

**Auswaschen von Aerosolpartikeln in der
Atmosphäre
Eine theoretische Betrachtung**

**Semesterarbeit von Simon Lopez
bei Prof. A. Waldvogel
unter Leitung von M. Volken**

Inhaltsübersicht

	Seite
1. Einführung	1
2. Theorie	2
3. Ueber das Programm	3
4. Ergebnisse	4
a. Kollisionseffizienz	4
b. Regentropfenverteilung	12
c. Auswaschräte	14
5. Zusammenfassung	18
Literaturliste	19

1. Einführung

Das Auswaschen von Partikeln in der Atmosphäre (Aerosol rain scavenging) geschieht durch komplexe physikalische und chemische Prozesse. Durch sie wird die Atmosphäre von Schadstoffen gereinigt. Die Prozesse lassen sich in zwei Gruppen unterteilen, in "in-cloud-scavenging" und "below-cloud-scavenging". In der ersten Gruppe werden die Aerosolteilchen in der Wolke von den Wassertropfen während ihrer Entstehung gebunden, in der zweiten geschieht dies erst während des Fallens der Tropfen. In dieser Arbeit habe ich nur das "below-cloud-scavenging" betrachtet. Das Ziel der Arbeit war die Kollisionseffizienz der Prozesse und der daraus resultierenden Auswaschraten zu berechnen. Als Grundlagen dienten die Arbeiten von Davenport/Peters [1] und Slinn [2].

2. Theorie

Das Auswaschen von Aerosolpartikel ist ein irreversibler Prozess. Für die zeitliche Änderung der Konzentration der Aerosole kann auf zahlreiche Arten ausgedrückt werden. Eine der häufigsten ist folgende

$$n(t, D_p) = n_0(D_p) \exp [-\Lambda(D_p) t] \quad (1)$$

$n(t, D_p)$ ist die Konzentration der Partikel mit Durchmesser D_p zu einer Zeit t ; $n_0(D_p)$ die ursprüngliche Partikelkonzentration mit Durchmesser D_p ; $\Lambda(D_p)$ ist die Auswaschraten für den Durchmesser D_p . Auch $\Lambda(D_p)$ kann auf verschiedene Weise ausgedrückt werden, z. B. als

$$\Lambda(D_p) = \int N f(D_c) \frac{\pi}{4} D_c^2 \eta(D_c, D_p) u_t(D_c) dD_c \quad (2)$$

N ist die Regentropfenanzahl; $f(D_c)$ die normalisierte Regentropfenverteilung; $\eta(D_c, D_p)$ die Kollisionseffizienz; und $u_t(D_c)$ die Fallgeschwindigkeit der Tropfen.

(1) und (2) sind nur Annahmen, sie müssen nicht mit der Realität übereinstimmen.

Nach Absprache mit dem Assistenten verzichte ich auf die mathematische Formulierung der einzelnen Prozesse. Ich

verweise auf die obigen Arbeiten sowie die entsprechende Fachliteratur (z.B [3]).

In [1] und [2] werden folgende Prozesse betrachtet:

Interception¹

Ist ein Partikel, der sich auf der Stromlinie des Flusses um ein Hindernis (Tropfen) bewegt, genügend gross, um in Kontakt mit dem Hindernis zu kommen, so kann er von diesem eingefangen werden.

Inertiale Impaktion

Kann sich ein Partikel nicht mehr auf den Stromlinien halten, so kollidiert er mit dem Tropfen.

Diffusion (Brown'sche Bewegung)

Durch den Zusammenstoss von Partikeln mit Gas-molekülen können Partikel zum Auftreffen an die Tropfen gebracht werden.

Diese Prozesse sind recht gut bekannt. Die durch sie berechneten Resultate sind weitgehend zufriedenstellend.

In [1] kommen noch folgende Prozesse dazu:

Thermophoresis

Diese Bewegung wird durch Moleküle hoher Energie auf der einen Seite der Partikel verursacht. Die Partikel diffundieren von "warmen" zu "kalten Regione".

Diffusiophoresis

Der Konzentrationsabfall in der Nähe der Tropfen führt zu einer Bewegung der Partikel in Richtung der Tropfen.

Elektrische Effekte

Je nach Ladung und Ladungsverteilung von Partikeln und Tropfen können sie sich anziehen oder abstossen.

In diesen Prozessen kommen Parameter vor, die sehr schwierig oder gar nicht messbar sind.

¹ Für die Interception in [2] habe ich eine Formel aus [4] verwendet, die etwas bessere Werte liefert, sich aber auf [2] bezieht.

3. Ueber das Programm

Alle Rechnungen wurden nach Absprache mit dem Assistenten mit Microsoft Excel durchgeführt. Mit Microsoft Excel ist das Integrieren nicht möglich. Für eine qualitative Betrachtung ist dies jedoch nicht weiter wichtig. Anstatt integriert, habe ich über die entsprechenden Rechtecke aufsummiert. (2) schreibt sich also

$$\Lambda(D_p) = \sum_{i=1}^p N f(D_{c_i}) \frac{\pi}{4} D_{c_i}^2 \eta(D_{c_i}, D_p) u_f(D_{c_i}) \Delta D_{c_i} \quad (3)$$

Ich habe alle Werte für 21 Regentropfendurchmesser, sowie für 31 Partikeldurchmesser berechnet. Die so erhaltenen 31*21 Matrizen erforderten schlussendlich, dass bei Aenderung eines Parameters über 1200 Rechenschritte ausgeführt werden mussten, was eine lange Rechenzeit verursachte. Die so erhaltenen Auswaschraten für einzelne Partikeldurchmesser $\Lambda(D_p)$ lassen bereits gut auf die Funktion $\Lambda(D_p)$ rückschliessen. Falls nicht anders vermerkt, liegen die 21 Regentropfendurchmesser zwischen 0.1 und 4 mm und die 31 Partikeldurchmesser zwischen 0.00032 und 10 μm , wobei Tropfen- und Partikeldurchmesser logarithmisch verteilt sind.

In einem ersten Programm habe ich alle einzugebenden Werte wie Temperatur der Luft, Druck, relative Luftfeuchtigkeit, etc. definiert und die daraus resultierenden Werte wie Kapazität und thermale Konduktivität der Luft, freie Weglänge der Partikel, Diffusionskoeffizienten, Relaxationszeit der Partikel, Reynolds-, Stokes-, Schmidt-Zahl etc. berechnet.

Im zweiten Programm habe ich dann die Kollisionseffizienzen, die Auswaschraten, sowie die Regentropfenverteilung berechnet. [1] und [2] kommen dabei nicht auf die exakt genauen Werte (wie wir in Abschnitt 4 sehen werden). Dies ist auf die unterschiedlichen theoretischen Kollisionseffizienzen zurückzuführen. Die Autoren benutzen unterschiedliche Quellen für diese Prozesse. Dies ist jedoch nicht weiter problematisch, da der Unterschied zwischen den beiden theoretischen Arbeiten viel kleiner ist, als die gemessenen Auswaschraten.

Für die Regentropfenverteilung habe ich diejenige von Marshall-Palmer gewählt. In [1] wurde zwar eine log-normale Verteilung verwendet, dies hätte jedoch einen weit grösseren zeitlich Aufwand ergeben. Die hier gewählte Verteilung liefert jedoch auch schon unterschiedliche Werte (vgl. Abschnitt 4.b).

