



## Doctoral Thesis

# Experimental study on collection efficiency and contact freezing of aerosols in a new collision chamber

**Author(s):**

Ladino Moreno, Luis Antonio

**Publication Date:**

2011

**Permanent Link:**

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-006401077> →

**Rights / License:**

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

Diss. ETH No. 19552

# **Experimental study on collection efficiency and contact freezing of aerosols in a new collision chamber**

A dissertation submitted to the  
ETH ZURICH

for the degree of  
Doctor of Sciences

presented by  
**LUIS ANTONIO LADINO MORENO**  
Master of sciences, Universidad Nacional Autónoma de México  
born 03 January 1983  
citizen of Colombia

accepted on the recommendation of  
Prof. Dr. U. Lohmann, examiner  
Dr. O. Stetzer, co-examiner  
Dr. O. Möhler, co-examiner

2011

## Abstract

Clouds play an important role in maintaining Earth-surface temperature and climate due to their influence on the hydrological cycle and because they cover  $\approx 60\%$  of the globe. Aerosol particles influence cloud formation and hence climate because they can absorb and scatter the shortwave and longwave radiation and also because they can act as a cloud condensation nuclei and/or ice nuclei. Both clouds and aerosols are important in determining the global radiative forcing. However, the contribution from aerosol-cloud interactions is rather uncertain especially from mixed-phase and cold clouds. Extended research has been done on below cloud scavenging but there is still a lack of data on in-cloud scavenging. Contact freezing is believed to be the most efficient ice formation path way, but despite this, it is one of the most poorly understood and less researched heterogeneous freezing mechanisms. Experimental data on collection efficiency and contact freezing that are atmospherically relevant are needed to better understand the role of aerosol particles and clouds on the radiation budget of the Earth and on climate.

In the present thesis, a new chamber (the CoLLision Ice Nucleation CHamber, CLINCH) was developed to study two important processes that take place within a cloud. The first process studied was the collection efficiency ( $E$ ) between submicron aerosol particles and cloud droplets. The collection efficiency was determined by either maintaining a fixed droplet size and varying the particle size or vice-versa. Size selected lithium metaborate particles with radii between  $0.05$  and  $0.33\ \mu\text{m}$  were injected into the chamber to collide with cloud droplets having radii between  $12.8$  and  $20.0\ \mu\text{m}$ . The droplets and the captured particles were collected at the bottom of the chamber with a custom-made cup impactor. An inductively coupled plasma-mass spectrometer was used to determine the scavenged aerosol mass from the collected solution. From this, the collection efficiencies could be calculated. The obtained experimental data is compared with theoretical calculations (flux model, Wang et al. (1978) and Pruppacher and Klett (1997)) where Brownian motion, thermophoresis and diffusiophoresis were taken into account. In the case of a fixed collector droplet size,  $E$  decreases with increasing the particle size until a particle radius ( $a$ ) of  $0.24\ \mu\text{m}$ . Beyond  $a=0.24\ \mu\text{m}$ ,  $E$  increases with increasing the particle size. The minimum value of  $E$  at  $a=0.24\ \mu\text{m}$  corresponds to the "Greenfield Gap". The experimental data correlates with predictions within one order of magnitude. Theory predicts a small decrease in  $E$  with increasing particle size where experimentally the "Greenfield Gap" has been found instead. In the case of a fixed particle size,  $E$  decreases with increasing the droplet size as predicted by theory. The correlation between observations and theory is similar to the case of a fixed collector droplet size.

