

Windrichtungsabhängige Beprobung zur Immissionsmessung von PCDD/F

Tobias Schwotzer*, Hans-Jörg Wildanger#, Gisela Dörr*, Otto Hutzinger*^o, Maximilian Swerev^o, Hermann Nordsieck^o

* Lehrstuhl für Ökologische Chemie und Geochemie, Universität Bayreuth, 95440 Bayreuth

CIL Computer im Labor GmbH, Kastanienweg 21, 66386 St.Ingbert

^o BfA Bayerisches Institut für Abfallforschung, Am Mittleren Moos 46B, 86167 Augsburg

EINLEITUNG

Bei Immissionsmessungen erhebt sich oft die Frage, aus welche Quellen die Immissionen herrühren. Zur Quellenzuordnung sind verschiedene Herangehensweisen gebräuchlich:

- Meteorologische Daten (Windgeschwindigkeit und -richtung) und die Konzentrationen während der Beprobungszeiträume werden miteinander korreliert. Das gleichzeitige Auftreten einer hohen Belastung und einer speziellen Windrichtung weist auf eine Emissionsquelle in dem entsprechenden Gebiet hin^{1,3)}.
- Für großräumige Einflüsse werden die Rückwärts-Trajektorien der Luftmassen, die die Probenahme station passieren, berechnet, um den Ursprung der Belastung zu erhellen^{4,5)}.
- Eine ausgefeiltere Methode der Quellenzuordnung stellt die Methode der "Chemischen Massen Bilanz" dar. Dabei werden die Substanz-Muster der Emissionen und der Immissionen in einem multivariaten Regression Modell miteinander verglichen und verrechnet^{3,6)}.
- Auch statistische Methoden wie Hauptkomponenten- und Faktoranalyse wurden erfolgreich eingesetzt, um Emissionsquellen zu unterscheiden^{3,4,7,8)}.

Alle diese Methoden schließen einander nicht aus, sondern können zur Interpretation von Immissionsdaten sinnvoll miteinander kombiniert werden.

Da die Probenahme am Anfang aller Studien zur Quellenzuordnung steht, wurde inzwischen versucht, durch windrichtungsabhängige Beprobung schon bei diesem Vorgang direkt mehr Informationen zu erhalten. Das Prinzip ist, daß Luft aus verschiedenen Windrichtungen getrennt auf separaten Probenahmeköpfen gesammelt wird. Dabei wird die Windrichtung registriert und automatisch der entsprechende Probenahmekopf eingeschaltet. Windrichtungsabhängige Probenahmesysteme für Schwebstaub wurden von der Universität Hamburg entwickelt und in einem Forschungsprojekt über Zirkulation und Schadstoffumsatz in der Nordsee eingesetzt⁹⁾, ebenso vom Warren Spring Laboratory in England zur Quellenzuordnung von metallurgischen Betrieben^{10,11)} und von C.A. Pio in Portugal an einem Industriestandort¹²⁾.

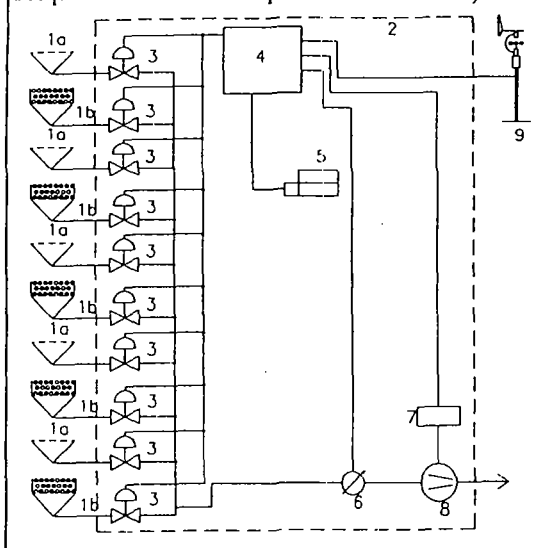
Hier beschreiben wir ein System zur windrichtungsabhängigen Probenahme von Schwebstaub und flüchtigen Verbindungen und seine Anwendung in einem Immissionsmonitoring für PCDD/F in Augsburg.

