem Ergebnis nicht anschließen, wenn er schreibt: „Die Gefrierkerne, die zu einer Eisteilchendichte von $1/\text{cm}^3$ führen, sind somit im Gegensatz zur Mehrzahl der Kondensationskerne nicht anthropogenen Ursprungs. Nicht einmal kontinentalen Ursprungs können sie sein, sonst müßten die Klimafaktoren (Trockenheit, Niederschlag, Schneedecke u. ä.) ihr Vorkommen beeinflussen.“ Solche weitgehenden Deutungen sind schon deshalb unberechtigt, da Rau außer den Messungen der Aitkenkerne keine weiteren Komponenten des atmosphärischen Aerosols bestimmt hat und somit nur einen Ausschnitt aus dem gesamten Kondensationskernspektrum für seine Betrachtungen herangezogen hat. — Schließlich folgt aus dem Ergebnis dieses Abschnittes, daß die aktiven Gefrierkerne sicherlich nicht in dem Teilchengrößenbereich zu suchen sind, in dem sie W. Findeisen (3) vermutet hatte, nämlich um 10^{-6} cm . Teilchen dieser Größe sind als Gefrierkerne nur noch von untergeordneter Bedeutung.

Elektronenmikroskopische Untersuchungen, die K. Isono (45) an Wolkentröpfchen vorgenommen hat, zeigten, daß zu 90% der analysierten Kondensationskerne größer als 0.1μ waren. 36% waren Mischkerne, bei 22% überwog der lösliche Anteil und 32% bestanden vorwiegend aus Seesalz, obwohl andere Bestandteile ebenfalls beteiligt waren. Der hohe Anteil der Salzkerne ist der Küstennähe des Untersuchungsortes zuzuschreiben. Diese Arbeit, sowie die elektronenmikroskopischen Untersuchungen von Kuroiwa lassen erkennen, daß die Bedeutung der Aitkenkerne als Kondensationskerne bei der Wolkenbildung gering ist. Diese Erkenntnis läßt sich jetzt sinngemäß auf den Gefriervorgang in unterkühlten Wolken übertragen.

Zusammenfassend darf festgestellt werden, daß die parallelen Messungen der Kondensationskerne in verschiedenen Größenbereichen und der Konzentration der Gefrierkerne in Abhängigkeit von der Temperatur einen sehr engen Zusammenhang zwischen der Teilchengröße des atmosphärischen Aerosols und der Akti-

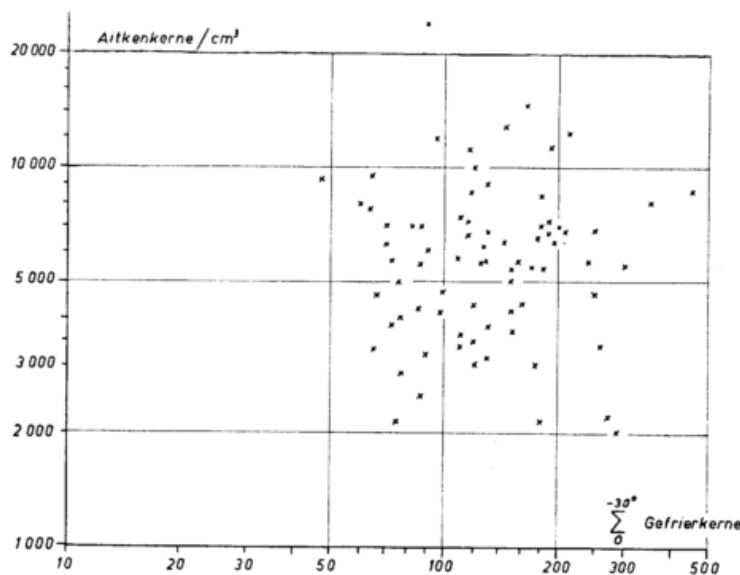


Abb. 22

Zusammenhang zwischen Konzentration der Gefrierkerne und der Aitkenkerne auf dem Kl. Feldberg/Taunus (Winter 1937/38)

vierungstemperatur, bei der diese Teilchen als Gefrierkerne wirksam werden, offenbaren. Dieser Zusammenhang kommt an allen kontinentalen Meßstationen unter den verschiedensten klimatischen Bedingungen und bei unterschiedlichem Witterungscharakter klar zum Ausdruck. Die Ergebnisse unterstreichen die hervorragende Bedeutung der „großen“ und der Riesenkerne für wolkenphysikalische Vorgänge. Dabei erwies sich der Exponent des statistischen Zusammenhanges zwischen der Zahl der Gefrierkerne und der „großen“ Kerne als ein Indikator für die „Güte“ der zur Verfügung stehenden Aerosolteilchen. Je größer der Anteil der inaktiven Gefrierkerne, umso stärker weicht der Exponent von 1 (lineare Abhängigkeit) ab.

4.3. Über die Bedeutung des maritimen Aerosols für den Gefriervorgang in unterkühlten Wolken

Nach Abschluß der Untersuchungen an den drei kontinentalen Meßstellen entstand der Wunsch, die Allgemeingültigkeit der dort erzielten Ergebnisse durch ergänzende Messungen unter rein maritimen Bedingungen zu überprüfen, wobei in Sonderheit die Aktivität der Seesalzkerne für den Gefrierprozeß in unterkühlten Wolken interessierte.

In Europa ist der günstigste Ort für ein solches Unternehmen die Westküste Irlands, wo bei vorherrschenden Westwinden ein reiches Angebot frischen maritimen Aerosols zur Verfügung steht, störende anthropogene und industrielle Aerosolquellen dagegen praktisch völlig fehlen. Die Messungen konnten im Juli und August 1958 als Gemeinschaftsarbeit der School of Cosmic Physics in Dublin und des Frankfurter Universitätsinstitutes für Meteorologie und Geophysik auf der Insel Valentia an der westirischen Küste vorgenommen werden. Neben den Beobachtungen der Gefrierkerne und der Aitkenkerne durch den Verfasser wurden als besonders wichtig und vordringlich gleichzeitige Messungen der Konzentration der Seesalzkerne in verschiedenen Größenbereichen erachtet, die von A. L. Metnieks (46) ausgeführt wurden.

Die Insel Valentia (Abb. 23) hat eine Ausdehnung von etwa 10 km Länge und 3 km Breite und liegt rund 800 m westlich der SW-Küste Irlands. Sie bildet damit einen der am weitesten nach Westen vorgelagerten Punkte Europas. Die Nähe eines meteorologischen Observatoriums, des 3 km entfernten Valentia Observatory in Cahirceveen auf dem Festland begünstigte ebenfalls Valentia als Meßort. Darüberhinaus ist die Insel einer der wenigen Plätze an der westirischen Küste, wo als Voraussetzung für die Durchführung unserer Untersuchung die Stromversorgung mit 220 Volt Dreiphasen-Wechselstrom durch die Station der Western Union Telegraph Co. gesichert werden konnte. Die Aufstellung der Geräte erfolgte in einem von der

Western Union Co. freundlicherweise zur Verfügung gestellten Raum, in unmittelbarer Nähe der Kabelstation, die in Abb. 23 mit (x) eingezeichnet ist.

Die große Bedeutung der Seesalzteilchen bei Kondensationsvorgängen und bei dem Prozeß der Niederschlagsbildung über den Ozeanen ist heute allgemein anerkannt. Dagegen besteht über die Wirkung des maritimen Aerosols als Gefrierkerne bei der Bildung der Eisphase in unterkühlten Wasserwolken über den Meeren noch keine einheitliche Meinung.

4.3.1. Frühere Untersuchungen über die Aktivität der Salzkerne als Gefrierkerne

Vor der Besprechung der eigenen Untersuchungen in Irland soll eine kurze Übersicht über früher erschienene Arbeiten anderer Autoren zur Frage der Gefrieraktivität der Salzkerne vorausgeschickt werden.

Experimentell wurde die Unterkühlbarkeit von Kochsalzlösungen unterschiedlicher Konzentration von E. Hollstein (47) untersucht. Zu diesem Zweck wurden die Lösungsproben in 1.1 cm³ fassende Glasampullen eingeschmolzen und gekühlt. Die Ergebnisse Frl. Hollsteins zeigt die folgende Tabelle:

Art der Lösung	gr NaCl in 100 ³ dest. Wasser	Gefrierpunkt theoretisch	
		gemessen	
dest. Wasser	—	0°C	—13.9°C
1/2 normal	2.9	—1.7°	—16.0°
1/1 normal	5.8	—3.5°	—17.2°
eutektisch	26.2	—21.2°	—35.5°
gesättigt	35.6	—25.2°	—39.7°

Die Berechnung der theoretisch zu erwartenden Gefrierwerte erfolgte nach dem Raoult'schen Gesetz. Dieses besagt, daß die Gefrierpunktniedrigung einer Lösung proportional der Anzahl der gelösten Mole in einer bestimmten Menge des Lösungsmittels ist. Die Zahlenwerte wurde dem Tabellenwerk Landolt-Börnstein (physikalisch-chemische Tabellen S. 481) entnommen.

Man erkennt, daß mit Zunahme der Salzkonzentration eine starke Erniedrigung des Gefrierpunktes theoretisch zu erwarten ist. Interessant ist aber an den Ergebnissen Hollstein's, daß die Differenz zwischen gemessener und theoretisch zu erwartender Gefrierpunkttemperatur nahezu konstant und von der Konzentration der Lösung unabhängig bleibt. Offensichtlich hängt diese Differenz von der Unterkühlungsfähigkeit des Lösungsmittels ab. Da die in der Atmosphäre vorkommenden Seesalzkerne meist hochkonzentrierte Tröpfchen oder Kriställchen sein müssen, sollte man nach den Angaben Hollstein's erwarten, daß sie sich sehr tief unterkühlen lassen.

Diese Anschauung wird jedoch durch eine Untersuchung W. Rau's (48) wieder in Zweifel gezogen. Rau hat die Versuche Hollstein's wiederholt und dadurch ergänzt, daß er Salzlösungströpfchen von 600 mm³ Volumen auf unterkühlte Metallflächen gebracht und das Eintreten des Gefrierens beobachtet hat. Die Ergebnisse Rau's bestätigen — soweit es sich um die Unterkühlungsfähigkeit der Salzlösungsproben in Glasampullen handelt — Frl. Hollstein recht gut, mit der einzigen Abweichung, daß Rau's Mitteltemperaturen durchschnittlich 2° höher liegen als Hollstein's. Auch seine Versuche erlauben die Deutung, daß sich die Gefrierpunktniedrigung zur Unterkühlung des Lösungsmittels addiert, so daß die beobachtete Erstarrungstemperatur mit zunehmender Salzkonzentration absinkt. Ein unterschiedliches Verhalten zeigen dagegen die auf der Chromplatte ge-

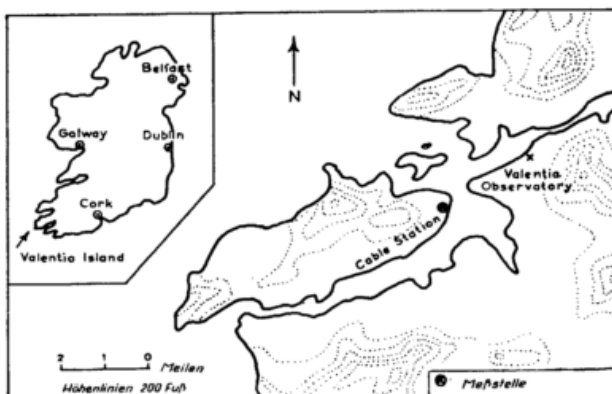


Abb. 23
Lage der Insel Valentia an der Westküste Irlands

kühlten Lösungströpfchen. Die Gefriertemperatur dieser Salztröpfchen gibt nachstehende Tabelle in Abhängigkeit von der Salzkonzentration an. Da die Einzelwerte größeren Schwankungen unterlagen, wird nur die „mittlere Unterkühlbarkeit“ in ganzen Grad Celsius mitgeteilt:

Konzentration der NaCl-Lösung (Vol. = 600 mm ³)	Erstarrungs- temperatur
2.9 gr NaCl in 100 gr H ₂ O	—11°
10 gr NaCl in 100 gr H ₂ O	—13°
20 gr NaCl in 100 gr H ₂ O	—18°
30 gr NaCl in 100 gr H ₂ O	—21°
35.5 gr NaCl in 100 gr H ₂ O	—25°

Dieser Tabelle entnimmt man, daß kleine Tröpfchen geringer Salzkonzentration unterkühlbar sind — die Werte sind mit den Frl. Hollstein's noch vergleichbar —, daß jedoch bei höherer Salzkonzentration die Erstarrungstemperatur sich den theoretischen Werten angleicht und schließlich mit ihnen zusammenfällt, im Gegensatz zu den in Ampullen eingeschmolzenen Proben, die sich viel tiefer unterkühlen lassen. Rau versucht den Unterschied dadurch zu erklären, daß die Tröpfchen auf den Metalloberflächen abdampfen können. Es tritt keine Übersättigung der Lösung ein, sondern feste Randablagerungen, die Impfwirkung für die Eisbildung besitzen. Es ist natürlich auch nicht völlig ausgeschlossen, daß die Impfwirkung auf die Tröpfchen von der Metalloberfläche her ebenfalls beeinflusst wird.

Andere Forscher, die sich in den letzten Jahren ebenfalls mit der Unterkühlungsfähigkeit von Kochsalz- bzw. Meersalzteilchen beschäftigt haben, neigen wiederum mehr der Auffassung E. Hollstein's zu.

H. R. Pruppacher und R. Sängler (49) haben die Eiskeimfähigkeit einer großen Zahl verschiedener Salze, darunter auch NaCl, untersucht. Sie fanden, daß Kochsalzteilchen der Größenordnung 0.5 bis 2 μ oberhalb —18°C als Gefrierkerne unwirksam sind.

C. L. Hosler und G. R. Spalding (50) beobachteten Eisbildung an NaCl-Aerosolen von 0.3 bis 0.4 μ Radius bei —31°C, bei kleineren Teilchen mit 0.1 bis 0.2 μ Radius dagegen erst bei —31.8°C, ein Ergebnis, das wiederum mit dem Befund Frl. Hollstein's gut übereinstimmt.

B. J. Mason (51) gelang es sogar, Tröpfchen konzentrierter Salzlösung bis —55°C abzukühlen, ohne daß Eisbildung auftrat, obwohl bereits ab —43°C Salzkristalle aus der Lösung abgeschieden wurden. Die Experimente Mason's erlauben daher den Schluß, daß Salztröpfchen bis zu Temperaturen unter —40°C in der Atmosphäre existieren können, d. h. bis zu einer Temperatur, bei der ohnehin der Gefriervorgang im allgemeinen spontan einsetzt. Mason vertritt jedoch die Anschauung, daß mit dem Beginn von Kondensationsvorgängen in der Atmosphäre die Konzentration der Salztröpfchen rasch verdünnt wird, so daß der den Gefrierpunkt herabsetzende Salzanteil seine Wirkung in zunehmendem Maße verliert.

Eine vollkommen gegensätzliche Meinung kommt in der Arbeit von S. J. Birstein und C. E. Anderson (52) zum Ausdruck. Diese Autoren erzeugten Seesalz durch das Verdampfen von Meerwasser. Die Seesalzlückstände wurden zu feinen Teilchen vermahlen und in eine Kältekammer gebracht. Bereits bei Temperaturen um —15°C führten diese Teilchen zur Eisbildung. Wiederholungen der Versuche erbrachten das gleiche Ergebnis. Die Verfasser schließen aus ihren Studien, daß es ohne Frage sei, daß feine Seesalzteilchen als Eiskeime in unterkühlten Wolken wirksam sind.

Neben den experimentellen Laboruntersuchungen sind in Zusammenhang mit der Problemstellung der eigenen Untersuchungen zwei weitere Arbeiten von Interesse. Zunächst ist hier die Bearbeitung von W. Schwerdtfeger (53) zu nennen, der eine sehr gründliche Auswertung von 823 Flugzeugaufstiegen vorgenommen hat, die er in den Jahren 1942—1944 im Seegebiet südwestlich der Färöer durchführte. Bei 256 Flügen wurden Schauer durchflogen, deren charakteristische Merkmale in dem genannten Aufsatz behandelt werden. Schwerdtfeger kommt dabei zu dem überraschenden Ergebnis, daß die Eisbildung in Wolken über dem Ozean bei höheren Temperaturen einsetzt als über dem Kontinent. Die Temperatur im Gipfel der Wolke braucht in den meisten Fällen —12°C nicht zu erreichen, damit sich ein Schauer bilden kann. Ein Bereich bemerkenswerter Häufigkeit liegt bei —4°C und fällt mit dem ersten Maximum des Gefrierkernspektrums nach Rau zusammen. Diese Beobachtungen Schwerdtfeger's lassen sich nur schwer mit der Beschaffenheit des maritimen Aerosols in Einklang bringen, es sei denn, man setzt voraus, daß auch über den Ozeanen die Eisteilchenbildung bevorzugt an kontinentalen Teilchen ansetzt. Schwerdtfeger sieht sich auch außerstande, für das Ergebnis seiner Bearbeitung eine plausible Erklärung anzuführen. Es geht allerdings aus seiner Arbeit nicht mit Sicherheit hervor, daß in den die Schauer liefernden Wolken wirklich Eisteilchen einwandfrei festgestellt worden sind, Schwerdtfeger setzt dies wohl voraus, wenn er schreibt „bei Regen ohne Eisteilchen muß es sich wenigstens in gemäßigten Breiten um Ausnahmefälle ungewöhnlicher Koagulationsbedingungen handeln“. Auf Grund neuerer Erkenntnisse kann jedoch die Notwendigkeit der Beteiligung der Eisphase auch in der gemäßigten Zone, vor allem über den Meeren, nicht mehr aufrechterhalten werden, wie sie offensichtlich von Schwerdtfeger noch vorausgesetzt wurde. Es ist daher die Wahrscheinlichkeit groß, daß in der Zusammenstellung Schwerdtfeger's eine Anzahl Fälle mit enthalten ist, bei denen trotz Gipfelerstarrung der Wolke zwischen 0°C und —10°C der Schauer ohne wesentliche Mitwirkung der Eisphase ausgelöst wurde.

