



30 Jahre Pilotstation des Umweltbundesamtes

**Festschrift anlässlich der Feier zum
30jährigen Bestehen der Pilotstation
am 5. November 2001**

Diese TEXTE-Veröffentlichung kann bezogen werden bei
Vorauszahlung von DM 20,-- (10,26 Euro)
durch Post- bzw. Banküberweisung,
Verrechnungsscheck oder Zahlkarte auf das

Konto Nummer 4327 65 - 104 bei der
Postbank Berlin (BLZ 10010010)
Fa. Werbung und Vertrieb,
Ahornstraße 1-2,
10787 Berlin

Parallel zur Überweisung richten Sie bitte
eine schriftliche Bestellung mit Nennung
der **Texte-Nummer** sowie des **Namens**
und der **Anschrift des Bestellers** an die
Firma Werbung und Vertrieb.

Herausgeber: Umweltbundesamt
Postfach 33 00 22
14191 Berlin
Tel.: 030/8903-0
Telex: 183 756
Telefax: 030/8903 2285
Internet: <http://www.umweltbundesamt.de>

Redaktion: Karin Uhse, II 6.5
Gunhild Aichert, Z 1.4

Berlin, Oktober 2001

INHALT

1.	DIE PILOTSTATION - EIN KONTINUUM VON FORSCHUNG, FORSCHUNGSERGEBNISSEN UND LUFTREINHALTEMASSENNAHMEN	9
	<i>Hartmut Markusch und Wolfgang Grosch</i>	
1.1	Die Forschungsschwerpunkte im Verlauf der Jahre.....	11
1.2	Arbeitsschwerpunkte der Pilotstation - Anpassung an neue Fragestellungen	12
	<i>Wolfgang Grosch, Rainer Berg, Anneliese Medem, Werner Rudolf und Volker Stummer</i>	
1.2.1	Harmonisierung und Qualitätssicherung internationaler Messprogramme	13
1.2.1	Qualitätssicherung und Harmonisierung der Immissionsmessungen in Deutschland	18
1.2.3	Durchführung von Eignungsprüfungen laufend aufzeichnender Messgeräte	20
1.2.4	Messungen zur Erprobung von Messverfahren und Sondermessungen zur Vorbereitung gesetzgeberischer Maßnahmen	21
2.	LANGJÄHRIGE MESSUNGEN VON LUFTVERUNREINIGUNGEN IN BELASTUNGSGEBIETEN.....	30
	<i>Rainer Berg und Anneliese Medem</i>	
2.1	Schwefeldioxid.....	30
2.1.1	Der Wintersmog hat sich verabschiedet	31
2.2	Stickoxide.....	32
2.3	Benzol.....	33
2.4	Kohlenmonoxid	34
3.	LANGZEITMESSUNGEN IM MESSNETZ DES UBA	35
	<i>Siegfried Beilke, Karin Uhse und Elke Bieber</i>	
3.1	Einleitung.....	35
3.2	Geographische Lage der Stationen und Messprogramm	35
3.3	Gas- und partikelförmige Luftverunreinigungen.....	40
3.3.1	Schwefeldioxid (SO ₂)	40
3.3.2	Stickstoffdioxid (NO ₂).....	42
3.3.3	Ozon (O ₃).....	44
3.3.4	Kohlendioxid (CO ₂).....	48
3.3.5	Methan (CH ₄)	50
3.3.6	Staubpartikel	51
3.3.6.1	Schwefel im Schwebstaub	54
3.3.6.2	Schwermetalle im Schwebstaub	55
3.4	Ionen im Niederschlag	56
3.4.1	Konzentrationen der Ionen im Niederschlag	56
3.4.2	Depositionen von Ionen im Niederschlag	60
3.5	Danksagung	61
3.6	Literatur	62

4. ORGANISCHE SUBSTANZEN IN DER ATMOSPHERE UND IHR EINTRAG IN BODEN UND GRUNDWASSER... 63

Ruprecht Schleyer und Barbara Raffius

4.1	Einleitung.....	63
4.2	Vorgehensweise	64
4.3	Emissionen organischen Substanzen in die Atmosphäre.....	66
4.4	Organische Substanzen in der Atmosphäre	68
4.5	Deposition organischer Luftinhaltsstoffe	71
4.6	Bodenpassage organischer Luftinhaltsstoffe.....	72
4.7	Organische Luftinhaltsstoffe im Grundwasser.....	75
4.8	Schlussfolgerungen	76
4.9	Literatur	77
4.10	Abkürzungen.....	79

5. GESUNDHEITLICHE RISIKEN DURCH MIKRO-ORGANISMEN IN DER UMGEBUNGSLUFT AM BEISPIEL DER BIOLOGISCHEN ABFALLVERWERTUNG IN KOMPOSTIERUNGSANLAGEN..... 80

Rüdiger Hofmann

5.1	Einleitung.....	80
5.2	Messmethoden und Messtechnik.....	83
5.3	Bewertungskriterien für Messwerte	86
5.4	Emissionsminderungsmaßnahmen	90
5.5	Literatur	92

6. EIN BEITRAG ZUR CHARAKTERISIERUNG DES SEEKLIMAS AN DER DEUTSCHEN NORDSEEKÜSTE ... 93

Carsten Stick, Siegfried Beilke, Karin Uhse, Antje Adolphsen, Eckhard Hundhausen, Markus Wallasch und Rainer Berg

6.1	Einleitung.....	93
6.2	Schwefeldioxid und Stickstoffdioxid	93
6.3	Ozon	96
6.4	Literatur	99

7. DIE UV-STRAHLUNG IN DEUTSCHLAND 100

Siegfried Beilke und Markus Wallasch

7.1	Einleitung.....	100
7.2	Allgemeine Grundlagen.....	100
7.3	Einflussfaktoren der bodennahen UV-B-Strahlung.....	101
7.3.1	Ozon.....	101
7.3.2	Sonnenwinkel	101
7.3.3	Höhe über NN.....	102
7.3.4	Bewölkung.....	102
7.3.5	Aerosole und Spurengase	102
7.3.6	Albedo	103
7.4	Messungen der UV-Strahlung	103
7.4.1	UV-Messungen in Deutschland.....	103
7.4.2	Ergebnisse.....	105
7.5	Literatur	106

8. FERNERKUNDUNG VON LUFTVERUNREINIGUNGEN MITTELS KORRELATIONS-SPEKTROSKOPIE (COSPEC) 108

Siegfried Beilke, Wolfgang Grosch und Dieter Jost

8.1	Einleitung.....	108
8.2	Ausgewählte Messergebnisse	109
8.2.1	Bestimmung der Emissionen von Flächenquellen.....	109
8.2.2	Bestimmung von grenzüberschreitenden Transporten	109
8.2.3	Bestimmung der Umwandlung von NO zu NO ₂ in Abgasfahnen	115
8.3	Literatur:	117

9. FLÜCHTIGE ORGANISCHE VERBINDUNGEN (VOC) .. 118

Jürgen Müller, Françoise Riedel, Christine Hoffmann und Ralph Hubscher

9.1	Trends flüchtiger organischer Luftverunreinigungen (VOC) in Stadt- und Landluft	118
9.1.1	Einleitung.....	118
9.1.2	Ergebnisse.....	118
9.2	Isopren, ein natürlicher Photosmogvorläufer.....	121
9.3	Messung flüchtiger organischer Luftverunreinigungen (VOC) an Orten unterschiedlicher Verkehrsdichte	121
9.4	Räumliche und zeitliche Varianzen, Reaktionsraten und Verweilzeiten flüchtiger organischer Verbindungen (VOC)	124

10.	STAUBMESSUNGEN DER PILOTSTATION.....	127
10.1	Staub- und Schwermetallkonzentrationen an autofreien Sonntagen	127
	<i>Jürgen Müller, Christine Hoffmann, Ernestine Kuger-Hoberg, Ingrid Münchrath und Helga Reuver</i>	
10.2	Messung von Nanopartikeln	129
	<i>Jürgen Müller und Rainer Berg</i>	
11.	POLYCHLOR-DIBENZO-DIOXINE UND -FURANE IN DER LUFT, IM SCHWEBSTAUB UND IM GESAMTNIEDERSCHLAG IM UBA-MESSNETZ	132
	<i>Wilhelm Knoth</i>	
11.1	Einleitung.....	132
11.2	Ergebnisse.....	132
11.3	Danksagung	142
11.4	Literatur	143
12.	OPTIMIERUNG DES „WET-ONLY“-NIEDERSCHLAGS- MESSNETZES IM HINBLICK AUF EINE RESCOURCENSCHONENDE AUFGABENERFÜLLUNG..	144
	<i>Markus Wallasch</i>	
12.1	Zusammenfassung	144
12.2	Einleitung.....	144
12.2.1	Anlass	144
12.2.2	Aufgabe der Niederschlagsmessungen im Rahmen des UBA-Luftmessnetzes	146
12.2.3	Ziel der Optimierung	146
12.2.4	Kriterium der Optimalität:	146
12.3	Methode	146
12.3.1	Ablauf	146
12.3.2	Grundlagen	147
12.4	Ergebnisse.....	148
12.4.1	Betrachtung der derzeitigen Stationsverteilung.....	148
12.4.2	Betrachtung der räumlichen Verteilung der reduzierten Konzentrationen von Sulfat und Gesamtstickstoff	148
12.5	Die optimierte Messnetzstruktur	156
12.6	Flächeninterpolation.....	157

13. 10 JAHRE INTEGRIERTES ÖKOSYSTEM-MONITORING IM NATIONALPARK BAYERISCHER WALD 160

Burkhard Beudert und Rüdiger Hofmann

13.1	Einleitung.....	160
13.2	Das Untersuchungsgebiet.....	161
13.3	Die Deposition von Schwefel- und Stickstoffverbindungen sowie von Säuren und mögliche Zusammenhänge mit Veränderungen bei der Bodensickerwasserqualität und bei biologischen Parametern.....	162
13.3.1	Der Gehalt an Schwefelverbindungen und der Säuregehalt.....	162
13.3.2	Stickstoffverbindungen.....	164
13.4	Auswirkungen des Borkenkäferbefalls auf die Sickerwasserqualität und den Stoffhaushalt im (abgestorbenen) Fichtenbestand	167
13.5	Veränderungen der Gewässerqualität (Grund- und Bachwasser) und ihre Auswirkungen auf die Bachforellenpopulation	171
13.6	Zusammenfassung	175
13.7	Literatur	176

14. VON DER LOCHKARTE ZUM INTERNET..... 178

Karin Uhse

14.1	Einleitung.....	178
14.2	Lochstreifen und Lochkarten	178
14.3	Erste Messwert-Fernübertragung im Messnetz	180
14.4	Smog-Frühwarnsystem	181
14.5	Erster Einsatz von PCs und DOS.....	182
14.6	Endlich mehr Einheitlichkeit.....	184
14.7	Online-Datenaustausch via Internet	185

15. MESSUNGEN AN DER PILOTSTATION IN DEN SIEBZIGER BIS NEUNZIGER JAHREN 186

15.1	Verteilung von Schwermetallen in einer innerstädtischen Straßenschlucht	186
-------------	--	------------

Hans-Walter Georgii, Dieter Jost und Jürgen Müller

15.2	Gasförmige und teilchengebundene Anteile von polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAH)	188
-------------	---	------------

Jürgen Müller, Helga Reuver und Christine Hoffmann

15.3	Außenluft/Innenluftverhältnisse ausgewählter Luftverunreinigungen an einer innerstädtischen Hauptverkehrsstrasse.....	190
-------------	--	------------

Jürgen Müller, Christine Hoffmann, Ralph Hubscher, Helga Reuver und Françoise Riedel

16. DAS RADIOAKTIVITÄTSMESSNETZ DES UMWELTBUNDESAMTES 192

Manfred Jäschke

17. BENZOLIMMISSIONEN AN TANKSTELLEN 194

Anneliese Medem

17.1 Einleitung..... 194

17.2 Benzol..... 194

17.3 Erhebung 1989 195

17.4 Maßnahmen zur Luftreinhaltung 195

17.5 Messungen 1996 196

17.6 Ergebnis 197

17.7 Literatur 197

18. DIE PILOTSTATION UND DAS MESSNETZ DES UMWELTBUNDESAMTES - EIN AUSBLICK AUF DIE NÄCHSTEN 30 JAHRE 198

*Ruprecht Schleyer, Siegfried Beilke, Markus Wallasch, Wolfgang Grosch, Dieter Jost, Karin Uhse und
Horst Werner*

1. DIE PILOTSTATION - EIN KONTINUUM VON FORSCHUNG, FORSCHUNGSERGEBNISSEN UND LUFTREINHALTEMASSNAHMEN

Hartmut Markusch und Wolfgang Grosch

Schon zu Beginn der 60er Jahre wurden beim Institut für Meteorologie und Geophysik der Johann-Wolfgang-Goethe-Universität in Frankfurt/Main Untersuchungen über Schadstoffe in der Atmosphäre durchgeführt. Im August 1965 erteilte der Bundesminister für das Gesundheitswesen gemäß dem Gesetz über Vorsorgemaßnahmen zur Luftreinhaltung einen Forschungsauftrag an Professor Dr. Hans-Walter Georgii, den Leiter des Instituts für Meteorologie und Geophysik, mit der Themenstellung:

„Probeweiser Betrieb einer Messstation zur Ermittlung der Immissionskonzentration luftverunreinigender Stoffe und ihrer Abhängigkeit von den Emissionen unter Berücksichtigung der meteorologischen Faktoren“.

Dementsprechend wurde eine Probemessstation mit einer Zentrale (im Institut) und zwei Außenstellen (in Frankfurt-Ost und Frankfurt-West) aufgebaut. Weitere Forschungsaufträge machten es möglich, die Konzepte für eine Kalibriermethodik und für eine zentrale Messwertverarbeitung zu Immissionskenngrößen mittels automatischer Eich- und Kontrollwarte für die Probemessstation zu realisieren und die Entwürfe samt Gerätevorschlägen bis zur Richtlinienreife weiterzuentwickeln.

Im Auftrag des Bundesministers des Innern (BMI) wurde 1971 aufbauend auf den Ergebnissen der Probemessstation eine

„Pilotstation zur Überwachung der Luftreinhaltung im Gebiet Frankfurt am Main“

mit folgenden Aufgaben eingerichtet:

- Erstellung von Grundlagen für vollautomatische Mehrkomponentenmessnetze zur Überwachung der Luftreinhaltung
- Vorhersagbarkeit von Immissionskonzentrationen bezogen auf Emissionskataster und meteorologische Einflüsse
- Erstellung von Grundlagen für die Ausbreitungsrechnung
- Untersuchungen zu Oxidantien, Schwermetallen und Reaktionen von Luftverunreinigungen in der Atmosphäre (Kfz-Abgase)
- Prüfung entsprechender Messverfahren

Bezüglich dieser Aufgaben wurden Zuständigkeiten des Bundesministeriums des Innern wahrgenommen durch Mitarbeit in Gremien vom Verein Deutscher Ingenieure (VDI), dem Verband Deutscher Elektrotechniker (VDE), dem Deutschen Institut für Normierung (DIN), der Internationalen Standard Organisation (ISO) und der Europäischen Gemeinschaft (EG). Besonders wichtig war in diesen Jahren die Beteiligung an der North Atlantic Treaty Organisation-Council of Challenges of Modern Society-Pilotstudie (NATO-CCMS) „Luftreinhaltung“. Diese „Lufthygienisch-meteorologische Modelluntersuchung in der Region Untermain“ erforderte die Einrichtung und den Betrieb von drei weiteren Immissionsmessstellen und verlangte Kooperation mit dem Deutschen Wetterdienst (Sondermessnetz mit 48 Klimamessstellen rund um Frankfurt - Region Untermain), mit Emissionskatasterbetreibern (d.h. mit Schornsteinfegerinnungen und TÜV), mit Hochschulmitarbeitern aus der Botanik und mit Arbeitsgruppen für die Ausbreitungsrechnung. Die Studie wurde international beachtet und zu Vergleichen benutzt mit entsprechenden Untersuchungen in Kansas City (USA) und Ankara (Türkei). Die Katasterunterlagen wurden verschlüsselt bereitgestellt, um Ausbreitungsrechnungen auch in internationaler Zusammenarbeit zu ermöglichen.

Das Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene (WaBoLu) des Bundesgesundheitsamtes erhielt Anfang der 70er Jahre die Aufsicht über die Forschungsvorhaben der Pilotstation. Dann erfolgte 1973 zunächst die Zuordnung der Pilotstation zur damaligen „Bundesstelle für Umweltangelegenheiten“ und 1974 die Eingliederung in das Umweltbundesamt. Demzufolge wechselten vier der neun wissenschaftlichen Mitarbeiter der Pilotstation nach Berlin, und auch die internationalen Aufgaben wurden zunehmend von Berlin aus wahrgenommen. Im Laufe der Zeit wurden die besonderen Aufgaben der Pilotstation im Bereich der Messung von Kfz-Abgasen, Oxidantien, Ozon und anderen Spurenstoffen sowie bei der Kalibrierung und Geräteprüfung weiter ausgebaut.

Auch die Messstellen der Deutschen Forschungsgemeinschaft zur Beobachtung von Luftbeimengungen waren 1974 dem Umweltbundesamt übergeben worden. Die Pilotstation übernahm diese Messstellen zu Beginn der 80er Jahre. Nach Erlass der 4. Verwaltungsvorschrift zum Bundes-Immissions-Schutz-Gesetz (BImSchVwV) (1975) wurden zuerst die Messdaten der fünf Pilotmessstellen auf das Hessische Messnetz durchgeschaltet und nach Wiesbaden übertragen. Nach Ausbau des eigenen Hessischen Messnetzes konnten die Messstellen der Pilotstation abgebaut werden.

Die Messwarte der Pilotstation war aus dem Forschungsvorhaben beim Institut für Meteorologie und Geophysik entstanden und im Institutsgebäude (Frankfurt/Westend) eingerichtet. Büro- und Laborräume mussten hinzugemietet werden. Im Sommer 1984 erhielt die Pilotstation dann neue Diensträume im Zentralamtsgebäude des Deutschen Wetterdienstes in Offenbach.

Nach Umbauplänen im Wetterdienst ging es von hier aus 1998 weiter nach Langen, in das Gebäude einer Außenstelle des ehemaligen WaBoLu-Instituts. Das Konzept für den Standort Langen beinhaltet eine Konzentration laborativ/experimenteller Aufgaben, die aus lufteigenen oder luftgetragenen Stoffen resultieren. Hierdurch sollen mehr medienübergreifende Untersuchungen in die Arbeit der Pilotstation einbezogen werden.

1.1 Die Forschungsschwerpunkte im Verlauf der Jahre

Anfang der siebziger Jahre standen vor allem die neu entdeckten Umweltprobleme der Ballungsgebiete wie Frankfurt/M. auf dem Arbeitsplan. Das eigentlich Neue war die Erkenntnis, dass es in den Ballungsgebieten zu Smogsituationen kommen konnte, die alle dort Lebenden bedrohen und dass wir somit alle Betroffene sind. Wie aber sollte man die Smogsituation nachweisen, wie sie überwachen? So lag die Hauptaufgabe der Pilotstation in diesen Gründungsjahren hauptsächlich auf dem Nachweis von Messverfahren, die in der Lage waren, rund um die Uhr Schadstoffe zu messen und deren pilothaftem Einsatz im Frankfurter Messnetz.

Durch systematische Messungen von Blei in der Luft gelang es, die Politik von der Notwendigkeit von Minderungsmaßnahmen zu überzeugen, da die Grenzwerte wie der maximale Immissionskonzentrationswert (MIK) in Frankfurt an vielen Stellen, bedingt durch die hohe Emission und ungünstige Verdünnungsverhältnisse, deutlich überschritten wurden. Als es daher zur ersten Stufe des Benzin-Blei-Gesetzes kam, beauftragte das zuständige Innenministerium die Pilotstation mit der Überwachung der Gesetzeserfolge.

Ebenfalls Anfang der siebziger Jahre wies die Pilotstation als erste Stelle in Europa darauf hin, dass es in den Sommermonaten zur Ozonbildung durch Vorläufersubstanzen und UV-Licht im Ballungsgebiet Rhein/Main kam, dem späteren Sommersmog, der bis dato nur aus Los Angeles bekannt war. Doch wenn diese Aufdeckung der Frankfurter Rundschau auch eine Titelseite wert war, die Experten im Ministerium winkten ab, wussten sie doch noch nicht, mit welchen Maßnahmen dagegen anzugehen war.

Neue Aufgaben kamen im Laufe der Zeit durch sich wandelnde Prioritäten hinzu, von denen hier nur einige genannt werden:

- Messung weitere Schadstoffe, insbesondere toxischer, kanzerogener, und akkumulierender Stoffe
- Qualitätssicherung für Messdaten, um dem Vorwand zu begegnen, für Maßnahmen seien die Daten nicht sicher genug
- Gewährleistung der internationalen Vergleichbarkeit von Messergebnissen, um erzielte Resultate über Grenzen hinweg gültig zu machen
- Untersuchungen zur Bildung und zum Transport von sekundären Luftverunreinigungen (Säuren und Oxidantien)
- mobile Messungen zur Untersuchung regionaler und großräumiger Stofftransporte
- Messungen der Luftbelastung im Straßenraum und insbesondere im Inneren von Kraftfahrzeugen.

Das Vorhandensein großräumiger Luftbelastungen rückte Ende der siebziger Jahre ins Bewusstsein. Das Umweltbundesamt trug dem bereits frühzeitig Rechnung, indem man bei der Gründung des Amtes das von der Deutschen Forschungsgemeinschaft gegründete Messnetz für großräumige Luftverunreinigungen übernahm und ins UBA eingliederte. Lange Jahre fungierte die Pilotstation dann als Zentrale dieses bundesweiten Messnetzes, in der die zentralen Planungen vorgenommen, die Messdaten zentral erfasst und die Proben zentral analysiert wurden.

Die neue Herausforderung der achtziger Jahre hieß neuartige Waldschäden. Die Messungen hierzu waren zwar primär Aufgabe der ländlichen Messstellen des UBA und der Länder, die

Pilotstation unterstützte diese jedoch durch mobile Messungen und Flugzeugmessungen zum großräumigen Transport von Luftverunreinigungen. So konnte Mitte der achtziger Jahre ein nahezu lückenloses Bild der großräumigen Fahnen, die aus der damaligen DDR und Tschechoslowakei über das Bundesgebiet zogen, gemacht werden, das Grundlage des bundesweiten Smogfrühwarnsystems wurde.