4. Ergebnisse

a Kollisionseffizienz

Kollisionseffizienz nach [1] für Regentropfen mit einem Durchmesser von 1 mm

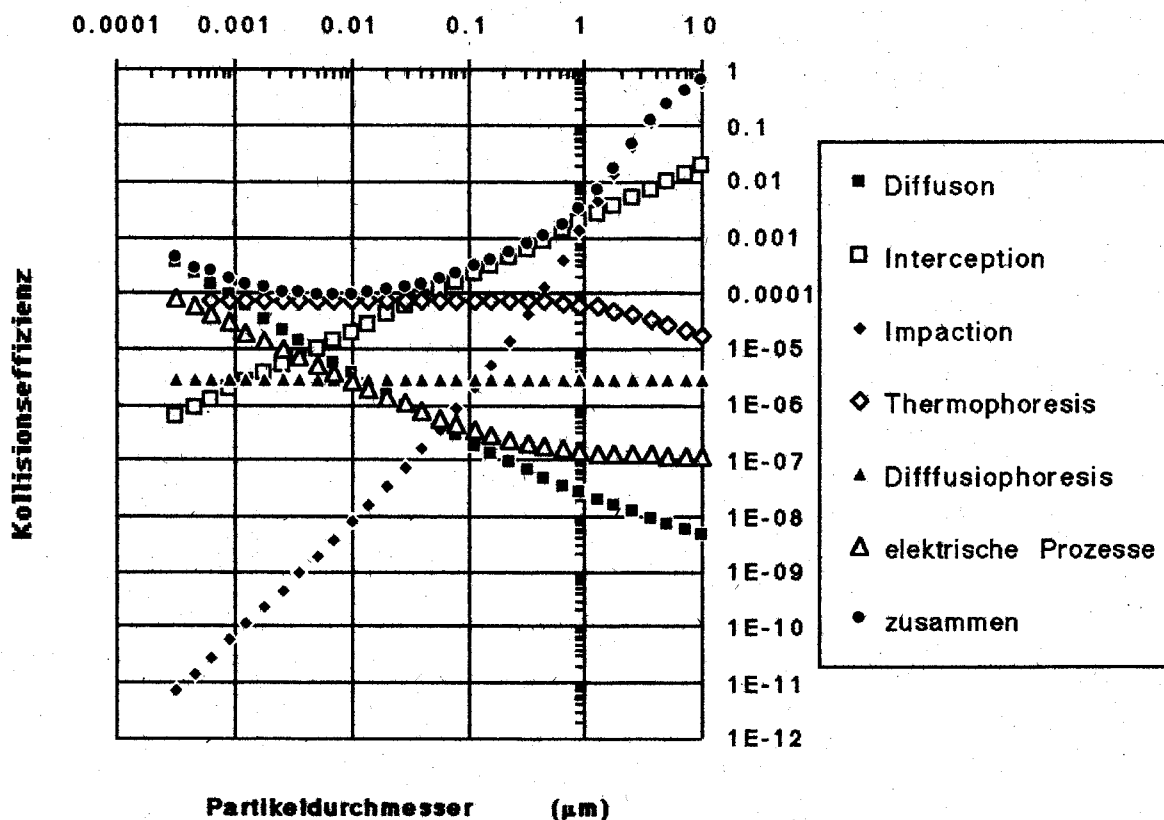


Fig. 1

In Fig. 1 ist die Kollisionseffizienz $\eta(D_c, D_p)$ nach [1] für einen Tropfen mit Durchmesser 1 mm als Funktion der Partikeldurchmesser logarithmisch aufgezeichnet². Die einzelnen Linien bedeuten folgendes:

Kollisionseffizienz für die Interception

Kleinere Teilchen ($<0.001\ \mu\text{m}$) kommen nicht so häufig in Kontakt mit den Regentropfen wie

² Alle Graphiken in dieser Arbeit sind logarithmisch aufgezeichnet.

grosse (>0.1), darum ist die Kollisionseffizienz für sie geringer.

Kollisionseffizienz für die Impaktion

Kleine Teilchen werden seltener von der Stromlinie weggedrückt, die Impaktion ist daher gering.

Kollisionseffizienz für die Diffusion

Kleine Partikel diffundieren leichter. Dieser Prozess ist also wichtig für das Auswaschen kleiner Teilchen.

Kollisionseffizienz für die Thermophoresis

Kleine Aerosole bewegen sich schneller, daher ist die Kollisionseffizienz für sie etwas besser.

Kollisionseffizienz für die Diffusiophoresis

Dieser Prozess ist unabhängig vom Partikeldurchmesser.

Kollisionseffizienz für die elektrischen Effekte

Dieser Prozess ist umgekehrt proportional zur Fallgeschwindigkeit der Regentropfen, die wiederum proportional ist zum Tropfendurchmesser im Quadrat.

Es sei jedoch darauf hingewiesen, dass diese Werte nicht nur stark von der Art des Niederschlages (Regen, Gewitter, etc.) abhängig sind, sondern, dass auch keine guten Angaben über Ladungen auf Regentropfen gefunden werden konnten. Letzteres kommt sicher von der Unmöglichkeit der Beschreibung der Ladung, ja gar der Ladungsverteilung auf Tropfen und Partikel in Abhängigkeit von atmosphärischen, terrestrischen und kosmischen Einflüssen.

Auf der folgenden Seite ist dasselbe für [2] abgebildet (Fig.2) Die einzelnen Prozesse wirken sich viel stärker aus auf die ganze Kollisionseffizienz. Die Gründe dafür sind wohl in der unterschiedlichen Herleitung für die Impaktion und die Interception in den beiden Arbeiten zu suchen.

Kollisionseffizienz der einzelnen Prozesse nach [2] für
Regentropfen mit einem Durchmesser von 1 mm

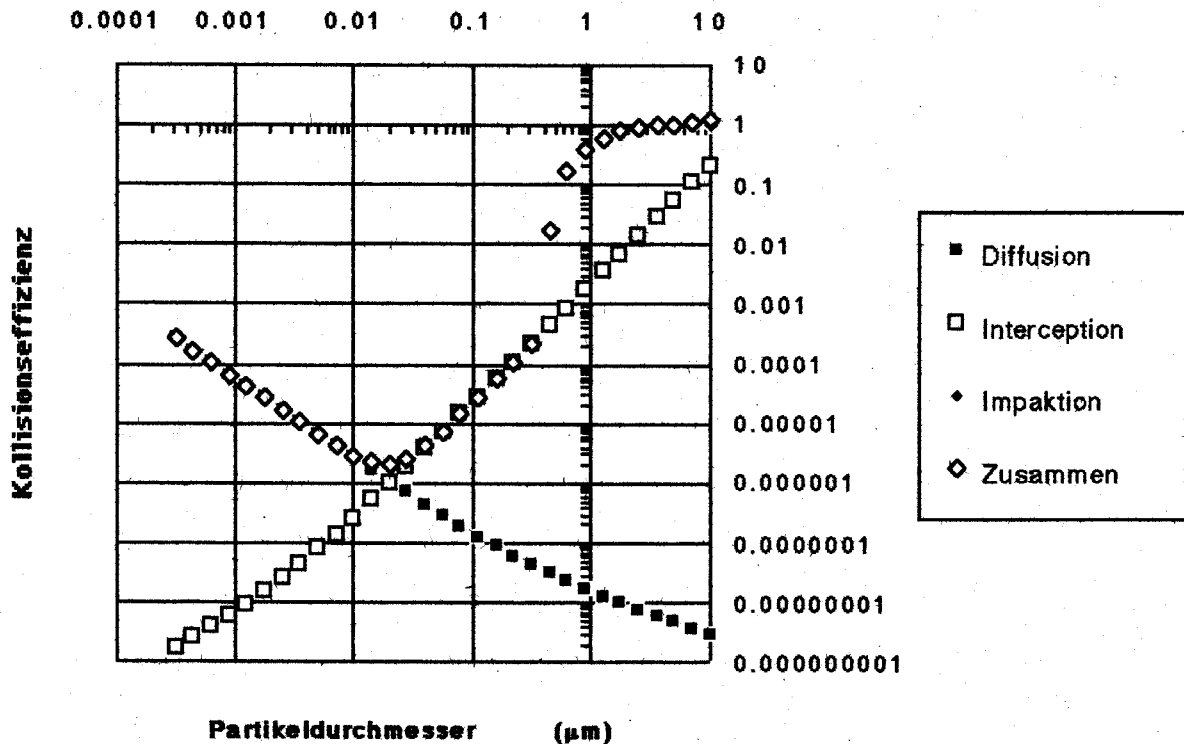


Fig. 2

Auffallend ist, dass die Kollisionseffizienz für grosse Partikel etwa gleich gut ist.