Als bisher einziger Forscher hatte W. Rau (54) in Weissenau in Süddeutschland das Vorkommen der Chloridteilchen im natürlichen Aerosol gleichzeitig mit fortlaufenden Gefrierkernzählungen während der Dauer von neun Monaten überprüft. Das Hauptziel der Untersuchung Rau's war die Prüfung der Existenz eines direkten Zusammenhanges zwischen Chloridteilchen und Gefrierkernen. Seine Registrierungen lassen einwandfrei erkennen, daß diese zu verneinen ist. Am deutlichsten drückt sich dies in der Tatsache aus, daß besonders hohe Chloridteilchenzahlen, wie sie an einzelnen Tagen auftraten, keine Parallele im Gefrierkerngehalt besitzen. Es überrascht, daß Rau nie Chloridteilchen größer als 2 μ fand, dagegen häufig kleinere Partikel als 1 μ . Die Allgemeingültigkeit der Messungen Rau's wird durch die Tatsache etwas eingeschränkt, daß die Meßstelle Weissenau rund 600 km von der Meeresküste entfernt ist. Die Zahl der Chloridteilchen maritimer Herkunft ist an einem Ort inmitten des Kontinentes, gegenüber der Zahl der übrigen Kondensationskerne nur von untergeordneter Bedeutung. Außerdem muß mit Sicherheit angenommen werden, daß ein Teil der in Weissenau auftretenden Chloridteilchen kontinentaler Herkunft sind. Dem Verfasser der vorliegenden Arbeit sind auf Grund seiner Tätigkeit im Rahmen der Untersuchungen der Luftverunreinigungen allein aus dem Frankfurter Raum einige industrielle Chloridquellen bekannt, und auch C. Junge (55) vertritt unter Zugrundelegung seiner

Chloridanalysen des atmosphärischen Aerosols, die er in verschiedenen Kerngrößenklassen getrennt vornahm, die Auffassung, daß sehr viele der über dem europäischen Festland gefundenen Chloridteilchen mit Radien unter 0.8μ kontinentalen Ursprungs sind.

Wir betrachteten es daher als eine entscheidende Voraussetzung für die Eindeutigkeit von Vergleichsmessungen zwischen Gefrierkernen und Meersalzteilchen, daß diese an einem Ort vorzunehmen sind, wo die Herkunft der Chloridteilchen einwandfrei feststeht und wo industrielle Aerosole vernachlässigbar sind. Diese Bedingung ist an der westirischen Küste erfüllt.

4.3.2. Bericht über die Messungen in Valentia/Irland

Die Durchführung der Messungen erfolgte in der Zeit vom 25. Juli bis 18. August 1958, wobei jeweils eine Messung vormittags und eine weitere nachmittags vorgenommen wurde. Neben der Zahl der Gefrierkerne, die in Abhängigkeit von der Temperatur der Luftprobe in der Kältekammer bestimmt wurde, haben wir die Konzentration der Aitkenkerne mit einem kleinen Kernzähler nach Scholz sowie die der „großen“ Kerne mit einem Zeiß-Konimeter bestimmt. Das einfache Handkonimeter von Zeiß war für die expeditionsartigen Verhältnisse des Irlandunternehmens besser geeignet, als das Doppel- bzw. das Stufenkonimeter, das bei den Messungen der „großen“ Kerne auf dem Kontinent verwendet worden war. Außerdem hat A. L. Metnieks eingehende Studien der Seesalzkerne betrieben. Die Konimeterpräparate der „großen“ Kerne, die erst nach der Rückkehr nach Frankfurt/M. mikroskopisch ausgewertet werden konnten, waren bedauerlicherweise zum großen Teil durch die hohe Luftfeuchte in Valentia und das Vorherrschen der hygrokopischen Meersalzteilchen unbrauchbar geworden, so daß nur die einwandfreien Präparate der letzten Tage des Aufenthaltes berücksichtigt wurden.

Als Geräteraum für die Aufstellung des umfangreichen Instrumentariums, das für die Gefrierkernbeobachtungen erforderlich war, stand ein alleinstehendes Häuschen in etwa 100 m Entfernung von der Kabelstation zur Verfügung. Dieselbe liegt rund 600 m südwestlich des Dorfes Knightstown, unmittelbar am Ufer des 800 m bis 1000 m breiten Kanals, der die Insel Valentia vom Festland trennt (siehe Abb. 23). Die kürzeste Entfernung zum offenen Ozean nach Norden bzw. Nordwesten beträgt etwa 2 km. Zwischen der Kabelstation und der Atlantikküste erheben sich zwei Hügel von 200 bis 300 m Höhe. Alle Luftströmungen aus der Richtung zwischen 200° und 320° sind rein maritimer Herkunft, sie haben bis zum Erreichen der Insel Valentia nirgends das Festland berührt, während bei Advektion aus den übrigen Richtungen die Möglichkeit eines zeitweiligen Überstreichens des Festlandes nicht ausgeschlossen werden kann.

Die Wetterlage während der Meßperiode zeichnete sich durch ausgeprägte zonale Zirkulation aus, wobei über Irland heftiges zyklonales Geschehen herrschte, das bei raschem Wechsel von Vorderseiten- und Rückseitenwetter meist Luftmassen maritimer Herkunft nach Irland führte. Erst in den letzten Tagen unseres Aufenthaltes kam es zu einer gewissen Wetterberuhigung, bei der sich eine sommerliche Hochdrucklage einstellte. Zur Erläuterung der allgemeinen Wettersituation wurde in Abb. 25 in der obersten Reihe die Großwetterlage für den Zeitraum vom 25. 7. bis 18. 8. eingetragen. Die Angaben wurden der monatlichen Übersicht des Deutschen Wetterdienstes entnommen. Vom 25. 7. bis 16. 8. dauerte eine Westwetterlage an (W_c = zyklonale Westlage, W = Westlage mit unterschiedlich

zyklonalem und antizyklonalem Charakter), die nur vom 8. bis 11. 8. durch ein sich in Irland kaum auswirkendes Hochdruckgebiet unterbrochen wurde (H_M = Hoch über Mitteleuropa). Erst ab 16. 8. setzte sich stärkerer Hochdruckeinfluß durch.

Eine Übersicht über die Ergebnisse der Einzelmessungen gibt die Abb. 24, und zwar von oben nach unten Aitkenkerne, Gefrierkerne und Seesalzkerne. Alle Werte stammen von der Meßstelle an der Kabelstation. Für jede der drei Komponenten wurde der Mittelwert aus allen Messungen bestimmt und ebenfalls in Abb. 24 eingetragen. Überdurchschnittlich hohe Werte der Aitkenkern- und Gefrierkernzahl wurden durch Schraffierung hervorgehoben, während bei der Darstellung der Seesalkernzahl die Werte, die unter dem Durchschnitt lagen, schraffiert sind. Die meteorologischen Symbole in der obersten Reihe sollen auf besondere Witterungserscheinungen während der Meßzeit hinweisen. Der nach oben gerichtete Pfeil (↑) bedeutet, daß an diesem Tage windschwaches Strahlungswetter mit Konvektion herrschte. Man erkennt aus Abb. 24, daß alle Meßgrößen starke unperiodische Schwankungen von Tag zu Tag aufweisen, ähnlich wie sie an den Meßstellen auf dem Kontinent auftraten (siehe Abb. 8 — Messungen auf der Zugspitze). Abweichend von den bisherigen auf dem Kontinent gewonnenen Ergebnissen fällt jedoch eine gewisse Parallelität des Ganges zwischen Gefrierkernen und Aitkenkernen ins Auge.

Die Konzentration der Aitkenkerne bewegte sich während der Messungen auf der Insel Valentia innerhalb folgender Grenzen:

Minimum	Durchschnitt der 48 Messungen	Maximum
230/ccm	2030/ccm	15500/ccm

Die gefundenen Werte sind damit von gleicher Größenordnung wie die in der Übersicht von H. Landsberg (56) enthaltenen Angaben für Inseln und Ozeane:

	Durchschnittl. Minimum	Durchschnitt	Durchschnittl. Maximum
Inseln	460/ccm	9200/ccm	43600/ccm
Ozeane	840/ccm	940/ccm	4680/ccm

Es muß berücksichtigt werden, daß auch bei den Versuchen in Valentia der Einfluß anthropogener Kernquellen in Form von Feuerstellen im Ort Knightstown und von Generatorabgasen der Kabelstation nicht immer völlig ausgeschaltet werden konnte, doch hält sich ihr Anteil in bescheidenen Grenzen, da der fast immer herrschende Wind für raschen Luftwechsel sorgte. Parallel mit den eigenen Aitkenkernmessungen wurden solche auch am Observatorium im Cahirciveen mit einem photoelektrischen Kernzähler nach L. W. Polak durchgeführt. Die Schwankungen des Aitkenkerngehaltes von Tag zu Tag verlaufen dort im allgemeinen gleichsinnig mit denen auf der Insel, wenngleich die Absolutwerte der Konzentration häufig größere Unterschiede voneinander aufweisen.

Hinsichtlich der Seesalkernzahl erkennt man aus Abb. 24, daß von einem Zusammenhang mit der Gefrierkernzahl nicht gesprochen werden kann, sehr häufig sind sogar hohe Gefrierkernwerte mit besonders niedrigen Konzentrationen der Seesalzteilchen verknüpft. Sehr deutlich erkennt man diese Tatsache am 4. und 5. August, an dem extrem hohe Werte der Seesalzteilchen gemessen wurden, aber nur ein ganz geringer Anstieg der Gefrierkernzahl beobachtet wurde. Nicht einmal der Durchschnittswert wurde erreicht. Erst am 6. August nimmt die Gefrierkernkonzentration wieder höhere, über dem Durchschnitt liegende Werte an. Zu diesem Zeitpunkt ist jedoch die Zahl der Salz-

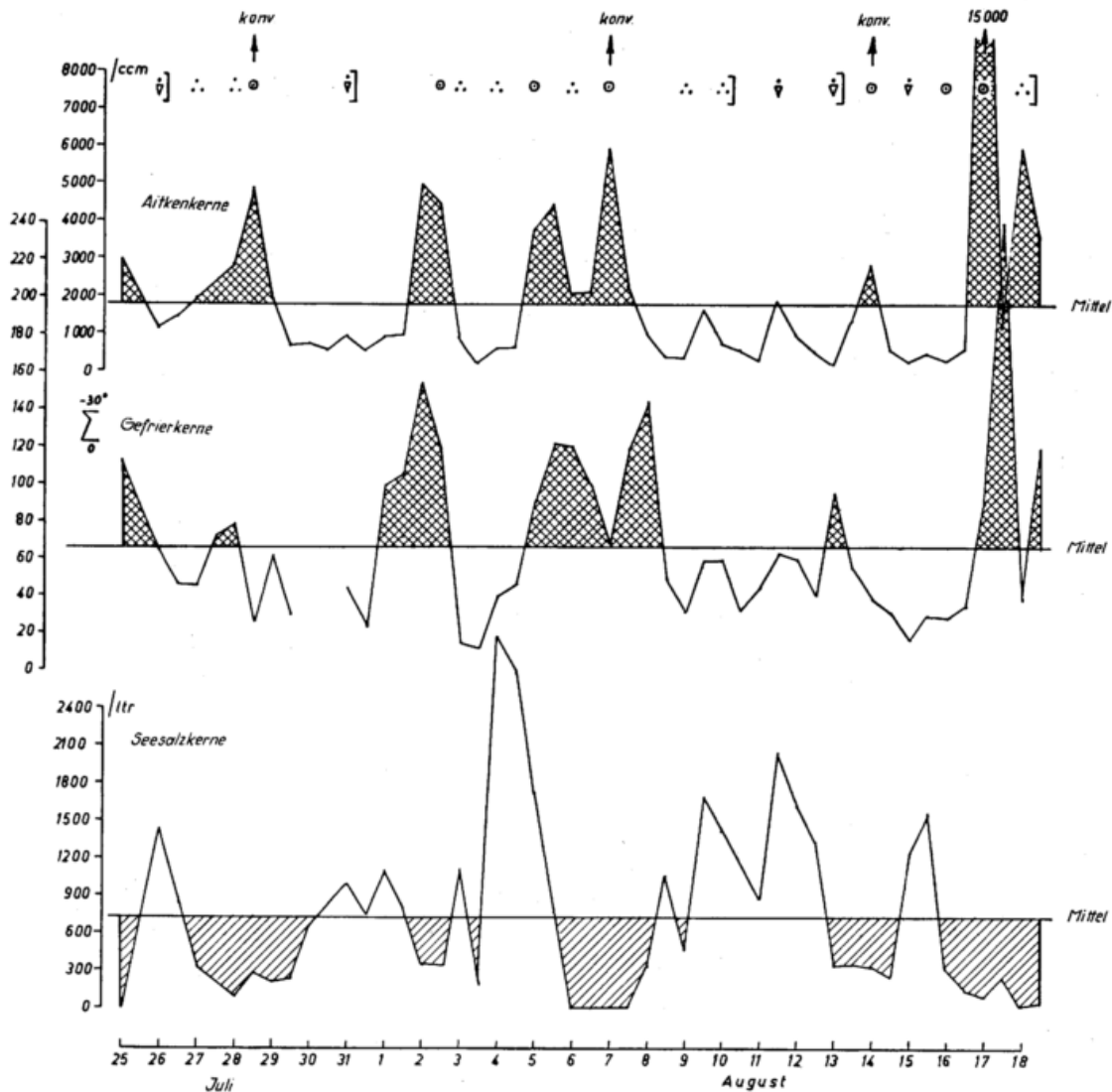


Abb. 24
Ergebnisse der Messungen der Gefrierkerne, Seesalzkerne und
Aitkenkerne auf der Insel Valentia (Juli — August 1958)

teilchen bereits stark abgesunken. Ein entsprechendes Verhalten zeigen diese beiden Komponenten auch am 17. August. An diesem Tag wird der Maximalwert der Gefrierkernkonzentration erreicht, der Salzteilchengehalt der Luft ist am gleichen Tag dagegen äußerst niedrig.

Weiterhin zeigt die Abb. 24, daß an Tagen mit Dauerregen die Gefrierkernzahl und die Aitkenkernzahl meist niedrig sind, was oft auch für die Zahl der Seesalzteilchen im Falle von Niederschlag gilt. Abweichungen treten dann auf, wenn der Niederschlag von starkem Wind begleitet ist. Im Gegensatz zu den Ergebnissen auf dem Kontinent findet man bei Strahlungswetter, das während der Meßzeit an der irischen Westküste allerdings meist ebenfalls mit hohen Windgeschwindigkeiten verbunden war, häufig hohe Werte der Gefrierkern- und Aitkenkernkonzentrationen. Unsere Messungen in Frankfurt hatten gezeigt, daß im Rhein-Mainbecken bei windschwachem Strahlungswetter die Zahl der Gefrierkerne unter der Durchschnittskonzentration bleibt.

Die Zusammenhänge zwischen den verschiedenen in Valentia gemessenen Komponenten des atmosphärischen Aerosols werden in der Darstellungsweise der Abb. 25 noch klarer herausgestellt. In dieser Abbildung wurde die Konzentration der Aitkenkerne, Gefrierkerne und Seesalzkerne in einem Relativmaß auf-

getragen, wobei der Durchschnitt aller Messungen während des Zeitraumes 25. Juli bis 18. August = 100% gesetzt wurde. Die einzelnen Tageswerte wurden als Bruchteile bzw. Vielfaches dieses Mittelwertes angegeben. Aus dem Wert der Vormittags- und der Nachmittagsmessung wurde ein Tagesmittelwert gebildet und dieser eingetragen. Hierdurch wird das Bild übersichtlicher und man erkennt, daß sich die Konzentrationsänderungen der drei Meßgrößen im großen Ganzen innerhalb eines vergleichbaren Schwankungsreiches halten.