BESCHREIBUNG DER WINDRICHTUNGSABHÄNGIGEN PROBENAHMESTATION (WRP)

Die Station besteht aus einem überdachten Gestell für die Probenahmeköpfe (PNK) und den Temperaturfühler, dem Windmast (Höhe 7m) mit dem kombinierten Windgeber und einem Schrank, der die Pumpe, den Massendurchflußmesser, die Schaltventile für die PNK, die Systemelektronik und als Registrier- und Steuereinheit einen Computer enthält (Abb.1).

Abb.1: Aufbauschema der WRP

(1 Probenahmeköpfe 2 Schrank 3 Ventile 4 Systemelektronik 5 Computer 6 Massendurchflußmesser 7 Frequenzumrichter 8 Pumpe 9 Windaufnehmer)



windrichtungsabhängigen Probenahme wie minimale und maximale Windgeschwindigkeit, Windsektor, Volumenfluß, Entfernung von Quellen für jeden PNK und die Systemintervalle festgelegt. Während des automatischen Betriebs der WRP werden kontinuierlich Daten, die für einen vorgegebenen Zeitabschnitt berechnet werden, wie Windvektor, Temperatur, Probevolumen jedes PNK sowie Fehlermeldungen des Systems in einer Ergebnisdatei gespeichert. Die Winddaten werden vom Programm in Form Kartesischer Koordinaten verrechnet, die Überprüfung, welcher PNK zu aktivieren ist, erfolgt durch Vektoraddition der Windvektoren eines vorgegebenen Zeitintervalls.

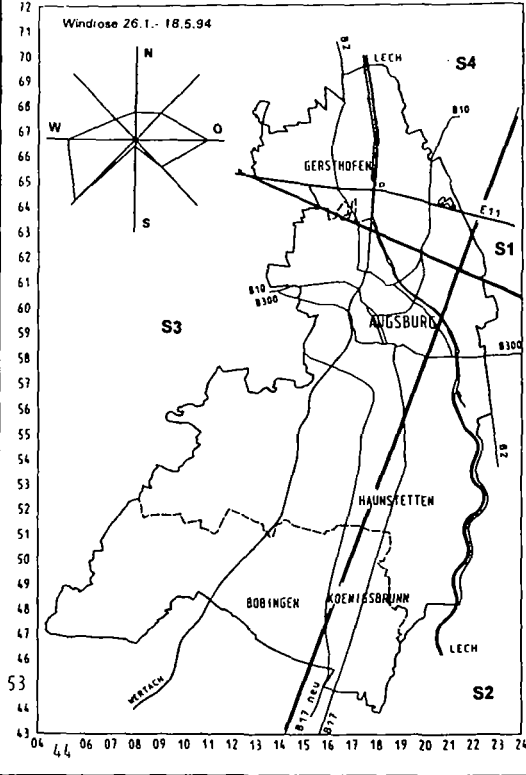
Als weitere Betriebsart steht der Handbetrieb zur Verfügung, der zum Testen der verschiedenen Teile und Funktionen der WRP dient. Die Zuverlässigkeit des automatischen Betriebs der WRP wird erhöht durch eine Batterieversorgung während kurzzeitiger Stromunterbrechungen und Programmroutinen zum erneuten Starten der automatischen Beprobung oder zur schrittweisen Reduzierung des Volumenflusses, falls der vorgegebene Wert nicht mehr erreicht wird.

Die WRP ist besonders geeignet, um den Ursprung niedrig konzentrierter Schadstoffe, die eine lange Beprobungszeit erfordern, zu ermitteln. Bei der konventionellen Probenahme sind während einer längeren Beprobungszeit die dafür erforderlichen, stabilen meteorologischen Verhältnisse nicht immer gegeben. Die WRP hat den Vorteil, nicht auf einen kontinuierlichen Zeitraum beschränkt zu sein, eine Probe entspricht normalerweise einigen kürzeren Zeiträumen gleicher meteorologischer Bedingungen. Deshalb ist der personelle und analytische Aufwand wesentlich geringer als bei der konventionellen Beprobung, wo eine hohe Probenahmefrequenz notwendig ist, um Probekonzentrationen und Winddaten miteinander zu korrelieren. Die WRP ist damit ein einfacher Weg, zuverlässige, richtungsabhängige Belastungswerte zu erhalten.