Auch als in den neunziger Jahren die öffentliche Diskussion über anthropogene Klimaänderungen begann, konnte die Pilotstation auf langjährige Messreihen des UBA-Messnetzes zum Thema Kohlendioxidanstieg zurückgreifen. Die Trendauswertungen belegten, dass der Anstieg in Deutschland sehr genau den weltweiten Trend, wie er z.B. auf Mauna Loa (Hawaii) gemessen wurde, widerspiegelt.

Bei der neuerlichen Diskussion über die Möglichkeiten zur Bekämpfung des Sommersmogs konnte die Pilotstation ihre Erfahrungen bei der Entwicklung eines Prognosemodells für den Sommersmog einbringen. Das Modell gelangte 1995 in gemeinsamer Arbeit mit den Bundesländern erstmals zum Einsatz.

1.2 Arbeitsschwerpunkte der Pilotstation - Anpassung an neue Fragestellungen

Wolfgang Grosch, Rainer Berg, Anneliese Medem, Werner Rudolf und Volker Stummer

Über die 30 Jahre des Bestehens der Pilotstation stellte sich das hauptsächliche Aufgabengebiet im sogenannten Geschäftsverteilungsplan folgendermaßen dar:

- Entwicklung von Messmethoden
- Harmonisierung von Messungen und Messprogrammen und deren Qualitätssicherung
- im nationalen und internationalen Bereich
- Sondermessungen, insbesondere auf dem Sektor der Kfz-Immissionen
- Betrieb eines Pilotmessnetzes im Raum Frankfurt als Beispiel für die generellen Fragestellungen in Deutschland und später auch der EU

Diese Arbeitsschwerpunkte subsummierten sich unter dem Begriff

„Unterstützung und Vorbereitung gesetzlicher Maßnahmen“

1.2.1 Harmonisierung und Qualitätssicherung internationaler Messprogramme

Immer beinhaltet die Entwicklung von Messverfahren auch angepasste Maßnahmen zur Kalibrierung und zur Qualitätssicherung. Insbesondere die Herstellung von primären Prüfgasen ist Bestandteil dieser Qualitätssicherungsmaßnahmen. Während die Routinekalibrierung Sache der Messnetzbetreiber ist, leisten sich nur wenige Landesanstalten eine primäre Prüfgasherstellung.

Die von Gasherstellern gelieferten Prüfgase, deren angegebenen Konzentrationswerte oft zu große Abweichungen zum „wahren Wert“ aufweisen, werden durch nasschemische Verfahren überprüft. Die neuere Entwicklung führte insbesondere im EU-Bereich dazu, Herstellungsverfahren für primäre Prüfgase bereitzustellen. Die Pilotstation entwickelte unter diesem Gesichtspunkt die Methode der „statisch volumetrischen Injektion“, bei der bekannte Volumina sogenannter Reingase in ein bekanntes größeres Volumen mit Trägergas injiziert werden. Die Methode ist festgelegt im Regelwerk des Vereins Deutscher Ingenieure (VDI) und der International Standard Organisation (ISO). In den sogenannten Tochterrichtlinien der EU ist es als Äquivalenzverfahren für die Komponenten NO/NO₂, SO₂, CO und Benzol festgeschrieben.

Deshalb wurde von Seiten des Bundes hierzu ein spezielles Labor bei der Pilotstation eingerichtet, in dem neben der volumetrisch statischen Injektion auch andere Verfahren als Referenz- und Basismessverfahren bereitgehalten werden. Mit diesen Methoden kann die Forderung der EU, dass die Unsicherheit der Herstellungsverfahren von Prüfgasen für die oben genannten Komponenten eine Unsicherheit im Bereich von 1% aufweisen, erfüllt werden. Dies gewährleistet von der Kalibrierseite ausgehend, dass die allgemeine Forderung, dass der Messfehler in den Messstationen zur Luftüberwachung die geforderten 15-25% Unsicherheit einhalten können, zumal unter dem Gesichtspunkt, dass der Fehler einer Messung von den Geräteeigenschaften den allgemeinen Umwelteinflüssen, wie Temperatur- und Druckschwankungen, Störeinflüssen durch andere Komponenten, die Lage der Messstationen und Verfälschungen bei der Probenahme wesentlich bestimmt wird.

EU-Referenzlabor

Dieses so ausgerüstete Labor der Pilotstation dient als nationales Referenzlabor für die Europäische Union. D.h. Qualitätssicherungsmaßnahmen (QS), die von der EU durch das Europäische Referenzlabor für Luftverschmutzung in Ispra vorgelegt werden, werden über dieses Labor an die Länder als Teilnehmer eines Ringvergleichs weitergegeben.

Dem UBA ist 1998 durch BMU-Erlass die Koordinierung der Qualitätssicherungsmaßnahmen der zuständigen Stellen für die Beurteilung der Luftqualität (= Messnetze der Bundesländer) übertragen worden. Die Pilotstation wurde hierfür als nationales Referenzlaboratorium benannt. Die Aufgaben sind die Durchführung von Ringversuchen, die Analyse der Beurteilungsmethoden und die Koordinierung der gemeinschaftlichen, von der Kommission durchgeführten Qualitätssicherungsprogramme in Deutschland.

QS-Maßnahmen sind u.a. Ringversuche und Kalibrierexperimente, bei denen die Mess- und Kalibrierkapazitäten der Bundesländer verglichen werden. Das Referenzlabor selbst nimmt an

Ringversuchen teil, die vom Europäischen Referenzlabor für Luftverschmutzung in Ispra durchgeführt werden.

EUROMET

Um die Übereinstimmung der Luftqualitätsmessungen der EU-Mitgliedsstaaten im Rahmen der EU-Luftqualitätsrichtlinie zu verbessern, wurde europaweit von dem Verein der europäischen meteorologischen Institute (EUROMET) ein sehr aufwändiges Projekt durchgeführt, das über mehrere Jahre Vergleichsdaten von nationalen Qualitätssicherungslabors erhob.

Hauptziele waren:

- Die Entwicklung einer Methodologie, mit der international anerkannte Prüfgase zur Kalibrierung und Zertifizierung in solchen Konzentrationen hergestellt werden können, die die weitest mögliche Übereinstimmung und Genauigkeit der Luftqualitätsmessungen unterstützen.
- Die Gleichwertigkeit verschiedener Herstellverfahren für „primäre“ Kalibrierstandards zu demonstrieren, um die nationale Rückführbarkeit der Luftqualitätsmessungen zu gewährleisten mit der Maßgabe, dass diese Methoden angewendet werden können um stabile, käuflich zu erwerbende Kalibriergase zu zertifizieren.
- In Zusammenarbeit mit industriellen Partnern eine verbesserte Passivierungsbehandlung von Druckzylindern für Kalibriergase zu entwickeln, um genauere und über ihre Lebenszeit stabile Kalibriergasmischungen zu erhalten.
- Wissenstransfer in Mitgliedsstaaten, in denen die Infrastruktur für Luftqualitätsmessungen noch nicht voll ausgereift ist oder nicht der geforderten Genauigkeit entspricht.

Teilnehmende Partner waren sieben führende europäische metrologische Labors oder nationale Referenzlaboratorien:

1. National Physical Laboratory, UK
2. Nederlands Meetinstitut, NL
3. Europäisches Referenzlabor im EU Joint Research Centre, Ispra, I
4. Laboratoire National d'Essais, F
5. Umweltbundesamt, D
6. VTT Chemical Technology zusammen mit dem finnischen Meteorologischen Institut,
7. Institute de Salud Carlos III, E

Die Vergleichsmessungen wurden an Druckbehältern mit Prüfgasen von Benzol (ca. 20 ppb), Kohlenmonoxid, Schwefeldioxid und Stickstoffdioxid durchgeführt. In der ersten Stufe wurden diese Standards zwischen den teilnehmenden Labors und dem Sollwertgebenden „Pilotlabor“ bilateral verschickt. In den folgenden Vergleichsmessungen zirkulierten weitere Standardzylinder von Labor zu Labor, bis im Pilotlabor die Rückanalyse durchgeführt wurde. Ergebnisse und Schlussfolgerungen:

- Die Vergleichbarkeit der führenden Metrologielabors und der nationalen EU-Referenzlabors konnte festgestellt und während der Durchführung des Projektes noch entschieden verbessert werden. Übereinstimmungen im Bereich von 1-3% konnten in einem Konzentrationsbereich erreicht werden, der für die Kalibrierung der Messnetzanalysatoren geeignet ist.
- Die Verfügbarkeit und Verwendbarkeit von Transferstandards in Druckbehältern wurde nachgewiesen.
- Die Zusammenarbeit und der technische Austausch haben einen entscheidenden Beitrag zur Weiterentwicklung der Harmonisierung der Luftqualitätsmessung innerhalb Europas geleistet

Im Prozess der Harmonisierung von Messungen und Datenerhebungen in der Luftqualitätsüberwachung, sind Qualitätssicherung und Qualitätskontrolle die Hauptziele von Unterstützungsprogrammen z.B. UNEP/WHO (United Nations Environment Programme/World Health Organisation).

WHO-Ringversuche

Das WHO-Collaborating Centre des UBA führt zu diesem Zweck seit 1995 jährlich Ringversuche mit Workshopcharakter im Ringlabor der Pilotstation für 19 Teilnehmer aus allen Teilen Europas durch. Insbesondere soll neben der Harmonisierung die Unterstützung der osteuropäischen Partner durch praktische Übungen und Kalibriervergleiche ein Ziel dieser Veranstaltungen sein. Die teilnehmenden Laboratorien sind in ihren jeweiligen Ländern verantwortlich für die Qualitätssicherung in den nationalen Luftmessnetzen. Schwerpunkte dieser Ringversuche sind die Komponenten CO, NO, NO₂, O₃, SO₂ sowie Benzol, Toluol und Xylol (BTX).

Die Ergebnisse der Ringversuche haben gezeigt, dass trotz Anwendung verschiedener Verfahren und Methoden eine Vergleichbarkeit der Messdaten im Bereich von $\pm 10\%$ im wesentlichen gegeben ist. Während der Workshops konnten in Diskussionen und Gesprächen unter den Teilnehmern viele fachliche Probleme gelöst werden. Wichtig ist, dass die erreichten Ergebnisse erfolgreich in die Heimatländer transferiert und dort aufrecht erhalten werden können. Eine Möglichkeit hierfür ist die Ausstattung der nationalen Referenzlabors mit Einrichtungen zur Herstellung primärer Prüfgase.

Das erste Angebot zur Vergleichsmessung von Benzolprüfgasen wurde sowohl von Ländern aus Osteuropa als auch von mehreren Mitgliedsstaaten der EU genutzt. Hervorzuheben ist bei solchen Veranstaltungen auch, dass die Teilnehmer durch intensive Arbeit und Diskussionen sehr oft Kalibrier- oder Messprobleme lösen können.

Im Mai 1998 haben folgende Nationen mit Benzolmonitoren, Laborverfahren und Hochdruckflüssigkeits-Chromatographie (HPLC) teilgenommen:

Belgien
Bulgarien
Deutschland
Großbritannien
Slowenien
Tschechische Republik
Usbekistan

Es wurden 4 Benzol-Prüfgaskonzentrationen im Bereich von 3-30 ppb zu Vergleichsmessungen angeboten. Parallel dazu bestand die Möglichkeit Transferstandards der Teilnehmer zu analysieren.

Zusammenfassend über alle Teilnehmer waren bei 58% der Analysen die Abweichungen der Messwerte kleiner als $\pm 10\%$ und bei 33% der Analysen betrugen die Abweichungen weniger als $\pm 5\%$.

Auch mit der Schweiz hat ein Vergleich der Ozonmessverfahren stattgefunden. Hier ergaben sich im Labor Abweichungen von etwa einem halben Prozent, ein Ergebnis, das zeigt, dass wir die internationalen Vorgaben mit ähnlicher Genauigkeit in die nationalen Messnetze transferieren können.

Von daher war es nur natürlich, eine engere Zusammenarbeit mit der PTB als dem Träger nationaler Normen anzustreben.

Zusammenarbeit mit der Physikalisch Technischen Bundesanstalt (PTB)

Entwicklung, Bereitstellung und internationale Vergleiche der nationalen Normale für die Gasanalytik ist die gemeinsame Aufgabe von UBA, Physikalisch Technischer Bundesanstalt (PTB) und Bundesanstalt für Materialprüfung (BAM), die durch Verwaltungsvereinbarungen geregelt ist.

Die Physikalisch Technische Bundesanstalt hat für die Bundesrepublik Deutschland ein internationales Abkommen zur gegenseitigen Anerkennung der nationalen Normale in der Gasanalytik abgeschlossen. Dieses Abkommen soll bewirken, dass Handelshemmnisse durch gegenseitiges Vertrauen in die Mess- und Kalibrierfähigkeiten anderer Nationen abgebaut werden. Insbesondere metrologische Institute, die Standardreferenzmaterialien verkaufen, z.B. National Institute for Standardisation and Technology (NIST, USA), National Physical Laboratories (NPL, UK) oder NMI (NL), haben daran großes Interesse. Es bedeutet aber auch, dass Abhängigkeiten z.B. vom NIST vermindert werden.

Dieses Vertrauen muss durch die erfolgreiche Teilnahme an weltweiten Schlüsselvergleichsmessungen untermauert werden. Dabei werden solche Themen bearbeitet, die aufgrund nationaler Gesetzgebungen, z.B. Grenzwerte für Benzol in Umgebungsluft oder Blutalkohol, oder wirtschaftlicher Verwertbarkeit, z.B. Kalibriergase für die Industrie, interessant sind.

In Deutschland stellt die Bundesanstalt für Materialprüfung (BAM) solche Referenzmaterialien her und hält im Auftrag für die PTB dafür das nationale Normal. Für Immissionsmessungen von Kohlenwasserstoffen, NO₂, SO₂, CO und Ozon übernimmt das Referenzlabor des UBA die Verantwortung für die Herstellung und Weitergabe des nationalen Primärnormals.

Es werden primäre Kalibriergase im Konzentrationsbereich von einigen mg/m³ bis wenige µg/m³ hergestellt und damit Analysatoren für Anschlussmessungen kalibriert. Diese Zertifizierung kann von Gasstandardherstellern und Geräteherstellern gegen Bezahlung in Anspruch genommen werden. Für die Überwachungs-Messnetze der Bundesländer und für andere Forschungseinrichtungen wird diese Dienstleistung im Rahmen von Amtshilfe und Qualitätssicherungsmaßnahmen zur Verfügung gestellt.

Die weltweite Organisation der Primärnormale in der Metrologie wird vom Bureau International des Poids et Mesures (BIPM, Paris) verwaltet. Was für das „Meter“ noch fassbar erscheint, ist für die Kalibriernormale in der Analytik nur übertragen handhabbar.

Neben einer fundierten und verantwortungsvollen Unsicherheitsbetrachtung sind Vergleichsmessungen auch hier ein Instrument der Qualitätssicherung. So fand im zweiten Halbjahr 1999 ein erster internationaler Ringversuch der normsetzenden Institute zur Validierung von Benzol, Toluol, Ethylbenzol und Xylole - (kurz: BTX)-Prüfgasen statt, an dem das VOC-Referenzlabor für Deutschland teilnahm.

Ein gravimetrisch erzeugter Standard des US-NIST (National Institute of Standardisation and Technology) wurde in Gasflaschen abgefüllt und parallel an verschiedene Standardisierungsbehörden in aller Welt verschickt.

Weitere Teilnehmer: Frankreich
Großbritannien
Korea
Niederlande
Russland
USA

Die Messwerte des UBA-Labors lagen innerhalb der Messunsicherheit beim Referenzwert. Das Ergebnis unterstützt die Position des UBA, die Erzeugung von primären Standards über die Methode der statischen Injektion eine gleichberechtigte Stellung bei der internationalen Normung einzuräumen.

Im ersten Halbjahr 2001 wird dieser Ringversuch mit Konzentrationen von 4-8 ppb wiederholt, um den Bereich der gesetzlichen Grenzwerte für die Immissionsmessungen abzudecken. Ähnliche Versuche für die Komponenten NO, SO₂ und Ozon sind geplant.

1.2.1.4 Qualitätssicherung und Harmonisierung der Immissionsmessungen in Deutschland

Immissionsverfahren für Luftverunreinigungen sind nicht eichfähig, d.h. man kann sie nicht mit einem Ureichverfahren für längere Zeit maßhaltig eichen, die Eichung garantieren und dafür ein Zertifikat verleihen wie etwa bei einer Waage. Vielmehr ist es notwendig, die verwendeten Messgeräte alle 25 Stunden auf ihre Maßhaltigkeit zu prüfen, sie zu kalibrieren, wenn man Fehler vermeiden will.

Die Routinekalibrierung wird heute in jedem öffentlichen Messnetz des Bundes und der Länder durchgeführt. Allerdings braucht auch diese, mit Prüfgasflaschen oder Gasgeneratoren vorgenommene Kalibrierung den Anschluss an einen primären Standard.

Die Staatlichen Immissionsmessstellen (STIMES) in Deutschland führen zusammen mit dem UBA für ihre Überwachungsmessungen ein aufwändiges Qualitätssicherungsprogramm durch. Um systematische Fehler in der Analytik zu erkennen, ist es unumgänglich, Vergleichsmessungen durchzuführen. Hierzu treffen sich die Zentrallabors der Bundesländer zu einem Ringversuch, bei dem Kalibriergase eines oder mehrerer Luftinhaltsstoffe als gemeinsames Messgut quantitativ bestimmt werden. Durch eine normierte statistische Auswertung der Messergebnisse lässt sich der Grad der Übereinstimmung berechnen und mit den Qualitätsvorgaben vergleichen.

Ringlabor

Die Pilotstation betreibt eines der modernsten Ringlabors europaweit, wobei die Prüfgaskonzentrationen durch computergesteuerte Mischanlagen bereitgestellt und untereinander mischbar sind. Dadurch kann nahezu jeder beliebige Konzentrationsverlauf nachgestellt werden.

Mit Einführung 1990 des § 40 Abs. 2 BImSchG, der „Verkehrsbeschränkungen“ in den Kommunen bei Überschreitung der in der 23. BImSchV (1997) festgelegten Grenzwerte, kamen neue Herausforderungen an die Qualitätssicherung auf die staatlichen Immissionsmessstellen zu.

In Zusammenarbeit mit der Pilotstation, die als erste Messstelle in Deutschland routinemäßig die Benzolimmissionsmessung on line und automatisiert betrieb, wurde seit dem Anfang der 90er Jahre kontinuierlich die Qualität der Messungen und Kalibrierungen verbessert.

Insbesondere der niedrige Konzentrationsbereich und die Reaktivität der Komponente im Prüfgas und beim Proben transfer machten Probleme. Ein erster Schritt in Richtung Harmonisierung war ein regelmäßiger Erfahrungsaustausch. Verschiedene Mess- und Kalibrierverfahren wurden vorgestellt und die Ergebnisse und Probleme diskutiert.

Die Vergleichbarkeit der ersten Ringversuchsmessungen war für die gesetzlich vorgeschriebene Überwachungsaufgabe noch nicht akzeptabel. In einer regionalen Arbeitsgruppe, bestehend aus UBA (damals Offenbach), Hessischer Landesanstalt und dem Landesamt für Umweltschutz und Gewerbeaufsicht in Rheinland-Pfalz, wurden die Kalibrierstandards abgeglichen und mögliche Fehlerquellen analysiert.

Die Pilotstation führte dann einen Workshop für Kalibriergasherstellverfahren durch, in dem wichtige Fehlfunktionen entdeckt und technische Lösungen zur Behebung erarbeitet werden konnten.

Durch ständigen Kontakt und bilaterale Vergleichsmessungen mit dem UBA wurde inzwischen die geforderte Qualität der Benzolmessungen inzwischen von allen staatlichen Immissionsmessstellen nahezu erreicht.

Ringversuche

Im Jahr 2000 wurde im Technikum des EU-Referenzlabors in Langen ein dreiteiliger Ringversuch für die Analyse von Benzol in Luft für die Staatlichen Immissionsmessstellen durchgeführt.

Teil 1 und 2 waren in Messprogramm und Ablauf auf kontinuierlich aufzeichnende Benzol-Monitore abgestimmt. Der 3. Teil war für Laborverfahren mit aktiver Probenahme auf Adsorptionsröhrchen und für Langzeitprobenahme ausgelegt. Es waren insgesamt 14 Bundesländer mit 26 Messverfahren vertreten, wobei auch teilprivatisierte Betriebsgesellschaften teilnahmen.

Die Auswertung wurde nach dem international gebräuchlichen z-score-Verfahren für 3 Prüfgase im Bereich von 5 bis 20 Mikrogramm je Kubikmeter durchgeführt.

Für einen Teilnehmer ergab sich bei der Konzentrationsstufe $\sim 20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und für zwei andere Teilnehmer bei der Konzentrationsstufe $\sim 10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ein Ergebnis $2 < |z| < 3$, d.h. das Ergebnis ist fraglich. Dass bei keinem Teilnehmer eine systematische Messabweichung aufgetreten ist zeigt, dass die Kalibrierung in der Benzolmessung inzwischen sehr belastbar geworden ist.

Betrachtet man den sehr niedrigen Konzentrationsbereich und berücksichtigt dabei die Messunsicherheit der gaschromatographischen Verfahren, ist der Ringversuch als erfolgreich zu bewerten.

Zur Zeit läuft eine Vergleichsmessung, bei der Druckbehälter mit Benzolkalibriergasen innerhalb der Bundesländer zirkulieren. Die Pilotstation hat die Erstanalysen durchgeführt und wird nach Rückkehr der Zylinder die Rückanalyse vornehmen. Parallel dazu werden zwei vergleichbare Prüfgasbehälter während der Dauer des Ringexperimentes in der Pilotstation in regelmäßigen Abständen ausgemessen. Dieser Versuch soll Erkenntnisse darüber bringen, wie die Vergleichbarkeit der STIMES-Labors ist, wenn die Messungen in der Laborroutine stattfinden und Fehler oder Probleme entfallen, die dem Transfer der Analysatoren und der Kalibriergase zugeschrieben werden.

Weiterhin kann geklärt werden, wie stabil sich das Prüfgasgemisch zeitlich verhält und ob die Prozedur der Gasentnahme Konzentrationsänderungen verursacht.

In der EU-Tochterrichtlinie zur Luftqualitätsrahmenrichtlinie sind die Qualitätsanforderungen an die Messwerte für Benzol von den Außenluftkonzentrationen abhängig. Wird an einer Messstelle ein Jahresmittelwert erwartet, der 70% des Grenzwertes nicht überschreitet, darf das weniger genaue, aber dafür auch weniger aufwändige Verfahren der passiven Probenahme angewendet werden. Wegen der stark zurück gegangenen Außenluftkonzentrationen ist es zu erwarten, dass dieses Probenahmeverfahren in Deutschland von großer Bedeutung werden wird.