Der Greenfieldgap ist in [2] besser ausgeprägt als in [1]. In beiden Arbeiten ist er zwischen den Partikeldurchmessern 0.001 und 0.1 μm , wobei das Minimum nicht auf dieselbe Stelle zu liegen kommt (vgl. Fig. 4). Unter Berücksichtigung von Thermo- und Diffusiophoresis verschwindet er fast (Fig. 5 und 7).

Die Form des Greenfieldgap ändert sich für die Diffusion, Impaktion und Interception nicht (Fig. 6, und 7).

Wie aus Fig.3 ersichtlich ist, sind die Werte für die Diffusion durchaus miteinander vergleichbar. Diejenigen der Impaktion und der Interception unterscheiden sich aber beträchtlich. Dies ist wohl auf Unterschiede in der theoretischen Betrachtung der Vorgänge zurückzuführen.

Kollisionseffizienz der einzelnen Prozesse nach [1] (ausgefüllte Punkte) und nach [2] für Regentropfen mit einem Durchmesser von 1 mm

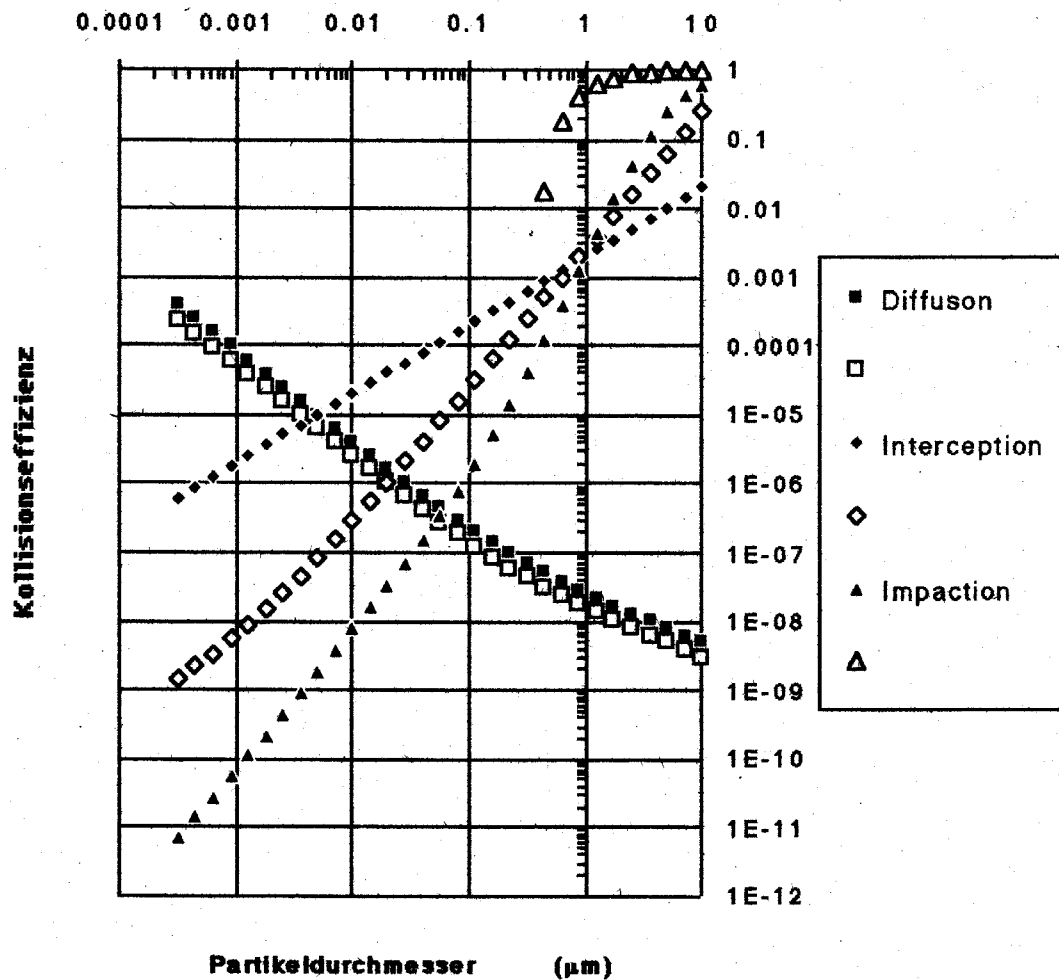


Fig.3

In Fig. 4 habe ich die totale Kollisionseffizienz beider Arbeiten dargestellt, wobei ich in [1] nur diejenigen Prozesse berücksichtigt habe, die auch in [2] vorkommen.

Kollisionseffizienz nach [1] (ausgefüllte Punkte)
und nach [2] für Regentropfen mit einem
Durchmesser von 1 mm

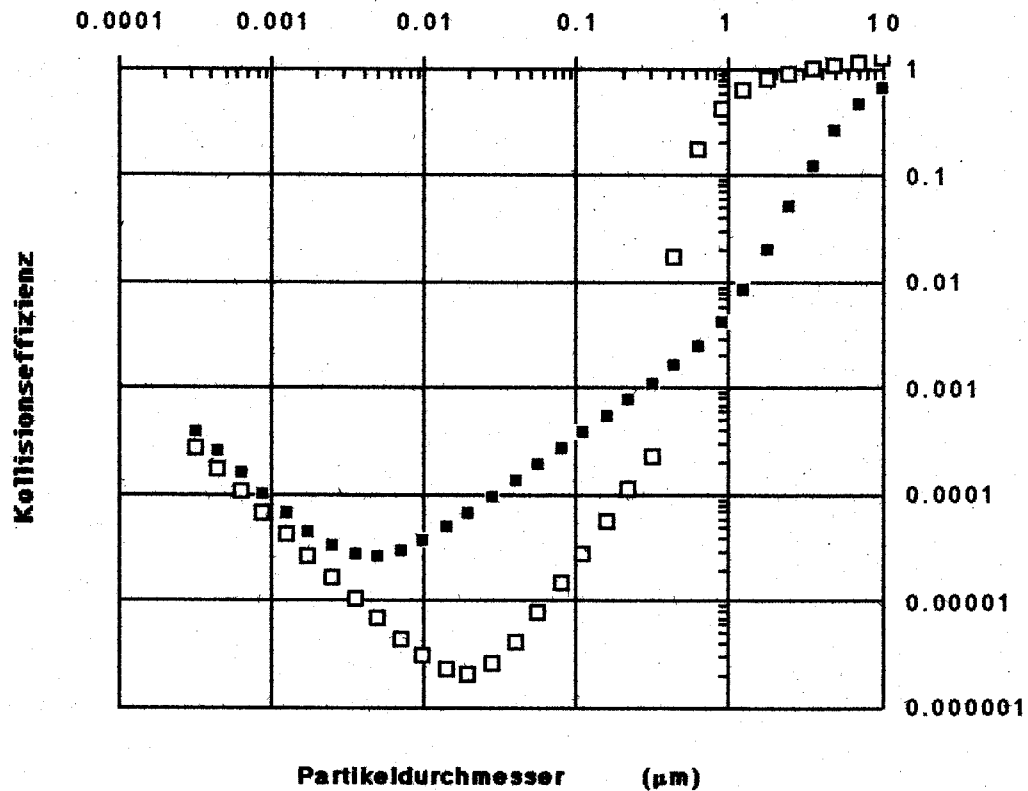


Fig. 4

Für grosse und kleine Partikel stimmen die erhaltenen Werte gut überein. Für die mittleren Werte ist wohl die Differenz durch die unterschiedlichen Werte der Interception zu erklären.