Deutlicher als in Abb. 24 kommt in dieser Darstellung die Tatsache zum Ausdruck, daß zwischen Gefrierkerngehalt und Seesalzgehalt der Luft in der Mehrzahl der Fälle eine entgegengerichtete Beziehung besteht, während der Gang der Aitkenkerne und der Gefrierkerne gleichsinnig verläuft. Die beiden obersten Kurvenzüge der Abb. 25 geben die Beobachtungen der Windstärke und Windrichtung wieder, die den Aufzeichnungen des Observatoriums Cahirciveen des Irischen Wetterdienstes entnommen wurden. Die Windstärke ist in Prozent ihres zeitlichen Mittelwertes eingetragen, die Windrichtung in der üblichen 360°-Einteilung. Es wurde versucht, die Luftmassen rein maritimer Herkunft von denjenigen abzutrennen, bei denen eine teilweise Advektion über das Festland stattfindet und somit innerhalb der Luftmasse Aerosolteil-

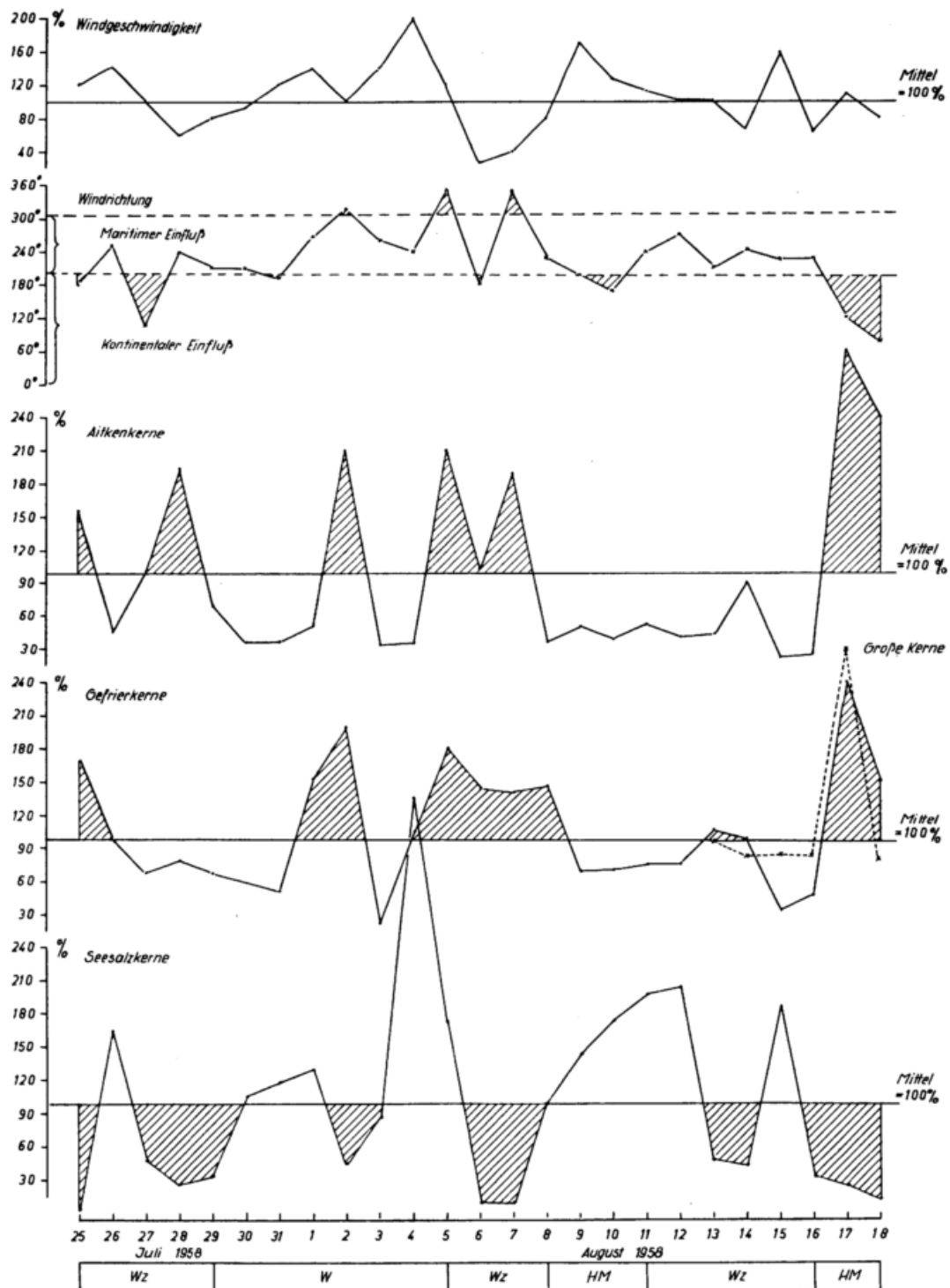


Abb. 25
Relativwerte der Meßergebnisse auf der Insel Valentia

chen kontinentalen Ursprungs transportiert werden können. Die Luftmassen, die aus der Richtung zwischen 300° und 360° nach Irland geführt werden, sind polarer Herkunft. Sie enthalten auf Grund der Erfahrungen der Messungen in Deutschland stets eine hohe Zahl aktiver Gefrierkerne.

Die Abb. 25 zeigt deutlich, daß in Valentia immer dann eine hohe Gefrierkernkonzentration festgestellt wurde, wenn eine Advektion über das Festland bzw. von Luftmassen polarer Herkunft stattfindet. Diese Feststellung stützt die Theorie, daß die Gefrierkerne vorwiegend kontinentale Teilchen sind, nicht aber Seesalzkerne. Die Auswertung der Messungen der „großen“ Kerne, die in Abb. 25 zusammen mit dem

Kurvenzug der Gefrierkerne eingetragen ist, spricht ebenfalls dafür. Am 17. August geht mit dem Anstieg des Gefrierkerngehaltes ein starker Anstieg der Zahl der „großen“ Kerne einher, wobei es sich in diesem Fall nicht um Seesalzteilchen, sondern vorwiegend um kristalline Partikel handelt. Die Konimeterpräparate vom 17. August waren gerade durch die fast völlige Abwesenheit von Seesalzteilchen besonders gut auszuwerten. Die Windgeschwindigkeit beeinflusst die Höhe der Gefrierkernkonzentration im Gegensatz zur Seesalzteilchenkonzentration offensichtlich nicht.

Die Tagesmittelwerte der drei untersuchten Aerosolkomponenten — Gefrierkerne- Seesalzkerne und Aitkenkerne — wurden in Abb. 26 zueinander in Bezie-

hung gesetzt. Aus Abb. 26a, die die Angaben für Gefrierkerne und Seesalzkerne enthält, entnimmt man, daß ein eindeutiger Zusammenhang zwischen beiden Größen in dem Sinne, daß mit zunehmender Salzteilchenzahl die Zahl der oberhalb -30°C aktiven Gefrierkerne abnimmt, nicht zu erkennen ist. Man muß vielmehr den Schluß ziehen, daß beide Größen voneinander unabhängig sind. Es ist jedoch bemerkenswert, daß im Bereich sehr niedriger Werte der Salzteilchenzahl, nämlich bei Konzentrationen unter 200/ltr. nur überdurchschnittlich hohe Gefrierkernzahlen auftreten (nur Werte über 90). Bei Salzteilchenzahlen zwischen 300 und 1800/ltr. kommen hohe und niedrige Werte des Gefrierkerngehaltes der Luft ohne jeden ersichtlichen Zusammenhang vor, während bei extrem hohen Werten der Salzteilchen offensichtlich mit einem Auftreten von mittelhohen Werten der Gefrierkernkonzentration gerechnet werden kann. Im letzteren Fall dürfte die leichte Erhöhung der Gefrierkernkonzentration durch den Umstand erklärt werden, daß außergewöhnlich hohe Salzteilchenzahlen stets im Gefolge von sehr hohen Windstärken auftreten, die naturgemäß auf der Insel Valentia auch feste kristalline Teilchen aufwirbeln. Diese können als Gefrierkerne wirken.

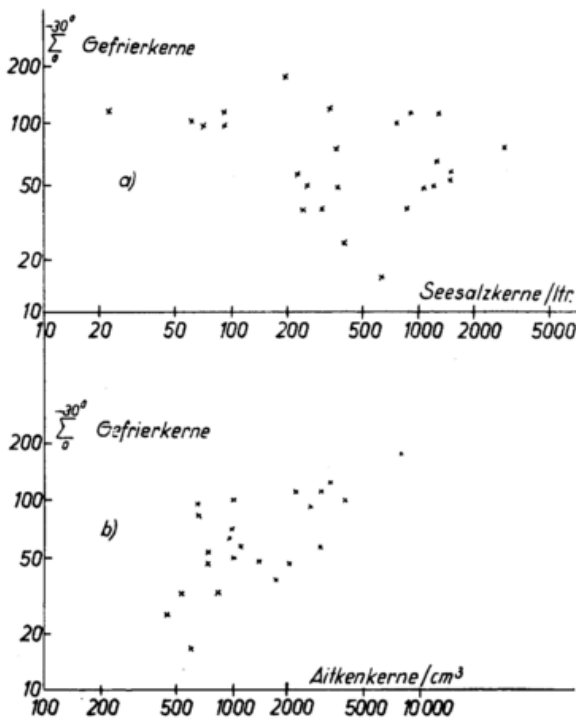


Abb. 26
Beziehungen zwischen Gefrierkernen, Seesalzkerne und Aitkenkernen

Der Korrelationskoeffizient zwischen Seesalzkerne und Gefrierkernen ergibt sich zu $R = -0.37$. Diese Korrelation ist nach C. Conrad (57) nicht überzufällig hinsichtlich einer Gegenläufigkeit der beiden Komponenten, sie bestätigt jedoch den Eindruck, den man bereits aus Abb. 24 und 25 gewann, daß der Gefrierkerngehalt der Luft von der Seesalzteilchenkonzentration unabhängig ist.

Eine entsprechende Darstellung für die Beziehung zwischen Gefrierkernen und Aitkenkernen zeigt Abb. 26b. Während bei allen früheren Messungen, die der Verfasser auf dem Kontinent vorgenommen hat, keinerlei Zusammenhang zwischen den im Temperaturbereich zwischen 0° und -30° aktiven Gefrierkernen und der Konzentration der Aitkenkerne existierte, besteht nach den Meßergebnissen auf Valentia eine Korrelation von $R = 0.74$ zwischen Gefrierkernen und

Aitkenkernen. Dieser Koeffizient ist überzufällig, da der Zufallshöchstwert bei 25 Wertpaaren nur 0.56 beträgt. Die Zahl der Gefrierkerne nimmt also mit steigender Aitkenkernzahl zu. Der Verfasser möchte auf Grund dieses Ergebnisses nicht den Schluß ziehen, daß in Abweichung von kontinentalen Verhältnissen über den Ozeanen die Aitkenkerne bereits bei höheren Temperaturen als -30°C für die Eiskeimbildung herangezogen werden. Allerdings ist dies bei den Mangel an größeren Partikeln, die für die Eisteilchenbildung in Frage kommen, nicht ausgeschlossen. Vielmehr aber scheint es, daß die Aitkenkernkonzentration in Valentia ein Indikator für die Stärke des kontinentalen Einflusses, d. h. für die Advektion kontinentaler Aerosole vom Festland her ist. Dies würde auch der Auffassung von C. Junge entsprechen, daß die Aitkenkerne durchweg kontinentaler Herkunft sind. Es darf mit an Sicherheit grenzender Wahrscheinlichkeit angenommen werden, daß sich mit dem Anstieg der Zahl der Aitkenkerne im allgemeinen auch die Zahl der „großen“ Kerne kontinentaler Herkunft erhöht, wie auch die Meßergebnisse der „großen“ Kerne vom 13. bis 18. August (siehe Abb. 25) andeuten. Diese sind es dann wohl, die bevorzugt bei höheren Temperaturen als Gefrierkerne wirksam werden.

Wenn man die hier dargelegten Ergebnisse der Gefrierkernmessungen an der irischen Westküste überblickt, so kann man folgende Feststellung ohne Einschränkung treffen: Auch unter maritimen Bedingungen sind es vorwiegend kontinentale Teilchen, die im Temperaturbereich zwischen 0° und -30°C als Gefrierkerne wirken. Ein nennenswerter Einfluß der Seesalzteilchen auf die Gefrierkernkonzentration besteht dagegen nicht.

Die hervorragende Eiskeimwirkung gewisser kristalliner Partikel, die auf dem Festland verbreitet sind und auch in der Atmosphäre als Aerosole vorkommen, wurde kürzlich von B. J. Mason und J. Maybank (58) durch Laboruntersuchungen bestätigt. Möglicherweise ist die bevorzugte Eisteilchenbildung an kontinentalen Aerosolen auch eine Erklärung für die Beobachtung von H. Flohn (59), der eine isolierte vereiste Cumuluswolke mit einer Gipfeltemperatur von nur etwa -6°C über dem Festland über Neufundland feststellte, d. h. über einem Gebiet, wo durch Konvektion kontinentale Teilchen nach oben transportiert werden können. Gleichartige Wolken in der Umgebung wiesen dagegen noch keine Zeichen von Eisbildung auf.

Das Ziel unserer Untersuchungen an der irischen Westküste war, in Ergänzung der Messungen an den drei kontinentalen Meßstellen, wo das kontinentale Mischkernaerosol vorherrschend ist, zusätzliche und neue Erkenntnisse über die Eisbildung in unterkühlten Wolken an einem Ort zu gewinnen, an dem das rein maritime Salzkerne-aerosol überwiegt. Dieses Ziel wurde weitgehend erreicht.

4.4. Nachweis der Eiskeimwirkung des atmosphärischen Aerosols durch „direkte Methoden“

Wie in den vergangenen Kapiteln beschrieben, ließ die Auswertung der parallelen Messungen der Kondensationskerne und der Gefrierkerne, die an drei kontinentalen Meßstellen vorgenommen wurden, eine enge Beziehung zwischen Kondensationskernen bestimmter Größe und ihrer Aktivität bei der Eisbildung erkennen. Dieser Zusammenhang sollte nun möglichst durch einen direkten Nachweis bestätigt werden. Er wurde durch ein Verfahren geführt, das man als „fraktionierte Filterung“ bezeichnen könnte und im wesentlichen darin bestand, daß bestimmte Teilchengrößenbereiche des atmosphärischen Aerosols vor dem Ein-

strömen in die Kältekammer ausgefiltert wurden. Zur Abscheidung der Teilchen wurde ein Dreistufenkonimeter entwickelt, das es ermöglicht, Teilchen aus dem Größenbereich zwischen 0.2μ und 20μ quantitativ niederzuschlagen. Im Rahmen dieser Arbeit soll nur eine verkürzte Beschreibung dieses Gerätes gegeben werden, dessen wesentliche Konstruktionsmerkmale und Eichmessungen bereits vor einiger Zeit veröffentlicht wurden (60).

4.4.1. Beschreibung eines Dreistufenkonimeters zur Abscheidung der „großen“ und Riesenkerne

Die Abb. 27 zeigt einen Längsschnitt durch das eigentliche Konimeter. Es besitzt drei Schlitzdüsen in Reihe, durch die die Luft mit einer konstanten Fördergeschwindigkeit von $300 \text{ cm}^3/\text{sec}$ gesaugt wird. Die Abscheidung in drei getrennte Größenbereiche wird durch Verkleinerung und Verengung der Schlitzdüsen bewirkt. Der Abstand der Objektträger von den Düsen wird ebenfalls von Stufe zu Stufe verringert. Dies führt zu einer schrittweisen Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeit und zu einer Verschärfung der Umlenkung des Luftstromes. Beim Bau des Gerätes wurde ein besonderes Augenmerk darauf gerichtet, daß die innere „Bearbeitung“ aerodynamisch günstig ist, um Turbulenz und durch Wirbelbildung verursachten Teilchenverlust an den Wänden möglichst zu vermeiden. Für die optimale Auftrennung des Aerosols in drei Größenbereiche erwiesen sich folgende Spaltdimensionen als günstig:

Spalt I:	Länge: 15 mm,	Weite: 1.5 mm
Spalt II:	Länge: 10 mm,	Weite: 0.58 mm
Spalt III:	Länge: 7,5 mm,	Weite: 0.20 mm

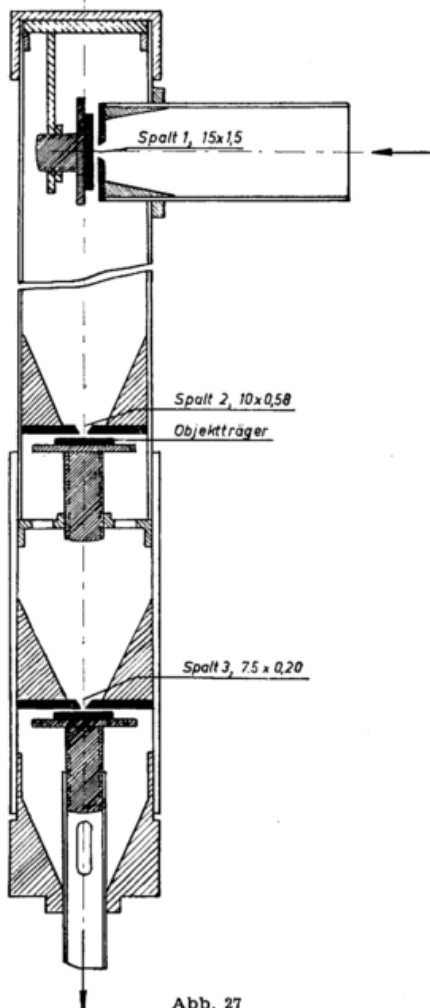


Abb. 27
Schnitt durch ein Dreistufenkonimeter

Es ist jedoch zu berücksichtigen, daß bei dem engen Spalt III der Luftstrom beim Durchtritt eine gewisse Einschnürung erfährt, so daß die effektive Spaltweite noch weniger als 0.2 mm beträgt. Der Abstand der Düsen von den Objektträgern wurde im Verlauf der Voruntersuchungen mehrfach variiert und schließlich auf das 1.5-fache der Schlitzweite eingestellt. Im Gegensatz zu früheren, nach dem Konimeterprinzip arbeitenden Geräten, wurden hier Schlitzdüsen den üblichen Lochdüsen vorgezogen. Die Auswertung der niedergeschlagenen Teilchen ist bei diesen wesentlich einfacher, außerdem können durch Veränderung der Weite des Spaltes die Strömungsgeschwindigkeit und damit die zur Abscheidung gelangenden Partikelgrößen variiert werden, wodurch die Verwendungsmöglichkeit des Gerätes erweitert wird.

