

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
1.1. Atmosphärische Aerosole	1
1.2. Bildung von sekundärem organischen Aerosol	4
1.3. Chemische Zusammensetzung von atmosphärischem Aerosol	4
1.4. Bedeutung von biogenem Aerosol	6
1.5. Ziel dieser Arbeit	8
2. Messung und Analyse von BSOA	11
2.1. Aerosolkammern	11
2.1.1. SAPHIR	11
2.1.2. AIDA	13
2.1.3. Pflanzenkammer	13
2.2. Instrumentierung	14
2.2.1. Aerosol Massenspektrometer	14
2.2.2. Bestimmung der Partikelanzahl und -größenverteilung	23
2.2.3. Bestimmung der Dichte von BSOA	23
2.2.4. Volatilitäts-Tandem-DMA (VTDMA)	24
2.3. Statistische Methoden	25
2.3.1. Motivation	25
2.3.2. Clusteranalyse an massenspektrometrischen Daten	25
2.3.3. Elementverhältnisse von BSOA	32
2.3.4. Positive Matrix-Faktorisierung	37
3. Die Experimente im Überblick	41
3.1. Photochemische Alterung in SAPHIR	41
3.2. Alterung von BSOA in AIDA	46
3.3. Reale Vorläufergemische in der Pflanzenkammer	49
4. Ergebnisse und Diskussion	53
4.1. Ähnlichkeit von BSOA Massenspektren	53
4.1.1. Modellsystem in SAPHIR	53
4.1.2. Modellsystem in AIDA	55
4.1.3. Natürliche Vorläufergemische in der Pflanzenkammer	57
4.1.4. Vergleich der Clusteranalyse mit VOC-Emissionen und O/C	64
4.1.5. Vergleich der Clusteranalyse von Pflanzenkammer- und SAPHIR-Experimenten	66
4.1.6. Vergleich der Clusteranalyse von Pflanzenkammer-Experimenten zu Massenspektren aus der Literatur	67

Inhaltsverzeichnis

4.1.7. Zusammenfassung der Ergebnisse der Clusteranalyse	69
4.2. Elementarverhältnisse in alterndem BSOA	70
4.2.1. Allgemeine Charakteristika hochaufgelöster Massenspektren	70
4.2.2. Photochemische Alterung in SAPHIR	73
4.2.3. Alterung von BSOA in AIDA	78
4.2.4. O/C von Pflanzenkammer-Aerosol	81
4.2.5. Zusammenfassung der Ergebnisse der Elementaranalyse	81
4.3. Analyse der chemischen Alterung durch PMF	82
4.3.1. Vorausgehende Überlegungen	82
4.3.2. Ergebnis der PMF-Analyse eines photochemischen Alterungsexperiments	87
4.3.3. Detektion von Verunreinigungen in Alterungsexperimenten mit PMF	97
4.3.4. Zusammenfassung und Ausblick der PMF-Analysen	103
4.4. Chemische Eigenschaften von teilweise verdampften BSOA	105
4.4.1. Volatilität von BSOA bei photochemischer Alterung	105
4.4.2. Volatilität von BSOA bei Alterungsexperimenten an AIDA	107
4.4.3. Zusammenfassung der Ergebnisse	108
5. Alterung von biogenem sekundären organischen Aerosol	109
5.1. Interpretation der PMF-Faktoren	109
5.2. Zusammenhang zu atmosphärischen Prozessen	116
6. Zusammenfassung und Ausblick	117
A. Details der Datenanalyse und Ergebnisse	133
B. Oxidation von Terpenen und atmosphärische Produktion von Ozon	147
C. Modellierung eines photochemischen Alterungsexperiments	149
D. Abkürzungsverzeichnis	155
E. Curriculum Vitae	157
F. Publikationen	159
G. Danksagung	161