Im Folgenden gebe ich einige Kollisionseffizienzen für verschiedene Tropfendurchmesser an.

Nach [1] sind die Kollisionseffizienzen für grosse Tropfen kleiner als für kleine Tropfen (Fig.5 und 6). Dies ist unter anderem auf die höhere Fallgeschwindigkeit grosser Tropfen zurückzuführen. Die Ausnahme bilden die grossen Partikel, bei ihnen ist der Prozess der Impaktion am wichtigsten. Der Kollisionseffizienz wird für alle Tropfen bei grossen Partikeln etwa gleich gross. Bei grossen Tropfen krümmen sich die Stromlinien viel enger um diesen. Grosse Partikel, die sich auf diesen Stromlinien bewegen, werden so viel leichter von diesen weggedrückt.

Der Greenfieldgap ist bei Berücksichtigung aller Prozesse für grosse Tropfen etwas ausgeprägter als für kleine (Fig. 5 und 7). Berücksichtigt man nur Diffusion, Impaktion und Interception, so verändert er sich nicht (Fig.6 und 7). Daraus ist zu schliessen, dass Thermo- und Diffusiophoresis bei grossen Tropfen nicht mehr so stark wirken. Dies wiederum hängt wohl mit der hohen Fallgeschwindigkeit zusammen.

Kollisionseffizienz für verschiedene
Tropfendurchmesser nach [1] unter
Berücksichtigung aller Prozesse

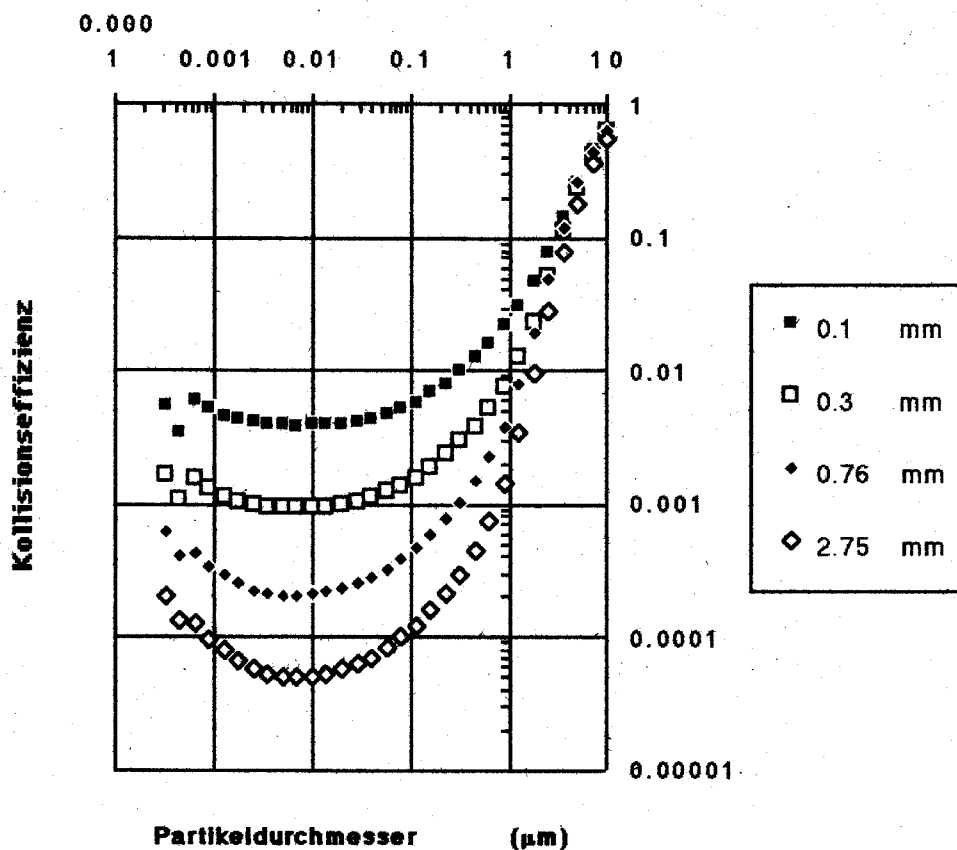


Fig. 5

In Fig. 7 erkennt man, dass Thermo- und Diffusiophoresis vor allem wichtig sind für das Einfangen der mittleren Partikel, während für die kleinen und grossen die oben erwähnten Prozesse wichtig sind.

Kollisionseffizienz verschiedener Tropfen nach [1] unter Berücksichtigung derselben Prozesse wie in [2]

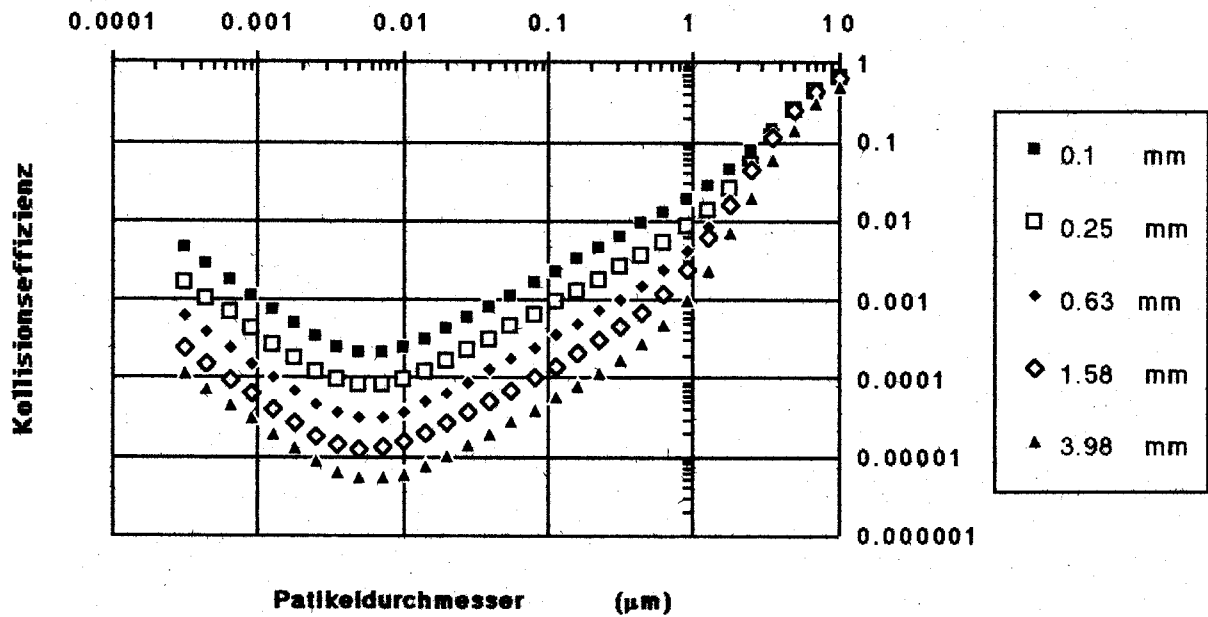


Fig. 6

Vergleich der Kollisionseffizienz aller Prozesse (ausgefüllte Punkte) und dieser von Impaktion, Interception und Diffusion für verschiedene Tropfendurchmesser nach [1]