Eine vollständige Lösung der die Abscheidung im Konimeter beschreibenden theoretischen Ansätze kann heute noch nicht gegeben werden. W. E. Ranz und J. B. Wong (61) zeigten, daß der Abscheidefaktor ε eine Funktion des dimensionslosen Parameters ψ ist, der wie folgt definiert wurde:

$$\psi = \frac{C \rho_p v d_p^2}{6 \pi d_s \eta}$$

$$C = \text{empirischer Korrektionsfaktor} = 1 + \frac{0.16 \cdot 10^{-4}}{d_p}$$

ρ_p = Dichte der Teilchen

v = Geschwindigkeit des Luftstromes durch die Düse

d_p = Teilchendurchmesser

η = Viskosität der Luft

d_s = Spaltbreite

Ranz und Wong erzielten vollständige Abscheidung ($\varepsilon = 1$) für Teilchen einer bestimmten Größe, wenn $\sqrt{\psi} > 0.81$ war. Der Abscheidefaktor ε war gegen Null, wenn $\sqrt{\psi} < 0.30$ war. Wenn man den Parameter $\sqrt{\psi} = 1$ setzt, wobei noch ein Sicherheitsfaktor einbezogen ist, so berechnen sich bei den oben angegebenen Spaltdimensionen und Fördermengen und unter Annahme einer Teilchendichte von 2 gr/cm^3 folgende Radien für die untere Teilchengröße, die noch mit Sicherheit abgeschieden wird:

Spalt I: $2.3 \times 10^{-4} \text{ cm}$

Spalt II: $7.0 \times 10^{-5} \text{ cm}$

Spalt III: $2.5 \times 10^{-5} \text{ cm}$

Der effektive Wirkungsgrad der Abscheidung wurde mit künstlichen Wachsteilchenaerosolen (Vorzug: sphärische Teilchen) bekannter Größenverteilung und Konzentration untersucht. Eine Kontrolle des Abscheidefaktors wurde dadurch ermöglicht, daß ein weiteres, von C. J. u n g e verbessertes Zeiß-Konimeter hinter dem Luftaustritt des Stufenkonimeters angebracht wurde, mit dem die von diesem durchgelassenen Teilchen abgemessen werden konnten. Die Konstruktion der Stufenkonimeter läßt eine gewisse Überschneidung der an den drei Stufen abgeschiedenen Größenbereiche der Teilchen nicht völlig vermeiden. Die hier angegebenen Spaltdimensionen fußen auf den Ergebnissen einer längeren Meßreihe, die unter dem Gesichtspunkt durchgeführt worden war, eine möglichst gute Trennung zu erzielen. Teilchen über $8 \times 10^{-5} \text{ cm}$ Radius werden mit Sicherheit abgeschieden, für Teilchen mit einem Radius über $3 \times 10^{-5} \text{ cm}$ beträgt der Abscheidefaktor — das Verhältnis der Zahl der niedergeschlagenen Teilchen zu der Gesamtzahl der Teilchen dieser Größe — noch 0.75. Diese Angaben beziehen sich auf die Teilchenzahl. Betrachtet man den abgeschiedenen Massenanteil, so werden über 0.95 der Gesamtmasse des Aerosols abgefangen.

Als eine weitere wichtige Voraussetzung der Untersuchungen, die den direkten Nachweis der Wirksamkeit der „großen“ Kerne als Gefrierkerne bei Tempe-

turen über -30°C erbringen soll, müssen die Aitkenkerne das Stufenkonimeter ohne Abscheidung passieren können. Die „Durchlässigkeit“ für Teilchen kleiner $0.1\ \mu$ konnte folgendermaßen bewiesen werden: In die zuvor kernfrei gemachte Kältekammer wurde während 40 Minuten frische Außenluft eingesaugt. Diese hatte das vor dem Luftintrittsstutzen befestigte Dreistufenkonimeter zu passieren. Der Aitkenkerngehalt der Luft in der Kältekammer wurde mittels des daran angeschlossenen automatischen Aitkenkernzählers nach Verzar laufend während der Frischluftzufuhr verfolgt. Die Aitkenkernzahl in der Kältekammer nahm während 30 Minuten stetig zu und erreichte nach dieser Zeit einen Sättigungswert, der nur 5% unter dem gleichzeitig gemessenen Aitkenkerngehalt der Außenluft lag. Dieser Wert wird auch bei weiterer Frischluftzufuhr in die Kammer konstant beibehalten. Die Versuche zeigten einmal, daß die Aitkenkerne im Dreistufenkonimeter nicht zurückgehalten werden, darüber hinaus aber, daß auch in dem kurzen Verbindungsrohr, das die Kältekammer durch das Dach des Institutsgebäudes mit der Außenluft verbindet, kein nennenswerter Kernverlust eintritt.

4.4.2. Die Gefrierkernkonzentration nach Ausfilterung der Teilchen über $0.2\ \mu$

Die Filtermessungen selbst wurden nach folgendem Arbeitsschema ausgeführt: Als erster Schritt wurde jedesmal eine normale Gefrierkernzählung mit ungefilterter Außenluft vorgenommen. Die Luftprobe wurde bis -42°C gekühlt, um alle in ihr enthaltenen Teilchen zur Eiskeimbildung heranzuziehen. Die Eisteilchen wachsen durch Sublimation an und fallen aus, wodurch die Kammer praktisch kernfrei gemacht wird. Als nächster Schritt wird die Kammer auf Temperaturen über den Gefrierpunkt erwärmt und 40 Minuten lang mit frischer Außenluft gespült, aus der die „großen“ und die Riesenkerne mittels des vorgeschalteten Dreistufenkonimeters entfernt wurden. Diese Luftprobe wird wiederum gekühlt und eine erneute Zählung der Gefrierkernkonzentration in Abhängigkeit von der Temperatur vorgenommen.

Insgesamt wurden 20 Doppelmessungen nach diesem Verfahren vorgenommen, deren Auswertung in Abb. 28 dargestellt ist. Um die 20 an verschiedenen

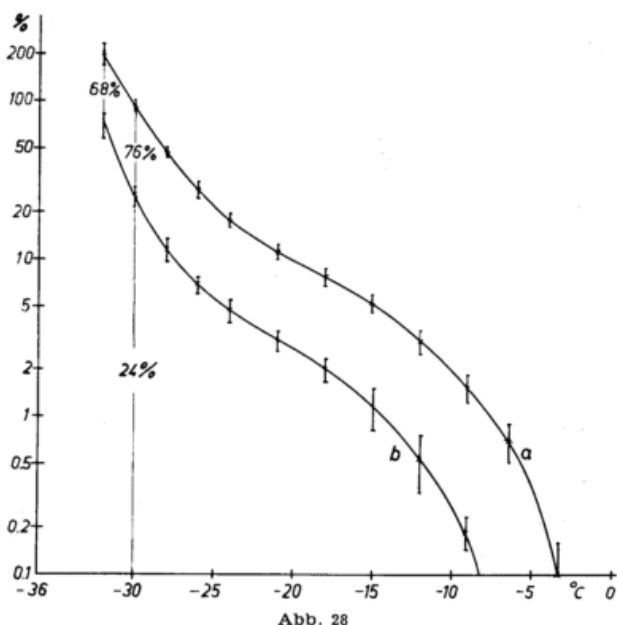


Abb. 28

Relative Gefrierkernkonzentration vor und nach Ausfilterung der „großen“ Kerne
a) Gefrierkernkonzentration in normaler Außenluft
b) Gefrierkernkonzentration nach Ausfilterung der „großen“ Kerne

Tagen durchgeführten Messungen miteinander vergleichbar zu machen, wurden die Werte der Gefrierkernkonzentration zunächst in ein relatives Maß umgerechnet und normiert. Hierzu wurde die Summe der zwischen 0°C und -30°C in normaler Außenluft auftretenden Gefrierkerne stets gleich 100 gesetzt und alle übrigen Angaben auf diesen Wert bezogen. Die Kurve a in Abb. 28 zeigt den mittleren Verlauf der Zunahme der Eisteilchenzahl in Abhängigkeit von der Temperatur für die 20 Außenluftmessungen. Die Ordinate der Abbildung ist mit logarithmischer Skala versehen, die Abszisse linear unterteilt. Die Umrechnung der Konzentration in ein relatives Maß eliminiert die häufig sehr beträchtlichen zeitlichen Schwankungen der Absolutzahl der Gefrierkerne in der Atmosphäre. Der Schwankungsbereich innerhalb des Temperaturintervalles zwischen 0°C und -30°C ist ebenfalls eingetragen. Er kann in der Hauptsache auf meteorologische Einflüsse zurückgeführt werden, ebenso wie auch die Schwankungen der Schwellentemperatur der Aktivierung der ersten Gefrierkerne. Der Anstieg der Konzentration in Abhängigkeit von der Temperatur entspricht in seinen wesentlichen Zügen — so der geringeren Zunahme der Gefrierkernzahl im mittleren Temperaturbereich und dem steilen Anstieg bei tiefen Temperaturen — den Ergebnissen anderer Forscher. Das Auftreten der ersten Eisteilchen wird etwa bei -4°C beobachtet.

Die Kurve b in Abb. 28 zeigt den Verlauf der Gefrierkernkonzentration auf Grund der 20 Vergleichsmessungen mit Luftproben, aus denen die „großen“ und die Riesenkerne vorher abgeschieden worden waren. Der Kurvenverlauf ist fast parallel zu a, jedoch zu niedrigeren Konzentrationen verschoben. Man erkennt einwandfrei, daß die „Schwellentemperatur“ um etwa $4-5^{\circ}\text{C}$ abgesunken ist. Oberhalb -30°C wird nach Ausfilterung der Teilchen über $0.2\ \mu$ eine mittlere Gefrierkernkonzentration von 25% des Normalwertes gefunden. Erst bei Temperaturen unter -30°C steigt die Gefrierkernzahl in der gefilterten Luft im Verhältnis stärker an, als dies in der Außenluft der Fall ist und erreicht bei -32°C 33% und bei -34°C rund 50% der Außenluftkonzentration. Die Gefrierkernkonzentration der Luft konvergiert also bei tiefen Temperaturen gegen die normale Gefrierkernkonzentration der Außenluft, ohne sie jedoch erreichen zu können. Die Verkleinerung der Differenz des Gefrierkerngehaltes der beiden Luftproben bei Temperaturen unter -30°C ist zweifellos auf die einsetzende Aktivierung der Aitkenkerne zurückzuführen, die von dem vorgeschalteten Stufenkonimeter nicht erfaßt werden und somit in beiden Luftproben enthalten sind. Die Konzentrationsangabe bei -34°C ist quantitativ nicht mehr mit der gleichen Genauigkeit möglich wie bei höheren Temperaturen, da die Eisteilchenzahl in normaler Außenluft bei dieser Temperatur bereits so hoch ist, daß eine genaue Bestimmung schwierig wird. Immerhin war ganz eindeutig feststellbar, daß die Konzentration der Gefrierkerne in der partiell gefilterten Luft unterhalb -32°C sehr stark ansteigt und der Wert von rund 50% der Außenluftkonzentration bei -34°C eher über- als unterschritten wird.

4.4.3. Die Gefrierkernkonzentration nach Ausfilterung der „Riesenkerne“

In konsequenter Fortführung der Versuche der fraktionierten Filterung des Aerosols wurde eine weitere Meßserie durchgeführt, bei der ausschließlich die Riesenkerne aus der auf Gefrierkerne zu untersuchenden Luftprobe abgeschieden wurden. Dies wurde auf folgende Weise erreicht: Das oben beschriebene Dreistufenkonimeter wurde nur mit Stufe I und II be-

trieben, Stufe III mit dem engsten Spalt, die zur Abscheidung der Teilchen unter 0.5μ dient, wurde dagegen entfernt. Auf der Nebenabbildung in Abb. 29 ist die Abscheidecharakteristik des Stufenkonimeters bei Verwendung mit Stufe I und II wiedergegeben, wenn der Luftstrom mit einer Fördermenge von $300 \text{ cm}^3/\text{sec}$ durchgesaugt wird. Der Wirkungsgrad der Abscheidung ist erwartungsgemäß keine Rechteckfunktion, die bei einer bestimmten Teilchengröße von 0 auf 100% springt, wie es für eine scharfe Trennung verschiedener Größenbereiche eigentlich wünschenswert wäre. Die Charakteristik ist ähnlich, wie man sie bei optischen Filtern kennt. Die Bestimmung des Anteiles der durchgelassenen und abgeschiedenen Teilchen und deren Größe zeigt, daß die Riesenkerne mit Radien über 1μ mit 90% Sicherheit im Konimeter zurückgehalten werden, was für unsere Zwecke völlig ausreichend ist. Allerdings werden auch noch 50% der Teilchen mit 0.7μ zurückgehalten, die gemäß dem Ziel dieser Meßserie eigentlich das Stufenkonimeter passieren sollten. Die Teilchengröße, bei der eine Filterwirkung von 50% erzielt wird, ist von C. Junge als Grenzzadius (r_g) bezeichnet worden (62). Dieser

Grenzzadius fällt bei unserem Gerät mit der Teilchengröße zusammen, wie man es nach Junge's Berechnungen und Experimentaluntersuchungen erwarten sollte.

Zum Ablauf der Gefrierkernzählungen selbst ist zu sagen, daß Anlage und Durchführung streng analog zu den oben beschriebenen Messungen mit Filterung der „großen“ und der Riesenkerne vor sich ging. Es wurden 15 Doppelmessungen vorgenommen, bei denen wiederum im ersten Meßgang die Gefrierkernkonzentration in normaler Außenluft in Abhängigkeit von der Kühltemperatur bestimmt wurde, und in einem zweiten, unmittelbar anschließenden der Gefrierkerngehalt einer Luftprobe untersucht wurde, aus der die Riesenkerne zuvor ausgefiltert worden waren. Das Ergebnis und damit gleichzeitig die Bedeutung dieses Teilchengrößenbereiches für die Eiskeimbildung zeigt die Abb. 29, in der die Gefrierkernkonzentration ebenfalls in relativem Maßstab eingetragen wurde, wie dies bereits in Abb. 28 geschah. Die Summe der zwischen 0°C und -30°C ansprechenden Gefrierkerne in normaler Außenluft wurde aus den 15 Messungen gemittelt und gleich 100 gesetzt.

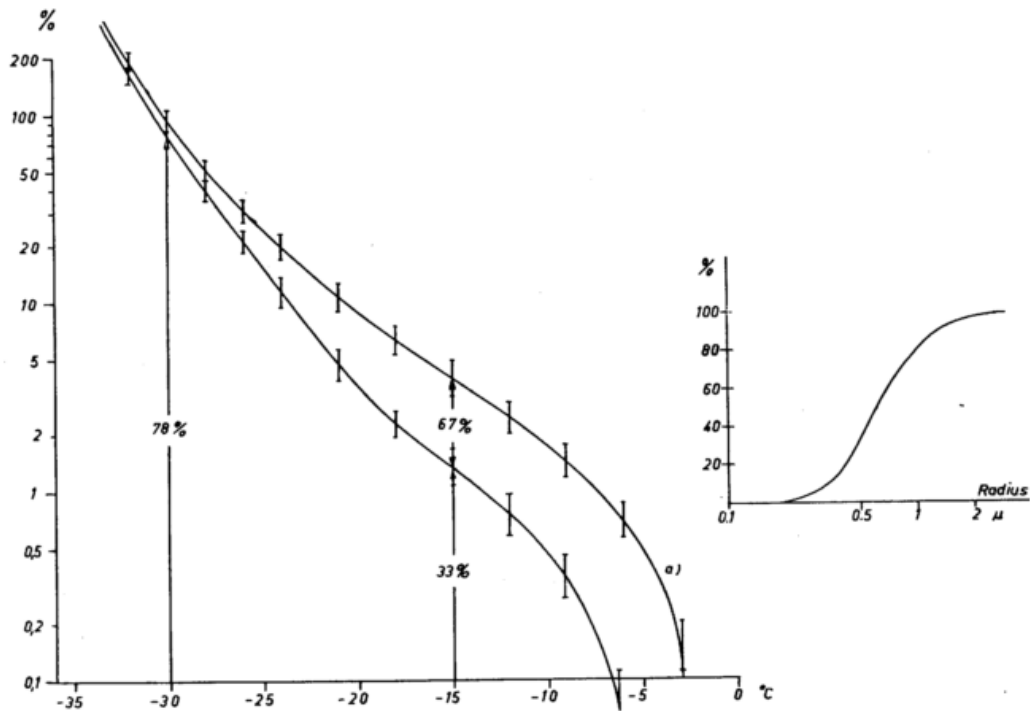


Abb. 29
Relative Gefrierkernkonzentration vor und nach Ausfilterung der Riesenkerne
a) Relative Konzentration in normaler Außenluft
b) Relative Konzentration nach Ausfilterung der Riesenkerne
Rechte Seite der Abb.: Abscheidefaktor bei Verwendung von Stufe I und II des Dreistufenkonimeters

Die Kurve a zeigt wiederum die mittlere Verteilung der Gefrierkernzahl in normaler Außenluft. Die Zunahme mit abnehmender Temperatur entspricht fast in allen Einzelheiten der Kurve a in Abb. 28, obwohl jene zuvor beschriebenen Filtermessungen der „großen“ Kerne in einem zeitlichen Abstand von 18 Monaten von diesen durchgeführt wurden. Man darf dies als Zeichen dafür ansehen, daß der aus einer größeren Zahl Messungen gewonnene mittlere Konzentrationsverlauf der Gefrierkerne in Abhängigkeit von der Temperatur in Frankfurt von Tagesschwankungen weitgehend unabhängig ist.