The second process studied with CLINCH was the freezing of cloud droplets due to contact freezing. Because kaolinite is found in desert dust and is believed to be a good freezing nucleus, it was chosen to test ice nucleation of cloud droplets of  $25.7\ \mu\text{m}$  in diameter. The ice nucleation ability was addressed by varying the kaolinite particle size, the aerosol concentration and temperature. To distinguish between liquid droplets and ice crystals, an Ice Optical DEtector (IODE) was used to measure the frozen fraction. Using cloud droplets without and with kaolinite particles, it was possible to determine the experimental threshold ( $238.6\ \text{K}$ ) between homogeneous and heterogeneous freezing. This means that pure cloud droplets froze in

the absence of kaolinite below 238.6 K. It has been found that both aerosol concentration and particle size are important for contact freezing. At low aerosol concentrations ( $< 100 \text{ cm}^{-3}$ ) no significant freezing events were observed within the measurement uncertainties. However, at aerosol concentrations of  $300 \text{ cm}^{-3}$  and  $1000 \text{ cm}^{-3}$  ice formation as a function of temperature was detected by IODE. When the particle size was changed from 400 nm to 800 nm the onset freezing temperature was found to be  $7 \text{ }^{\circ}\text{C}$  higher. A direct comparison of the frozen fractions and trends between contact freezing with immersion freezing was possible because Lüönd et al. (2010) used the same kaolinite particles to study their ice nuclei ability in the immersion mode. It was found that contact freezing nucleate the ice crystals at higher temperatures (under certain conditions) compared to immersion freezing for a given particle size.

## Zusammenfassung

Wolken bedecken  $\approx 60\%$  der Erdoberfläche und sind Teil des Wasserkreislaufes. Sie haben somit einen starken Einfluss auf die Erhaltung des Wärmehaushalts der Erde und auf das Klima. Aerosolpartikel beeinflussen die Wolkenbildung und dadurch das Klima, da sie einerseits die kurz- und langwellige Strahlung streuen und absorbieren können und andererseits als Kondensationskeim für Wolkenröpfchen oder als Eiskeim für Eiskristalle fungieren können. Sowohl Wolken als auch Aerosole sind wichtig für den globalen Strahlungsantrieb. Der Beitrag der Aerosol-Wolken Interaktionen insbesondere für Mischphasen- und Eiswolken ist jedoch noch nicht mit Gewissheit bekannt. Die Auswaschung von Aerosolen durch Tröpfchen unterhalb von Wolken wurde intensiv erforscht; zur Auswaschung im Innern von Wolken ist die Datenlage jedoch noch lückenhaft. Kontaktgefrieren wird als der effizienteste Eisbildungsprozess vermutet, es ist aber nach wie vor der am wenigsten verstandene und erforschte heterogene Gefriermechanismus. Experimentelle Daten zu Kollisionseffizienz und zu Kontaktgefrieren unter atmosphärisch relevanten Bedingungen werden benötigt, um die Rolle von Aerosolen und Wolken auf den Strahlungshaushalt und auf unser Klima besser zu verstehen.

In dieser Arbeit wurde eine neue Kammer (die CoLLision Ice Nucleation Chamber, CLINCH) entwickelt, um zwei wichtige Prozesse zu studieren, die in Wolken vorkommen. Der erste Prozess, der untersucht wurde, ist die Kollektionseffizienz ( $E$ ) von Wolkenröpfchen und Aerosolpartikeln im Submikrometer-Bereich. Die Kollektionseffizienz wurde entweder bei fester Tropfengröße und verschiedenen Partikelgrößen bestimmt oder umgekehrt. Grössenselektierte Lithiummetaborat-Partikel mit Radien zwischen  $0.05$  und  $0.33\ \mu\text{m}$  wurden in die Kammer injiziert, um mit Wolkenröpfchen in der Größenordnung von  $12.8$  bis  $20.0\ \mu\text{m}$  zu kollidieren. Die Tropfen und die eingefangenen Partikel wurden am unteren Ende der Kammer mit einem speziell angefertigten Topf-Impaktor gesammelt. Um die Masse der ausgewaschenen Aerosole in der gesammelten Lösung zu bestimmen, wurde ein induktiv gekoppeltes Plasma-Massenspektrometer verwendet. Daraus konnte die Kollektionseffizienz berechnet werden. Die experimentell bestimmten Daten wurden mit theoretischen Berechnungen verglichen (Fluss Modell, Wang et al. (1978) und Pruppacher and Klett (1997)), wobei Brown'sche Bewegung, Thermophorese und Diffusiophorese berücksichtigt wurden. Im Falle von konstanter Tropfengröße des Kollektors nimmt  $E$  mit zunehmender Partikelgröße bis zu einem Partikelradius ( $a$ ) von  $0.24\ \mu\text{m}$  ab. Unterhalb von  $0.24\ \mu\text{m}$  steigt  $E$  mit zunehmender Partikelgröße wieder an. Das Minimum in  $E$  bei  $a=0.24\ \mu\text{m}$  entspricht der sogenannten "Greenfield Lücke". Die experimentellen Daten korrelieren mit den Vorhersagen innerhalb von einer Größenordnung. Die Theorie sagt eine geringe Abnahme in  $E$  mit zunehmender Partikelgröße voraus, wo experimentell die "Greenfield Lücke" gefunden wurde. Im Falle einer konstanten Partikelgröße nimmt  $E$  mit zunehmender Tropfengröße in Übereinstimmung mit der Theorie zu. Die Korrelation zwischen den Beobachtungen und der Theorie ist ähnlich wie im Fall von konstanter Kollektor-Tropfengröße.