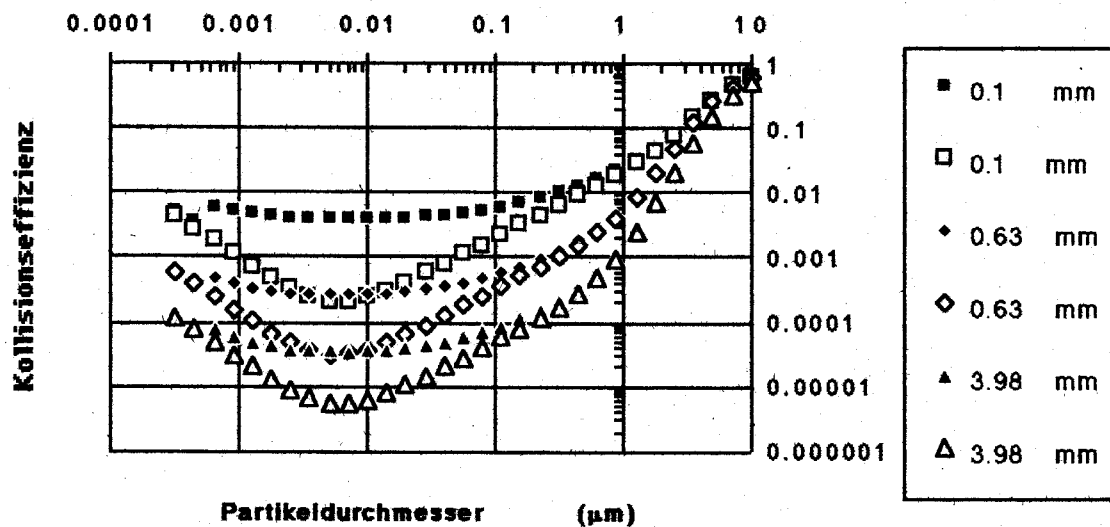


Fig. 7

Kollisionseffizienz für verschiedene Tropfen nach [2]

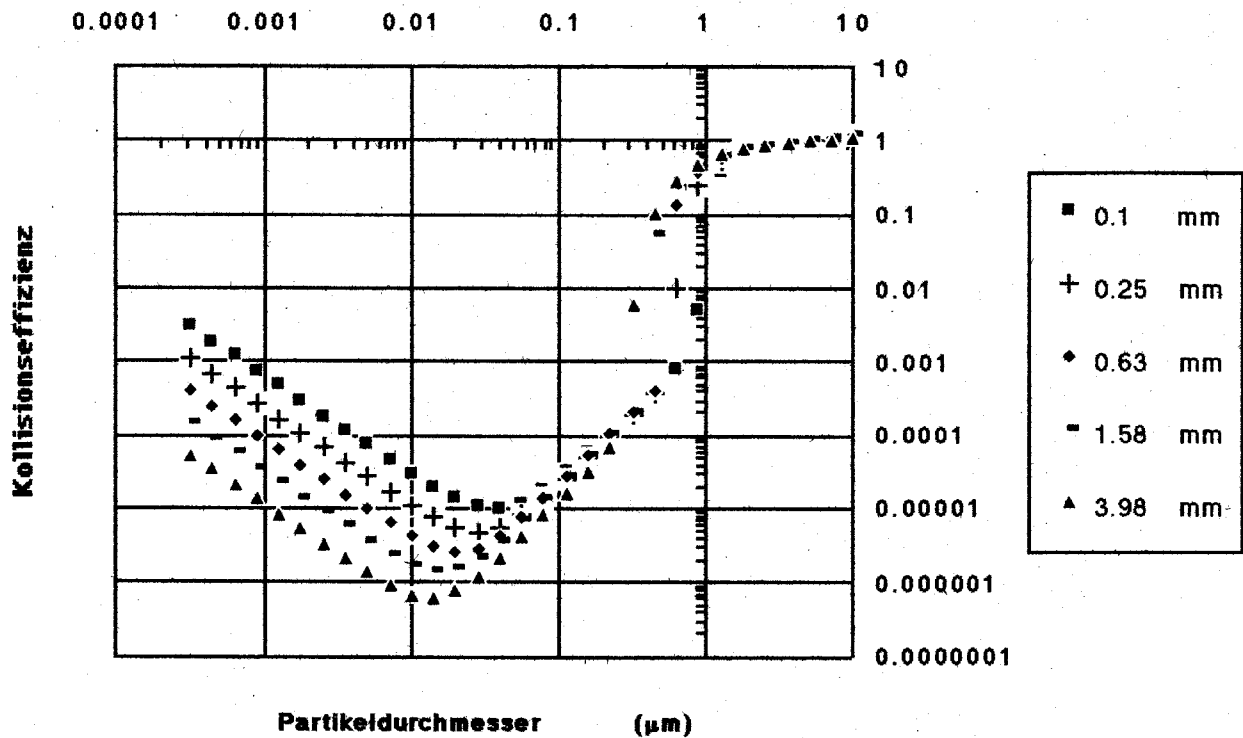


Fig. 8

Nach [2] werden grössere Partikel (zwischen 0.3 und 1 μm) von grossen Tropfen sogar besser einfangen (Fig. 8). Die Kurven der Kollisionseffizienzen schneiden sich in diesem Bereich. Das Minimum und somit der Greenfieldgap sind mit wachsendem Tropfendurchmesser etwas nach links verschoben.

Hiermit beende ich die Betrachtungen über die Kollisionseffizienzen.

b Regentropfenverteilung

Wie bereits anfangs erwähnt, ist die Auswaschrates abhängig von der Regentropfenverteilung (2). Die Marshall-Palmer-Verteilung ist

$$n(D_0) = n_0 \exp(-\Lambda D_0) \quad (4)$$

D_0 ist der Tropfendurchmesser; $n(D_0)$ die Anzahl Tropfen bei diesem Durchmesser; n_0 der Achsenabschnitt; und Λ kann gemessen oder berechnet werden. Letzteres geschieht durch

$$\Lambda = 4.1 R^{-0.21} \quad (5)$$

R ist die Regenintensität. Dies führt zu unterschiedlichen Werten von Λ (vgl. Tab 1).

Beispiele für die Variation von n_0 , Λ und R zu verschiedenen Regenarten (aus [3])

Regenart	n_0 $m^{-1} mm^{-1}$	R $m hr^{-1}$	Λ mm^{-1}	
			berechnet	gemessen
6.Jun.68 2205-2235 CET, thunderstorm	35000	10.2	2.5	3.7
2235-2310 CET, thunderstorm	4000	5.8	2.8	2.5
19.Jun.69 0510-0540 CET, shower	16000	4	3.1	3.8
0550-0620 CET, widespread rain	8000	8	2.6	2.6

Tab. 1

In der Fig. 9 habe ich die Auswaschrates für den ersten Regen am 6. Juni 1968 mit den unterschiedlichen Λ dargestellt.

Die Auswaschrates unterscheiden sich etwa um etwa eine halbe Potenz. Die Auswaschrates für den kleinsten Partikel (0.00032 μm) habe ich übereinandergelegt und alle Werte der unteren Kurve um diesen Wert verschoben, die so resultierende punktierte Kurve unterscheidet sich wenig von der berechneten.