Kurve b in Abb. 29 beschreibt den Anstieg der Gefrierkernkonzentration der 15 Meßreihen, bei denen mittels Stufe I und II des Stufenkonimeters die „Riesenkerne“ vor der Abkühlung entfernt worden waren, während die überwiegende Mehrheit der „großen“ Kerne und alle Aitkenkerne in die Kältekammer eingesaugt werden. Die nachstehende Tabelle gibt den Bruchteil der Gefrierkernkonzentration an, der in bestimmten Temperaturbereichen a) nach Ausfilterung der „großen“ und der Riesenkerne und b) der Riesenkerne beobachtet wird, wenn man die normale Außenluftkonzentration gleich 1 setzt.

Temperaturbereich	Relative Gefrierkern- konzentration nach Ausfilterung der Teilchen	
	$> 2 \times 10^{-5} \text{ cm}$	$> 1 \times 10^{-4} \text{ cm}$
0° bis -15°C	0.21	0.33
0° bis -18°C	0.24	0.34
0° bis -21°C	0.22	0.46
0° bis -24°C	0.23	0.57
0° bis -26°C	0.22	0.67
0° bis -28°C	0.22	0.75
0° bis -30°C	0.25	0.78
0° bis -32°C	0.32	0.80
0° bis -34°C	etwa 0.5	etwa 0.85

Die Aktivierung der ersten Gefrierkerne ist gegenüber dem Normalfall in Außenluft um rund 40°C verzögert. Dies ist die gleiche Verschiebung der „Schwellentemperatur“ der Aktivierung, die bei den Filterversuchen im vorangegangenen Abschnitt festgestellt wurde. Diese Tatsache ergänzt die Beobachtungen, die in einem früheren Kapitel dieser Arbeit beschrieben sind, nämlich, daß bei hoher Konzentration der Riesenkerne in der Außenluft die Temperatur des Auftretens der ersten Eisteilchen in der unterkühlten Wolke hoch ist und mit abnehmender Zahl der Riesenkerne ebenfalls absinkt. Die Filterversuche unterstreichen damit die Bedeutung der kontinentalen Riesenkerne für die Eiskeimbildung. Hiervon muß jedoch streng die geringe Wirkung der maritimen Riesenkerne unterschieden werden.

Während bei Ausfilterung der „großen“ und der Riesenkerne die Kurve b in Abb. 28 erst bei Temperaturen um -30°C gegen die Kurve a zu konvergieren begann, wird bei ausschließlicher Abscheidung der Riesenkerne bereits ein starker Anstieg der Kurve b ab -20°C beobachtet. Sinkt die Temperatur unter -25°C, so schmiegt sich die Kurve b der Kurve a an, ein Zeichen dafür, daß die Ausfilterung der Riesenkerne bei tiefen Temperaturen nur noch von zweitrangiger Bedeutung ist. Jetzt werden kleinere Teilchen als Gefrierkerne wirksam, deren Größe auf Grund dieser Versuche zwischen 0.2 und 0.8 μ angenommen werden muß. Betrachtet man den Temperaturbereich zwischen 0°C und -30°C, so beträgt die Gefrierkonzentration bei Abwesenheit von Riesenkernen 78% der Normalkonzentration der Außenluft. Es muß jedoch berücksichtigt werden, daß es sich dabei um eine Aufsummierung der Gefrierkerne handelt. Bei einer gesonderten Betrachtung des Temperaturintervalles, zum Beispiel zwischen -28°C und -30°C, macht man die Feststellung, daß innerhalb dieses Bereiches die Gefrierkernkonzentration der Messungen in normaler Außenluft in den meisten Fällen bereits nicht mehr höher ist als in den Luftproben, in denen die Riesenkerne mittels des Stufenkonimeters entfernt worden sind.

Es bedarf an dieser Stelle der Erwähnung, daß der Abscheidekoeffizient des als Aerosolfilter verwendeten Dreistufenkonimeters für Teilchen kleiner $3 \times 10^{-5} \text{ cm}$ nur 83% und für Teilchen kleiner $5 \times 10^{-5} \text{ cm}$ 91% beträgt. Das Gerät besitzt einen gewissen „Schlupf“ und ein kleiner Teil der „großen“ Kerne wird durchgelassen, sie können in die Kältekammer eindringen und dort als Gefrierkerne wirken. Wenn die Konstruktion eines Gerätes mit 100prozentiger Abscheidefähigkeit gelänge, so dürften die in obiger Tabelle angegebenen Werte der Gefrierkernkonzentration zweifellos noch weiter herabgesetzt werden.

4.4.4. „Direkte Methoden“ zum Nachweis der Eiskeimwirkung der Aitkenkerne.

Die Methode der „fraktionierten Filterung“ gestattet einen guten Einblick in die Beziehungen zwischen Gefrieraktivität und Größe der Aerosolteilchen im Radienbereich über $2 \times 10^{-5} \text{ cm}$. Es war daher beabsichtigt, als Ergänzung hierzu auch für die Aitkenkerne durch eine direkte Meßmethode ein klares Bild über ihre Wirksamkeit als Gefrierkern zu gewinnen. Eine Filterung der Aitkenkerne ohne Beeinflussung der Konzentration der größeren Teilchen ist sehr schwierig.

Eingehende Versuche wurden mit einem Diffusionsfilter nach J. J. Nolan und V. G. Guerrini (63) durchgeführt. Dieses besteht aus einem Satz von elf Messingblechen, mit der Fläche $40 \times 25 \text{ cm}$, bei einer Dicke von 0.5 mm. Die Bleche werden aufeinander geschichtet, wobei ein Abstand von ebenfalls nur 0.5 mm zwischen zwei Blechen eingehalten wird. Der Plattensatz wird in einen mit Lufteintritts- und -Austrittsstutzen versehenen Rahmen eingespannt. Die zu filternde Luft wird durch die zehn engen Kanäle zwischen den Platten gesaugt, wobei die Aitkenkerne infolge ihrer hohen Eigenbeweglichkeit per Diffusion an den Wänden niedergeschlagen werden. Die „großen“ und die Riesenkerne können dagegen die Diffusionskammer durch ihre größere Trägheit ohne wesentlichen Konzentrationsverlust passieren. Unter dem Begriff der Diffusion der Aerosolteilchen versteht man in vorliegendem Fall die Bewegung derselben innerhalb des Konzentrationsgefälles der laminaren Strömung an die Platten. Die Kerne bleiben dann an der Platte haften. Der Diffusionskoeffizient beträgt

$$D = \frac{RT}{N} \frac{1 + A/lr}{6\pi\eta r} [\text{cm}^2/\text{sec}]$$

In dieser Formel bedeutet R die Gaskonstante in erg/Grad Mol, T die absolute Temperatur und N die Loschmidt-Zahl. Der Ausdruck $1 + A/lr$ ist ein Korrekturglied nach Cunningham, in dem l die freie Weglänge der Gasmoleküle und A eine Konstante mit dem Zahlenwert ≈ 1 ist. η ist die Viskosität der Luft und r der Teilchenradius.

Die Eigendiffusion der Teilchen nimmt mit abnehmendem Radius zu. Für Kerne verschiedener Größenordnung ergeben sich folgende Werte von D:
Kernradius

(cm)	10^{-4}	10^{-5}	10^{-6}	10^{-7}
D (cm ² /sec)	1.26×10^{-7}	1.09×10^{-6}	0.83×10^{-4}	0.73×10^{-2}

Testmessungen über die Wirksamkeit des Filters für die Abscheidung der Aitkenkerne wurden mit freundlicher Unterstützung von Herrn Dr. Jacobi im Max-Planck-Institut für Biophysik vorgenommen. Dabei wurde die Luft vor dem Durchgang durch den Plattenabscheider zunächst von Teilchen über 0.2 μ Radius befreit, so daß nur Aitkenkerne das Gerät passierten. Hinter diesem waren drei Faserfilter in Reihe angebracht, um die von der Diffusionskammer durchgelassenen Teilchen abzufangen. Die Eichung wurde mit radioaktiv markierten Teilchen nach der „Mehrfiltermethode“ von Jacobi-Schraub durchgeführt. In Kontrollversuchen wurde wiederholt die Absolutkonzentration des Aerosols überprüft. Die Ergebnisse zeigen, daß die Wirksamkeit des Plattenfilters begrenzt ist und erst bei sehr geringer Strömungsgeschwindigkeit und dadurch erhöhter Verweilzeit der Teilchen ansteigt. Im einzelnen ergaben sich folgende Abscheidekoeffizienten für Aitkenkerne:

Strömungsgeschwindigkeit:	150 ltr./Std. : 0.24
Strömungsgeschwindigkeit:	100 ltr./Std. : 0.26
Strömungsgeschwindigkeit:	50 ltr./Std. : 0.36

Derartig geringe Fördermengen verursachen aber eine extrem lange Fülldauer unserer 85 ltr. fassenden Kältekammer vor der Eisteilchenzählung. Die lange Füllzeit verursacht infolge der Alterung des Aerosols bereits einen merklichen Kernverlust in der Kammer vor dem Beginn der eigentlichen Messung.

Wir waren daher gezwungen, zur Bestimmung der „Schwellentemperatur“ der Aktivierung der Aitkenkerne andere Verfahren anzuwenden, die schließlich auch sehr befriedigend zum Ziele führten. Wir gingen folgendermaßen vor: An die Kältekammer wurde der automatische Kernzähler nach Verzar angeschlossen. Zunächst wurde eine Serie von zehn Meßreihen des zeitlichen Konzentrationsabfalles der Aitkenkerne in der Kammer vorgenommen, um die natürliche Alterung der Kerne (Koagulation und Diffusion der Kerne an die Wände) zu bestimmen. Bei diesen Versuchen wurde die Kammer gekühlt, jedoch keine Wolke darin erzeugt. Abb. 30 (oberste Kurve) zeigt den Verlauf der Konzentrationsabnahme in einfach-logarithmischer Darstellung. Die Zahl der Aitkenkerne wurde in Abständen von 10 Minuten bestimmt. Der Unterschied in der Art des Verlaufes der einzelnen Kurven war äußerst

gering. Die Konzentrationsabnahme hat eine sehr ähnliche Neigung wie sie aus den Ergebnissen der Untersuchung von P. J. Nolan und E. Kuffel (64) hervorgeht, die die Alterung von ultrakleinen Teilchen, bei denen man die Sedimentation vernachlässigen kann, studiert haben. Nach Bestimmung der natürlichen Konzentrationsabnahme der Aitkenkerne durch Alterung wurden Gefrierkernzählungen in der üblichen Weise vorgenommen, wobei nach einer Temperaturniedrigung von jeweils 3°C eine unterkühlte Wolke erzeugt wurde, in der sich Eiskristalle bildeten. Gleichzeitig wurde die Aitkenkernkonzentration in der Kammer mit dem automatischen Verzar-Zähler laufend gemessen. Die Ergebnisse sind im unteren Teil der Abb. 30 dargestellt. Die Abnahme der Aitkenkernzahl mit der Zeit ist in einfach-logarithmischem Maßstab eingetragen, die Ausgangskonzentration wurde gleich 100% gesetzt. Als Parameter ist an den Kurven die Temperatur vermerkt, die zu den betreffenden Zeitpunkten in der Kammer erreicht war.

Die acht Meßreihen zeigen, daß bis zu einer Temperatur von rund -32°C die Konzentration der Aitkenkerne etwa in der gleichen Weise abnimmt, wie es

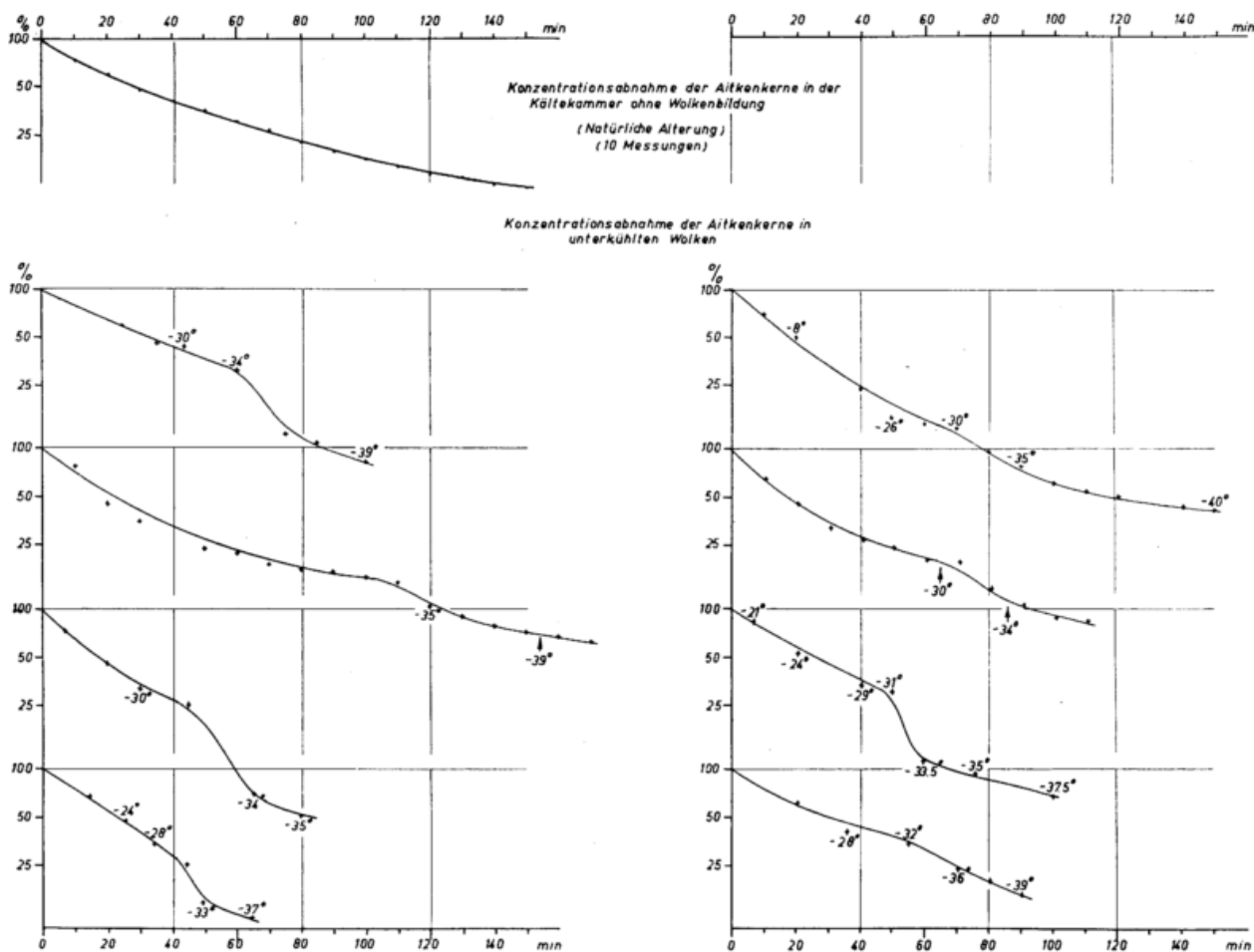


Abb. 30
Natürliche Alterung und Konzentrationsabnahme der Aitkenkerne in unterkühlten Wolken in der Kältekammer in Abhängigkeit von der Zeit und der Kühltemperatur

durch die natürliche Alterung erklärt wird. Die Neigung der Kurven entspricht der der Alterungskurve. Man muß berücksichtigen, daß ein Teil der Aitkenkerne bei der Wolkenbildung in der Kammer als Kondensationskern und durch Anlagerung an die Wolken-elemente verbraucht wird. Diesen Anteil bestimmen wir bei Temperaturen um -5°C (wenn die Wolke praktisch keine Eisteilchen enthält) zu 12%. Sinkt jedoch

die Temperatur unter -30°C , so ist eine recht plötzliche und scharfe Abnahme der Zahl der Aitkenkerne in der Kältekammer zu beobachten. Dieser Rückgang ist mit einem starken Anstieg der Eisteilchenzahl in der unterkühlten Wolke in der Kältekammer verknüpft, auf den bereits in früheren Abschnitten dieser Arbeit hingewiesen wurde. Nach der Bildung der Eisteilchen wachsen diese auf Grund des Dampfdruck-

unterschiedes Wasser — Eis verhältnismäßig rasch und fallen in der Kammer aus. Es darf als sicher angenommen werden, daß der Rückgang der Aitkenkernkonzentration in der Kammerluft durch die Einbeziehung dieser Kerne in den Gefrierprozeß bei Temperaturen zwischen -30°C und -34°C verursacht wird.