Entsprechend werden in der Pilotstation Vorbereitungen getroffen auch Ringversuche für dieses Messverfahren durchzuführen. Eine erste Vergleichsmessung für Passivsammler ist im Jahr 2002 geplant.

Die Benzolkonzentrationen in Außenluft nehmen seit Mitte der 90er Jahre stark ab. Die gesetzlichen Vorschriften bezüglich der Verminderung der Kfz-Emissionen und die Einführung der Schadstoffabsaugung bei den Tankstellen brachten große Erfolge für die Luftreinhaltung.

1.2.3 Durchführung von Eignungsprüfungen laufend aufzeichnender Messgeräte

Dem Ziel der nationalen und internationalen Vergleichbarkeit von Immissionsmessnetzen dient auch der Arbeitsschwerpunkt Durchführung von Eignungsprüfungen. Die Länder sind mit dem Bund übereingekommen, in ihren Messnetzen nur kontinuierlich aufzeichnende Immissionsmessgeräte mit Eignungsbekanntgabe einzusetzen. Diese Eignungsprüfungen werden in speziellen vom BMU benannten Prüfinstituten durchgeführt, zu denen die Pilotstation mit vier weiteren Prüfinstituten gehört.

Die Prüfung erfolgt bisher nach einem nationalen Prüfplan. Danach werden jeweils zwei Geräte eines bestimmten Typs getestet. Die Bewertung der Prüfung erfolgt an Hand der vorgeschriebenen Mindestanforderungen. Die Mindestanforderungen umfassen so wichtige Merkmale wie den Einfluss der Temperatur und Feuchte auf die Messungen, Driften von Nullpunkt und Empfindlichkeit, den Einfluss anderer Schadstoffe auf das Messergebnis usw. Nach erfolgreichem Abschluss der Laborprüfung müssen die Geräte einen 3-monatigen Dauertest im Feld (=Messstation) bestehen, in dem Langzeitdrift und Verfügbarkeit getestet werden. Damit soll die einwandfreie Funktion der Analysatoren für die Messaufgabe beim Einsatz in Messnetzen gewährleistet sein.

Inzwischen wurden Prüfplan und Mindestanforderungen in die Richtlinienarbeit des Vereins Deutscher Ingenieure/Deutsche Industrie Normen (VDI/DIN) eingebracht und finden von hier aus ihren Weg in die europäische (CEN) und internationale (ISO) Normung. Bisher wurden von der Pilotstation 22 verschiedene Eignungsprüfungen durchgeführt, die über die genannte Schiene international anerkannt werden sollen.

Zur Zeit läuft die Eignungsprüfung von Benzol-Messgeräten eines niederländischen Herstellers, die wie immer über Gebühren finanziert wird.

1.2.4 Messungen zur Erprobung von Messverfahren und Sondermessungen zur Vorbereitung gesetzgeberischer Maßnahmen

Zur Messung von Verkehrsimmissionen sind die Bundesländer inzwischen nach der 23. Verordnung zum Bundes-Immissionsschutz-Gesetz verpflichtet. Bisher stehen aber erst für wenige Komponenten eignungsgeprüfte Geräte zur Verfügung. Die Schwerpunkte der Arbeit der Pilotstation liegen derzeit beim experimentellen Einsatz automatisierter Verfahren zur Ruß- und Benzolmessung sowie der Messung von flüchtigen Kohlenwasserstoffen (VOC) sowie Nanopartikeln. Dazu kommen Messungen im fließenden Verkehr im Wageninnenraum zur Belastung der Autoinsassen. Ziel ist es, praxisorientierte Richtlinien für Messverfahren zu erarbeiten.

Im Rahmen der oben genannten Vorbereitungen und Überprüfungen der Auswirkungen gesetzlicher Maßnahmen wurden diverse Sondermessungen durchgeführt.

Erfassung verkehrsbedingter Immissionsbelastungen in Frankfurt/Main

Ausgehend von der Diskussion über den § 40.2 BImSchG wurde im Jahre 1993/94 ein umfangreiches Messprogramm zur Erfassung von verkehrsbedingten Immissionen im Rahmen eines Modellversuches durchgeführt. Federführend war damals die Hessische Landesanstalt für Umwelt unter Mithilfe des Umweltbundesamtes FG II 6.3. (Schriftenreihe der Hessischen Landesanstalt für Umwelt Heft 195: Modellversuch zur Erfassung verkehrsbedingter Immissionsbelastungen in Frankfurt am Main). Das Fachgebiet II 6.3 hat 1999/2000 einen Teil dieses Messprogramms zur Überprüfung von gesetzlichen Maßnahmen wiederholt.

Folgende Komponenten wurden gemessen:

Stickstoffdioxid	Messverfahren: Chemolumineszenz
Benzol	Messverfahren: GC-PID mit Anreicherung
Ruß	Messverfahren: Aethalometer
Kohlenmonoxid	Messverfahren: Infrarotabsorption

Die Messungen wurden im April 1999 begonnen und im Oktober 2000 beendet (siehe Tabelle 1). Die Messpunkte wurden 1-2 mal in der Woche angefahren. Die Stichproben erfolgten montags bis freitags in der Zeit zwischen 8:00 Uhr und 18:00 Uhr. Die Stichprobe dauerte 30 Minuten.

Die Messergebnisse sind in der Tabelle zusammengefasst. Für jede Komponente wurde der Mittelwert über den gesamten Zeitraum ermittelt. Stickstoffdioxid ist als 98 Perzentil berechnet. Da die Messungen arbeitstäglich zwischen 8:00 Uhr und 18:00 Uhr durchgeführt wurden, liegen diese höher als bei Ergebnissen von kontinuierlich messenden Stationen, die auch die niedrigeren Nachtwerte erfassen. Die Mittelwerte werden bis zu 20% überschätzt (Untersuchungen der Hessischen Landesanstalt für Umwelt (HLfU)).

Bei zwei Messpunkten wurden geringfügig erhöhte NO₂- Pegel gefunden. Dies ist auf die verkehrliche Erhöhung des LKW-Anteils zurückzuführen. Zusammenfassend ist eine drastische Verminderung der gemessenen Kfz. spezifischen Komponenten festzustellen. In keinem Fall werden die Prüfwerte nach § 40,2 BImSchG überschritten. Die Benzolkonzentration nähert sich dem für das Jahr 2010 avisierten Mittelwert von 5 µg/m³.

Tabelle 1: Erfassung verkehrsbedingter Immissionsbelastungen in Frankfurt am Main

Messpunkt/ Komponente	NO ₂ µg/m ³			Russ µg/m ³	Benzol µg/m ³			CO mg/m ³		
	1994	2000	Änderung		1994	2000	Änderung	1994	2000	Änderung
Hanauer Landstr.	138	140	+ 1,4 %	9,6	18,8	5,7	- 69,7 %	1,5	1,3	- 14 %
Bockenheimer Ldstr.	105	108	+ 2,8 %	10,0	19,2	6,6	- 65,7 %	1,5	1,2	- 20 %
Eschersheimer Ldstr.	117	105	- 10,3 %	7,7	16,3	5,9	- 63,8 %	1,5	1,1	- 27 %
Nibelungenplatz	159	119	- 25,2 %	10,7	24,1	6,8	- 71,8 %	3,0	1,6	- 47 %
Höhenstr.	174	118	- 32,2 %	9,2	24,7	6,1	- 75,3 %	1,5	1,3	- 14 %
Wittelsbacher Allee	131	115	- 12,3 %	7,5	17,0	5,1	- 70,0 %	1,5	1,2	- 20 %
Anzahl der Stichproben	200	65		47	200	61			62	

Parkhausmessungen

In 2 Parkhäusern (Tiefgaragen) wurden 1995 orientierende Messungen zur Ermittlung des Schadstoffpotentials durchgeführt. Gemessen wurden die Schadgase Kohlenmonoxid, Stickstoffmonoxid, Stickstoffdioxid und Benzol. Die Messungen belegen einen hohen Grundpegel der Schadstoffe in den Tiefgaragen (siehe Tabelle 2).

Tabelle 2: Parkhausmessungen

	CO mg/m ³	NO µg/m ³	NO ₂ µg/m ³	Benzol µg/m ³
Mittelwert	43	1056	97	298
Minimum	21	670	20	131
Maximum	113	2680	408	475
Anzahl 10 min MW	90	90	90	15 HS-Werte

MW = Mittelwert

HS = Halbstundenmittelwert

Kfz-Innenraumbelastung

Kohlenmonoxid, Stickoxide und Benzol dienen als Leitsubstanzen für Untersuchungen der Belastung von Kraftfahrzeugemissionen.

A. Messungen im Berufsverkehr

Im morgendlichen Berufsverkehr in Frankfurt/Main wurden Probenahmen im Innenraum von Kraftfahrzeugen durchgeführt. Die Innenraumluft wurde während der Fahrt in Teflon-beschichteten Aluminiumbeuteln und für Kohlenwasserstoffe in besonders geeigneten Tedlarsäcken genommen. Die Analytik wurde anschließend im Labor durchgeführt.

Die Gegenüberstellung von Jahresmittelwerten aus dem Messprogramm für Kfz-Innenräume und der ortsfesten Verkehrsstation des Umweltbundesamtes in der Großen Eschenheimer Straße in Frankfurt zeigt sehr deutlich, dass im Kfz-Innenraum bei Fahrten im morgendlichen Berufsverkehr deutlich erhöhte Konzentrationen im Vergleich zur Außenluft gemessen werden (siehe Abbildung 1). Jedoch hat die Belastung durch Kohlenmonoxid und Stickoxide um rund 50%, Benzol um rund 80% gegenüber den 80er Jahren abgenommen.

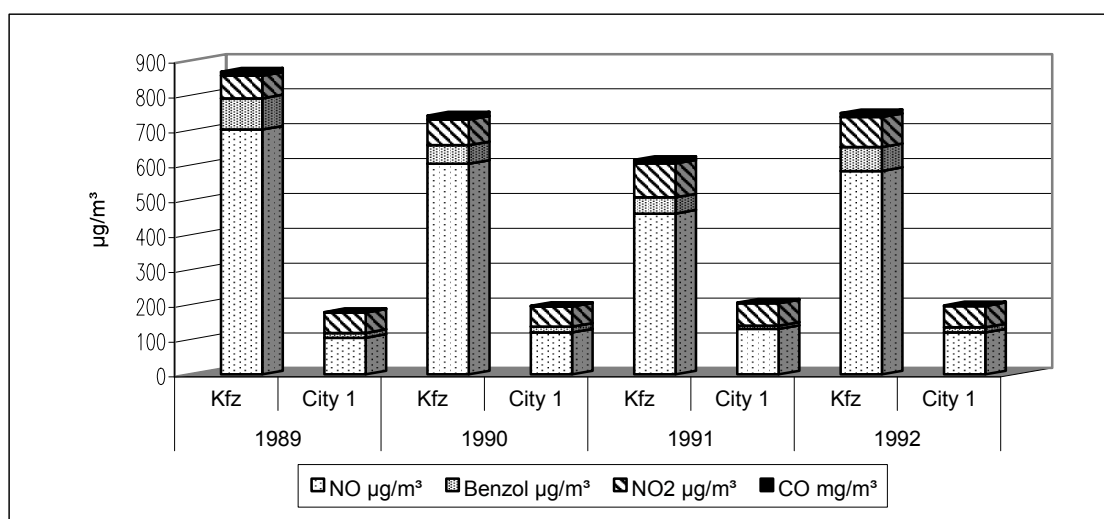


Abbildung 1: Belastung der Kfz-Insassen durch Kfz-Emissionen

Tabelle 3: Vgl. Kfz-Innenraum mit der Vermessstation City1

		<i>NO</i>	<i>Benzol</i>	<i>NO2</i>	<i>CO</i>
		<i>µg/m³</i>	<i>µg/m³</i>	<i>µg/m³</i>	<i>mg/m³</i>
1989	Kfz	702	89,3	65	11,2
	City 1	105	13,7	58	1,75
1990	Kfz	604	53,1	73	11,7
	City 1	120	16,5	58	1,8
1991	Kfz	461	46,4	97	10,5
	City 1	130	9,4	64	2,3
1992	Kfz	583	68,4	86	11,3
	City 1	120	14,8	61	1,9

Die Messwerte von City1 sind Jahresmittelwerte und beziehen sich jeweils auf den Zeitraum 7:00 bis 8:00 Uhr, in dem die Messfahrten durchgeführt wurden (siehe Tabelle 3).

B. Vergleich der Belastung von Fahrradfahrern mit der von Kfz-Insassen

Für die Untersuchungen wurden 35 auf stark befahrenen Pendler Routen gezogene Proben ausgewertet. Das Ergebnis war, dass der Radfahrer auf der gleichen Strecke durchschnittlich nur 50 bis 60% der im Kfz-Innenraum auftretenden Konzentrationen ausgesetzt ist.

Dies kann durch folgende Sachverhalte erklärt werden:

- Der Radfahrer bewegt sich meist auf der rechten Fahrbahnseite und somit im abfallenden Konzentrationsbereich
- Wegen seiner größeren Beweglichkeit kann der Radfahrer Verkehrsstauungen zügiger passieren
- Die Probenahme erfolgt beim Radfahrer in Kopfhöhe. Diese liegt deutlich über der Höhe, in der beim Pkw der Lufterlass angebracht ist.
- Es kann angenommen werden, dass die Immissionsbedingungen im Normalfall noch günstiger für den Radfahrer ausfallen, weil er sich, im Gegensatz zu den hier beschriebenen Messungen, meist Fahrtrouten abseits der stark befahrenen Pendlerstrecken sucht.

C. Autobahnmessungen

Auf Autobahnen fahren die Fahrzeuge ständig in den Abgasfahnen der vorausfahrenden Fahrzeuge. Neben der Autobahn nehmen die Schadstoffkonzentrationen rasch (nach etwa 200 Metern) auf den Wert des Umgebungshintergrundes ab. 1994 wurden 9 Messungen und 2001 15 Messungen über jeweils 500 km Autobahnstrecke durchgeführt. Die folgende Tabelle 4 zeigt die Mittelwerte über alle Messungen. Dabei ist festzustellen, dass die Konzentrationen der Stickoxide keinen Rückgang zeigen (hohe LKW-Dichte), während Kohlenmonoxid und Benzol einen Rückgang zu verzeichnen haben.

Tabelle 4: Autobahnmessungen

Jahr	Anzahl Messfahrten	NO µg/m³	NO_x µg/m³	NO₂ µg/m³	CO mg/m³	Benzol µg/m³	Ruß µg/m³
1994	9	333	379	72	3,6	9,5	
2001	15	305	375	105	1,2	2,0	8,0

D. Kfz-Innenraummessungen 1999

Nach dem Umzug der Pilotstation in das Laborgebäude in Langen, wurden erneut im März 1999 orientierende Messungen im Kfz-Innenraum durchgeführt. Es wurden zwei Fahrtrouten ausgesucht, (1) von Offenbach nach Langen, und (2) von Hofheim nach Langen. Während der gesamten Dauer einer morgendlichen Fahrt im Berufsverkehr wurde kontinuierlich ein Tedlarsack mit der Kfz-Innenraumluft gefüllt. Die Strecken können folgendermaßen charakterisiert werden:

- i. Beginnt mit ca. 10-15 Minuten auf einer 4-spurigen Ausfallstraße, mit sehr dichtem Kolonnenverkehr und mehreren Ampelstopps, gefolgt von ca. 10 Minuten in der Regel zügige Autobahnfahrt.
- ii. Beginnt im Taunus, ohne starkes Verkehrsaufkommen, dichter Autobahnverkehr im Frankfurter Kreuz und auf der Strecke nach Süden. Gesamtdauer ca. 40 Minuten.

Die Analysen wurden anschließend im Labor in Langen mittels Gaschromatographie und Immissionsmonitoren durchgeführt. Die Auswertung der Messungen zeigt die erwartete höhere Belastung, insbesondere von Benzol und CO, bei der Fahrt im innerstädtischen Kolonnenverkehr, wobei in einem neueren Fahrzeug eine deutlich geringere Innenraumbelastung von Benzol auftrat.

Der Vergleich zu den verkehrsbezogenen Immissionsmessungen der Pilotstation zeigt für die Kfz-Insassen eine erheblich stärkere Belastung mit Luftschadstoffen. In der Tabelle 5 sind die Messungen zusammengefasst:

Tabelle 5: Kfz-Innenraumbelastungen 1999

Route	Benzol in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	CO in mg/m^3	NO in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	NO2 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$
(1)	57-82	4-7	ca. 400	ca. 100
(1) mit anderem Kfz	25-40	5-10	400-600	54-96
(2)	4-17	2-4	540-550	57-80
Messstelle City 1 ¹	5,4	1,0	34	19

¹ Mittelwert an den Werktagen über den Zeitraum der Kfz-Messungen von 8-10 Uhr

E. Zusammenfassung

Prinzipiell sind die Belastungen mit Luftschadstoffen aus dem Kfz-Verkehr im Innenraum von Kraftfahrzeugen um ein Vielfaches höher, als die Immissionskonzentrationen an Hauptverkehrsstraßen, deren Überwachung gesetzlich geregelt ist.

Hohe Immissionskonzentrationen im Kfz-Innenraum sind insbesondere bei Autofahrern und Beifahrern von Wichtigkeit, die das Auto mit hoher Fahrleistung nutzen, z.B. beruflich. Da

immer mehr Zeit im Auto verbracht wird, steigt die Bedeutung der Immissionen im Kfz-Innenraum relativ zur Gesamtbelastung.

Vergleich zwischen aktiver und passiver Probenahme für die Analyse von Benzol in Umgebungsluft

Die 23. BImSchV legt Konzentrationswerte für luftverunreinigende Stoffe aus dem Straßenverkehrsbereich fest, bei deren Überschreiten verkehrliche Maßnahmen zu prüfen sind. Einer dieser Stoffe ist die kanzerogene Komponente Benzol.

Um ohne großen Aufwand vorab Schätzungen über die Benzolbelastung machen zu können, bieten sich passive Sammelverfahren an. Bei diesen Verfahren erfolgt der Transport der Schadstoffmoleküle aus der Umgebungsluft zum Sorptionsmaterial aufgrund von Diffusionsvorgängen. An der Messstelle wird lediglich ein Sammelröhrchen befestigt, das für einen bestimmten Zeitraum der Umgebungsatmosphäre ausgesetzt ist. Der größte Vorteil gegenüber der aktiven Probenahme ist die lange Beprobungsdauer von 2-6 Wochen, welche die Anzahl der Analysen für die Ermittlung des Jahresmittelwertes drastisch reduziert.

Während bei der aktiven Probenahme die Luftkonzentration über die gaschromatographisch analysierte Masse und das Probenahmenvolumen berechnet wird, genügt für die Passivsammlung der theoretische Diffusionskoeffizient, um auf die mittlere Konzentration über den Zeitraum der Exposition zu berechnen.

Die Pilotstation hat an ihrer Messstelle City 1 in Frankfurt, Große Eschenheimer Straße, über einen Zeitraum von 20 Monaten die Passivsammlung mit der aktiven Probenahme der Routine-Benzolmessung verglichen. An drei Monaten wurde zusätzlich ein zweites Röhrchen zu Kontrollzwecken beaufschlagt.

Die quasikontinuierliche Benzolmessung läuft an dieser Messstelle seit Mai 1989 routinemäßig mit einem Gaschromatographen 755 der Firma AIR-Instruments. Kalibriert wird mit einem Transferstandard aus Druckgasflaschen, der mit der Methode der Statischen Injektion im Labor überprüft wird.

Es werden zwei Analysen von je 100 ml Probenluft pro Halbstundenmittelwert durchgeführt, daraus wird dann ein Monatsmittelwert gebildet. Die Probenahme erfolgt in 1,5 m Höhe am Straßenrand.

Für den Vergleich wurden die Passivsammler ORSA der Firma Dräger eingesetzt. Für die Analytik wurden die beaufschlagten Sammler per Post an den Analysenservice von Dräger geschickt. Der Beprobungszeitraum pro Sammler war etwa ein Kalendermonat. Das Sammelröhrchen wurde innerhalb des Probenahmemastes, unmittelbar neben der Ansaugstelle für die Messstelle City 1 befestigt.

Die Abbildung 2 zeigt die Gegenüberstellung der mit beiden Methoden gewonnenen Monatsmittelwerte für Benzol in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

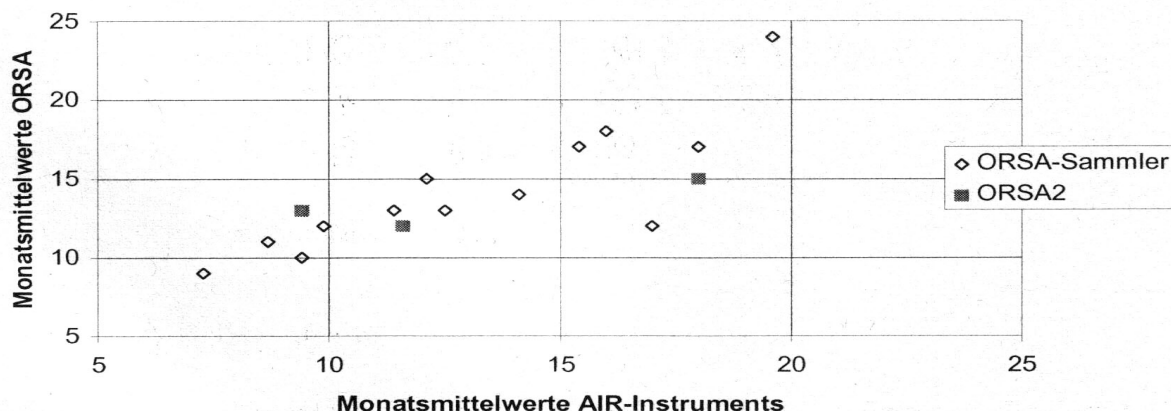


Abbildung 1: Gegenüberstellung der mit beiden Methoden gewonnenen Monatsmittelwerte für Benzol in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

Zusammenfassung:

In der Regel lagen die Werte der passiven Probenahme 10-20% höher als bei der aktiven Probenahme des quasikontinuierlichen Verfahrens.

Zieht man den Mittelwert über alle Messungen heran, so ergibt sich eine Differenz <10%.