Vergleich der Auswaschrate für gemessenes und
berechnetes Lambda für Diffusion, Impaktion und
Interception nach [1]

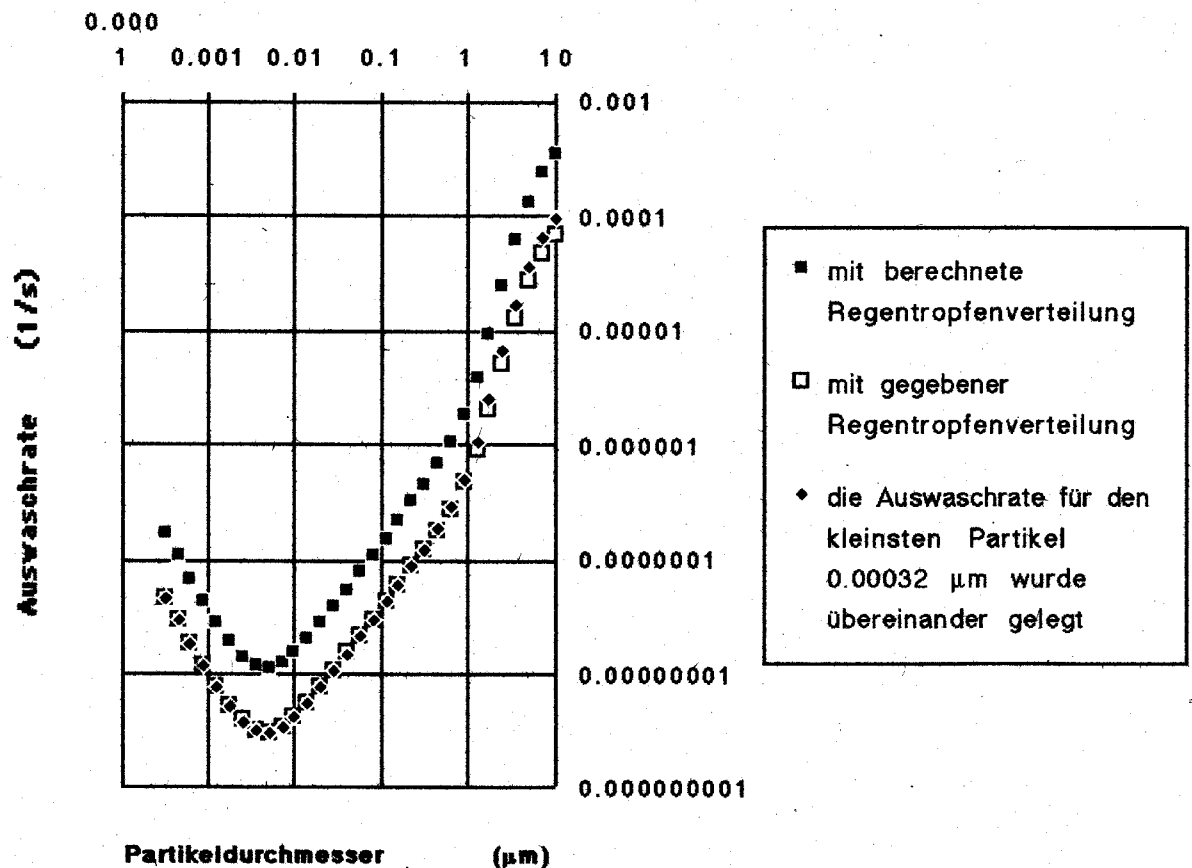


Fig. 9

Im Folgenden rechne ich nur mit den berechneten Werten von Δ . Die Art des Regens wirkt sich nur auf die Regentropfenverteilung aus, diese verschiebt den Graphen der Auswaschrate nur in y-Richtung. Die Form des Graphen verändert sich also nicht. Für die weitere Betrachtung sind die Werte der Auswaschrate abhängig von der Regenart nicht weiter wichtig. Ich benutze nur noch die Werte des ersten Regens am 6. Juni 1968.

c Auswaschraten

Die einzelnen Prozesse wirken sich auch auf die Auswaschraten aus. Für das Auswaschen kleiner Aerosole ist wiederum die Diffusion am wichtigsten, für grosse die Impaktion (Fig. 10).

Auswaschraten von Diffusion, Impaktion und Interception nach [1]

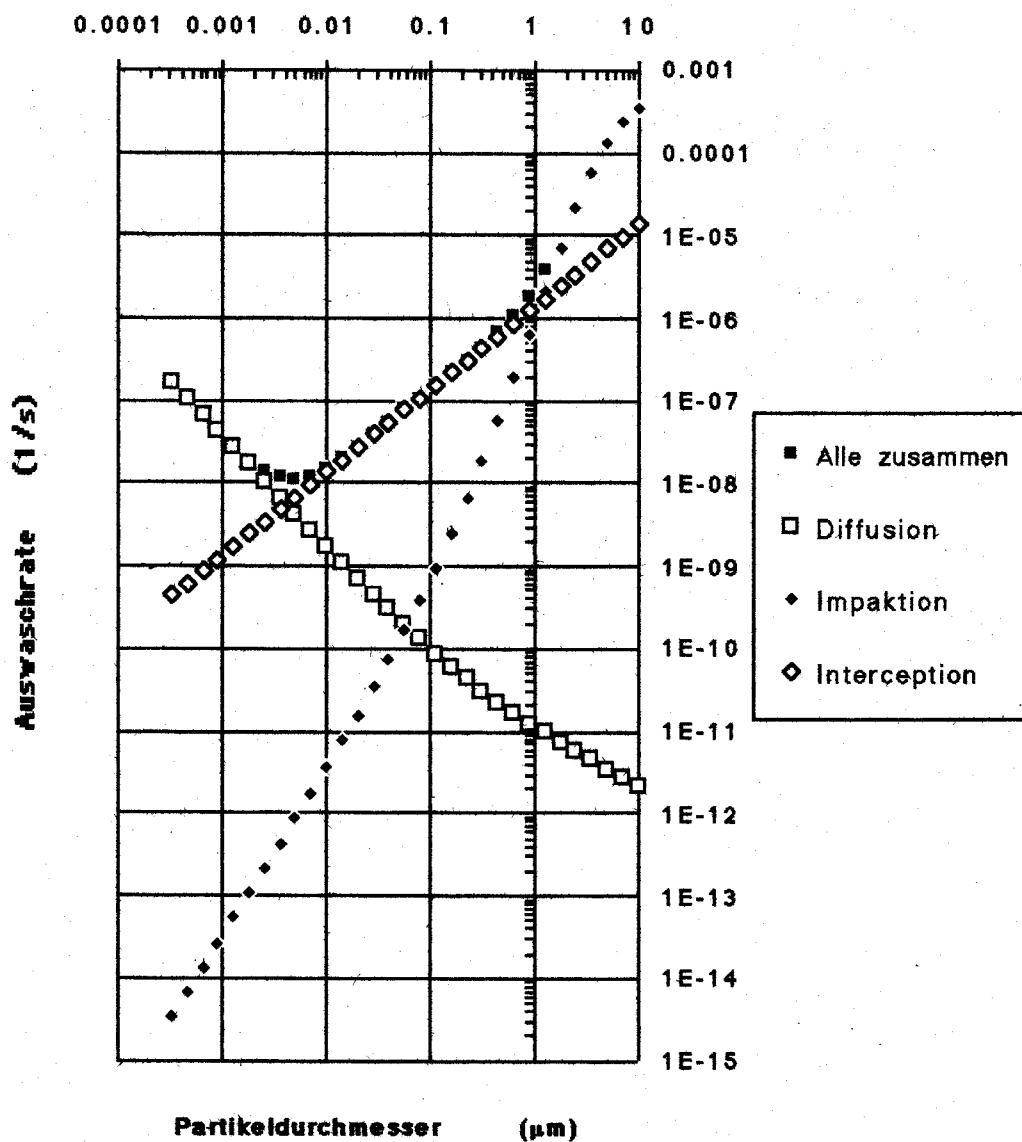


Fig. 10

Die Interception genügt nicht, um die mittleren Teilchen ausreichend auszuwaschen. Etwas besser wird das Auswaschen, wenn man die Thermo- und Diffusiophoresis hinzu nimmt (Fig 11).