Mit der WRP können bis zu 10 PNK betrieben werden. Der einem PNK zugeordnete Windsektor ist frei zwischen 0 - 360° wählbar. Wenn zwei PNK den gleichen Sektor beproben (z.B. ein PNK für die flüchtigen organischen Verbindungen und der andere PNK für den Schwebstaub), dann werden diese PNK abwechselnd in Intervallen mit der Pumpe verbunden. Die Aktivierung der PNK geschieht durch Membranventile, die über Druckluft betätigt werden. Eine frequenzmodulierte Pumpe liefert einen stufenlos regelbaren Volumenfluß zwischen 0-500 l/min.

Der automatische Betrieb der WRP wird von einem Computerprogramm gesteuert. In diesem Programm sind die Parameter der

Abb.2: Sektoren und Windrose während des WRP Monitorings in Augsburg (26.1.-18.5.94)



WRP IMMISSIONSMONITORING

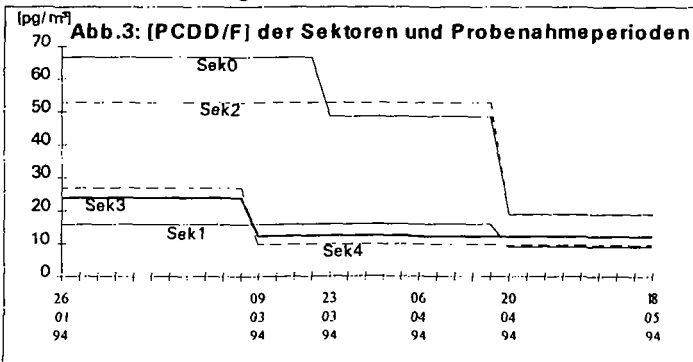
Die WRP wurde in einem ungefähr halbjährigen Immissionsmonitoring (26.1. - 18.5.94) am Stadtrand von Augsburg eingesetzt. In einem Immissionsmeßnetz mit 7 Stationen waren im Jahr 1992 an dem Standort, an dem die WRP positioniert wurde, höhere Belastungen mit PCDD/F festgestellt worden.

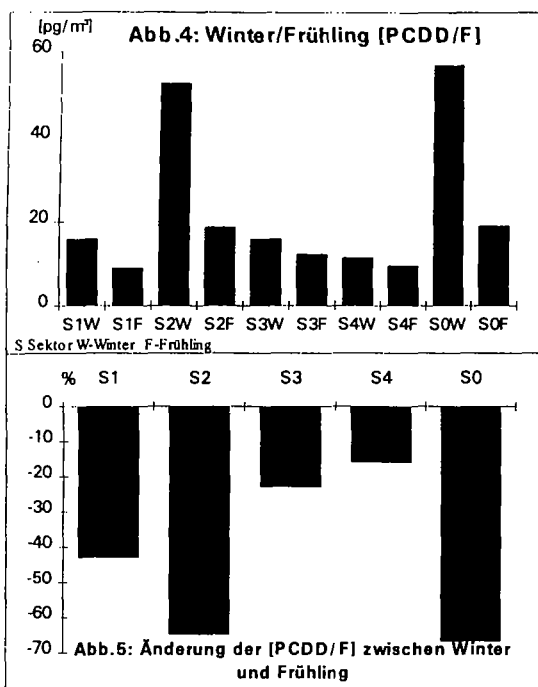
Die Windrose wurde in vier 90° Sektoren aufgeteilt (Abb.2). Die Probenahme erfolgte bei Windgeschwindigkeiten zwischen 0,8 und 10 m/s. Für die Windstillen (= Sektor 0, undefinierte Windrichtung, Windgeschwindigkeit < 0,8 m/s) war ein fünfter PNK reserviert.