Nach Vorliegen dieses Ergebnisses wurde das Problem noch von einer anderen Seite beleuchtet, in dem bei einigen Versuchen kontinuierlich Gasflammenionen mittels einer Bunsenflamme erzeugt und in die Kältekammer geleitet wurden. Die Größe dieser Ionen beträgt rund 10^{-7}cm bei ihrer Entstehung, doch sind sie infolge ihrer großen Beweglichkeit und Zahl durch Koagulation bereits angewachsen, wenn sie in die Kältekammer gelangen. Ebenso wie die Diffusion hängt die Koagulation der Teilchen von ihrer Größe ab. Die Koagulationsgeschwindigkeit beträgt:

$$\frac{dn}{dt} = \frac{RT}{\eta N} \left(1 + A \frac{1}{r} \right) n^2 [\text{sec}^{-1}]$$

n = Teilchenzahl
 t = Zeit

Die übrigen Größen entsprechen denen der Diffusionsgleichung.

Die obige Gleichung gilt nur für Aerosole homogener Größenverteilung ohne Einschränkung. Bei heterodisperser Größenverteilung erhöht sich die Koagulationsgeschwindigkeit durch die bevorzugte Anlage kleiner Teilchen an größere. Bei hoher Teilchenzahl ist die Konzentrationsabnahme durch die Koagulation stark erhöht. So beträgt beispielsweise die Halbwertszeit, d. h. die Zeit, in der die Teilchenzahl auf den halben Wert der Ausgangskonzentration absinkt bei einem Teilchenradius von 10^{-7}cm und einer Konzentration von $2\,000\,000/\text{cm}^3$ nur 100 sec, während sie bei Kernzahlen von $100\,000/\text{cm}^3$ und Kernradien von $5 \times 10^{-8}\text{cm}$ etwa 5 Stunden beträgt. Diese Verhältnisse entsprechen der Großstadtluft. Die Konzentration über $2\,000\,000/\text{ccm}$ übertraf die Zahl der natürlichen Aitkenkerne um den Faktor 10—100. Diese Menge wurde in der Kältekammer während der gesamten Dauer der Kühlung und Wolkenbildung möglichst konstant gehalten. Sie wurde ebenfalls mit dem automatischen Verzar-Kernzähler bestimmt, der durch Erhöhung des Expansionsverhältnisses auch Kondensation an diesen kleinen Teilchen hervorruft und sich dadurch zu ihrer Messung eignet. An Hand der Abb. 31 erkennt man, daß die Konzentration der Gasflammenionen bis zu einer Temperatur unter -34°C mit geringen Schwankungen konstant bleibt. Trotz fortgesetzter Neuerzeugung und weiterer Zuführung neuer Teilchen sinkt die Konzentration bei weiterer Temperaturniedrigung stark ab. Die Abnahme der Teilchenzahl läßt sich nur so erklären, daß zwischen -34°C und -36°C ähnlich wie bei den Aitkenkernen die Aktivierung der Gasflammenionen zur Eisteilchenbildung einsetzt. Die gebildeten Eisteilchen wachsen wiederum rasch an, fallen aus und entgehen dadurch der Zählung in dem Verzar-Zähler. Die Versuchsreihe wurde durch die zeitlich begrenzte leihweise Überlassung des automatischen Kondensationskernzählers eingeschränkt.

Bei der Beurteilung des Kurvenverlaufes der Abb. 30 und 31 muß berücksichtigt werden, daß unter Umständen eine gewisse Anzahl Eisteilchen nicht so rasch ausfällt, um nicht zuvor in den an die Kältekammer angeschlossenen Verzar-Zähler gesaugt zu werden, in dessen Expansionsrohr sie auftauen und erneut als Kondensationskern gezählt werden können. So dürfte es zu erklären sein, daß die mit dem Kondensationskernzähler gemessenen Aitkenkernzahlen nicht noch tiefer absinken.

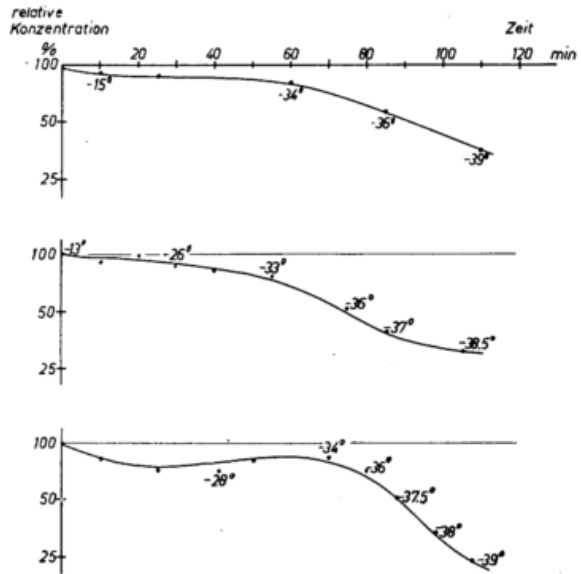


Abb. 31

Konzentrationsabnahme von Gasflammenionen in der unterkühlten Wolke in der Kältekammer bei fortlaufender Neuerzeugung in Abhängigkeit von Zeit und Temperatur

Im Rahmen der auf dem Kleinen Feldberg durchgeführten Gefrierkernuntersuchungen wurde die Aktivierung der Gasflammenionen auf Grund von Zählungen der Eisteilchenkonzentration vor und nach Zugabe künstlich erzeugter Ionen direkt beobachtet. Diese Messungen ergänzen die Ergebnisse, die mit dem automatischen Kernzähler nach Verzar gewonnen wurden. Sie wurden auf dem Kleinen Feldberg und nicht in Frankfurt durchgeführt, da dort oben die normale Aitkenkernzahl der Außenluft immer unter $10\,000/\text{ccm}$ bleibt und damit nur rund 10% der Frankfurter Werte beträgt. Die Konzentration der künstlichen Gasflammenionen liegt somit um den Faktor 100—1000 höher, so daß bei der Aktivierung der Ionen wirklich starke Abweichungen der Eisteilchenkonzentration von Normalfall erwartet werden dürfen.

Der Versuchsablauf gestaltete sich ähnlich wie der bei den Messungen mit „fraktionierter Filterung“ der „großen“ Kerne. Es wurden wiederum paarweise Beobachtungsreihen der Gefrierkernkonzentration vorgenommen, nur daß in dem vorliegenden Falle keine Teilchen ausgefiltert, sondern zusätzlich in die Kammer geleitet wurden. Zunächst wurde jeweils eine Gefrierkernzählung mit normaler Außenluft und im Anschluß daran eine weitere Zählung nach Zusatz von Gasflammenionen zum Außenluftaerosol durchgeführt. Die Eisteilchenzahlen, die sich bei beiden Messungen ergeben, wurden verglichen. Insgesamt wurden 10 solcher Doppelmeßreihen vorgenommen, deren mittleres Ergebnis in Abb. 32 eingetragen ist. Entsprechend der Darstellungsweise der Abb. 28 und 29 wurden die Absolutzahlen der an verschiedenen Tagen ermittelten Gefrierkernkonzentrationen in ein relatives Maß umgerechnet, wobei die Summe der oberhalb -30°C ansprechenden Kerne gleich 100% gesetzt wurde. Dieser Wert bezieht sich auf normale Außenluft ohne Zusatz von Ionen. Der Verlauf der Gefrierkernkonzentration in normaler Außenluft (Kurve a) in Abhängigkeit von der Temperatur ist ähnlich wie in Abb. 28 und 29, wo es sich allerdings um Messungen in Frankfurt handelte, bei denen die Konzentration der bei höheren Temperaturen (oberhalb -20°C) ansprechenden Gefrierkerne niedriger ist als auf dem Kleinen Feldberg/Taunus. So beträgt z. B. in Frankfurt die Konzentration bei -7.5°C 1% der bei -30°C ansprechenden Gefrierkerne (auf dem Kleinen Feldberg wird die-

ser Wert bereits bei -6°C erreicht), bis -20° werden 10% der Gefrierkerne in Frankfurt aktiviert (auf dem Kleinen Feldberg wird dieser Wert bei -14°C erreicht), bis -28°C 50% (dieser Wert wird auf dem Kleinen Feldberg bei -26°C erreicht). Auf diese Unterschiede wurde bereits im Rahmen des Vergleiches der Ergebnisse der verschiedenen Meßstellen (Seite 13) hingewiesen.

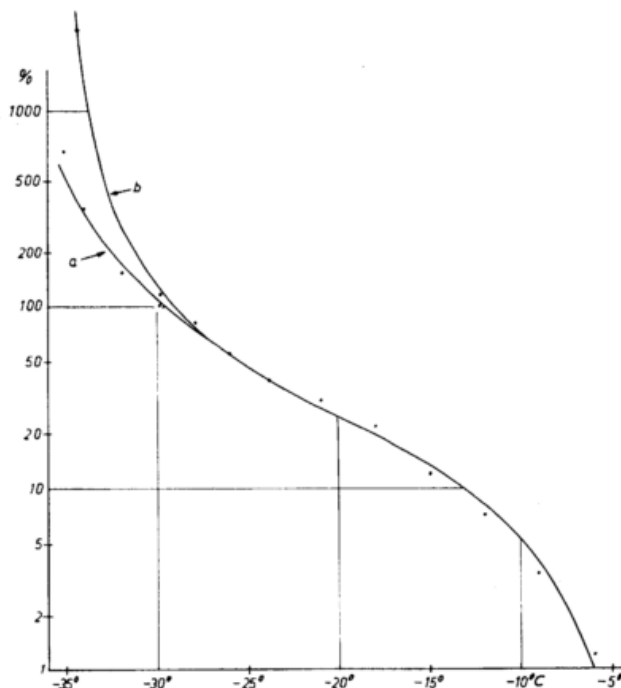


Abb. 32

Relative Verteilung der Gefrierkernkonzentration mit und ohne künstliche Ionenerzeugung

- a) Gefrierkernkonzentration in normaler Außenluft auf dem Kl. Feldberg/Taunus
- b) Gefrierkernkonzentration nach Zugabe künstlicher Gasflammionen

Hinsichtlich der Aktivierung der Gasflammionen, auf die es bei der Beurteilung der vorliegenden Meßreihen ankommt, unterstreicht Abb. 32 die bisherigen Feststellungen, nämlich, daß diese oberhalb -30°C als Gefrierkerne nicht wirksam werden. Vor und nach Zugabe der Gasflammionen zu der Luftprobe in der Kältekammer ist die Gefrierkernkonzentration unverändert. Erst bei -30°C ist eine ganz geringe Erhöhung der Eisteilchenzahl festzustellen, die jedoch gemessen an der großen Zahl der zugefügten Gasflammionen minimal ist. Es ist eine Abkühlung unter -34°C erforderlich, um die Gefrierkernkonzentration in der mit Ionen angereicherten Luft merklich über das Niveau der Gefrierkernzahl zu heben, das normale Außenluft besitzt. Mit weiter sinkender Temperatur steigt die Gefrierkernzahl jedoch so rasch an, daß eine Bestimmung ihrer Konzentration nicht mehr möglich ist. Der Vorgang der Eisteilchenbildung kann mit dieser Vergleichsmethode zwar klar erkannt werden, jedoch sind quantitative Angaben der Eisteilchenzahl in der mit Ionen künstlich angereicherten Luft unterhalb -34°C nicht mehr möglich. Es kann aber kein Zweifel herrschen, daß die Gasflammionen bei sehr tiefen Temperaturen als Gefrierkerne wirken können. Sicherlich sind sie jedoch in der Zwischenzeit zu größeren Aggregaten koaguliert. Ungeklärt bleibt, ob die elektrische Ladung der Teilchen diese befähigt, bei höherer Temperatur als Eiskeim zu wirken als eigentlich ihrer Größe entspräche, ähnlich wie auch die elektrische Ladung eines Teilchens die Übersättigung herabsetzt, die erforderlich ist, damit es als Kondensationskern wirksam werden kann.

Die in diesem Abschnitt beschriebenen Versuche, durch Messung der Änderung der Kernzahlen in der Kältekammer einen direkten Einblick in das Verhalten der Aitkenkerne als Gefrierkerne zu erhalten, ergänzen die nur für den Größenbereich der „großen“ und Riesenkerne anwendbare Methode der „fraktionierten“ Filterung und bestätigen die Ergebnisse der simultanen Messungen der Gefrierkerne und der Kondensationskerne, daß die Aitkenkerne erst unterhalb -30°C Bedeutung als Gefrierkerne erlangen. Diese Feststellung kann nun noch mit dem Zusatz versehen werden, daß Gasflammionen, deren Größe etwa mit den kleinsten Teilchen des natürlichen Aerosols zusammenfällt, bei noch tieferen Temperaturen, nämlich unterhalb -34°C als Gefrierkerne wirksam zu werden beginnen.

Zusammengefaßt läßt sich demgemäß für die im Frankfurter Raum anzutreffende Aerosolzusammensetzung folgende Aussage machen. Die Aktivierung der Aerosolteilchen findet bei folgenden Temperaturen statt:

Riesenkerne:	über -25°C
„große“ Kerne:	zwischen -20° und -35°C
Aitkenkerne:	unter -30°C

Die Angaben für Riesenkerne gelten nur für kontinentale Teilchen und nicht für die Seesalzteilchen über $1\text{ }\mu$. Natürlich besitzen diese Temperaturstufen keine starre Begrenzung. Sie greifen vielmehr ineinander über und können sich von Fall zu Fall verschieben, da die Aktivität der Kerne, wie immer wieder betont werden muß, nicht nur von deren Größe, sondern auch von der physikalischen und chemischen Konstitution abhängt.

Die Unterschiede in physikalischer und chemischer Beschaffenheit wirken sich auch dahingehend aus, daß häufig bei konstant gehaltener Temperatur nicht alle Gefrierkerne, die bei dieser Temperatur wirksam werden, zu gleicher Zeit, sondern innerhalb eines größeren Zeitintervalles aktiviert werden. So kommt es vor, daß in einer unterkühlten Wolke noch nach einigen Minuten neue Eisteilchen auftauchen. Diese Erscheinung wurde kürzlich von J. Warner und T. D. Newnham (65) untersucht, die fanden, daß etwa 30% der Gefrierkerne, die bei -20°C ansprechen, innerhalb einer Sekunde aktiviert werden, während der Rest bis zu 6 Minuten benötigt.

Die oben angeführten Temperaturbereiche haben sich für die Frankfurter Verhältnisse als ziemlich invariant herausgestellt und besitzen auf Grund unserer Beobachtungen an den anderen kontinentalen Meßstellen eine umfassendere Gültigkeit. Es bleibt nun in einem, dieses Problem abschließenden Kapitel die Frage zu diskutieren, wie sich auf Grund unserer derzeitigen Kenntnis über die Konstitution des atmosphärischen Aerosols ein solch bedeutender Einfluß der Teilchengröße auf die Bildung der Eisphase in unterkühlten Wolken erklären läßt.

5. Deutung der Ergebnisse und Folgerungen

Bei allen unseren Messungen, die unter verschiedenen geographischen und klimatischen Voraussetzungen und bei unterschiedlichem Witterungscharakter vorgenommen wurden, war stets der Verlauf der Zunahme der Gefrierkernkonzentration mit dem steilen, beinahe sprunghaft einsetzenden Anstieg im Temperaturbereich zwischen -30°C und -34°C auffällig. Diese charakteristische Zunahme der Gefrierkernzahl kommt auch bereits in den Beobachtungen W. Finden's zum Ausdruck, der die bis -32°C ansprechenden Gefrierkerne als Sublimationskerne I. Art, die bei

tiefere Temperaturen aktiv werdenden als solche II. Art bezeichnete. W. Findeisen und G. Schulz (17) konnten jedoch weder eine Erklärung für diese Unterschiede im Verhalten der Kerne finden, noch eine Deutung geben, welche Zusammensetzung diese Teilchen haben. Andere Autoren wie B. M. Cwiling (66) und H. P. Palmer (67), die mit einer sehr kleinen Expansionskammer arbeiteten, beobachteten Eisteilchen überhaupt erst bei Temperaturen unter -33°C , wobei besonders bemerkenswert ist, daß bei einigen Gefrierkernmessungen, die Cwiling über dem Ozean machte, auch bei dieser Temperatur noch keine Eisteilchen festgestellt werden konnten. Dieses letzte Ergebnis läßt sich zweifellos dadurch erklären, daß die Zahl der Aitkenkerne, die nach unseren Ergebnissen bei dieser tiefen Temperatur als Gefrierkerne wirken, über den Ozeanen häufig nur in sehr geringer Konzentration vorkommen, es wurden sogar Fälle einer völligen Abwesenheit von Aitkenkernen über dem Ozean bekannt.