Vergleich der Auswaschrates aller Prozesse mit den einzelnen aus [1]

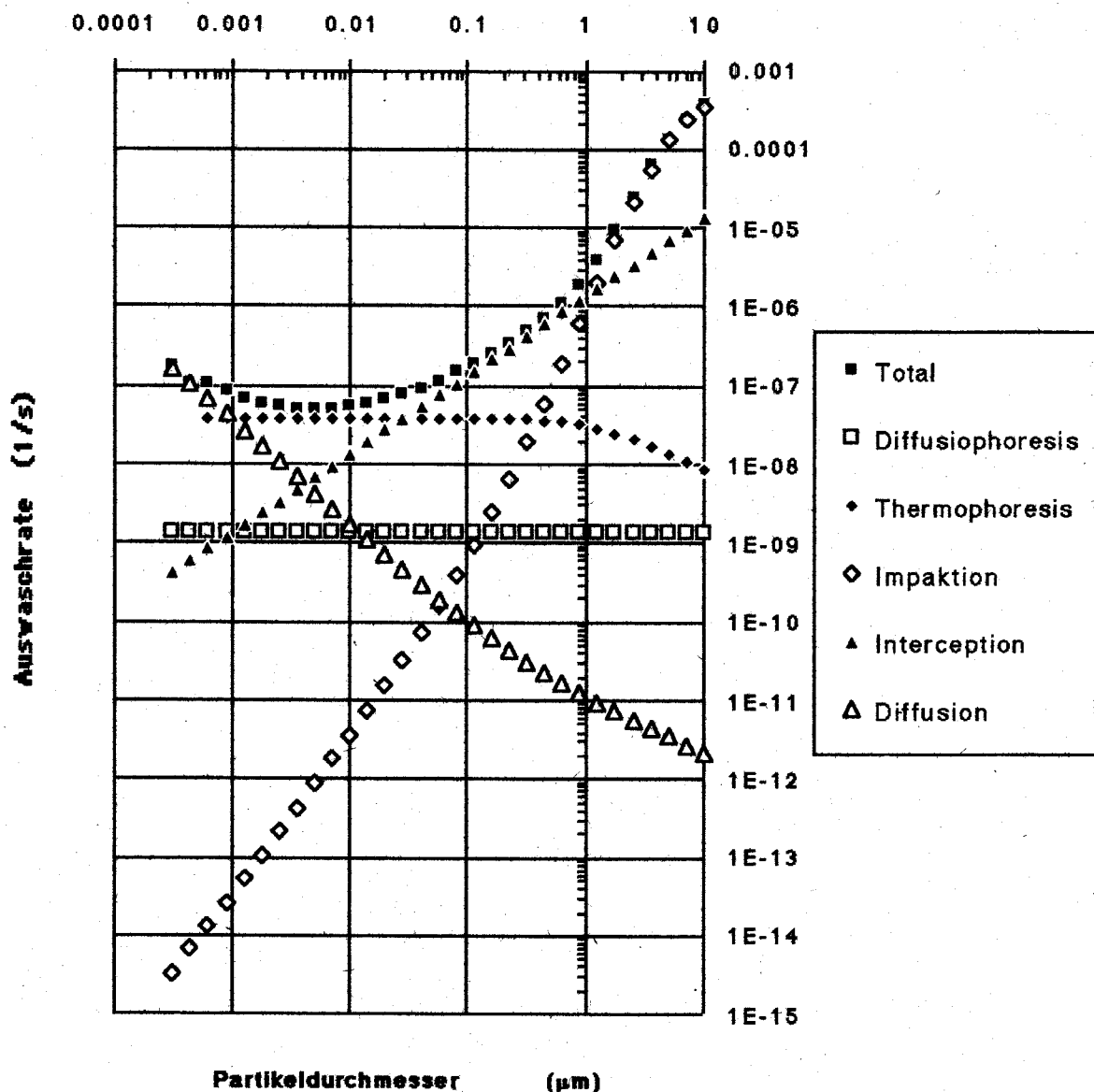


Fig. 11

Durch sie ist die Bilanz des Auswaschens im Bereich der mittleren Teilchen um einiges besser.

Ein ähnliches Bild wie Fig. 10 liefert [2] (Fig.12)

Auswaschrate von Diffusion, Impaktion und Interception im Vergleich zur totalen nach [2]

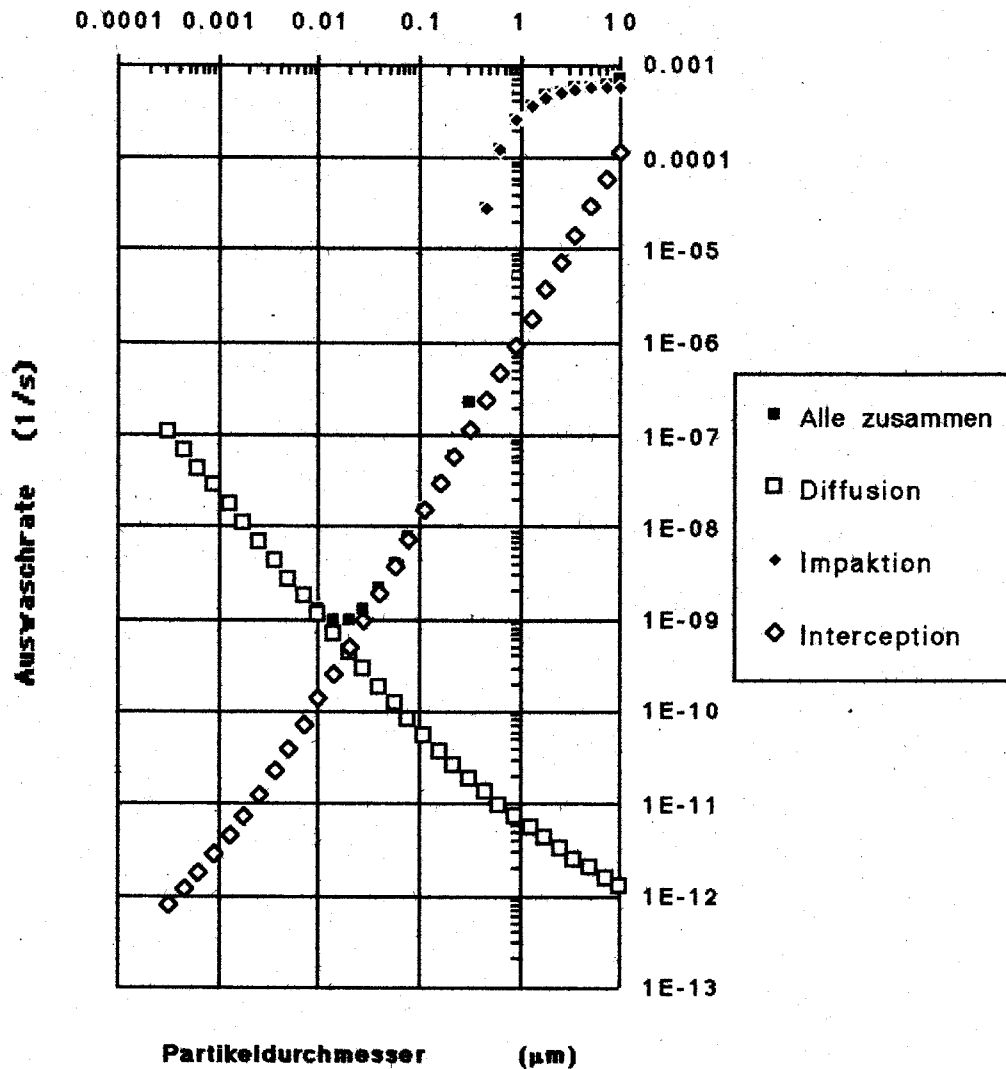


Fig.12

Die grossen Partikel werden fast gleich gut ausgewaschen, wie zu erwarten war.