Bei den definierten Bedingungen, keine direkte Anströmung der Sammler, keine Sonneneinstrahlung, Analytik von der Firma Dräger und Beprobungszeitraum ein Kalendermonat, zeigt sich eine gute Einsetzbarkeit der ORSA-Passivsammler für orientierende Messungen.

Die EU-Tochterrichtlinie Benzol erlaubt für erwartete Konzentrationen $<3,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ den Einsatz von passiven Sammelverfahren für die gesetzlich vorgeschriebene Luftqualitätsüberwachung. Da in Deutschland die Benzolimmissionswerte seit Mitte der 90er Jahre stark gefallen sind, wird dieses Analysenverfahren überwiegend von den Ländermessnetzen angewendet werden.

□ Betreuung von F u. E Vorhaben

Die ständig sinkende Zahl der Mitarbeiter der Pilotstation (1.5% pro Jahr und mehr) macht es noch mehr nötig als früher, Sondermessungen im Rahmen von F+E Vorhaben extern zu vergeben. So werden z.Z. zwei Vorhaben extern durchgeführt:

1. Emissionsnahe Immissionsmessungen
2. Aufbau des Qualitätssicherungs / Scientific Advisory Centres für Global Atmosphere Watch

Zu 1: Im Jahre 1999 wurde an das Forschungszentrum Karlsruhe das Vorhaben „Emissionsnahe Überwachung Kfz-bedingter Emissionen“ vergeben. Aus der Ermittlung der Immissionen Kfz-relevanter Emissionen soll an einem typischen Autobahnabschnitt durch Messung im Luv und

Lee der Autobahn unter Anwendung eines hochauflösenden Modells die Emissionen gemessen und mit den anderweitig z. B. auf Rollenprüfständen ermittelten Emissionen verglichen werden. Besonders wichtig ist dabei die Differenzierung zwischen Kfz und LKW (diese können nur sehr bedingt auf Rollenprüfständen vermessen werden). Weiterhin soll für eine Vielzahl von gemessenen Komponenten Aufschluss gewonnen werden über die im Nahfeld der Emissionen auftretenden chemischen Umsetzungen.

Auch dienen diese Messungen im Vergleich zu bereits 1987 bis 1989 vom TÜV Rheinland durchgeführten Messungen zur Abschätzung der E- und I-Entwicklung an Autobahnen, die ja durch die Ostöffnung einen erheblichen Strukturwandel erfahren haben.

Eine Initialförderung von 280.000 DM hat dazu geführt, dass eine Vielzahl anderer Institutionen sich diesem Programm angeschlossen und mit Eigenmitteln finanziert haben. Hierzu gehören Kfz-Hersteller, die chemische Industrie und ausländische Institutionen (z.B. aus der Schweiz). Dabei werden auch neuartige Messverfahren erprobt. Das Programm ist sehr aufwändig und logistisch schwierig geworden. So wurden an fahrbaren Kränen bis zu neun Ansaugstellen in verschiedenen Höhen (bis 60 m) angebracht. Auf extra angebrachten Plattformen wurden die entsprechenden Messplätze geschaffen, sowohl für die Immissionsmessgeräte als auch für die meteorologischen Komponenten. In den sogenannten Intensivmessverfahren von jeweils mehr als 24 Stunden wurden auch intensive Verkehrszählungen mit Differenzierung nach Lkw und Personenkraftwagen nebst den zugehörigen Geschwindigkeiten ermittelt.

Leider stand das Vorhaben unter keinem besonders günstigen meteorologischen Stern. So war anfangs das Messfeld so überschwemmt, dass die Kräne und Messfahrzeuge nicht auffahren konnten. Im weiteren Verlauf störten straßenparallele Winde (notwenig sind Winde quer zur Autobahn) die Messungen. Allerdings war die gesamte Messdauer des Programms so ausgelegt, dass bis Ende Juni die notwendige Anzahl von Intensivmessungen durchgeführt werden konnte. Die Auswertungen haben inzwischen begonnen und die Pilotstation hat die labormäßige Qualitätssicherung durchgeführt. (Vergleich der verwendeten Kalibrierstandards mit den UBA - Primärstandards, die EU und z.T. weltweit anerkannt sind).

Ergebnisse liegen allerdings noch nicht vor. Das Vorhaben soll Ende des Jahres abgeschlossen sein. Wegen der obengenannten Schwierigkeiten ist allerdings mit Verzögerungen zu rechnen.

Zu 2: Seit mehreren Jahren führen der DWD und das UBA an der GAW- Station Zugspitze und den sogenannten Regionalstationen in Umfeld vom Garmisch Partenkirchen und dem Hohen Peißenberg Messungen zum WMO-Programm „Global Atmospheric Watch durch. Aber erst 1999 hat der BMU zugestimmt, dass das UBA die Aufgabe des QA/SAC für Europa und Afrika (wird bisher über die Weltbank finanziert) übernimmt.

Auch hier mussten die vorbereitenden Aufgaben vertraglich vergeben werden. Vertragsnehmer ist das Fraunhofer Institut für Atmosphärische Umweltforschung, mit dem Ziel, die anfallenden Aufgaben, insbesondere die Auswahl der Komponenten und der zugehörigen Weltkalibrierzentren, so vorzubereiten, dass nach Abschluss das UBA in weitgehend administrativer Weise die Aufgaben weiterführen kann.

Inzwischen sind die Arbeiten soweit gediehen, dass Deutschland gegenüber der WMO im Rahmen seines Budgets wahrscheinlich für die Komponenten VOC, N₂O und Aerosole (physikalisch) verantwortlich zeichnen kann. Das zunächst ausgegliederte Trainingsprogramm

für andere GAW-Betreiber wurde dankenswerter Weise von der Bayerischen Staatsregierung übernommen. Unter dem Begriff GAW-TEC wird vom 22. Juli 2001 bis zum 3. August 2001 ein Trainingsprogramm für 10 ausländische Teilnehmer unter der Mitwirkung von Mitarbeitern der Bayerischen Umweltforschungsgesellschaft des Schneefernerhauses, des DWD und des UBA stattfinden.

2. LANGJÄHRIGE MESSUNGEN VON LUFTVERUNREINIGUNGEN IN BELASTUNGSGEBIETEN

Rainer Berg und Anneliese Medem

2.1 Schwefeldioxid

Schwefeldioxid ist ein farbloses, stechend riechendes Gas, das überwiegend beim Verbrennen schwefelhaltiger Energieträger (Kohle, Erdöl) entsteht. SO_2 wirkt insbesondere in Kombination mit Staub auf die Atemwege, reizt Haut und Schleimhäute und führt in höheren Konzentrationen zu Atembeschwerden. Bei Pflanzen verursacht es Absterben von Gewebepartien durch Abbau von Chlorophyll. Insbesondere können Obst und Forstkulturen geschädigt werden. SO_2 wird in der Atmosphäre teilweise zu Schwefelsäure oxidiert und ist an der Versauerung des Regens beteiligt.

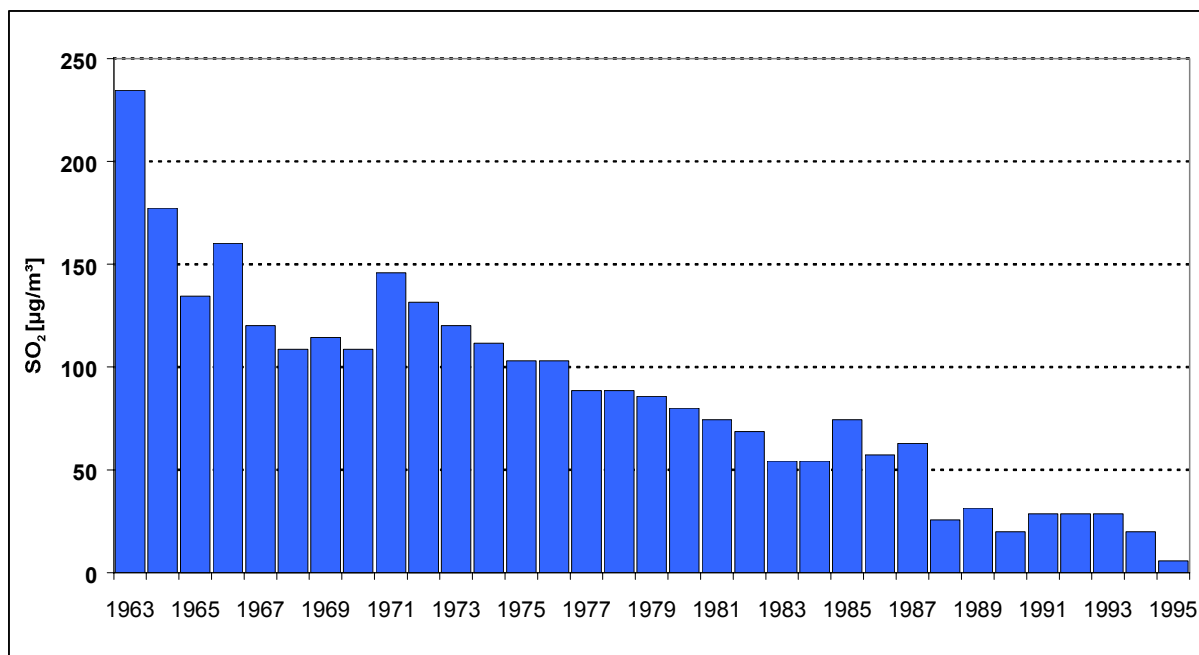


Abbildung 3: SO_2 – Jahresmittelwerte 1963 – 1995 in Frankfurt/Main - Westend

2.1.1 Der Wintersmog hat sich verabschiedet

In den 60er und 70er Jahren waren die Ursachen für Wintersmog in den Ballungsgebieten vor Ort zu suchen. Während winterlicher Hochdruckwetterlagen mit schwachem Wind und geringem vertikalen Luftaustausch (Inversionswetterlage) stiegen die Schadstoffkonzentrationen - vornehmlich von Schwefeldioxid und Staub - in der Luft an und führten zu teilweise erheblichen Belastungen der Atemwege. Diese „hausgemachten“ hohen Schadstoffkonzentrationen traten durch Minderungsmaßnahmen an den Emissionsquellen (Großfeuerungsanlagenverordnung) in der Bundesrepublik Deutschland allmählich in den Hintergrund. Um so mehr nahm in den 80er Jahren die Bedeutung einer anderen Smogursache zu: der großräumige, auch Ländergrenzen überschreitende Transport von Luftschadstoffen, vor allem bei östlichen Windrichtungen mit mittelhohen Windgeschwindigkeiten.

Durch die Wiedervereinigung und die Modernisierung der osteuropäischen Volkswirtschaften traten in den 90er Jahren sehr deutliche Minderungen der Schadstoffkonzentrationen ein, so dass die Messungen von SO₂ in Frankfurt/Main wegen Unterschreitung der Nachweisgrenze vom Umweltbundesamt Ende 1995 eingestellt wurden. Bis dahin gingen die Werte stetig zurück, bedingt vorwiegend durch die allmähliche Umstellung der Hausbrandstoffe auf schwefelarme Energieträger (siehe auch Kapitel 3.3.1).

2.2 Stickoxide

Stickstoffoxide ist die zusammenfassende Bezeichnung für Stickstoffmonoxid und Stickstoffdioxid. Sie entstehen bei Verbrennungsprozessen, teils weil bei den im Brennraum herrschenden hohen Temperaturen der Stickstoff und der Sauerstoff der Luft miteinander zu Stickstoffoxiden reagieren, teils weil die im Brennstoff enthaltenen Stickstoffverbindungen zu Stickstoffoxiden umgesetzt werden. Bei diesen Prozessen wird in erster Linie Stickstoffmonoxid gebildet, das in der Atmosphäre relativ schnell zu dem gesundheitsschädlichen Stickstoffdioxid umgesetzt wird. Mit über 60% ist der Verkehrsbereich der Hauptverursacher der NO_x -Emissionen. Bei höheren Stickstoffdioxidbelastungen wurde eine erhöhte Häufigkeit von Atemwegserkrankungen beobachtet, ebenso eine Verstärkung von Schadwirkungen auf Pflanzen. Stickstoffoxide spielen als Hauptverursacher eine besondere Rolle bei der Bildung des bodennahen Ozons. Aus Stickstoffoxid kann sich Salpetersäure bilden, die eine der wesentlichen Ursachen für die Entstehung des sauren Regens darstellt.

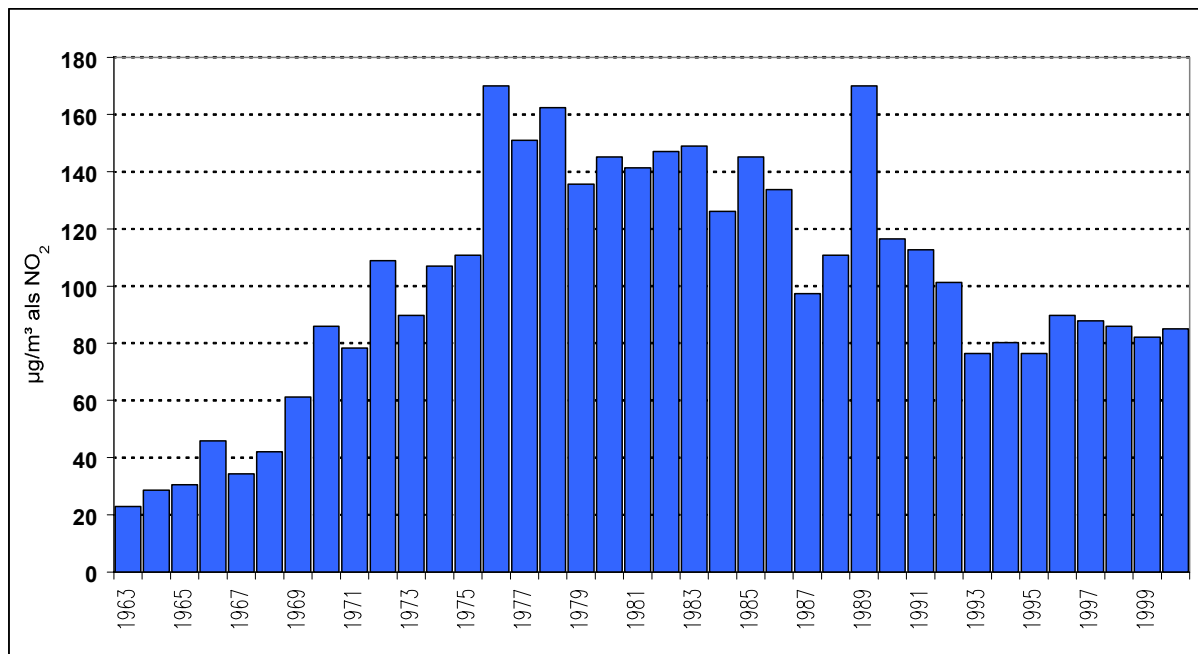


Abbildung 4: NO_x – Jahresmittelwerte von 1963 – 2000 in Frankfurt/ Main – Westend

2.3 Benzol

Das leichtflüchtige Benzol ist der strukturelle Grundkörper bestimmter (ringförmiger) organischer Kohlenwasserstoffverbindungen, den aromatischen Verbindungen. Zu den aromatischen Verbindungen gehören u.a. Anilin, Phenol, Toluol und Benzo[a]pyren.

Benzol wird überwiegend durch die Atemwege aufgenommen, verteilt sich rasch im Körper und kann sich im Fettgewebe anreichern. In höheren Konzentrationen kann es zu akuten Störungen des Nervensystems und zu irreversiblen Schädigungen der blutbildenden Organe mit Verminderung der roten und weißen Blutkörperchen und der Blutplättchen, Chromosomenshäden aber auch zu Blutkrebs führen. Auch bei niedrigen Konzentrationen können Knochenmark, Leber und Zentralnervensystem geschädigt werden.

In der Bundesrepublik Deutschland gelangen jährlich ca. 60.000t Benzol in die Umwelt, davon 50.000 t aus dem Kfz-Bereich. In dem in der Bundesrepublik angebotenen Benzin sind 1,8 - 2,6% Benzol enthalten. Eine EU-Richtlinie legt den Höchstgehalt auf 5% fest. Durch den Einsatz von Katalysatoren in den Kraftfahrzeugen können die Benzolemissionen um bis zu 90% verringert werden.

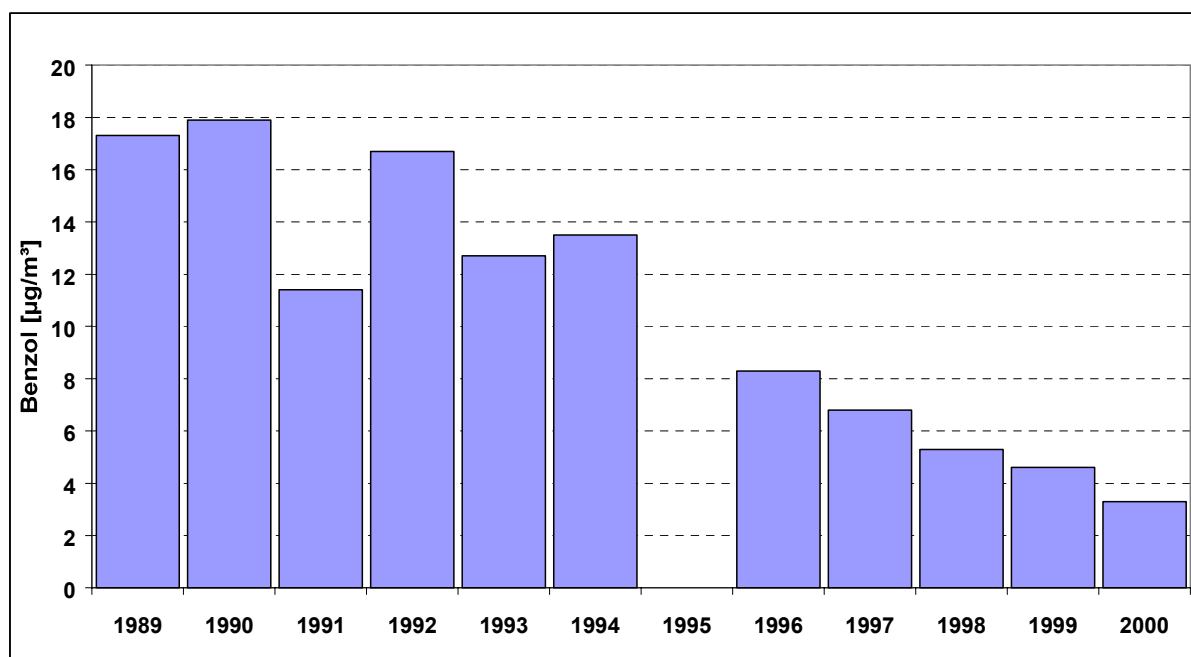


Abbildung 5: Benzol Jahresmittelwerte von 1989 – 2000 in Frankfurt/Main – Innenstadt

2.4 Kohlenmonoxid

Kohlenmonoxid ist ein reiz-, farb-, und geruchloses Gas. Es entsteht bei unvollständiger Verbrennung organischer Verbindungen (Hauptquellen: Kraftfahrzeug-Motoren, Schwerindustrie, Hausheizungen). Eingeatmetes Kohlenmonoxid vermindert die Sauerstoffaufnahme in das Blut, verursacht so Sauerstoffmangel in den Zellen und führt je nach Konzentration zu Kopfschmerzen, Übelkeit und Bewusstlosigkeit.

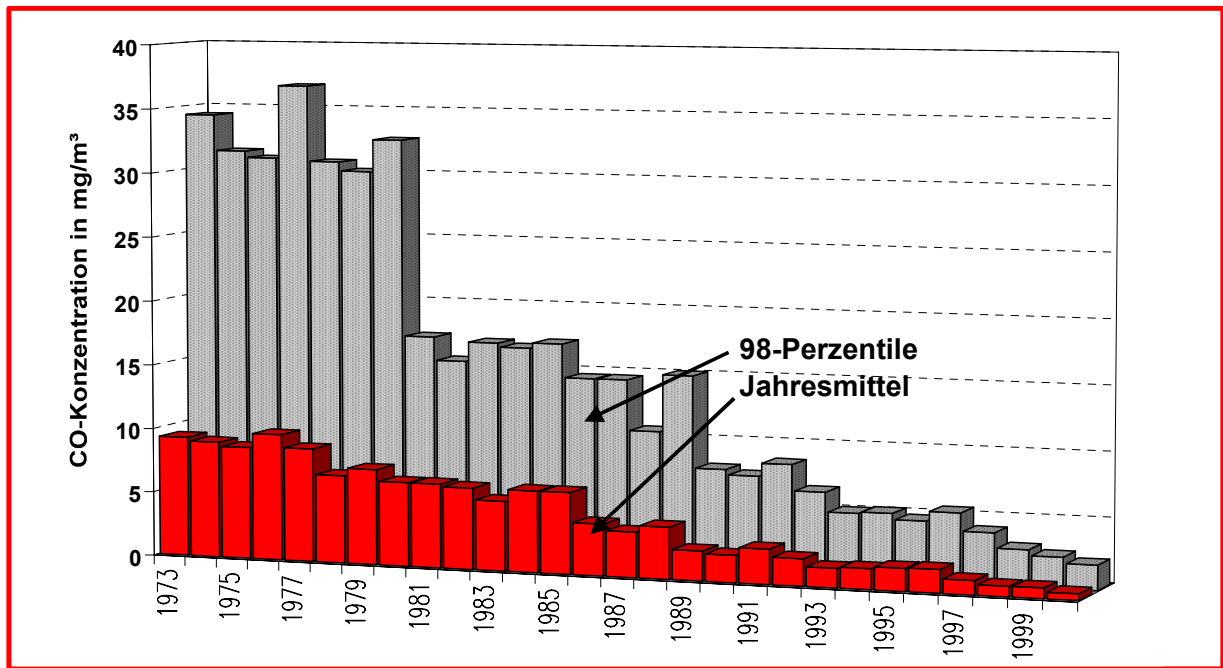


Abbildung 6: CO-Jahresmittelwerte und 98-Perzentile von 1973 -2000 in Frankfurt/Main – Innenstadt

Die langjährigen Messungen in der Innenstadt von Frankfurt am Main belegen, dass die Belastung durch Kohlenmonoxid im Jahresmittel kontinuierlich von 9,3 mg/m³ auf 0,5 mg/m³ abgenommen hat. 98 Prozent aller Werte lagen 1973 unter 34,3 mg/m³, im Jahr 2000 unter 2 mg/m³. Ursachen dafür sind die Einführung des Katalysators im PKW und Veränderungen durch verkehrslenkende Maßnahmen in der Innenstadt. Die Messungen werden zum Ende des Jahres eingestellt.

