

<sup>1)</sup>Institut für Physikalische und Theoretische Chemie  
Universität GH Essen, D-45117 Essen

<sup>2)</sup>Institut für Troposphärenforschung e. V.  
Permoserstr. 15, D-04318 Leipzig

## Versuchsaufbau: "Coated Wall" Strömungsreaktor

Zur Messung der Massenakkommodationskoeffizienten wird ein "coated wall" Strömungsreaktor verwendet. Der Reaktor besteht aus einem doppelwandigen Edelstahlrohr mit einem Innendurchmesser von 24 mm. Die Eisoberfläche wird entweder durch Auskondensieren von Wasserdampf an der kalten Reaktorwand hergestellt oder bei der Verwendung eines Glaseinlasses durch Ausfrieren von Wasser bzw. der Salzlösung. Der Injektor besteht aus einem doppelwandigen Glasrohr, welches mittels eines Widerstandsdrahtes temperiert werden kann. Die Gasphasenkonzentration der interessierenden Komponente wird mit einer Molekularstrahlanlage in Verbindung mit einem Quadrupolmassenspektrometer bestimmt.

## Ziele der Forschung

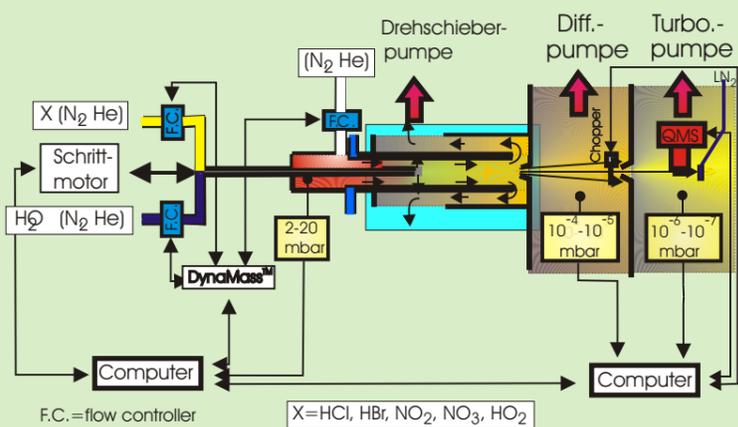
Im Rahmen dieses Projektes sollen heterogene Verlust- und Umwandlungsprozesse für verschiedene atmosphärische Spurengase ermittelt werden. Zur Ermittlung von Aufnahme-Koeffizienten werden zwei unterschiedliche experimentelle Ansätze verwendet:

- 1) Absorptionsspektroskopische Einzeltröpfchenanalyse:  
zur Bestimmung von Aufnahme-Koeffizienten für NO<sub>3</sub>- und OH-Radikale an reinen und dotierten (HCHO, HCOOH, CH<sub>3</sub>COOH) Wassertropfen.
- 2) "Coated Wall" Strömungsreaktor:  
zur Bestimmung von Aufnahme-Koeffizienten für NO<sub>x</sub>, N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, NO<sub>3</sub> und HX an reinen und dotierten Eisoberflächen.

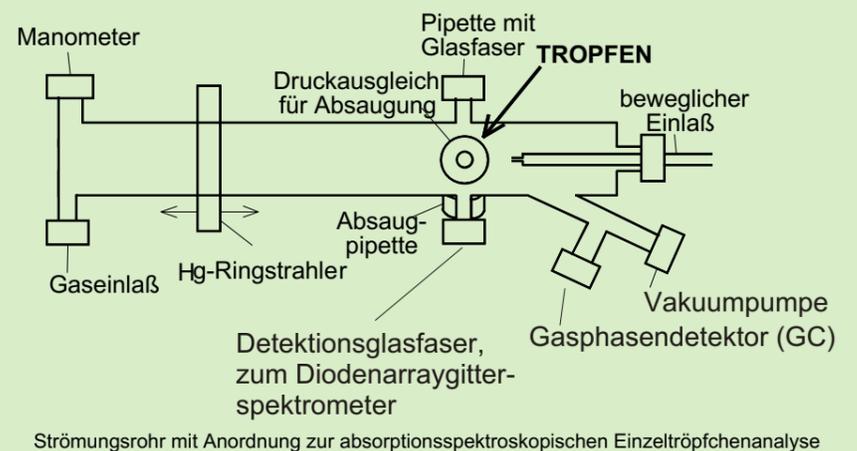
## Versuchsaufbau: Einzeltröpfchenexperiment

In der Gasphase werden die Radikale NO<sub>3</sub> und OH durch Photolyse von HNO<sub>3</sub> bzw. O<sub>3</sub> in Gegenwart von H<sub>2</sub>O oder H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> erzeugt. Die Konzentration der erzeugten Radikale wird durch Titration mit Tetramethylethylen (TME) bestimmt. In der flüssigen Phase wird der Abbau eines Radikalfängers durch direkte Absorptionsspektroskopie verfolgt und als Maß für die Radikalaufnahme verwendet. Das Analysenlicht wird über einen im Inneren der Pipette verlaufenden Lichtwellenleiter zum Tropfen geführt. Nach dem Durchlaufen des Tropfens wird das Analysenlicht mit Hilfe eines Gitterspektrometers und einer Diodenzeile analysiert.