Abb.3 zeigt die PCDD/F (= Summe der Homologen) Konzentrationen der Sektoren während des Monitorings. Die Probenahmeperioden der Sektoren sind unterschiedlich lang, da einige Windrichtungen bevorzugt waren und andere seltener auftraten (Abb.2).

Allgemein waren die PCDD/F Belastung im Winter höher und fiel im Frühling. Die Konzentrationen in Sektor 0 und 2 übertrafen die der anderen Sektoren. Zum leichteren Vergleich wurden gleichlange Probenahmeperioden definiert, indem die Perioden zu einer Winter- (bis 20.4.95) und einer Frühlingsprobe zusammengefaßt wurden (Abb.4). Es bestätigte sich, daß in Sektor 2 eine begrenzte lokale Quelle für PCDD/F vorhanden war, vermutlich nahegelegen zur WRP, da die Windstillen auch höher belastet waren.

Die Abnahme der PCDD/F Konzentrationen (Abb.5) vom Winter zum Frühling war je nach Sektor un-





terschiedlich. Das kann mit jahreszeitabhängigen Emissionen in den Sektoren zusammenhängen, d.h. eine im Winter aktive Quelle wird durch einen stärkeren Abfall der PCDD/F Belastung angezeigt. Diese winterlichen Emissionen könnten von einer speziellen Art der Wohnraumbeheizung herrühren. Schatowitz et al. berichteten über hohe PCDD/F Emissionen, wenn Abfallholz oder Haushaltsabfälle in Holz- oder Haushaltsöfen verbrannt wurden¹³⁾. Das Verbrennen von derartigem Material in einer Gartenhaussiedlung in Nachbarschaft der WRP war nicht ausgeschlossen. Natürlich konnten auch teilweise die meteorologische Verhältnisse, wie Inversionswetterlagen verbunden mit einer bestimmten Windrichtung,

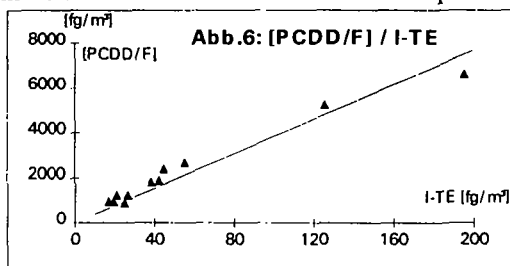
die unterschiedliche jahreszeitliche Änderung in den Sektorbelastungen hervorrufen. Die Homologen-Muster der Proben wurden mit dem mittleren Homologen-Muster des Monitorings verglichen. Dazu wurde ein einfaches Rangordnungs- und Bewertungsschema benutzt. Es ergab sich, daß das Muster der Winterproben von Sektor 0 und 2 von dem typischen Wintermuster und auch von dem mittleren Monitoring-Muster abwich. Die Homologen Muster der Frühlingsproben der Sektoren waren ähnlicher als die der Winterproben.

Tab.1: Windrichtungshäufigkeit / PCDD/F Beitrag der Sektoren

Sektor	1	2	3	4
Windrichtungshäufigkeit %	17,7	12,9	50,8	18,6
Beitrag % zu [PCDD/F]	10,8	38,7	40,0	10,5

In Tabelle 1 sind die Windrichtungshäufigkeit und der Beitrag der Sektoren zu der PCDD/F Belastung am Standort der WRP aufgeführt. Auch diese Betrachtung zeigte, daß aus Sektor 2 ein höherer Anteil an PCDD/F herantransportiert wurde als aufgrund der Häufigkeit von Winden aus dieser Richtung zu erwarten gewesen wäre. Wechselweise fielen die Beiträge der anderen Sektoren niedriger aus als deren Windrichtungshäufigkeit.