3. LANGZEITMESSUNGEN IM MESSNETZ DES UBA

Siegfried Beilke, Karin Uhse und Elke Bieber

3.1 Einleitung

Das Luftmessnetz des Umweltbundesamtes besteht seit über 30 Jahren. Es wurde Mitte der 60er Jahre von der Deutschen Forschungsgemeinschaft gegründet und 1974 vom Umweltbundesamt übernommen. Nähere Informationen über die Entwicklung des Messnetzes sind in den Referenzen 1 und 2 enthalten. Das Ziel für die Errichtung des Messnetzes war, die Zusammensetzung von "Normalluft" kennen zu lernen, die als Bezug für biologische und medizinische Wirkungsuntersuchungen in Gebieten mit erhöhten Verunreinigungen der Luft dienen sollte. Unter "Normalluft" wollte man dabei die über einen größeren Raum und längere Zeit repräsentative Luftzusammensetzung verstehen. Die Messstellen des UBA-Messnetzes liegen deshalb in ländlichen Gebieten außerhalb von Städten und Ballungsgebieten. Das Luftmessnetz des UBA besteht heute aus 23 Stationen – 9 Stationen mit Personal und 14 automatische Stationen.

3.2 Geographische Lage der Stationen und Messprogramm

Die geographische Lage der in 2000 betriebenen personell besetzten Messstellen und der Containerstationen ist in Abbildung 7 dargestellt. Tabelle 6 enthält die geographischen Koordinaten der 35 UBA-Messstationen, deren Höhen über NN sowie Beginn und Ende der Messtätigkeit. Diese große Anzahl der Stationen ergibt sich daraus, dass 1998/1999 einige Container versetzt und an einigen Standorten die Messungen komplett eingestellt wurden und sowohl die aktuellen als auch die ehemaligen Standorte aufgeführt sind. Dies ist auch bei allen nachfolgenden Tabellen zu beachten.

Das derzeitige Messprogramm ist in der Tabelle 7 zusammengestellt (Stand: Januar 2000). In den Tabellen sind nur die Messverfahren mit der höchsten zeitlichen Auflösung angegeben. Die Messverfahren sind der Tabelle 8 zu entnehmen. Die im Messnetz des UBA gewonnenen Datensätze sind in Bezug auf Probenahme und Analyse konsistent und homogen. Sie werden eingehenden Qualitätskontrollen unterzogen, so dass belastbare Trendaussagen möglich sind.

Die Betriebszentrale für das Messnetz des Umweltbundesamtes zog im Juli 1998 von Offenbach nach Langen, das sich ca. 30 km südlich von Frankfurt/Main befindet. Hier sind zusammen mit anderen Fachgebieten u.a. die Zentrallabors, die Betriebszentrale, die Messnetzdatenzentrale und die Pilotstation untergebracht. Die Messnetzleitung befindet sich im Umweltbundesamt in Berlin.

In Fragen der Qualitätssicherung sowie der Entwicklung und Erprobung neuer Messmethoden, die im Messnetz zur Anwendung kommen, besteht eine enge Zusammenarbeit mit der Pilotstation des UBA in Langen.

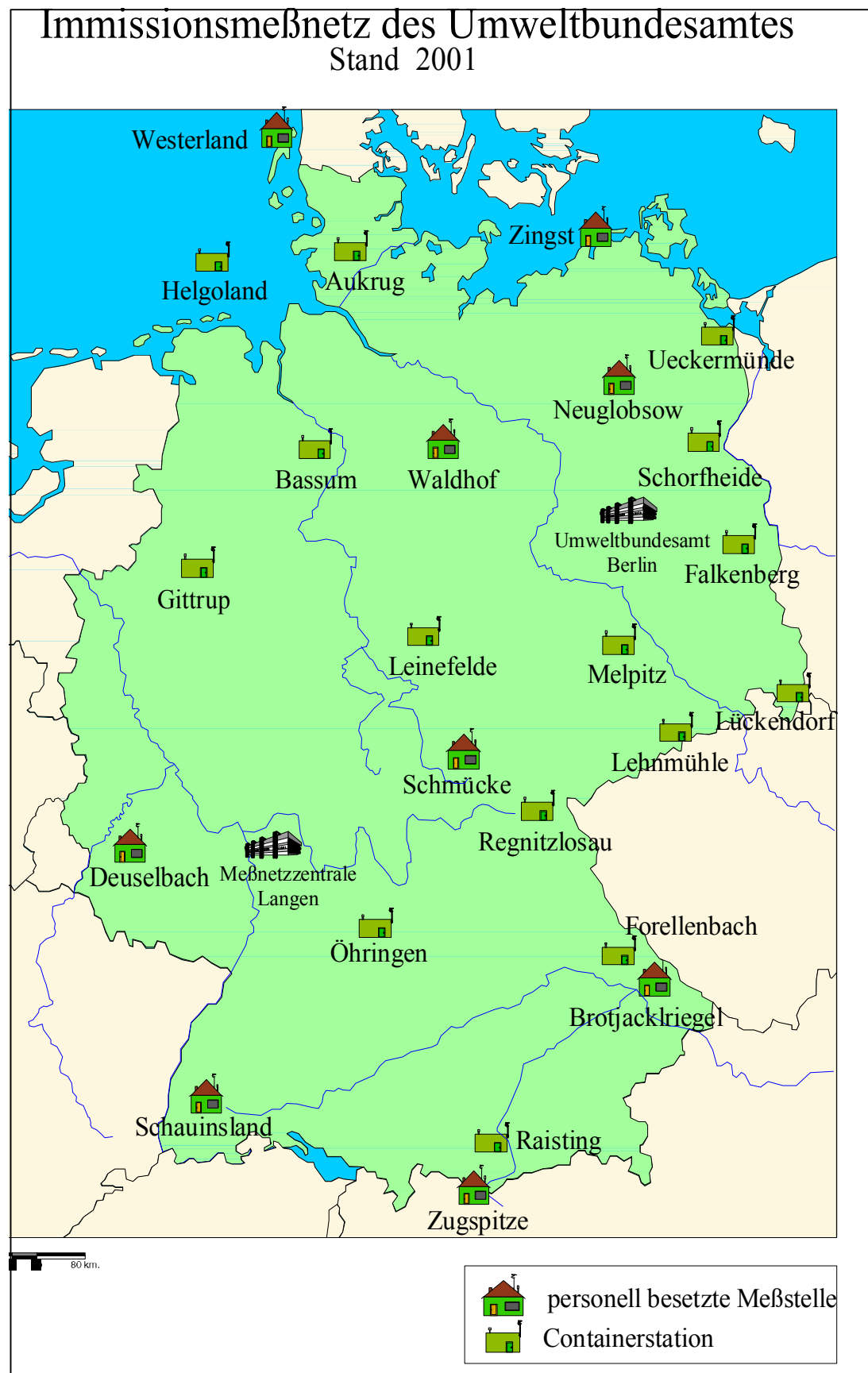


Abbildung 7: Das Messnetz des Umweltbundesamtes

Tabelle 6: Geographische Lage der Messstellen

Stationsname	Stations-Kennung	geographische Koordinaten		Höhe ü NN in m	Messbeginn	Messende
		Nord	Ost			
Angermünde	AN	53°01'54"	13°59'37"	56	Jul 91	Apr 99
Ansbach	AS	49°14'54"	10°35'07"	481	1976	Mrz 01
Aukrug	AU	54°04'29"	09°47'34"	15	Jul 98	
Bassum	BA	52°51'08"	08°42'05"	52	1976	
Brotjacklriegel	BR	48°49'05"	13°13'11"	1016	1968	
Deuselbach	DE	49°45'47"	07°03'18"	480	1967	
Doberlug-Kirchhain	DL	51°38'49"	13°34'31"	97	Mär 91	Okt 98
Erbeskopf	EB	49°45'47"	07°03'18"	816	Mai 00	
Falkenberg	FA	52°10'01"	14°07'27"	73	Okt 98	
Forellenbach	FB	48°56'	13°56'	858	Jan 2000	
Gittrup	GI	52°02'38"	07°40'23"	43	Sep 87	
Herleshausen	HE	51°02'19"	10°09'13"	380	Jun 89	Jan 99
Helgoland	HG	54°11'18"	07°52'38"	50	Aug 93	
Hohenwestedt	HW	54°06'58"	09°42'44"	75	1976	Jun 98
Kyritz	KY	52°56'19"	12°24'41"	40	Mär 91	Jul 98
Leinefelde	LF	51°23'39"	10°18'49"	356	Dez 91	
Lindenberg	LI	52°12'44"	14°07'15"	98	Mär 91	Okt 98
Lehnmühle	LM	50°49'55"	13°35'18"	527	Nov 93	
Lückendorf	LU	50°49'44"	14°47'17"	490	Nov 91	
Meinerzhagen	ME	51°05'56"	07°40'04"	510	1976	Aug 98
Melpitz	MP	51°31'32"	12°55'39"	86	Nov 93	
Murnauer Moos	MU	47°39'05"	11°12'12"	622	Feb 95	Mai 99
Neuglobsow	NG	53°08'34"	13°02'00"	65	Nov 91	
Öhringen	OE	49°14'32"	09°26'50"	283	Apr 01	
Raisting	RS	47°53'59"	11°06'45"	552	Jun 01	
Regnitzlosau	RE	50°18'28" »	12°03'49" »	595	Sep 87	
Rottenburg	RT	48°27'21"	08°57'29"	427	1976	Dez 98
Schauinsland	SC	47°54'51"	07°54'32"	1205	1968	
Schmücke	SM	50°39'19"	10°46'15"	937	Jun 91	
Schorfheide	SH	52°58'24"	13°38'48"	70	Apr 99	
Schwerin	SW	53°38'21"	11°23'43"	59	Sep 90	Jun 98
Schleiz	SZ	50°34'11"	11°48'22"	501	Sep 90	Dez 98
Teterow	TE	53°45'50"	12°37'05"	46	Jul 91	Sep 98
Ueckermünde	UE	53°45'03"	14°04'24"	1	Jul 91	
Waldhof	WA	52°48'08"	10°45'29"	74	1970	
Westerland	WE	54°55'36"	08°18'33"	12	1968	
Wiesenburg	WI	52°07'21"	12°27'41"	107	Sep 90	Mär 99
Zingst	ZG	54°26'19"	12°43'25"	1	Sep 91	
Zugspitze	ZU	47°24'54"	10°58'55"	2650	Jan 94	

Tabelle 7: Messprogramm des Messnetzes des Umweltbundesamtes

Messstelle	Bestimmungen von Gasen								Bestimmungen im Schwebstaub				Mete- orologie	Nieder- schlag	Strah- lung	
	SO ₂	NO _x	O ₃	CO ₂	CH ₄	PAN	Hg	KW	TSP	SO ₄	NO ₃	SM			UV	G
Ansbach	R	R	R						R				R	W		
Aukrug	R	R	R						R				R			
Bassum	R	R	R						R				R	W		
Brotjacklriegel	R	R	R	R				3T	R	T	M	M	R	W		
Deuselbach	R	R	R	R	R				R	T	M	M	R	T/W		
Erbeskopf	R	R	R						R				R	R		
Falkenberg	R	R	R						R				R	W		
Forellenbach	R	R	R										R	W		
Gittrup	R	R	R						R				R			
Helgoland	R	R	R						T				R	W		
Lehnmühle	R	R	R						R				R	W		
Leinefelde	R	R	R						R				R	W		
Lückendorf	R	R	R						R				R	W		
Melpitz	R	R	R						R				R	W		
Neuglobsow	R	R	R	R	R				R	T	M	M	R	W		
Öhringen	R	R	R						R				R			
Raisting	R	R	R						R				R			
Regnitzlosau	R	R	R						R				R	W		
Schauinsland	R	R	R	R	R	R			R	T	M	M	R	W	R	R
Schmücke	R	R	R	R	R			3T	R	T	M	M	R	W		
Schorfheide	R	R	R						R				R	W		
Ueckermünde	R	R	R						R				R	W		
Waldhof	R	R	R	R		R		3T	R	T	M	M	R	T/W		
Westerland	R	R	R	R					T	T	M	M	R	W		
Zingst	R	R	R	R	R	R	R	3T	R	T	M	M	R	W	R	R
Zugspitze	R	R	R	R	R			3T	R				R			
Gase:	SO ₂	Schwefeldioxid						Strahlung:	UV	UV-Strahlung						
	NO _x	Stickoxide: NO, NO ₂ , NO _x							G	Globalstrahlung						
	O ₃	Ozon						Niederschlag:	nasse Deposition							
	CO ₂	Kohlendioxid							pH-Wert, Leitfähigkeit							
	CH ₄	Methan							SO ₄ , NO ₃ , NH ₄ , Cl, Ca, Na,							
	PAN	Peroxyacetylnitrat							Mg, K							
	Hg	Quecksilber						Nur an 4 Stat.	Schwermetalle:							
	KW	Kohlenwasserstoffe							Pb, Cd, Cu, Mn, Fe, Zn, As							
Meteorologie:	Temperatur						Messintervall	T	Tagesprobe							
	Windrichtung und -geschw.							R	Registrierendes Gerät, Halbstd.							
	Relative Luftfeuchte							M	Monatsprobe							
	Luftdruck							W	Wochenprobe							
	Niederschlagsmenge							3T	3 Tagesprobe							
Schwebstaub:	TSP	Gesamtschwebstaub/PM ₁₀						Schwebstaub:	SM	Schwermetalle: Cu, Pb, Cd, Fe, Mn,						
	SO ₄	Sulfat								Ni						
	NO ₃	Nitrat														

Tabelle 8: Messverfahren im Messnetz des Umweltbundesamtes

Komponente	Messverfahren	Messintervall
Schwefeldioxid	UV-Fluoreszenz	Halbstunde
Schwefeldioxid	TCM	Tag
Stickoxide: NO, NO ₂ , NO _x	Chemilumineszenz	Halbstunde
Stickstoffdioxid	Saltzman	Tag
Ozon	UV-Absorption	Halbstunde
Kohlendioxid	IR-Absorption	Halbstunde
Kohlendioxid	Gaschromatographie	Halbstunde
Methan	Gaschromatographie	Halbstunde
Peroxyacetylnitrat (PAN)	Gaschromatographie	Halbstunde
Quecksilber	Atomabsorption	Halbstunde
Lachgas (N ₂ O)	Gaschromatographie	Halbstunde
Kohlenwasserstoffe (VOC)	Gaschromatographie	zweimal wöchentlich
Temperatur	Thermometer	Halbstunde
Windrichtung und -geschwindigkeit	Anemometer	Halbstunde
Relative Luftfeuchte	Hygrometer	Halbstunde
Luftdruck	Barometer	Halbstunde
Niederschlagsmenge	Tropfenzähler	Halbstunde
Niederschlagsmenge	Daily-bulk-Sammler	Tag
Niederschlagsmenge	Wet-only-Sammler	Woche
pH-Wert des Niederschlags	pH-Meter	Tag (daily-bulk)
pH-Wert des Niederschlags	pH-Meter	Woche (wet-only)
Leitfähigkeit des Niederschlag	Konduktometrie	Tag (daily-bulk)
Leitfähigkeit des Niederschlag	Konduktometrie	Woche (wet-only)
Ionen im Niederschlag	Atomabsorption	Tag (daily-bulk)
Ionen im Niederschlag	Atomabsorption	Woche (wet-only)
Schwermetalle im Niederschlag	IC/PMS	Woche
Gesamtschwebstaub	Beta-Absorption	Halbstunde
PM ₁₀	Beta-Absorption	Halbstunde
PM ₁₀	Gravimetrie	Tag
PM _{2,5}	Gravimetrie	Tag
Sulfat im Staub	Röntgenfluoreszenz	Tag
Ammonium im Staub	Ionenchromatographie	Monat
Nitrat im Staub	Ionenchromatographie	Monat
Schwermetalle im Staub	Atomabsorption	Monat
UV-Spektren	Monochromator	6 Minuten
Globalstrahlung	Pyranometer	Halbstunde

3.3 Gas- und partikelförmige Luftverunreinigungen

In den folgenden Abschnitten sollen die Ergebnisse von Langzeitmessungen aus dem Messnetz des UBA dargestellt, interpretiert und mit der Emissionentwicklung verglichen werden. Wie aus Tabelle 6 zu ersehen ist, liegt der früheste Messbeginn an einigen Stationen in den späten 60er Jahren, an anderen Stationen in den 70er und 80er Jahren.

3.3.1 Schwefeldioxid (SO₂)

Gegenüber den 70er und 80er Jahren hat sich die SO₂-Belastung in Deutschland drastisch vermindert (Abbildung 8). Dieser Prozess setzte Mitte der 80er Jahre in den alten Bundesländern und Anfang der 90er Jahre in den neuen Bundesländern sowie in Tschechien und Polen ein, vor allem als Folge der drastischen Minderung der SO₂-Emissionen. Abbildung 9 zeigt beispielhaft den Abfall der Jahresmittel der Schwefeldioxidkonzentrationen für die 8 personell besetzten Stationen im UBA-Messnetz. Heute werden in den neuen Bundesländern nahezu vergleichbar niedrige SO₂-Konzentrationen wie in den alten Bundesländern gemessen. An fast allen Stationen in den alten und neuen Bundesländern wurden im Jahre 2000 die niedrigsten SO₂-Konzentrationen seit Beginn der Messungen Anfang der 70er Jahre beobachtet. Die Jahreskonzentrationen haben von 1973 bis 2000 um ca. 90% abgenommen (gemittelt über die 5 Messstellen in den alten Bundesländern) (Abbildung 9), die Jahresemissionen um ca. 90% (Abbildung 8). Diese sehr niedrigen Konzentrationen bringen messtechnische Probleme mit sich, da die SO₂-Konzentrationen oft unterhalb der Nachweisgrenze liegen.

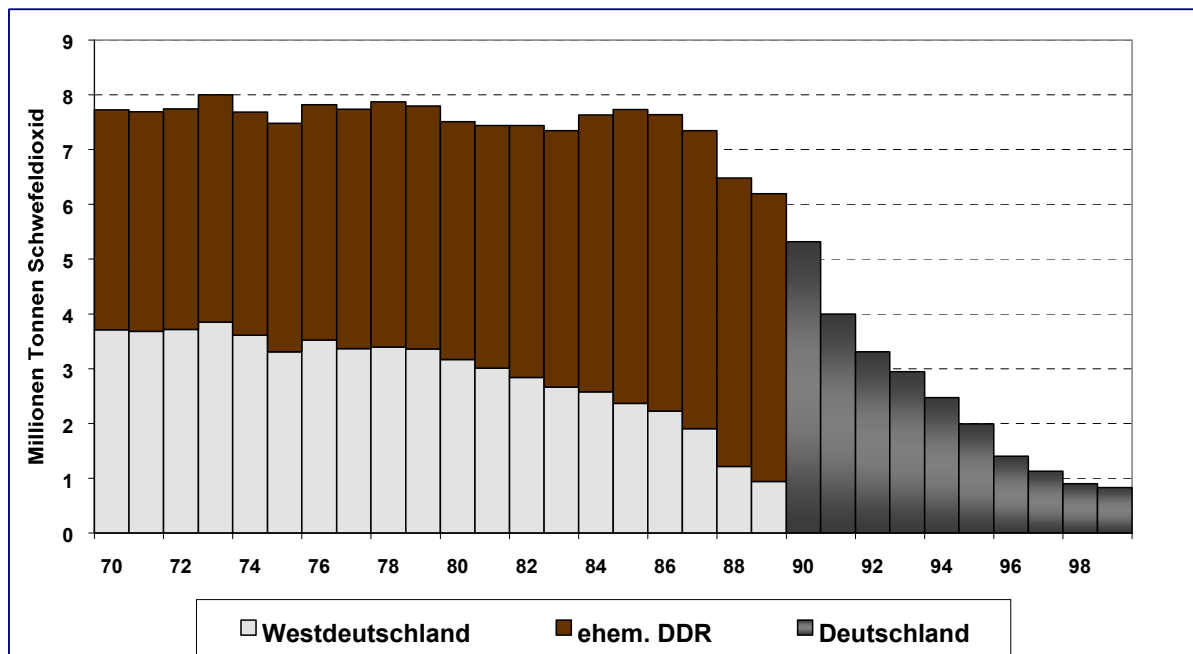


Abbildung 8: Emissionsentwicklung für Schwefeldioxid in Deutschland von 1970 bis 1999 (Ref. 3)

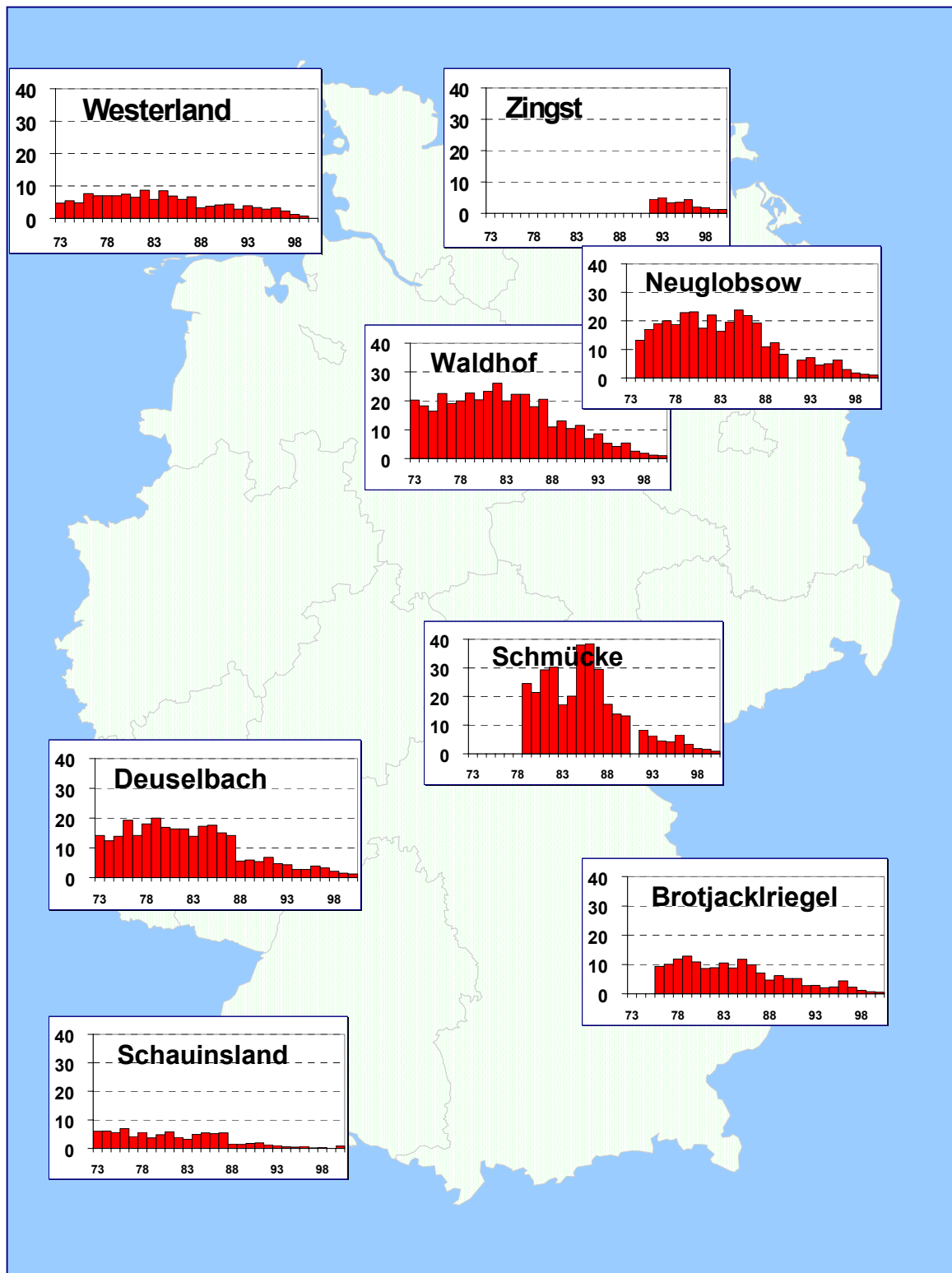


Abbildung 9: Trend der Schwefeldioxidkonzentrationen (Jahresmittel, TCM-Methode) an den Messstellen des Umweltbundesamtes von 1973 bis 2000 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$

3.3.2 Stickstoffdioxid (NO₂)

Stickstoffdioxid wird in der Atmosphäre hauptsächlich durch Oxidation des primär emittierten Stickstoffmonoxids (NO) mittels Ozon (O₃) gebildet. Abhängig von der Sonnenstrahlung stellt sich in der Atmosphäre innerhalb weniger Minuten zwischen NO, NO₂ und O₃ ein Gleichgewicht ein, das bei geringen NO_x-Konzentrationen (NO_x = NO + NO₂), hohen O₃-Konzentrationen und hoher Strahlung weitgehend auf der Seite des NO₂ liegt, d.h. das NO_x besteht unter diesen Bedingungen überwiegend aus NO₂ und nur in geringem Maße aus NO, vor allem im Sommerhalbjahr. Dies ist an den in ländlichen Regionen gelegenen Stationen des UBA-Messnetzes praktisch immer der Fall.