Der zweite Prozess, der mit CLINCH studiert wurde, ist das Gefrieren von Wolkenröpfchen durch Kontaktgefrieren. Da Kaolinit in Wüstenstaub vorkommt und allgemein für einen guten Eisnukleus gehalten wird, wurde es ausgewählt, um die Eisbildung in Wolkenröpfchen mit

einem Durchmesser von  $25.7 \mu\text{m}$  zu untersuchen. Die zur Eisbildung notwendigen Bedingungen wurden in Abhängigkeit von der Temperatur und von der Partikelgröße und Aerosolkonzentration von Kaolinit untersucht. Der Anteil gefrorener Tropfen wurde mit dem Ice Optical Detector (IODE) ermittelt, welcher zwischen Tropfen und Eiskristallen unterscheiden kann. Indem das Gefrieren der Wolkentröpfchen mit und ohne Kaolinit untersucht wurde, konnte der Übergang von heterogenem zu homogenem Gefrieren ( $238.6 \text{ K}$ ) experimentell bestimmt werden. Homogenes Gefrieren von reinen Wassertropfen ohne die Kollision mit Kaolinit fand bei einer Temperatur von  $238.6 \text{ K}$  statt. Es zeigte sich, dass sowohl die Aerosolkonzentration als auch die Partikelgröße für das Kontaktgefrieren wichtig sind. Bei niedrigen Aerosolkonzentrationen ( $< 100 \text{ cm}^{-3}$ ) konnten keine signifikanten Gefrierereignisse innerhalb der Messunsicherheit beobachtet werden. Bei Aerosolkonzentrationen von  $300 \text{ cm}^{-3}$  und  $1000 \text{ cm}^{-3}$  jedoch konnte die Bildung von Eis als Funktion der Temperatur mit IODE detektiert werden. Sobald die Partikelgröße von  $400 \text{ nm}$  auf  $800 \text{ nm}$  erhöht wurde, konnte das Einsetzen der Eisbildung bereits bei einer  $7 \text{ }^{\circ}\text{C}$  höheren Temperatur beobachtet werden. Desweiteren wurde die Gefrierrate und das Verhalten der Gefrierrate mit variabler Temperatur für Kontakt- und Immersionsgefrieren verglichen. Dieser direkte Vergleich war möglich, da Lüönd et al. (2010) für die Messung des Immersionsgefrierens dieselben Kaolinitpartikel verwendeten. Es konnte gezeigt werden, dass die Bildung von Eiskristallen bei Kontaktgefrieren bei höheren Temperaturen für eine bestimmte Partikelgröße (und unter bestimmten Bedingungen) einsetzt im Vergleich zu Immersionsgefrieren.