Für die I-TE Konzentrationen ergab sich ähnliches wie für die PCDD/F Homologensumme. Zwischen den I-TE- und den PCDD/F Homologensumme-Werten in den Immissionsproben wurde eine gute Korrelation ($r = 0,935$) aufgefunden (Abb.6).



ZUSAMMENFASSUNG

Eine windrichtungsabhängige Probenahmestation (WRP) wurde entwickelt. Die WRP wurde zum Immissionsmonitoring von PCDD/F eingesetzt, was die erste Anwendung einer WRP für die Probenahme organischer Schadstoffe darstellt. Während aller Probenahmeperioden lief der automatische, unbeaufsichtigte Betrieb der WRP reibungslos. Durch Vergleich der Konzentrationen und Homologen-Muster der Proben war es möglich, das Gebiet zu lokalisieren, von dem höhere Emissionen an PCDD/F ausgingen. Verbrennung von Abfallholz und Haushaltsabfällen zum Zwecke der Wohnraumbeheizung wurden als mögliche Quelle eines begrenzten räumlichen Einflusses in Betracht gezogen. Immissionsmessungen mit einer WRP sind somit das Mittel der Wahl um Emittenten zu lokalisieren oder zu überwachen.

DANKSAGUNG

Wir danken dem Bayerischen Staatsministerium für Landesentwicklung und Umweltfragen für die Finanzierung dieses Forschungsvorhabens.

LITERATUR

- 1) R M Smith, P O'Keefe, D R Hilker, K M Aldous, S H Mo, R M Stelle (1989): Ambient air and incinerator testing for PCDD/F by low resolution MS, *Chemosphere* **18**, 585-592
- 2) R M Smith, P W O'Keefe, K Aldous, S Connor, P Lavin, E Wade (1990): Continuing atmospheric studies of PCDD/F in New York area, *Chemosphere* **20**, 1447-1453
- 3) C W Sweet, S J Vermette, S Landsberger (1993): Sources of toxic trace elements in urban air in Illinois, *Environ Sci Technol.* **27**, 2502 - 2510
- 4) P Masclet, S Pistikopoulos, S Beyne, G Mouvier (1988): Long range transport and gas/particle distribution of PAH at a remote site in the Mediterranean Sea, *Atmos Environ.* **22**, 639-650
- 5) W Israel, A Erdmann, J Shen, W Frenzel, E Ulrich (1992): Methoden zur Ermittlung von Schwebstaubimmissionen, *Staub - Reinhalt Luft* **52**, 283 - 291
- 6) R M Kamens, C K Li (1993): The use of PAH as source signatures in receptor modeling, *Atmos Environ* **27A**, 523 - 532
- 7) J Einax, K Danzer, M Matherny (1991): Umweltanalytische und chemometrische Untersuchungen an Staubbiederschlägen, *Intern J Environ Anal Chem* **44**, 185-196
- 8) J Einax (1993): Statistische Anwendungen und Modelle-Einsatz multivariat-statistischer Methoden zur Interpretation staubförmiger Immissionen, *USWF-Z Umweltchem Ökotox* **5**, 45-51
- 9) W Dannecker, M Kriews, K Naumann, M Steiger et al. (1994): Sources of atmospheric pollutants- wind directed aerosol sampling, in: J Sündermann (Ed.): Circulation and contaminant fluxes in the North Sea, Springer, 159-168
- 10) J L Barnett, P Clayton, B J Davis (1987): Fugitive emissions - a directional sampler for particulates, Warren Spring Laboratory, Stevenage
- 11) P Clayton, B J Davis (1993): Directional sampling as a means of assessing the contribution of fugitive emissions to ambient pollutant levels; S Couling (Ed.): Measurement of airborne pollutants; Butterworth-Heinemann, Oxford
- 12) C A Pio, M S Viana (1991) Directional sampling of air pollutants using a wind sensor/microcomputer system; *Environ Technol* **12**, 407-412
- 13) B Schatowitz, G Brandt, F Gafner, E Schlumpf, R Bühler, P Hasler, T Nussbaumer (1993): Dioxin emissions from wood combustion, *Organohalogen Compounds* **11**, 307-310