Bereits in früheren Jahren haben sich namhafte Forscher mit der Erklärung der Findeisen'schen Befunde beschäftigt, vor allem, als es sich herausstellte, daß der Temperaturbereich zwischen -30°C und -35°C in mannigfacher Weise bei wolkenphysikalischen Prozessen ausgezeichnet ist. H. Weickmann (8) fand auf seinen Forschungsflügen, daß die Basistemperatur reiner Eiswolken im Mittel -31°C beträgt und, daß die tiefste einwandfrei vermessene Temperatur von Wasserwolken -35°C sei. Bei der Deutung des starken Anstieges der Gefrierkernkonzentration um -32°C gehen sowohl H. Weickmann wie auch B. J. Mason (68) von der Annahme aus, die Teilchen des atmosphärischen Aerosols gehörten zwei voneinander grundverschiedenen Typen an. Sie unterscheiden 1) die festen, wasserunlöslichen Teilchen von den 2) meist hygroskopischen Lösungströpfchen. Hierzu muß man noch 3) die maritimen wasserlöslichen Salzkerne zählen. Mason vermutet, daß die oberhalb -32°C ansprechenden Gefrierkerne — die Sublimationskerne I. Art nach Findeisen — trockene, kristalline Teilchen seien, die höchstens eine mehrere Molekülschichten dicke Wasserhaut an ihrer Oberfläche anlagern können. Dies würde auch mit den Beobachtungen V. Schaefer's übereinstimmen, der eine überdurchschnittlich hohe Gefrierkernkonzentration beim Auftreten von trockenen Erdteilchen feststellte. Die Gefrierkerne, die erst unterhalb -32°C aktiviert werden — Sublimationskerne II. Art nach Findeisen — sind nach Mason's Meinung Lösungströpfchen verschiedener Salze, die mit zunehmender Verdünnung der Lösung bei Kondensationsvorgängen bei höherer oder tieferer Temperatur aktiviert werden, unter Umständen sogar erst unter -40°C .

Bei seinen theoretischen Überlegungen über die Eiskeimwirkung des Aerosols ist L. Krastanow (69) ebenfalls von der Voraussetzung ausgegangen, daß entweder kristalline unbenetzbare Teilchen oder Lösungströpfchen als Keimhilfen in der Atmosphäre zur Verfügung ständen.

Diese Deutungsversuche können jedoch nach Vorliegen der neueren Untersuchungen C. Junge's über die Konstitution des atmosphärischen Aerosols nicht mehr uneingeschränkt aufrechterhalten werden. Junge konnte nachweisen, daß die Natur der Aerosolteilchen weitaus komplexer ist, als daß ihr eine Einteilung in unlösliche Partikel und Lösungströpfchen gerecht würde. Unbenetzbare Teilchen mit definierter Kristallstruktur und reine Lösungströpfchen stellen Extremfälle dar. Der überwiegende Teil nicht nur der „großen“ und der Riesenkerne, sondern auch eine große Zahl der Aitkenkerne sind Mischkerne (70). Die Aerosolteilchen bestehen durch die dauernde Wirkung der

Koagulation, durch Adsorption von Spurengasen an ihrer Oberfläche, durch Lösungsvorgänge und chemische Umsetzungen während ihrer Verweilzeit in der Atmosphäre aus einem Gemisch löslicher und unlöslicher Bestandteile, und zwar trifft dies für die kontinentalen Teilchen im Größenbereich zwischen 10^{-6}cm und 10^{-3}cm zu.

Nur über den Ozeanen findet man reine Lösungströpfchen in höherer Konzentration, über deren Fähigkeit zur Eiskeimbildung unsere Messungen an der irischen Westküste Aufschluß geben. Der Mischkerncharakter der kontinentalen Aerosole hat eine ähnliche physikalische und chemische Beschaffenheit der Partikel zur Folge. Nur auf Grund des Mischkerncharakters und der damit verbundenen gegenseitigen Ähnlichkeit der Kerne kann unseres Erachtens die Teilchengröße für die Temperatur, bei der der Gefriervorgang einsetzt, solch große Bedeutung erlangen. Unter dieser Voraussetzung wird es eine Frage der größeren statistischen Wahrscheinlichkeit, daß ein größeres Teilchen zahlreichere aktive Stellen, an denen die Eisbildung einsetzen kann, auf seiner Oberfläche besitzt als ein kleines. Auf diese Weise läßt sich der starke Anstieg bei -32°C durch das Gefrieren der Aitkenkerne zwanglos erklären.

Für diese Aktivitätsstufe bei -32°C spricht auch eine Arbeit von C. E. Anderson (71), der findet, daß bei Temperaturen unter -32°C für die Einleitung des Gefriervorganges Eisübersättigung genügt, es braucht die Sättigung in Bezug auf Wasser nicht erreicht werden. Da die Aitkenkerne bei gleichzeitiger Anwesenheit von größeren Partikeln kaum eine Chance gehabt haben, als Kondensationskerne zu wirken, könnten sie gar nicht bei höheren Temperaturen als -32°C als Gefrierkerne wirksam werden. Allerdings wurden die Versuche Anderson's mit künstlichen Silberjodidteilchen durchgeführt, so daß sie nicht ohne weiteres auf das natürliche Aerosol übertragbar sind.

In jüngster Zeit hat B. J. Mason (72) die Mischkerne ebenfalls in den Rahmen seiner Betrachtungen einbezogen, wobei er seine früher geäußerte Auffassung dahingehend erweitert, daß er annimmt, daß oberhalb -30°C neben den von ihm stark herausgestellten trockenen unlöslichen Kernen auch Mischkerne aktiviert werden können.

Die hier vorgeschlagene Erklärung der Beziehung zwischen Teilchengröße und Temperatur der Aktivierung der Kerne wird durch eine neue Untersuchung gestützt, die C. L. Hosler und G. R. Spalding (50) zu gleicher Zeit, jedoch unabhängig von uns, durchgeführt haben und die sich mit der Bedeutung der Teilchengröße für die Gefriertemperatur künstlich erzeugter Aerosole befaßt. Hosler und Spalding haben überprüft acht Substanzen, die ihnen zur künstlichen Impfung unterkühlter Wolken geeignet erschienen. Die Substanzen wurden auf einen Platindraht aufgetragen und in einer Kältekammer vernebelt, wenn der Draht zum Glühen gebracht wurde. Durch entsprechende Regelung der Glühtemperatur konnte die Teilchengröße variiert werden. Ein Ausschnitt der Ergebnisse von Hosler und Spalding ist in Abb. 33 eingetragen. Dabei wurde die Aktivierungstemperatur in Abhängigkeit von der Teilchengröße dargestellt, wobei jeweils das betreffende Größenintervall der Temperatur zugeordnet wurde, bei der im Mittel Eisbildung in der Kammer entdeckt wurde. Man kann deutlich erkennen, daß bei allen eingetragenen Substanzen (Silberjodid, Bleijodid, Kupferjodid, Bleichlorid, Kaliumjodid und Natriumchlorid) die Temperatur der Eiskeimbildung mit wachsender Teilchengröße ansteigt. Im Falle des Silberjodids wurde ein zusätzlicher Wert, der von B. Vonnegut (73) ange-

geben wurde, hinzugenommen. Außer diesen Salzen wurden von Hosler und Spalding noch Versuche mit Ammoniumjodid und Thalliumjodid-Aerosolen vorgenommen, wobei Ammoniumjodid als einziger Stoff eine Ausnahme macht, indem größere Teilchen bei tieferer Temperatur gefrieren als kleinere. Weiterhin wurden in Abb. 33 die Größenbereiche des atmosphärischen Aerosols — Aitkenkerne — große Kerne — Riesenkerne — eingetragen, zusammen mit der mittleren Temperatur, bei der man eine Eiskeimwirkung der betreffenden Kerne erwarten darf. Die Pfeile sollen darauf hinweisen, daß der Gefrierprozeß beim atmosphärischen Aerosol nicht bei einer fest vorgegebenen Temperatur einsetzt, sondern sich innerhalb eines weiten, von äußeren Bedingungen abhängigen Temperaturintervalles vollzieht.

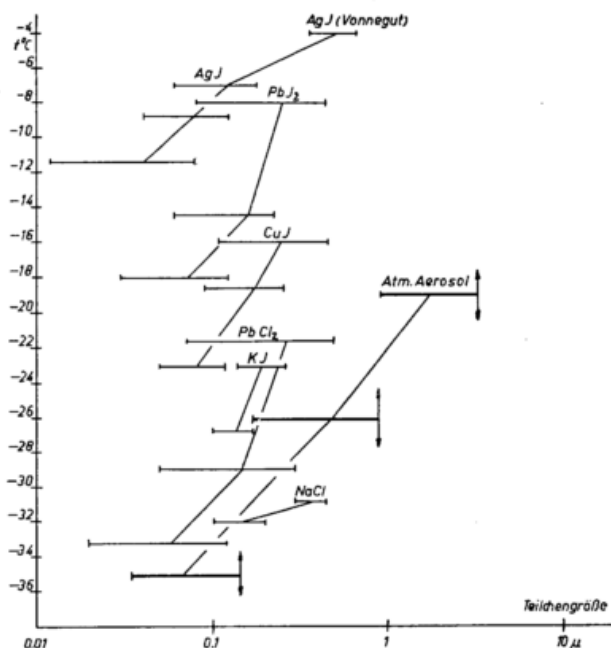


Abb. 33
Temperatur der Eisteilchenbildung als Funktion der Teilchengröße
Künstliche Aerosole: C. L. Hosler
Atmosphärisches Aerosol: H. - W. Georgii

Nebenbei erkennt man noch aus Abb. 33, daß abgesehen von NaCl und PbCl₂, die von Hosler und Spalding untersuchten künstlichen Aerosole bessere Gefrierkerne darstellen als das natürliche Aerosol.

Im Falle der künstlichen Aerosole, die Hosler und Spalding bei ihren Versuchen verwenden, handelt es sich um Teilchen, die hinsichtlich ihrer physikalischen und chemischen Eigenschaften völlig identisch sind. Wiederum spielt unter dieser Voraussetzung die Teilchengröße eine solch dominierende Rolle für die Schwellentemperatur der Eiskeimwirkung. Die Ergebnisse dieser Untersuchung können somit als eine wichtige Bestätigung unserer Ergebnisse angesehen werden. Man darf allerdings diese Zusammenhänge nicht dergestalt erweitern, daß es möglich sei, durch Vergrößerung der Teilchen die Unterkühlung beliebig weit zu vermindern. An erster Stelle gibt immer die Kristallstruktur der Teilchen und ihre Ähnlichkeit mit dem Kristallgitter des Eises den Ausschlag für den Grad der erforderlichen Unterkühlung.

Die Bevorzugung der „großen“ und Riesenkerne bei der Eisteilchenbildung in unterkühlten Wolken geht schließlich auch ganz klar aus den Arbeiten von M. Kumai (74) hervor. Kumai hat eine große Zahl Schneeflocken, die er auf einem Bergobservatorium an der japanischen Küste aufgefangen hat, unter dem

Elektronenmikroskop auf die Kerne untersucht, die zu ihrer Bildung beitrugen, d. h. als Gefrierkerne wirkten. Er fand, daß sich im Zentrum der Schneeflocken meist ein Kern der Größenordnung zwischen 0.5×10^{-4} cm bis 8×10^{-4} cm befand, während in den Außenpartien kleine Teilchen zwischen 5×10^{-6} cm und 1×10^{-5} cm angelagert waren, die offensichtlich erst nach Bildung der Schneeflocke abgefangen worden waren. Die Zusammensetzung der Zentralkerne gibt Kumai wie folgt an:

Beschaffenheit	Anzahl der Fälle	Größenbereich
Teilchen, die Erde enthalten	61	$0.5 - 23 \times 10^{-4}$ cm
Teilchen, die Kohle enthalten	10	$0.5 - 3 \times 10^{-4}$ cm
Seesalzteilchen	19	$1.0 - 17 \times 10^{-4}$ cm
Mikroorganismen	2	0.5×10^{-4} cm
unbekannt	10	3×10^{-4} cm

Man darf annehmen, daß ein wesentlicher Anteil der unter 1 und 2 angeführten Kategorien Mischkerncharakter hatte, was umso bemerkenswerter ist, da die Messungen in unmittelbarer Küstennähe durchgeführt wurden und damit ein erneuter Hinweis auf die schlechten Eigenschaften der Seesalzkerne als Gefrierkerne gegeben ist. Bedauerlicherweise enthält die Arbeit Kumai's keine Angaben darüber, bei welchen Temperaturen und aus welchen Wolken die Schneefälle stattgefunden haben, wodurch Rückschlüsse auf die Gefriertemperatur der Teilchen möglich gewesen wären.

Die Beziehung zwischen Teilchengröße des atmosphärischen Aerosols und Temperatur des Einsetzens der Eiskeimwirkung, die sich aus unseren Untersuchungen ableitet, hat eine gewisse Ähnlichkeit mit dem bekannten Zusammenhang, der zwischen Teilchengröße und erforderlicher Übersättigung beim Kondensationsvorgang besteht. Auch die Kondensation findet zunächst an den „großen“ Kernen und Riesenkernen statt, während die Aitkenkerne bei gleichzeitiger Gegenwart größerer Teilchen nur in geringem Maße als Kondensationskerne wirksam werden. Auch beim Kondensationsprozeß kommt stofflichen Eigenschaften der Partikel — wenn auch anderen als beim Gefrierprozeß — wie Löslichkeit und Benutzbarkeit neben der Teilchengröße eine wesentliche Bedeutung zu.

Ein weiteres interessantes Ergebnis unserer Untersuchungen war die Feststellung, daß die Aktivität der Gefrierkerne auf dem Kleinen Feldberg und auf der Zugspitze größer ist als in Frankfurt. Dies drückte sich vor allem darin aus, daß die Zahl der oberhalb -20° C ansprechenden Gefrierkerne an den Meßstellen im Gebirge höher ist als in der Rhein-Mainebene. Dieses Resultat bedarf ebenfalls noch einer abschließenden Diskussion. Obwohl ein eindeutiger Nachweis noch aussteht, weist alles darauf hin, daß die Wirksamkeit der Gefrierkerne in der Grundschicht des Rhein-Mainbeckens durch die erhöhte Konzentration gewisser Spurengase herabgesetzt wird. Man muß sich wohl den Gefrierkern als eine Art Katalysator bei der Bildung der Eisphase vorstellen, dessen Aktivität durch die Adsorption von gewissen Gasen, die entweder in Lösung gehen können oder, wie man es vom SO₂ weiß, an der Oberfläche der Kerne oxydiert werden, vermindert wird. Mit anderen Worten: Die Oberfläche der Kerne wird „vergiftet“. Die Konzentration dieser Spurengase ist naturgemäß in der Rhein-Mainebene durch zivilisatorische Prozesse und die Abgase der Industrie wesentlich höher als auf dem Kleinen Feldberg/Taunus oder gar auf der Zugspitze. Wir haben daher parallel zu unseren Gefrierkernuntersuchungen in Frankfurt wäh-

rend mehrerer Monate die Konzentration des gasförmigen Ammoniak, Stickstoffdioxid und Schwefeldioxid bestimmt. Die nachstehende Tabelle gibt eine Übersicht über den Zusammenhang zwischen dem Gehalt der Luft an dem betreffenden Gas und der Aktivität der Gefrierkerne, die wiederum in dem auf Seite 15 definierten „Aktivitätsmaß“ als Indikator für die „Qualität“ der Gefrierkerne ausgedrückt wurde.

10 ⁻⁶ gr/m ³ Luft Konzentration in	„Aktivitätsmaß“ = $\frac{\text{Zahl der großen Kerne/ltr.}}{\text{Zahl der oberhalb } -30^{\circ} \text{ aktiven Gefrierkerne}}$	
	„Aktivitätsmaß“	Zahl der Fälle
I. Ammoniak		
0 — 8	93	(6)
8 — 16	133	(58)
16 — 32	143	(8)
32 — 48	210	(3)
72 — 88	235	(3)
II. Stickstoffdioxid		
0 — 5	92	(15)
5 — 10	135	(60)
10 — 15	158	(13)
15 — 20	175	(4)
III. Schwefeldioxid		
0 — 160	128	(42)
160 — 320	134	(34)
320 — 480	174	(5)

Aus der Tabelle geht klar hervor, daß mit ansteigender Konzentration der drei angeführten Spurengase die Wirksamkeit der Gefrierkerne abnimmt. Es läßt sich diesen parallelen Messungen allerdings nichts entnehmen, welchem der drei Gase hauptsächlich die vergiftende Wirkung zugeschrieben werden muß, da bei den entsprechenden Wetterlagen sowohl die Konzentration der hier analysierten wie auch noch weiterer nicht aufgeführter Gase gleichzeitig ansteigt. Wenn somit auch ein eindeutiger Beweis der Vergiftung der Kernoberfläche durch Adsorption noch aussteht — er soll durch Zugabe definierter Mengen bestimmter Gase zu der zu untersuchenden Luftprobe geführt werden — so darf man auf Grund der vorliegenden Ergebnisse der parallelen Messungen als ziemlich sicher ansehen, daß die Einwirkung gewisser Gase die Schwellentemperatur der Aktivierung der Gefrierkerne herabsetzt.