Abbildung 11 zeigt den Langzeitverlauf der Jahresmittel von NO₂ zwischen 1969 und 2000 an den personellen Messstellen des UBA (Saltzman-Messverfahren). Die höchsten NO₂-Jahresmittel wurden an den Stationen Waldhof und Deuselbach zwischen Ende der 60er Jahre und Anfang der 90er Jahre gemessen. Danach fielen die Konzentrationen als Folge der erheblichen Minderungen der NO_x-Emissionen in Deutschland während der letzten 10 Jahre leicht ab. An den Bergstationen Schauinsland und Brotjacklriegel sowie an der Nordseestation Westerland war dagegen während des letzten Jahrzehnts kein entsprechender Rückgang der NO₂-Jahresmittel zu beobachten. Der Grund dürfte in dem vergleichsweise stärkerem Beitrag des Ferntransports zu den gemessenen NO₂-Konzentrationen zu suchen sein.

Insgesamt lässt sich feststellen, dass sich die erhebliche Reduzierung der NO_x-Emissionen in Deutschland zwischen 1990 und 2000 um mehr als 40% (siehe Abbildung 10) - im Gegensatz zum SO₂ - nicht in einer entsprechenden Verminderung der NO₂- und NO_x-Konzentrationen an den Messstellen im UBA-Messnetz niedergeschlagen hat. Erst in letzten Jahren deutet sich eine leichte Abnahme an (siehe Abbildung 12). Ein wesentlicher Grund für die nur geringe Abnahme der NO₂- und NO_x-Konzentrationen dürfte der hohe Beitrag des Ferntransportes aus den europäischen Nachbarstaaten zu den NO_x-Konzentrationen sein.

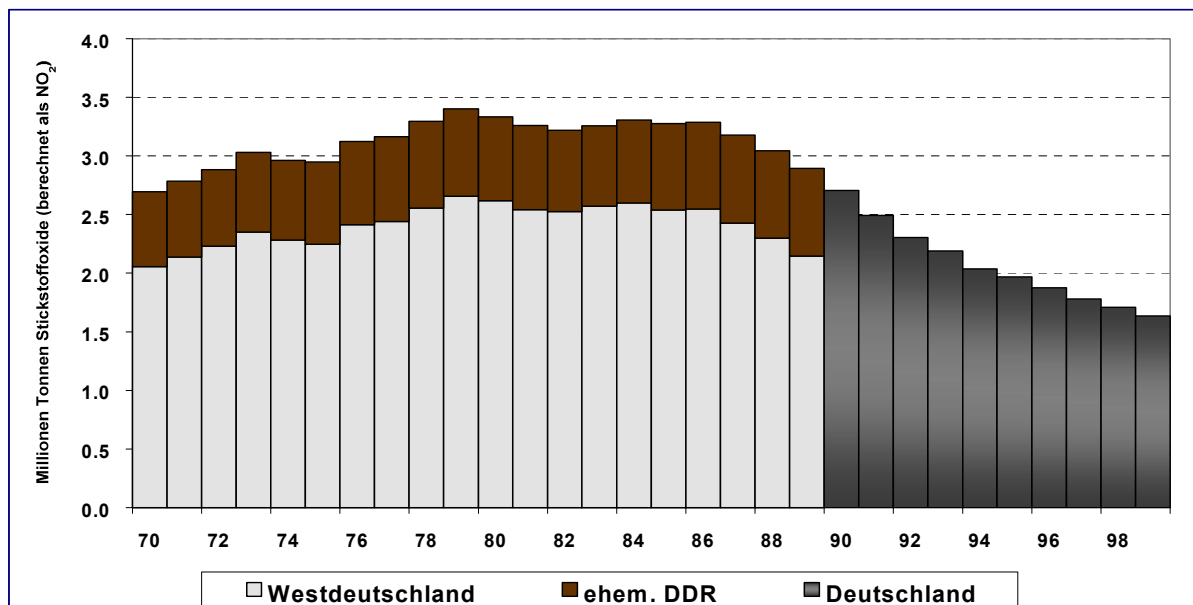


Abbildung 10: Emissionsentwicklung für Stickstoffdioxid in Deutschland von 1970 bis 1999 (Ref. 3)

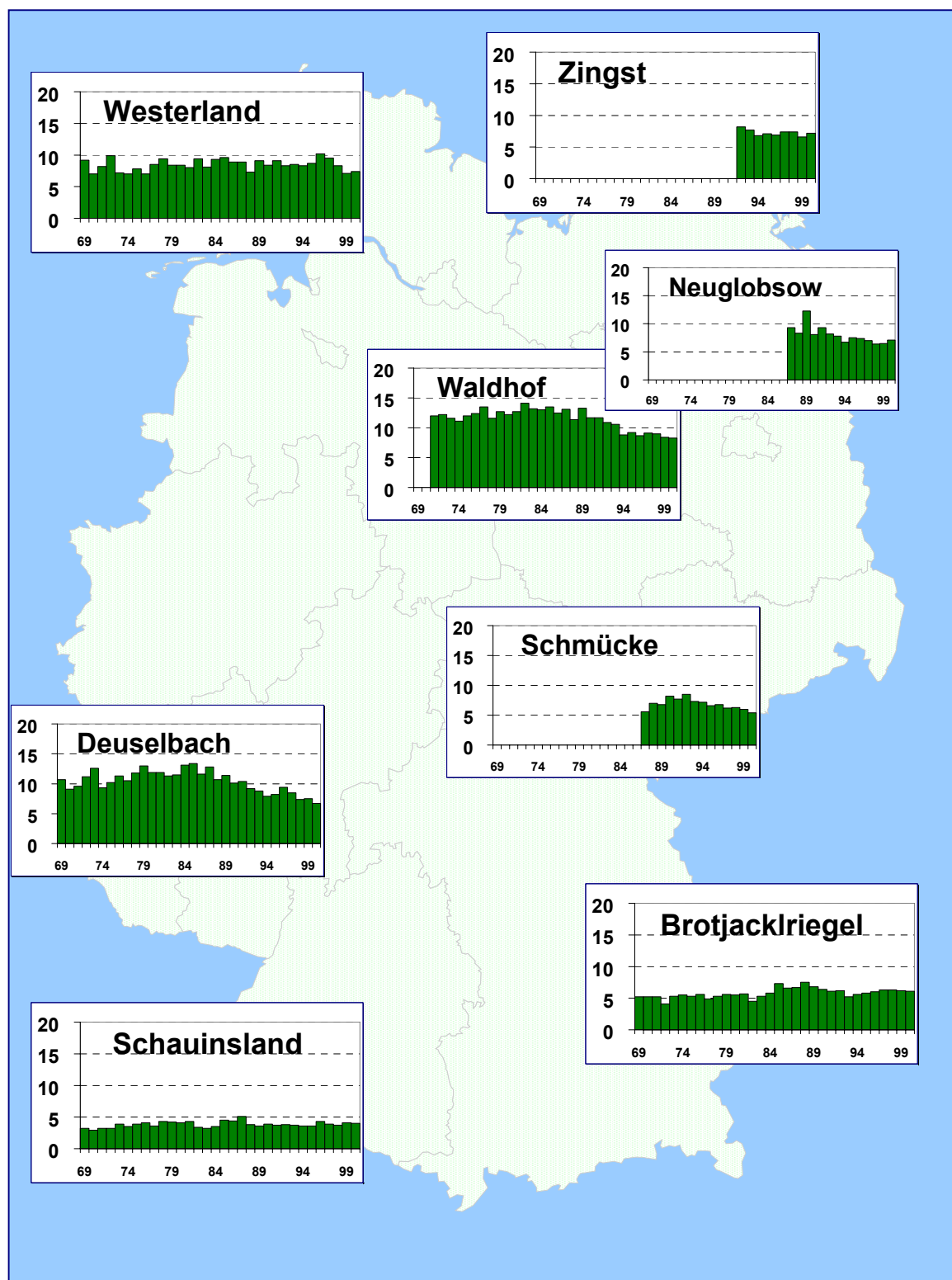


Abbildung 11: Jahresmittel der Stickstoffdioxidkonzentrationen (Saltzman-Methode) an den Messstellen des Umweltbundesamtes von 1969 bis 2000 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$

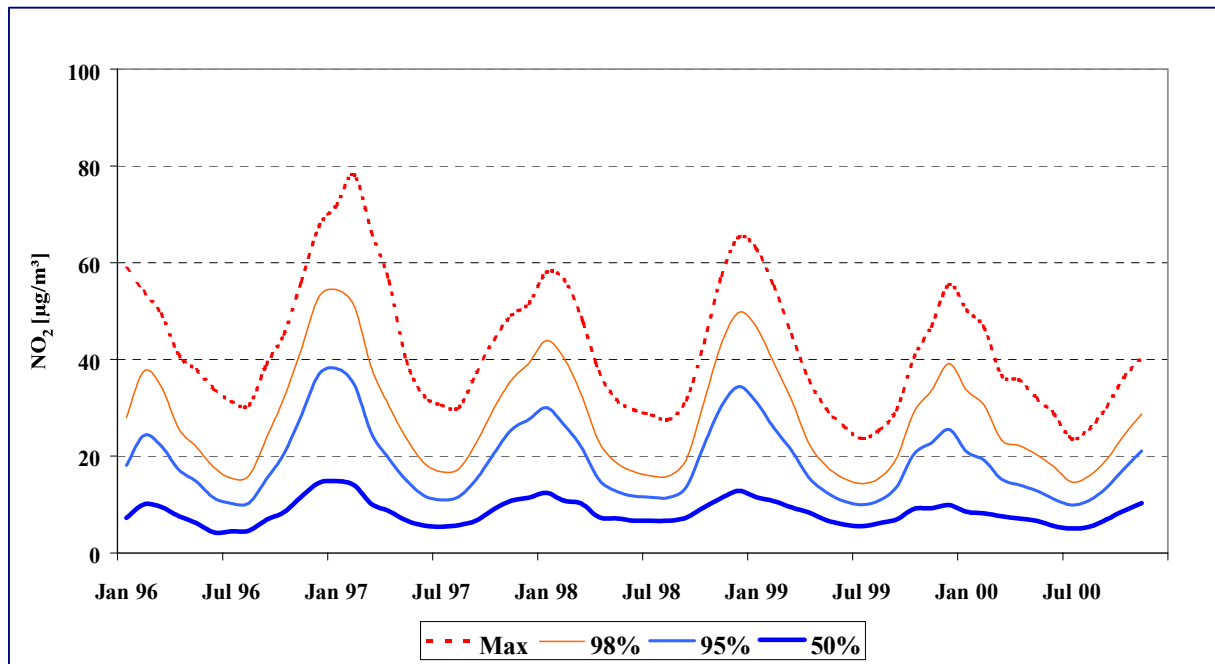


Abbildung 12: Monatliche Perzentile von Stickstoffdioxid, gemittelt über die 8 personell besetzten Messstellen, kontinuierliches Messverfahren für Januar 1996 bis Dezember 2000.

3.3.3 Ozon (O₃)

Im Gegensatz zu SO₂ und NO₂ wird O₃ nicht direkt in die Atmosphäre emittiert, sondern bei Sonneneinstrahlung aus sog. Ozonvorläufern (NO_x, VOC, CO, CH₄) photochemisch gebildet.

Abbildung 16 zeigt den Langzeitverlauf (1979 bis 2000) der Jahresmittel von Ozon an den personellen Messstellen des UBA. Man erkennt einen leichten Anstieg der Jahresmittel zwischen 1990 und 2000 an den meisten Stationen. Dies steht im Gegensatz zu den Ozonspitzenwerten, die im gleichen Zeitraum abgefallen sind, wie Abbildung 13 anhand des über die 8 personell besetzten UBA-Messstellen gemittelten Verlaufs der monatlichen Ozonmaxima sowie verschiedener Perzentile zeigt. Man erkennt einen deutlichen Abfall der Maximalwerte sowie der 98- und 95-Perzentile, dagegen keine sichtbare Änderung bei den 50-Perzentilen. Dieses scheinbar paradoxe Ergebnis einer Verschiebung der hohen und der niedrigen Ozonwerte hin zu mittleren Werten ist im Wesentlichen auf die Beteiligung der Stickoxide sowohl an der Bildung als auch am Abbau des Ozon zurückzuführen (Ref. 4). Durch den starken Rückgang der NO_x-Emissionen (siehe Abbildung 10) und der NO_x-Konzentrationen in Emittentennähe verliert der Abbau von O₃ durch NO (Titrationseffekt) an Bedeutung, wodurch die niedrigen Werte ansteigen. Andererseits wird die photochemische Ozonproduktion durch den Rückgang der Ozonvorläufer geringer, wodurch Spitzenwerte seltener auftreten.

Die Ozon-Spitzenwerte werden bis 2010 weiter sinken, die mittleren Konzentrationen dagegen weiter zunehmen (Ref. 4). Das bedeutet, dass die in der neuen Ozonrichtlinie der EU von 2001 festgeschriebenen dosisbezogenen Langzeit-Zielwerte (siehe Tabelle 9) für den Schutz der menschlichen Gesundheit (120 µg/m³, 8-h-Mittel, Abbildung 14) und vor allem für den Schutz der Vegetation (6000 µg/m³ * h, Abbildung 15) im kommenden Jahrzehnt in Deutschland kaum

eingehalten werden können, da diese Zielwerte vor allem durch die mittleren Ozonkonzentrationen bestimmt werden und nicht durch die Spitzenwerte.

Tabelle 9: *Neueste EU-Schwellenwerte*

Schutz der menschlichen Gesundheit	Langfristziel:	120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (gleitendes 8-h-Mittel)
	Zwischenziel bis 2010:	120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (gleitendes 8-h-Mittel), 25 Tage/Jahr mit Überschreitungen sind zulässig
	Informationsschwelle:	180 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (1-h-Mittel)
	Alarmschwelle:	240 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (1-h-Mittel)
Schutz der Vegetation	Langfristziel:	6000 $\mu\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{h}$ (AOT40, Mai bis Juli *)
	Zielwert bis 2010:	18000 $\mu\text{g}/\text{m}^3 \cdot \text{h}$ (AOT40, Mai bis Juli)

*) AOT40: Accumulated exposure over a threshold of 40 ppb (80 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

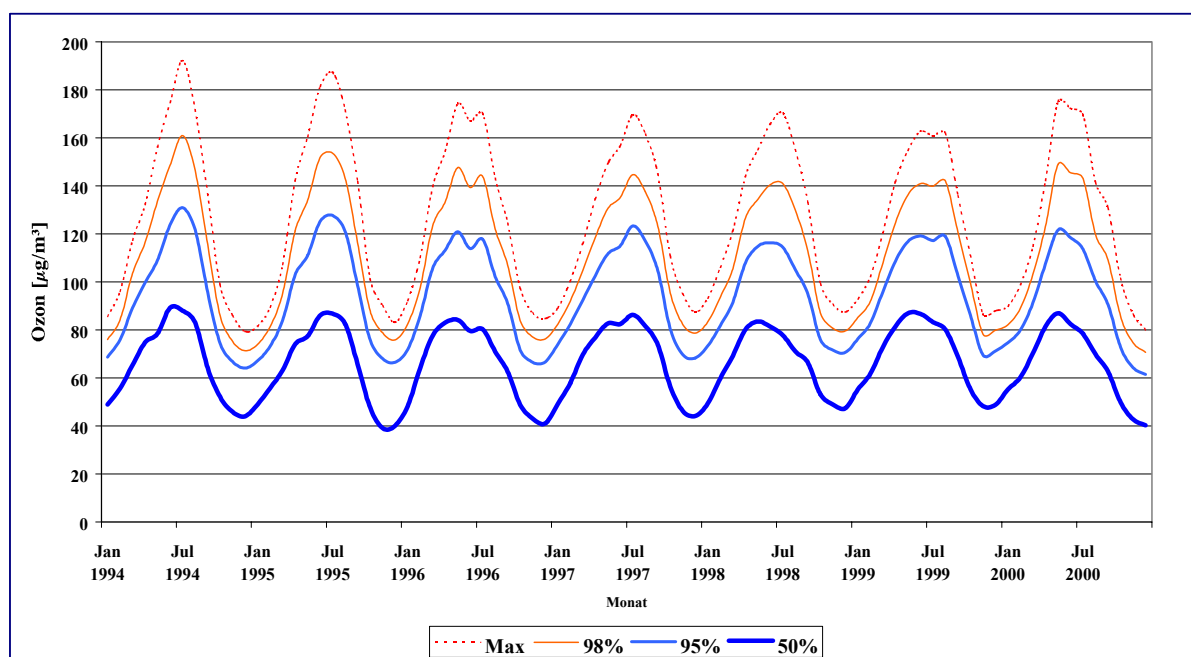


Abbildung 13: Monatliche Perzentile von Ozon, gemittelt über die 8 personell besetzten Messstellen, kontinuierliches Messverfahren für Januar 1994 bis Dezember 2000.

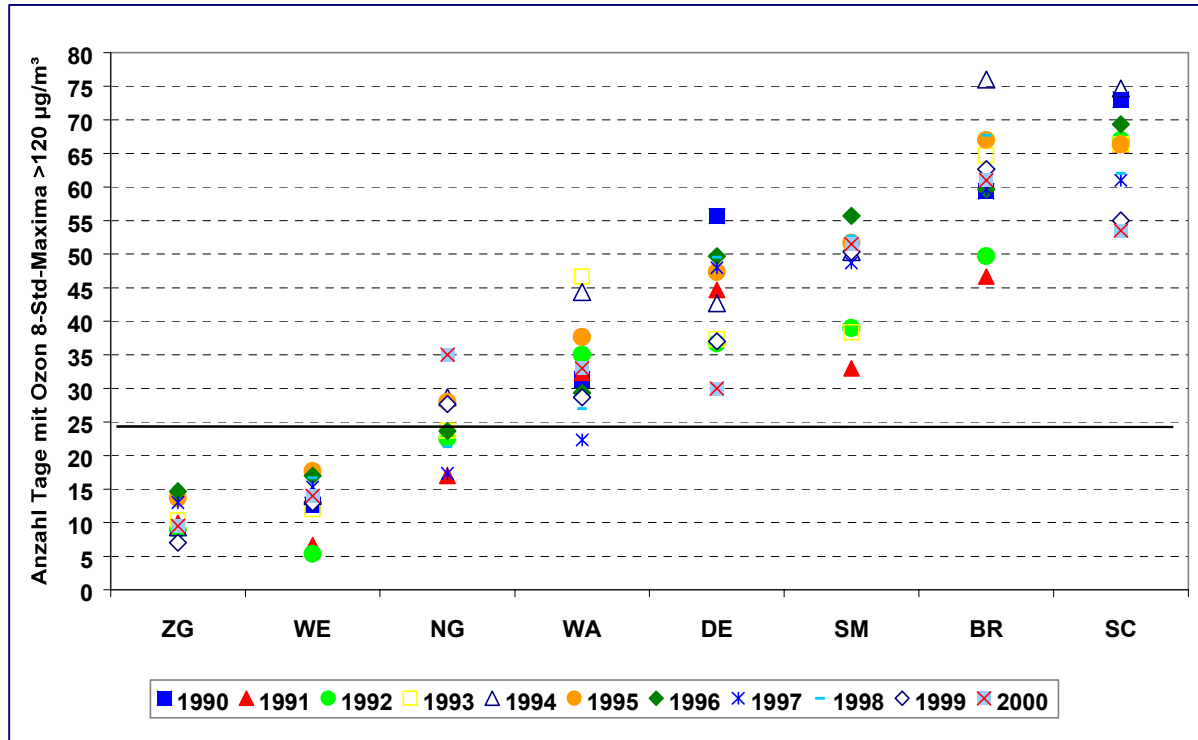


Abbildung 14: Anzahl der Tage/Jahr mit Überschreitungen von gleitenden 8-h-Mitteln >120 µg/m³ Ozon an den 8 personell besetzten Messstellen des Umweltbundesamtes zwischen 1990 und 2000, nach Stationshöhe sortiert.