## Versuchsaufbau: "Coated Wall" Strömungsreaktor



## Versuchsaufbau: Einzeltröpfchenexperiment



## Aufnahme von HBr auf einer Eisoberfläche

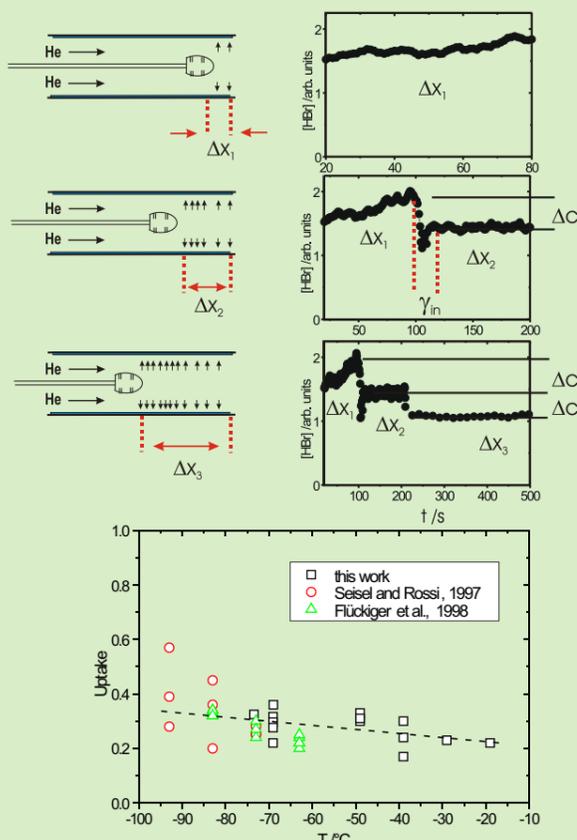
In der Abbildung ist die HBr-Konzentration für drei verschiedene Injektorpositionen dargestellt. Es ist zu beobachten, daß eine Vergrößerung der Eisoberfläche zu einer schnellen Änderung der HBr-Konzentration führt. Desweiteren stellt sich in jeder Injektorposition schnell ein stationärer Zustand ein.

Prinzipiell werden bei den Strömungsexperimenten zwei Phänomene beobachtet:

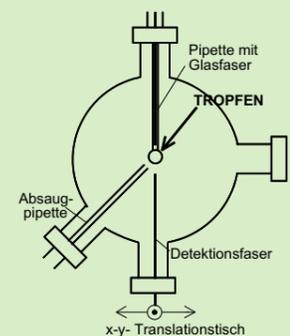
1. Eine große und sehr schnelle Aufnahme von HBr auf der "sauberen" Eisoberfläche
2. Ein sehr schnelles Einstellen einer stationären und zeitlich unabhängigen kontinuierlichen Aufnahme von HBr auf der Eisoberfläche.

Die Auswertung der sich einstellenden stationären HBr-Konzentrationen nach einer Reaktionsordnung erster Ordnung führt zu einem Uptakekoeffizienten von  $\approx 0.3 (\pm 0.3 / -0.1)$ .

Der Uptakekoeffizient zeigt eine negative Temperaturabhängigkeit. Ein Vergleich mit Literaturwerten ergibt eine sehr gute Übereinstimmung.

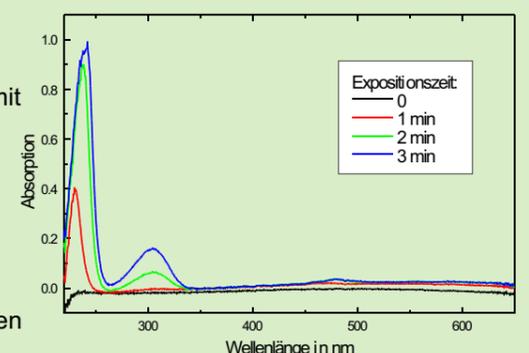


Strömungsrohr (Querschnitt),  
Tropfenerzeugung und -analyse



## Ergebnisse:

Die neu entwickelte Apparatur ermöglicht die Erzeugung von 1-2mm großen wässrigen Tropfen mit verschiedener Dotierung. In der Gasphase wurden bei einer HNO<sub>3</sub>-Konzentration von 10<sup>14</sup>-10<sup>16</sup> cm<sup>-3</sup> bis zu 10<sup>12</sup> NO<sub>3</sub> cm<sup>-3</sup> detektiert. Für eine stabile Spezies (HNO<sub>3</sub>) konnte die Aufnahme in den Tropfen verfolgt werden.



Absorptionsspektrum des Tropfens in Abhängigkeit von der Expositionszeit im Gasstrom (Stickstoff, p=100 Torr, relative Feuchte=50%, 10<sup>14</sup><[HNO<sub>3</sub>]cm<sup>3</sup><10<sup>16</sup>)