Eine gewisse Bestätigung hierfür liefern erfolgreiche „Vergiftungsversuche“, die von S. J. Birstein (75) durchgeführt wurden. Birstein untersuchte die Wirkung verschiedener organischer Dämpfe, außerdem die von Ammoniak auf Silberjodidteilchen. Dabei wurde das Aerosol vor Eintritt in die Kältekammer durch eine Kühlfalle geleitet, die den betreffenden Dampf enthielt. Die Temperatur der Kühlfalle und damit der Sättigungsdruck des Dampfes konnten variiert werden. Im Falle von Ammoniak wurden die Versuche bei einem Partialdruck von 0.1 mm NH₃ begonnen, der bis 7 mm stufenweise erhöht wurde. Die Eiskeimwirkung der Teilchen nahm kontinuierlich ab, bei 7 mm NH₃-Druck traten keine Eisteilchen oberhalb —20° C auf. Die Wirkung von Alkoholdampf war bereits aus älteren Arbeiten qualitativ bekannt. Bei Birstein's

Versuchen wurde jedoch erst bei höherem Partikaldruck der Gefriervorgang verzögert. Als wirksamste Stoffe zur Verhinderung der Eiskeimwirkung der Silberjodidteilchen wurden Amine — Methylamin, Äthylamin und Butylamin — gefunden. Birstein berichtet folgende Ergebnisse, die mit Methylamin als Oberflächengift gewonnen wurden:

Dampfdruck des Methylamin:	Schwellentemperatur der Eisteilchenbildung
0.3 mm	—27° C
0.6 mm	—29° C
1.0 mm	—31° C
3.0 mm	—40° C

Man muß berücksichtigen, daß reine Silberjodidteilchen normalerweise bei —5° C bis —8° C als Gefrierkerne wirken. Birstein schließt aus seinen Versuchen, daß sich durch irreversible Adsorption der Amine an der Oberfläche der Silberjodidteilchen eine Komplexverbindung Schwermetall — Aminokomplex bildet, die die Silberjodidoberfläche ersetzt und inaktiv für die Eisbildung macht. Er glaubt, daß eine ähnliche Wirkung auch auf Teilchen des atmosphärischen Aerosols, zumindest auf solche, die Metallverbindungen enthalten, zu erwarten sei. Die Ergebnisse unserer parallelen Messungen der Spurengase und der natürlichen Gefrierkerne sowie die Vergiftungsversuche Birstein's enthalten wichtige Hinweise für künftige Untersuchungen und eröffnen die Möglichkeit, unsere Kenntnis über den Mechanismus der Eiskeimbildung in unterkühlten Wolken weiter zu vertiefen.

Sowohl die „Vergiftung“ der Gefrierkerne wie auch die unterschiedliche Gefrieraktivität der kontinentalen und der maritimen Aerosole führen zu wichtigen Konsequenzen bei der Bildung von Niederschlägen über Land und Meer.

Abschließend ist es dem Verfasser ein Bedürfnis, denjenigen zu danken, die dieser Arbeit ihre Unterstützung zuteil werden ließen.

Die Untersuchungen wurden durch einen Kontrakt des European Office, Air Research and Development Command, US Air Force (Contract No AF 61 (514)-927) ermöglicht, wofür der Verfasser zu aufrichtiger Dankbarkeit verpflichtet ist.

Herrn Professor Dr. R. M ü g g e sowie Herrn Dr. C. Junge vom Geophysics Research Directorate, Bedford/Mass. dankt der Verfasser für ihr stetes Interesse am Fortgang dieser Arbeit:

Weiterhin gebührt unser Dank:

Herrn Professor Dr. L. W. Pollak für die weitgehende Unterstützung und Vorbereitung der gemeinsamen Messungen in Irland,

Herrn Professor Dr. H. Israel für die leihweise Überlassung eines automatischen Kernzählers nach Verzar,

dem Deutschen Wetterdienst und dem Personal der Bergwetterwarte Zugspitze, den Mitarbeitern des Max-Planck-Institutes für Physik, Zweigstelle Zugspitze, der Direktion und dem Personal der Bayerischen Zugspitzbahn AG, der Frachtabteilung der Deutschen Luft-hansa AG und der Air Lingus (Irische Luftverkehrsgesellschaft), dem Leiter der Kabelstation auf der Insel Valentia/Irland und dem Leiter des Meteorologischen Observatoriums Valentia für mannigfaltige Hilfe.

6. Literatur

- (1) Wegener, A.: *Thermodynamik der Atmosphäre*. Leipzig 1911
- (2) Bergeron, T.: *Memoire présenté a l'Association de Meteorologie de l'UGGI, Lissabon 1933*
- (3) Findeisen, W.: Die kolloidmeteorologischen Vorgänge bei der Niederschlagsbildung. *Meteor. Z.* **55**, 121 (1938)
- (4) Bowen, E. J.: The relation between rain-fall and meteor-showers. *J. Met.* **13**, 142 (1956)
- (5) Volmer, M.: *Kinetik der Phasenbildung*. Dresden und Leipzig 1939
- (6) Krastanow, L.: Über die Bildung der unterkühlten Wassertropfchen und Eiskristalle in der freien Atmosphäre. *Meteor. Z.* **57**, 357 (1940)
- (7) Jacobi, W.: Zur Eisbildung in reinem unterkühlten Wasser. *Z. Naturforsch.* **10a**, 322 (1955)
- (8) Weickmann, H.: Die Eisphase in der Atmosphäre. *Ber. Dt. Wetterd. US-Zone Nr. 6* (1949)
- (9) Junge, C.: Bemerkungen zur Frage der Eiskeimbildung im frostübersättigten Bereich. *Arch. Meteor. Geophys. Bioklimat. A* **5**, 44 (1952)
- (10) Birstein, S.: Adsorption studies of heterogeneous phase transitions. *Geophys. Res. Pap. No 32* (1954)
- (11) Dorsey, E.: Supercooling and Freezing of water. *J. Res. Nat. Bur. Standards* **20**, 799 (1938)
- (12) Meyer, J. u. Pfaff, W.: Zur Kenntnis der Kristallisation von Schmelzen. *Z. anorg. Chem.* **224**, 305 (1935)
- (13) Rau, W.: Gefriervorgänge des Wassers bei tiefen Temperaturen. *Schr. Dt. Akad. Luftfahrtforsch.* **8**, 65 (1944)
- (14) Junge, C.: Gesetzmäßigkeiten in der Größenverteilung atmosphärischer Aerosole über dem Kontinent. *Ber. Dt. Wetterd. US-Zone Nr. 35*, 261 (1952)
- (15) Woodcock, A. H.: Sea salt nuclei in marine air as a function of altitude and wind force. *J. Meteor.* **10**, 362 (1953)
- (16) Rau, W.: Die Gefrierkerngehalte der verschiedenen Luftmassen. *Meteor. Rdsch.* **7**, 205 (1954)
- (17) Schulz, G.: Die Arbeiten der Forschungsstelle für Wolkenphysik des Reichsamtes für Wetterdienst in Prag. *Ber. Dt. Wetterd. US-Zone Nr. 1* (1947)
- (18) Podzimek, J.: Die Ergebnisse der ersten Kondensationsversuche in der Unterdruckapparatur. *Geofis. pura e appl.* **36**, 76 (1957)
- (19) Warner, J.: An instrument for the measurement of freezing nucleus concentration. *Bull. Obs. Puy de Dome* **1957**, 33
- (20) Schlarb, G.: Untersuchungen über Kondensationskerne und Leichionen in künstlich klimatisierten Räumen. *Biokl. Beibl.* **7**, 86 (1940)
- (21) Volz, F.: Druckeffekte bei Aerosolen. *Ber. Schwebstofftechn. Arbeitsgem. Mainz* 1954, 17
- (22) Report on the Pasadena Cooperative Program of Ice nucleus measuring technique. Pasadena, Calif. 1957
- (23) Georgii, H. W.: Eine neue Mischwolkenkammer für wolkenphysikalische Untersuchungen. *Ber. Meteor. Geophys. Inst. Frankfurt Nr. 6*, 25 (1956)
- (24) Smith, E. J. and Heffernan, K. J.: Airborne measurements of the concentration of natural and artificial freezing nuclei. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.* **80**, 182 (1954)
- (25) Schaefer, V.: The production of clouds containing supercooled water-droplets or ice-crystals under laboratory-conditions. *Bull. Amer. Meteor. Soc.* **29**, 175 (1948)
- (26) Remy, H.: Die Alterung von Aerosolen. *Z. Aerosolforsch.* **2**, 667 (1953)
- (27) Bigg, E. K.: A new technique for counting ice forming nuclei in aerosols. *Tellus* **9**, 394 (1957)
- (28) Schaefer, V.: The concentration of ice-nuclei in air passing Mt. Washington. *Final-Rep. ONR-Proj., Rep. No RL-1007*, 1953, 31
- (29) Rau, W.: Wirkungsbereich und Häufigkeit der natürlichen Gefrierkerne. *Arch. Meteor. Geophys. Bioklimat. A* **8**, 185 (1955)
- (30) Röttschke, M.: Untersuchungen über die Meteorologie der Staubatmosphäre. *Veröff. Geophys. Inst. Leipzig* **11**, 1 (1937)
- (31) v. Kienle, J.: Ein stadtgebundener Schneefall in Mannheim. *Meteor. Rdsch.* **5**, 132 (1952)
- (32) Effenberger, E.: Kern- und Staubuntersuchungen am Collmberg. *Veröff. Geophys. Inst. Leipzig* **13**, 305 (1940)
- (33) Mossop, S. C.: Noyeaux de sublimation. *Proc. Phys. Soc.* **64**, 161 (1956)
- (34) Mühleisen, R.: Elektrische Ladungen auf Kondensationskernen bei Wasseraufnahme- und -abgabe. *Naturwiss.* **45**, 34 (1958)
- (35) Dreisbach, K.: Die vertikale Verteilung der großen Kerne in der unteren Troposphäre und ihr Zusammenhang mit dem elektrischen Potentialgefälle. *Arch. Meteor. Geophys. Bioklimat. A* **9**, 36 (1956)
- (36) Weickmann, H.: Recent measurements of the vertical distribution of Aitken nuclei. In: H. Weickmann and W. Smith: *The artificial stimulation of rain*. London 1957, 81
- (37) Reiter, R.: Ergebnisse luftelektrischer Messungen auf dem Zugspitzplatt. *Geofis. pura e appl.* **30**, 155 (1955)
- (38) Verzar, F.: Kondensationskernzähler mit automatischer Registrierung. *Arch. Meteor. Geophys. Bioklimat. A* **5**, 372 (1953)
- (39) Bider, M. u. Verzar, F.: Kontinuierliche Messung atmosphärischer Kondensationskerne. *Geofis. pura e appl.* **26**, 127 (1953)
- (40) Verzar, F. a. Kunz, Y.: Production of atmospheric condensation nuclei by solar radiation. *Geofis. pura e appl.* **38**, 215 (1957)
- (41) Kassander, A. R., Sims, L. L. a. McDonald, J.: Observations of freezing nuclei over the southwestern United States. In: H. Weickmann and G. Smith: *The artificial stimulation of rain*. London 1957, 392
- (42) Woodcock, A. H.: Atmospheric sea-salt particles and rain-drops *J. Meteor.* **9**, 200 (1952)
- (43) Metnieks, A. L.: On F. Verzar's photoelectric automatic nucleus counter. *Geofis. pura e appl.* **36**, 41 (1957)
- (44) Thams, J. C. u. Wieland, W.: Die Wirbelbildung im kleinen Scholz'schen Kondensationskernzähler. *Geofis. pura e appl.* **20**, 1 (1951)
- (45) Isono, K.: On sea-salt nuclei in the atmosphere. *Geofis. pura e appl.* **36**, 156 (1957)

- (46) Georgii, H. W. u. Metnieks, A. L.: An investigation into the properties of atmospheric freezing nuclei and sea-salt nuclei under maritime conditions at the West coast of Ireland. *Geofis. pura e appl.* **41**, 159 (1958)
- (47) Hollstein, E.: Unterkühlungsfähigkeit größerer Mengen in Gegenwart künstlicher Verunreinigungen. In H. Weickmann: Die Eisphase in der Atmosphäre. *Ber. Dt. Wetterd. US-Zone* Nr. 6 (1949)
- (48) Rau, W.: Die Unterkühlbarkeit wässriger Lösungen und ihre Bedeutung für die atmosphärische Eisbildung. *Z. Naturforsch.* **9a**, 939 (1954)
- (49) Pruppacher, H. u. Sängler, R.: Mechanismus der Vereisung unterkühlter Wassertropfen durch diverse Keimsubstanzen. *Z. angew. Math. Phys.* **6**, 407 (1955)
- (50) Hosler, C. L. a. Spalding, G. R.: The effect of condensation nucleus size and type on the temperature of ice-crystal formation in clouds. In H. Weickmann and W. Smith: The artificial stimulation of rain. London 1957, 369
- (51) Mason, B. J.: The physics of clouds. Oxford 1957, 138
- (52) Birstein, S. J. a. Anderson, C. E.: Preliminary report on sea salt as an ice-nucleus. *J. Meteor.* **16**, 166 (1953)
- (53) Schwerdtfeger, W.: Über die Bildung von Regenschauern über See. *Meteor. Rdsch.* **1**, 453 (1947/48)
- (54) Rau, W.: Größe und Häufigkeit der Chloridteilchen im atmosphärischen Aerosol und ihre Beziehung zum Gefrierkerngehalt. *Meteor. Rdsch.* **8**, 169 (1955)
- (55) Junge, C.: Atmospheric Chemistry. In H. Landsberg: *Advances of Geophysics*, Bd. 4 (1958), 1
- (56) Landsberg, H.: Atmospheric condensation nuclei. *Ergebn. kosm. Phys.* **3**, 155 (1938)
- (57) Conrad, V.: Brief note on estimating the significance of a correlation coefficient. *Arch. Meteor. Geophys. Bioklimat. B* **8**, 257 (1957)
- (58) Mason, B. J. a. Maybank, J.: Ice-nucleating properties of some natural mineral dusts. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.* **84**, 235 (1958)
- (59) Flohn, H.: Ein Fall lokaler Vereisung von Cumuluswolken. *Ber. Dt. Wetterd.* Nr. 51, 79 (1959)
- (60) Georgii, H. W.: Ein neues Stufenkonimeter zur Untersuchung von Aerosolen. *Staub* **H. 47**, 628 (1956)
- (61) Ranz, W. E. a. Wong, J. B.: Jet impactors for determining the particle size distribution of aerosols. *Arch. Ind. Hyg. and Occ. Med.* **5**, 464 (1952)
- (62) Junge, C.: Die Rolle der Aerosole und gasförmigen Beimengungen der Luft im Spurenstoffhaushalt der Troposphäre. *Tellus* **5**, 1 (1953)
- (63) Nolan, J. J. a. Guerrini, V.: The diffusion coefficients and velocities of fall in air of atmospheric condensation nuclei. *Proc. Roy. Irish Acad.* **43 A**, 4 (1935)
- (64) Nolan, P. J. a. Kuffel, E.: Coagulation and Diffusion of enclosed nuclei. *Geofis. pura e appl.* **31**, 97 (1955)
- (65) Warner, J. a. Newnham, T. D.: Time Lag in Ice Crystal Nucleation in the atmosphere, Part I. *Bull. Obs. Puy de Dome* **1958**, 1
- (66) Cwilong, B. M.: Sublimation in outdoor air and seeded sublimation. *Nature* **163**, 727 (1949)
- (67) Palmer, H. P.: Natural Ice Particle Nuclei. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.* **75**, 15 (1949)
- (68) Mason, B. J.: The nature of ice-forming nuclei in the atmosphere. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.* **76**, 59 (1950)
- (69) Krastanow, L.: Bemerkungen zur Klärung des Problems der atmosphärischen Eisteilchenbildung. *Meteor. Z.* **61**, 19 (1944)
- (70) Junge, C.: Das Größenwachstum der Aitkenkerne. *Ber. Dt. Wetterd. US-Zone* Nr. 38, 264 (1952)
- (71) Anderson, C. E.: Studies on re-evaporation ice-nuclei. In: H. Weickmann and W. Smith: The artificial stimulation of rain. London 1957, 404
- (72) Mason, B. J.: The appearance of ice-crystals in expansion-and mixing cloud chambers. *Bull. Obs. Puy de Dome* **1955**, 65
- (73) Vonnegut, B.: Nucleation of supercooled water-clouds by silver-iodide smokes. *Chem. Rev.* **44**, 277 (1949)
- (74) Kumai, M.: Electron-microscope study of snow-crystal nuclei. *Geofis. pura e appl.* **36**, 169 (1957)
- (75) Birstein, S. J.: Studies on the effect of certain chemicals on the inhibition of nucleation. In: H. Weickmann and W. Smith: The artificial stimulation of rain. London 1957, 376