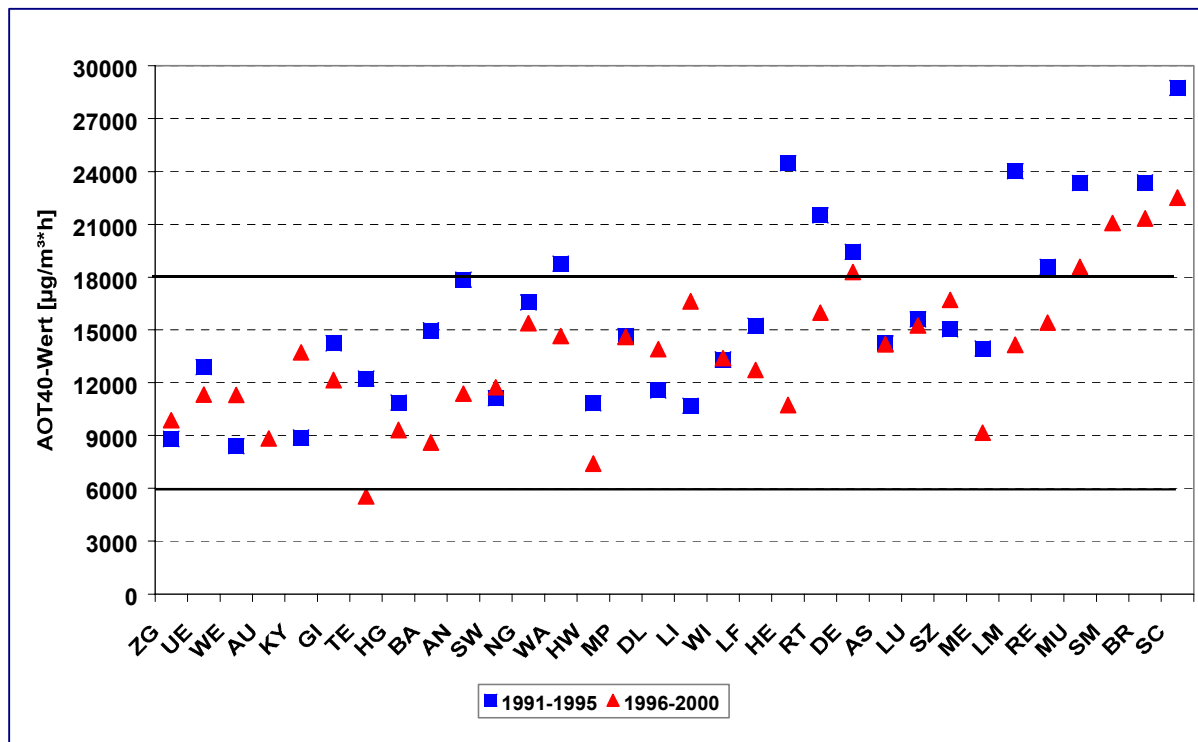


Abbildung 15: AOT40-Werte zum Schutz der Vegetation an allen Messstellen des UBA. Mit eingezeichnet sind die EU-Langfristzielwerte für den Schutz der Vegetation von 6000 µg/m³ * h bzw. 18000 µg/m³ * h. Die Stationshöhen nehmen von links nach rechts zu.

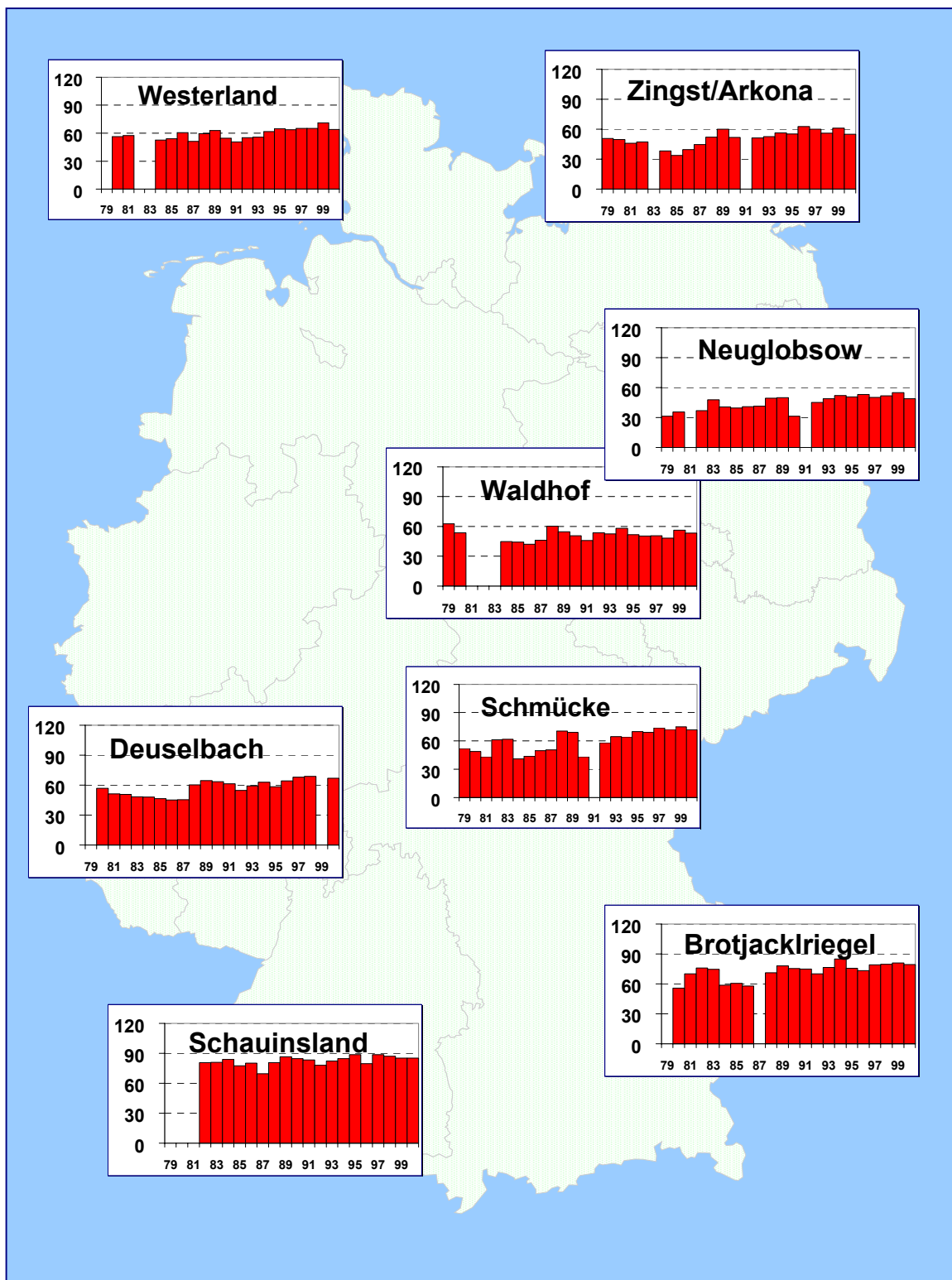


Abbildung 16: Jahresmittel der Ozonkonzentrationen an den Messstellen des Umweltbundesamtes von 1979 bis 2000 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$

3.3.4 Kohlendioxid (CO₂)

Kohlendioxid ist das wichtigste Treibhausgas, das zur Zeit mit über 50% für den zusätzlichen, vom Menschen verursachten Treibhauseffekt verantwortlich ist. Obwohl die anthropogenen CO₂-Quellen weltweit nur etwa 4 % der Brutto-Austauschflüsse zwischen Atmosphäre und den anderen Kohlenstoffreservoirs (Biosphäre und Ozean) beitragen, bedingen diese Emissionen die langzeitige Zunahme des CO₂-Gehaltes in der Atmosphäre. Von den anthropogenen CO₂-Emissionen stammten Mitte der 90er Jahre knapp 80% aus der Verbrennung fossiler Energieträger und etwa 20% aus geänderter Landnutzung (Ref. 6, 7). Der deutsche Beitrag an den weltweiten anthropogenen CO₂-Emissionen beträgt gegenwärtig knapp 3%, der deutsche Anteil wird in den kommenden Jahren noch weiter zurückgehen (Ref. 3, 7). Zwischen 1990 und 1999 haben die CO₂-Emissionen in Deutschland um etwa (15%) abgenommen (Abbildung 17).

Die Abbildung 18 und Abbildung 19 zeigen den Verlauf der CO₂-Jahresmittel von 1972 bis 2000 an den personell besetzten Messstellen des UBA (Abbildung 18) bzw. den Verlauf der CO₂-Monatsmittel an der UBA-Station Schauinsland im Vergleich zu globalen Hintergrundstationen von 1968 bis 1999 (Abbildung 19). Es wird deutlich, dass zum Beispiel die Jahresmittelwerte an der Station Schauinsland von 330 ppm im Jahre 1972 auf 371 ppm im Jahre 2000 gestiegen sind. Das entspricht einer mittleren Anstiegsrate von 1.5 ppm pro Jahr (0.4%/Jahr) innerhalb der letzten 3 Jahrzehnte. Ganz ähnliche Anstiegsraten wurden auch an den anderen UBA-Stationen beobachtet.

Dass die CO₂-Konzentrationen in Deutschland trotz des Rückgangs der Emissionen um ca. 15% zwischen 1990 und 1999 weiter zugenommen haben, liegt neben dem geringen Emissionsanteil auch an der sehr langen atmosphärischen Lebensdauer des CO₂.

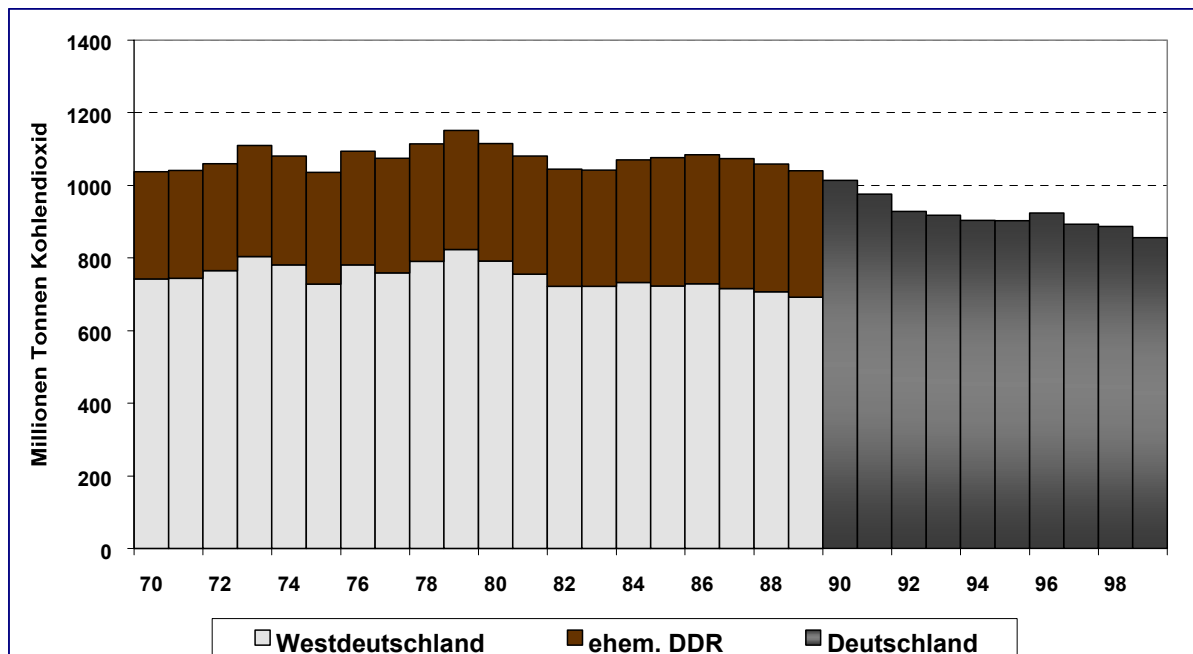


Abbildung 17: Emissionsentwicklung für Kohlendioxid in Deutschland von 1970 bis 1999 (Ref. 3)

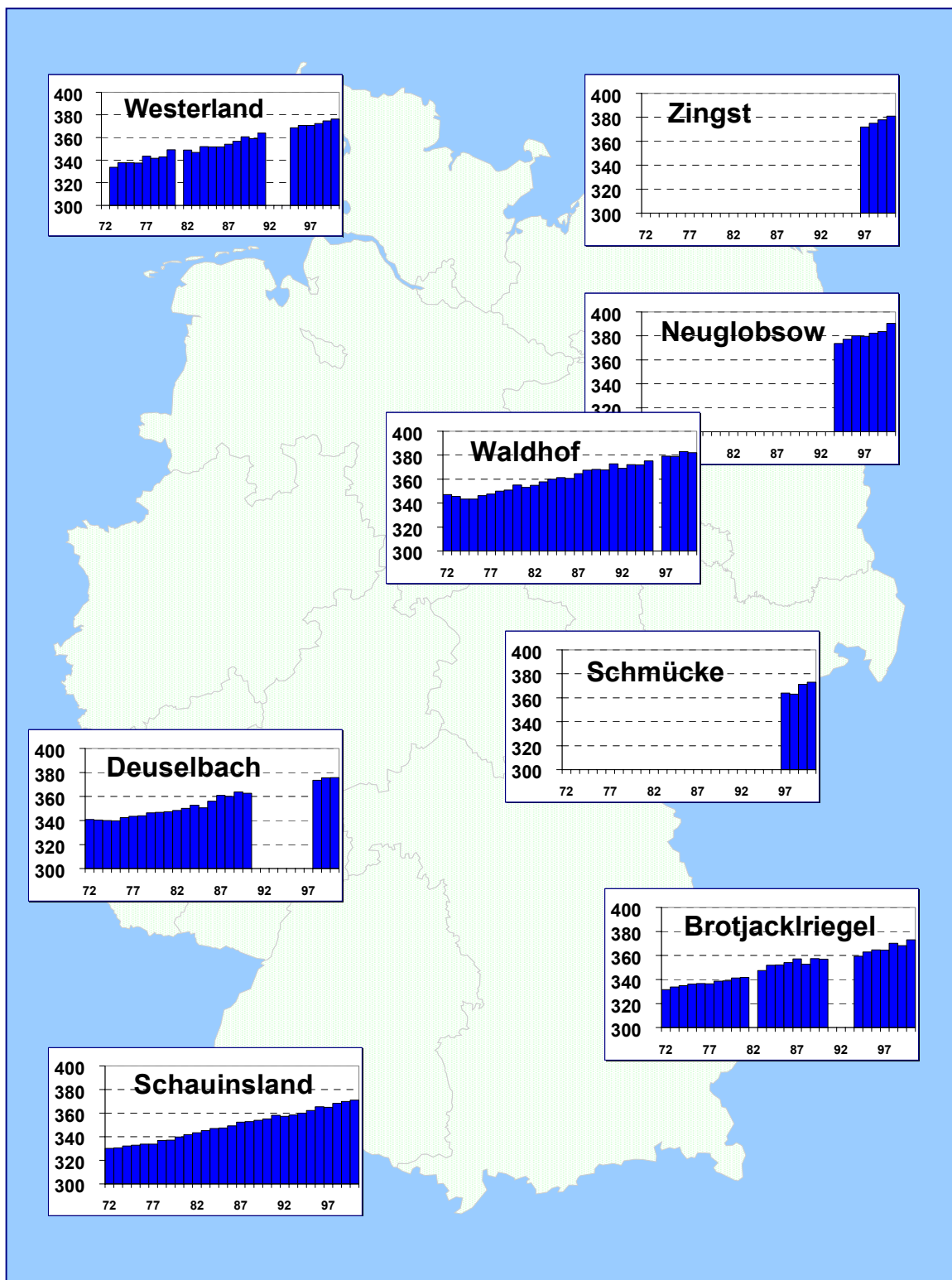


Abbildung 18: Jahresmittel der Kohlendioxidkonzentration an den 8 Messstellen des Umweltbundesamtes von 1972 bis 2000 in ppm

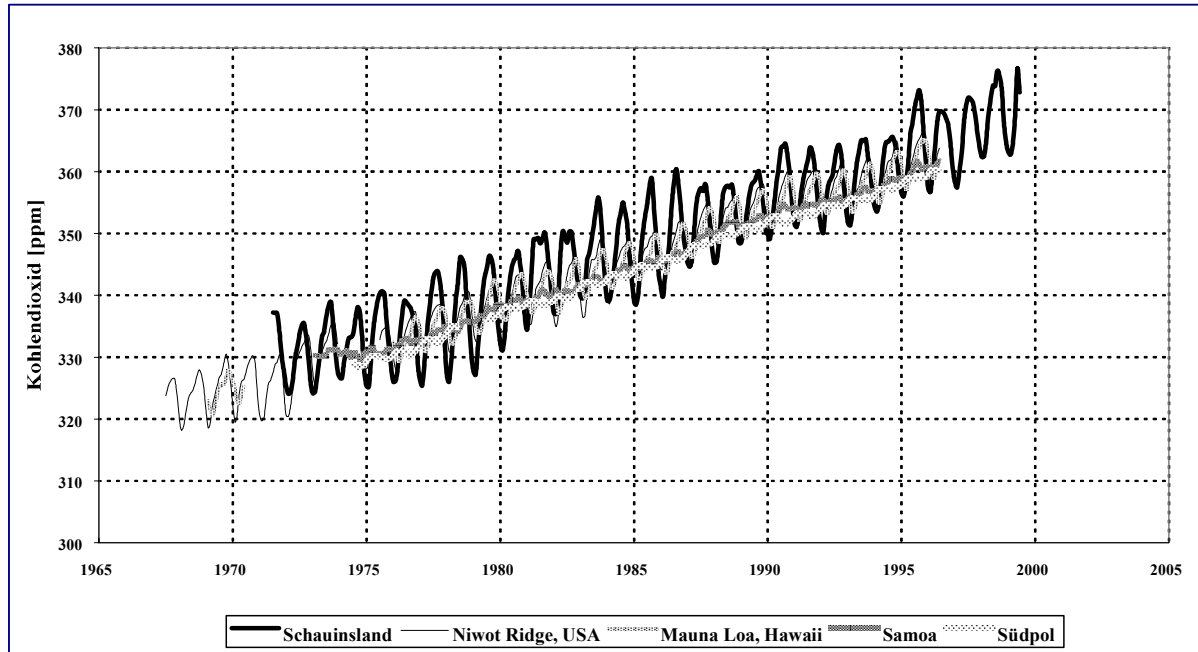


Abbildung 19: Langzeittrend der Kohlendioxidmonatsmittel vom Schauinsland im Vergleich zu Stationen auf Hawaii (Mauna Loa), am Südpol, in Newot Ridge, USA und Samoa zwischen 1968 und 2000

3.3.5 Methan (CH₄)

Methan ist derzeit mit ca. 20% für den zusätzlichen Treibhauseffekt verantwortlich. Im Gegensatz zum CO₂ stammt das atmosphärische Methan heute überwiegend aus anthropogenen Quellen (Reisfelder, Viehwirtschaft, fossile Quellen, Mülldeponien), die zu etwa 70% zu den weltweiten Emissionen beitragen. Allerdings können die globalen Emissionen nur sehr ungenau quantifiziert werden. Gegenwärtig beträgt der deutsche Anteil an den globalen Emissionen etwa 1%, der deutsche Anteil wird in den kommenden Jahren weiter sinken.

Methan wird an 5 Stationen des UBA gemessen: Schauinsland (seit 1991), Deuselbach (ab 1993), Zingst (ab 1994), Neuglobsow (seit 1994), Schmücke (seit 1997) und Zugspitze (ab 1996).

Abbildung 20 zeigt den Verlauf der Monatsmittel der Konzentrationen von CO₂, CH₄ und N₂O an der UBA-Station Schauinsland zwischen 1992 und 2000. Die mittlere CH₄-Anstiegsrate betrug an dieser Station zwischen 1992 und 2000 5.6 ppb/Jahr (0.3%/Jahr) für. Diese Zunahme stimmt mit anderen Ergebnissen auf der Nordhemisphäre überein (z.B. 4.7 ppb/Jahr an der Station Mace Head an der Westküste Irlands).

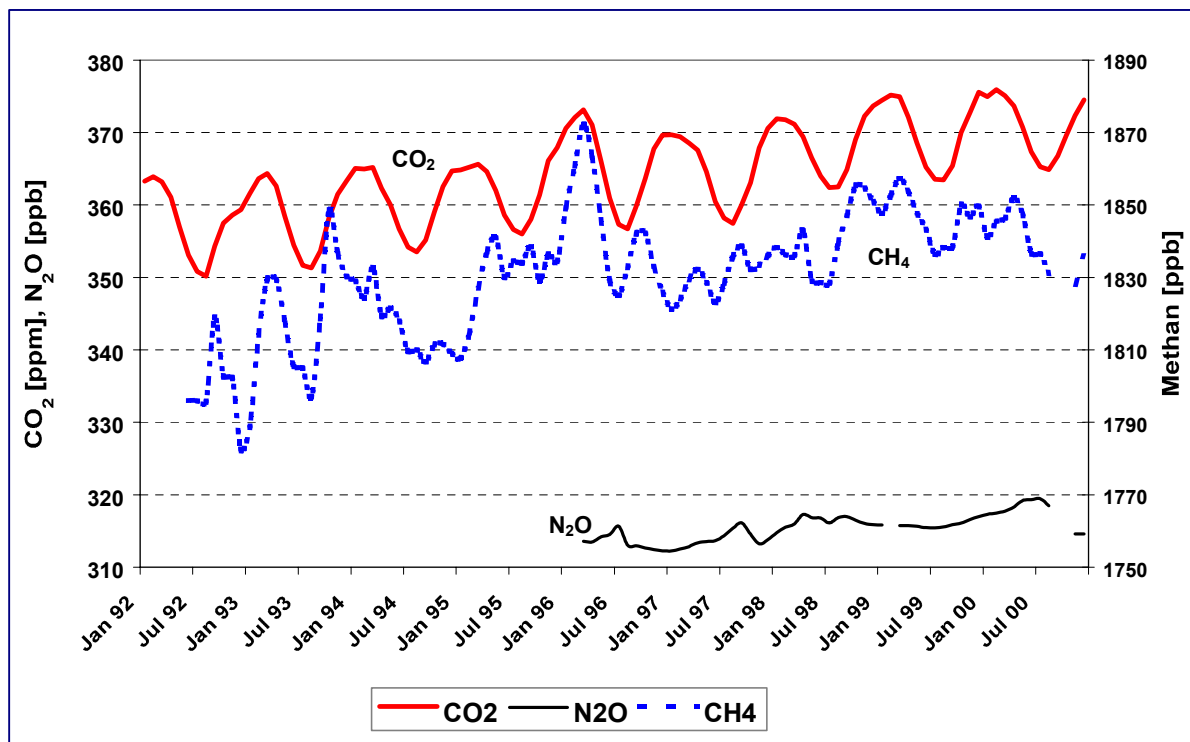


Abbildung 20: Trend der Monatsmittel von CO₂, CH₄ und N₂O zwischen Januar 1992 und Dezember 2000 auf dem Schauinsland

3.3.6 Staubpartikel

Staubpartikel werden durch natürliche und anthropogene Quellen an der Erdoberfläche in die Atmosphäre emittiert (sog. Primärpartikel, Radius > 0.1 µm). Eine weitere Quelle stellt die Bildung von Partikeln im luftgetragenen Zustand aus Spurengasen (z.B. SO₂, NO_x, NH₃, VOC) dar (sog. Sekundärpartikel, Radius < 0.1 µm).