Fig. 13 zeigt, dass die Werte der Auswaschrates von [1] für Partikeldurchmesser von 0.001 bis 0.3 μm höher sind als in [2].

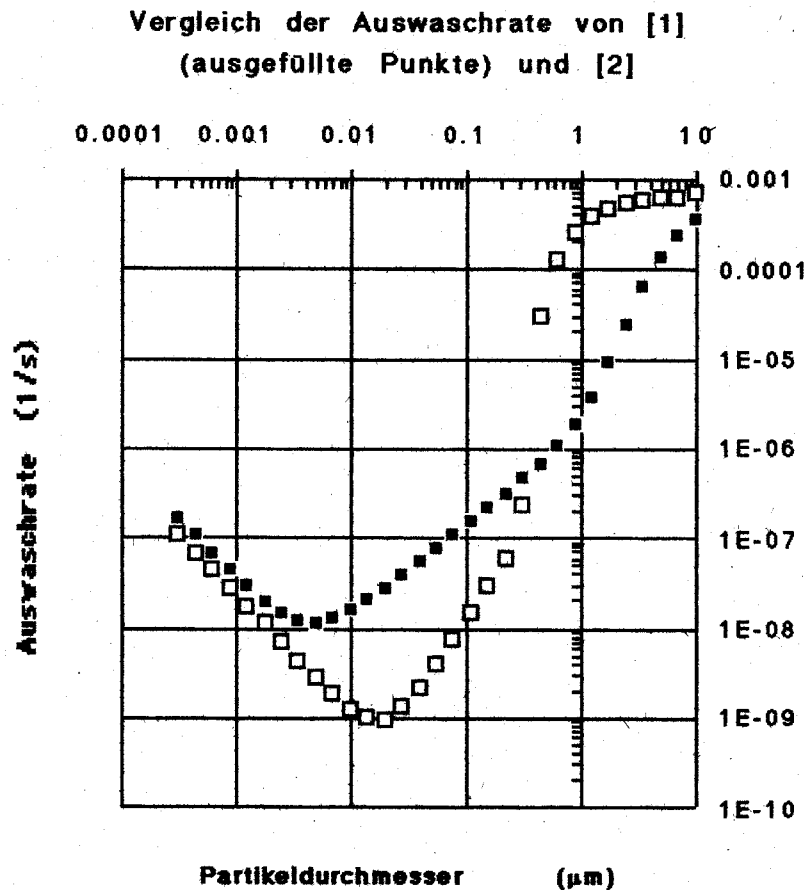


Fig. 13

Dies liegt wiederum daran, dass die Auswaschrates durch die Interception in [1] höher liegt als in [2]. Für grössere Partikel ist die Auswaschrates nach [2] viel besser als nach [1]. Dies ist wiederum auf die unterschiedliche Behandlung der Impaktion und Interception in den beiden Arbeiten zurückzuführen.

Weiter habe ich festgestellt, dass die Änderungen durch Temperatur und Druck auf die Auswaschrates vernachlässigbar klein sind. Der Druck ist nur bei der Thermophoresis von einer gewissen Bedeutung. Bei tiefem Druck werden also die mittleren Teilchen etwas schlechter ausgewaschen (siehe [1]). Die Diffusiophoresis ist abhängig von der Luftfeuchtigkeit, je feuchter die Luft, umso besser werden die mittleren Teilchen ausgewaschen.

5. Zusammenfassung

Meine Arbeit ermöglicht die einzelnen Prozesse, sowie ihre Auswirkung auf das Ganze besser zu verstehen.

Wie in der Atmosphärenphysik üblich besteht auch hier ein grosser Unterschied zwischen Theorie und Praxis. Der in Fig. 14 dargestellte Vergleich soll dies verdeutlichen.

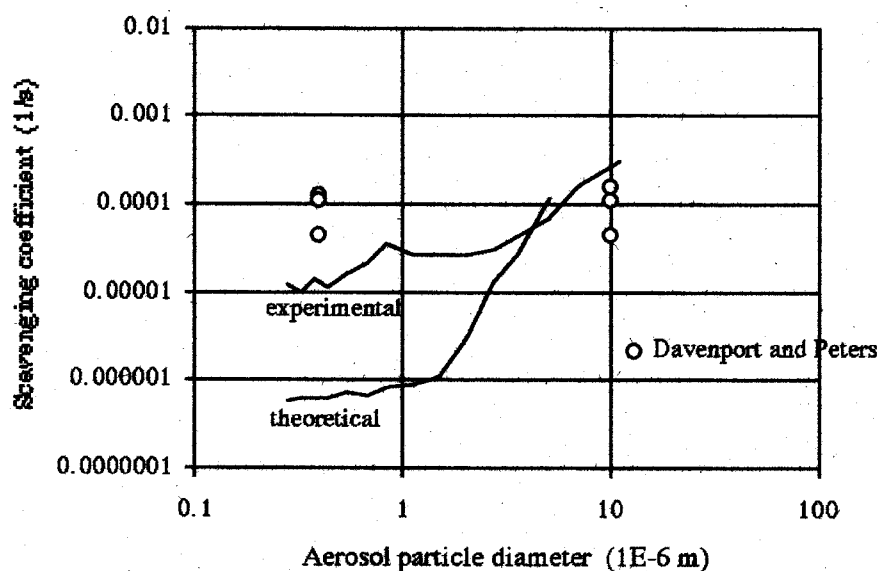


Fig 14

Fig. 14 aus [10] übernommen. Dort werden gesammelt Daten mit [1] verglichen. Die Unterschiede sind zum Teil beträchtlich und entstehen wohl durch die Unmöglichkeit alle Eigenschaften der Atmosphäre in genügender Masse zu berücksichtigen, sowie durch die Einmaligkeit der Messung und die daraus resultierende hohe Ungenauigkeit der Resultate

Ich hoffe, dass diese Arbeit jemandem von Nutzen sein kann und stehe allfälligen Fragen gerne zur Verfügung.

Literaturliste

- [1] H. M. DAVENPORT, L. K. PETERS
Field studies of atmospheric particle concentration changes during precipitation
Atmospheric Environment, Vol. 12 (1978)
- [2] W. G. N. Slinn
Some approximations for the wet and dry removal of particles and gas in the atmosphere
Water, Air and Soil Pollution 7 (1977)
- [3] H. R. Pruppacher, J. D. Klett
Microphysics of clouds and precipitation
D. Reidel Publ. Co., 1978
- [4] J. H. Seinfeld
Atmospheric Chemistry and Physics of Air Pollution
John Wiley & Sons, New York, 1986
- [5] C. N. Davies
Aerosol Science
Academic Press, London, 1966
- [6] Hans Volland
Atmospheric electrodynamics
Springer-Verlag, Berlin, 1984
- [7] B. J. Manson
Clouds, rain and rainmaking
Cambridge University Press, Cambridge, 1975
- [8] Landolt Börnstein, Band 11,7
Springer-Verlag, Berlin, 1960
- [9] Landolt Börnstein, New Series, Band V/4b
Springer-Verlag, Berlin, 1991
- [10] T. Schumann
Precipitationscaveniging of aerosol particles: a winter time field study
ETH Diss. No. 8843, Zürich, 1989

[11] Rigi

Mitteilungen der Naturforschenden Gesellschaft
Luzern, Band 30, 1988