Ausgehend von der Erkenntnis, dass vor allem kleine Staubteilchen ein hohes Schädigungspotential im Hinblick auf die menschliche Gesundheit aufweisen, steht die Belastung durch Feinstaub mit der Partikelgröße PM₁₀ (PM = Particulate Matter) in der Luft im Vordergrund nationaler und internationaler Luftreinhaltepolitik. Unter PM₁₀ versteht man die Gesamtmasse aller Partikel, deren Durchmesser kleiner als 10 µm sind. Bezüglich der direkten anthropogenen Emissionen entsteht der Feinstaub hauptsächlich bei Verbrennungsprozessen aus stationären und mobilen Quellen.

Im UBA-Messnetz wird der Gesamtstaub (Tagesproben) teilweise schon seit Ende der 60er Jahre gemessen. Ab Beginn der 90er Jahre werden neben den Tagesproben auch kontinuierliche Messungen des Schwebstaubs durchgeführt. Ab 1999 wurde an 8 der 9 personell besetzten Messstellen von der täglichen Gesamtstaubmessung auf die Bestimmung der Partikelmasse für Teilchen unterhalb von 10 µm Durchmesser (PM₁₀) umgestellt. In Waldhof wurden die Gesamtstaubmessungen parallel in 1999 weitergeführt und seit 1999 auch die Partikelmasse für Teilchen unterhalb von 2.5 µm Durchmesser (PM_{2.5}) bestimmt. Für diese Station ergab sich bei einem Vergleich zwischen Gesamtschwebstaub (Digital) und PM₁₀ ein Faktor von 0.76 und zwischen Gesamtschwebstaub und PM_{2.5} ein Faktor von 0.66. Für die 1205 m hoch gelegene

Bergstation Schauinsland war der Anteil des Feinstaubs (PM₁₀) mit mehr als 95% des Gesamtstaubs höher als in Waldhof.

Abbildung 22 zeigt die Jahresmittel von Gesamtschwebstaub zwischen 1968 und 2000 an den 8 personell besetzten UBA-Stationen. Wie aus Abbildung 22 ersichtlich ist, wurden im Jahre 2000 die niedrigsten Jahresmittelwerte für Schwebstaub (Digital Tagesproben) seit Beginn der Messungen beobachtet. Die Schwebstaubbelastung in ländlichen Gebieten Deutschlands ist während der letzten 20 bis 30 Jahre um mehr als die Hälfte zurückgegangen. Der stärkste Rückgang erfolgte zwischen 1990 und 2000.

Als Folge der drastischen Reduzierung der Staub (Feinstaub)-Emissionen in Deutschland (siehe Abbildung 21) vor allem während der letzten 10 Jahre (das Minderungspotential ist weitgehend ausgeschöpft) werden die entsprechenden Staub-Konzentrationen in der Luft nur noch sehr langsam abnehmen, da sie in zunehmendem Maße durch die Beiträge des Ferntransports und der natürlichen Emissionen bestimmt werden.

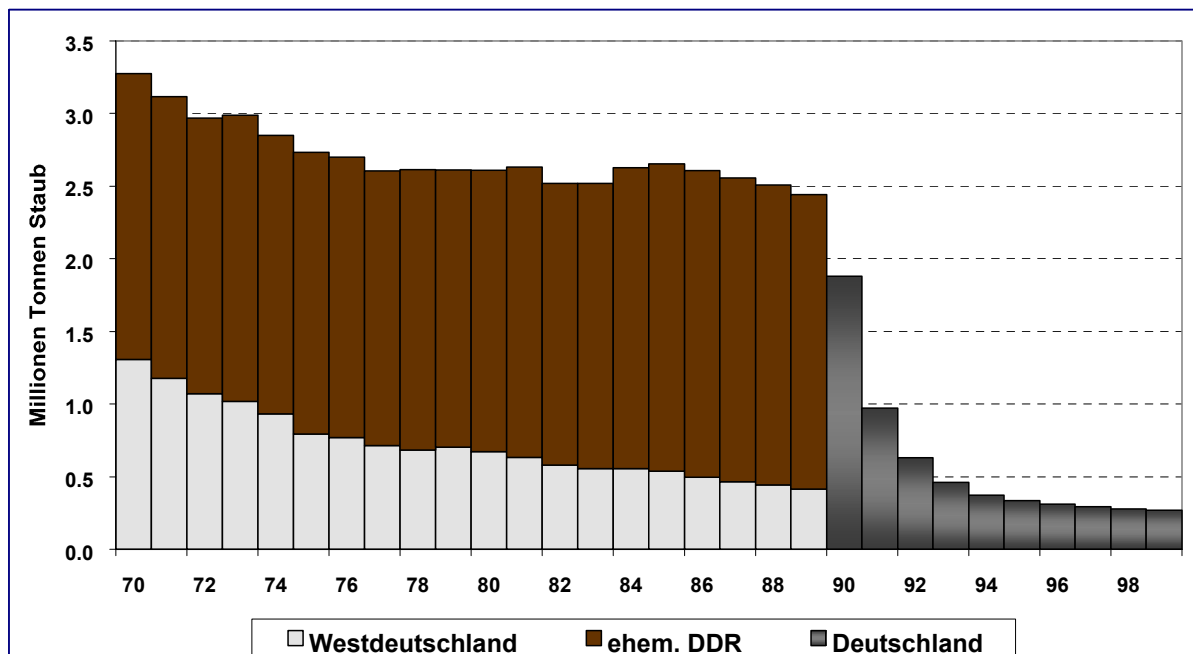


Abbildung 21: Trend der Staubemissionen in Deutschland zwischen 1970 und 1999 (Ref. 3)

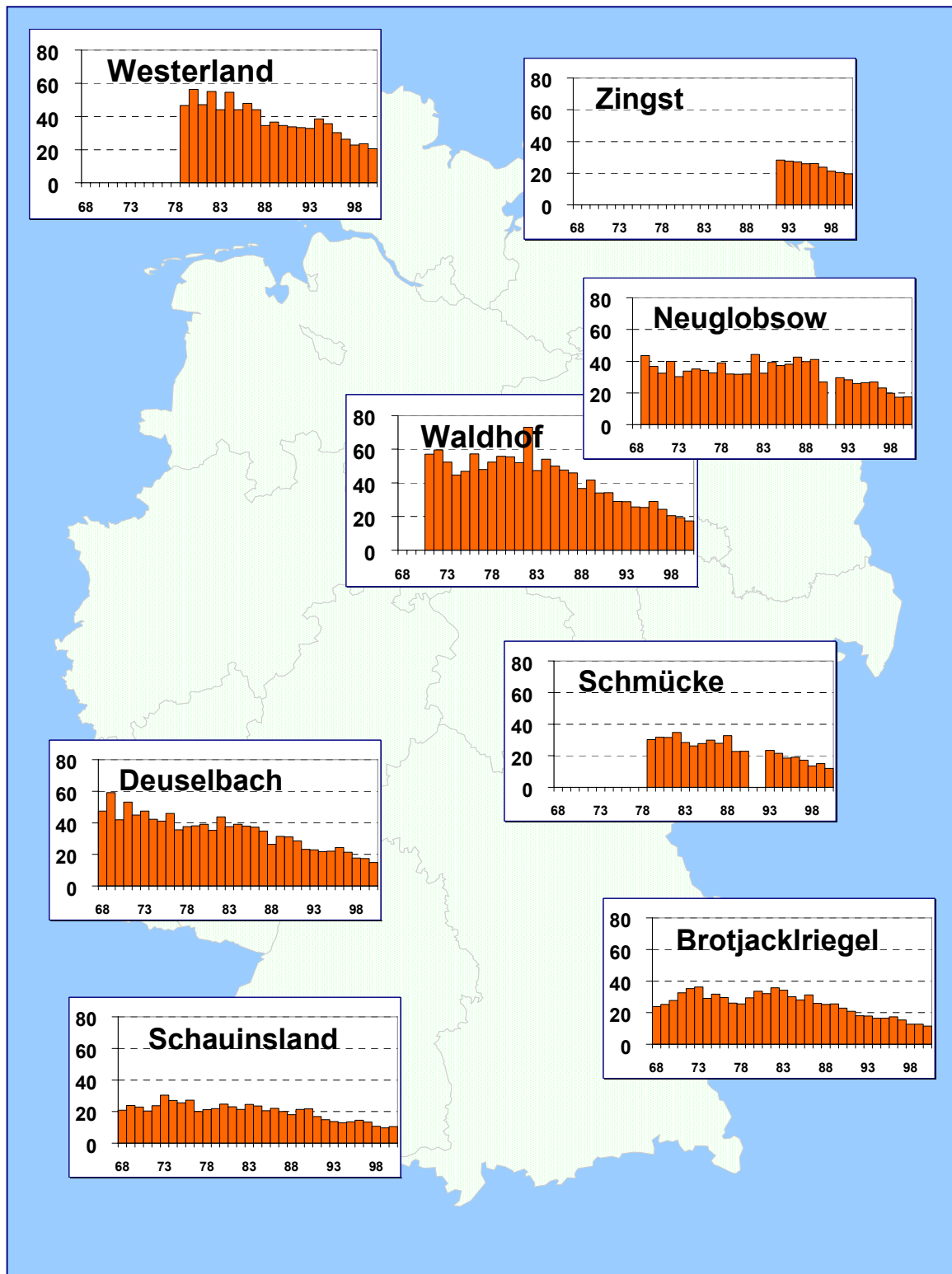


Abbildung 22: Jahresmittel der Schwebstaubkonzentration an den Messstellen des Umweltbundesamtes (Tagesproben) von 1968 bis 2000, seit 1999 PM_{10} -Messungen

3.3.6.1 Schwefel im Schwebstaub

Ähnlich wie die Konzentrationen des Gesamtschwebstaubes haben auch die Konzentrationen des Schwefels (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) während der letzten Jahrzehnte deutlich abgenommen (Abbildung 23). Der Schwefelgehalt im Staub (Massenverhältnis) ist während der letzten Jahrzehnte im Wesentlichen gleich geblieben unabhängig von der drastischen Reduzierung der SO_2 -Emissionen um etwa 90% während dieser Zeit.

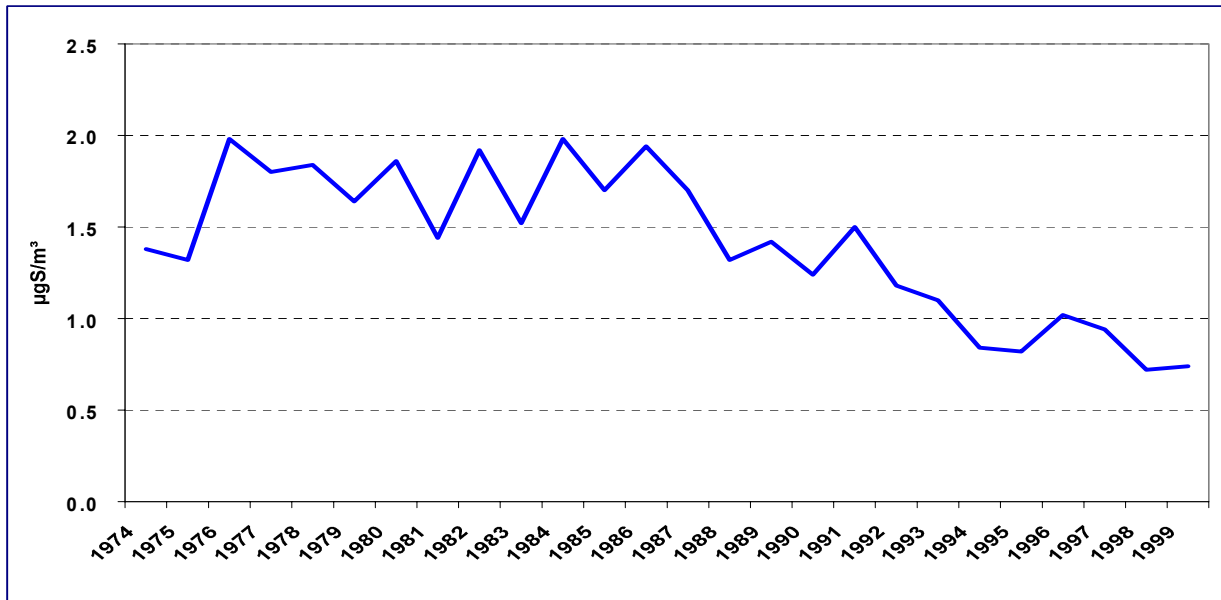


Abbildung 23: Jahresmittel der Konzentrationen von Schwefel im Schwebstaub ,gemittelt über die 5 Messstellen in den alten Bundesländern des Umweltbundesamtes von 1974 bis 1999 in $\mu\text{gS}/\text{m}^3$

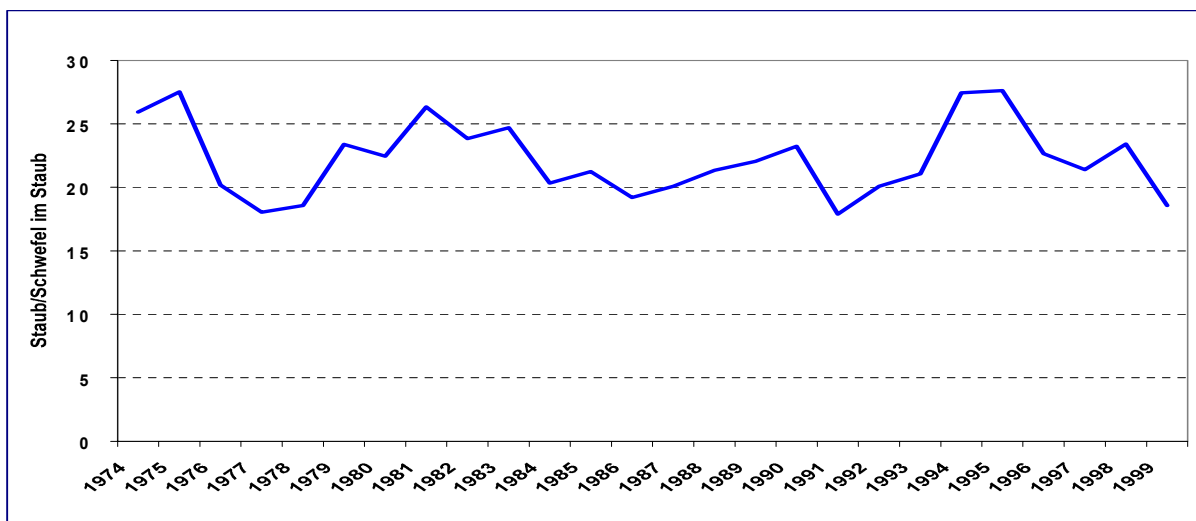


Abbildung 24: Massen-Verhältnis Gesamtstaub/Schwefel im Staub zwischen 1974 und 1999, im Mittel über die 5 Messstellen in den alten Bundesländern des Umweltbundesamtes

3.3.6.2 Schwermetalle im Schwebstaub

Aerosolgebundene Schwermetalle (Blei, Cadmium, Kupfer, Mangan und Nickel) werden an 8 Messstellen gemessen, zusätzlich werden an 4 UBA-Messstellen Schwermetallmessungen im Niederschlag durchgeführt.

Bei den aerosolgebundenen Schwermetallen Blei, Cadmium, Kupfer und Mangan ist ein deutlicher Rückgang während der letzten 20 bis 30 Jahre zu beobachten, der im Wesentlichen auf den Rückgang der Emissionen des Gesamtstaubes in Deutschland zurückzuführen ist. Der gegenüber der Abnahme des Gesamtschwebstaubes erhöhte Rückgang der Konzentrationen einiger Schwermetalle ist auf zusätzliche Maßnahmen zur Reduzierung der Schwermetall-Emissionen zurückzuführen wie beispielsweise die Reduzierung des Bleigehaltes im Benzin.

Abbildung 25 zeigt als Beispiel den drastischen Rückgang der mittleren Jahreskonzentrationen von partikelgebundenem Blei in der Außenluft zwischen 1970 und 1999 gemittelt über die 8 UBA-Messstellen.

Einen erheblichen Rückgang zeigten auch das partikelgebundene Cadmium (1979-1999), Kupfer (1981-1999) und Mangan (1978-1999). Beim partikelgebundenem Nickel ist wegen des kurzen Untersuchungszeitraums von nur 5 Jahren (1995-1999) noch keine Trendaussage möglich.

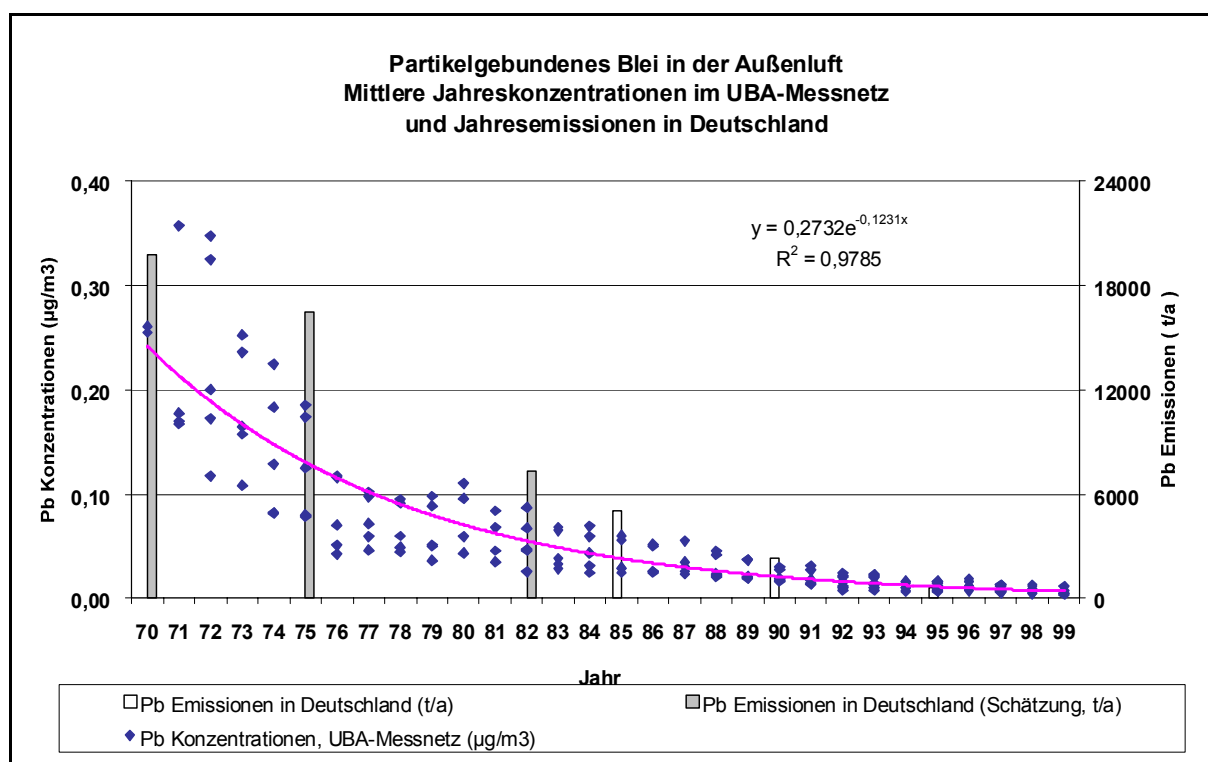


Abbildung 25: Partikelgebundenes Blei in der Außenluft: mittlere Jahreskonzentrationen an den Messstellen des Umweltbundesamtes und Jahresemissionen in Deutschland

3.4 Ionen im Niederschlag

3.4.1 Konzentrationen der Ionen im Niederschlag

Die nasse Deposition durch Niederschlag trägt in Deutschland erheblich zur Beseitigung von Luftschadstoffen aus der Atmosphäre bei. Die chemische Zusammensetzung des Regens wird durch eine Vielzahl von gas- und partikelförmigen Substanzen bestimmt, von denen vor allem SO_2 , NO_x , NH_3 und Aerosolteilchen von Bedeutung sind.

Vor dem Hintergrund der erheblichen Emissionsreduzierungen für diese Stoffe interessiert vor allem, welche Auswirkungen diese Minderungen auf die Konzentrationen und Depositionen der entsprechenden Ionen im Niederschlag gehabt haben.

Im UBA-Messnetz werden sowohl „daily-bulk“ als auch „weekly wet-only“-Probenahmen durchgeführt. Die nachfolgend aufgeführten Ergebnisse beziehen sich ausschließlich auf die daily-bulk Messungen.

Abbildung 26 zeigt den Verlauf der Jahresmittel pH-Werte im Niederschlag von 1982 bis 2000 für die 8 personell besetzten UBA-Messstellen.

Die pH-Werte an den 5 Stationen in den alten Bundesländern sind von ca. 4.3 bis 4.4 im Jahre 1982 auf Werte zwischen 4.8 bis 5.0 im Jahre 2000 deutlich angestiegen. Ein Anstieg der pH-Werte entspricht einem Rückgang der Konzentrationen von Wasserstoffionen (H^+). Das heißt, der Regen ist heute deutlich weniger sauer als zu Beginn der 80er Jahre. Auch an den drei Stationen in den neuen Bundesländern ist eine Zunahme der pH-Werte nicht zu übersehen, trotz des relativ kurzen Zeitraums von 1993 bis 2000.

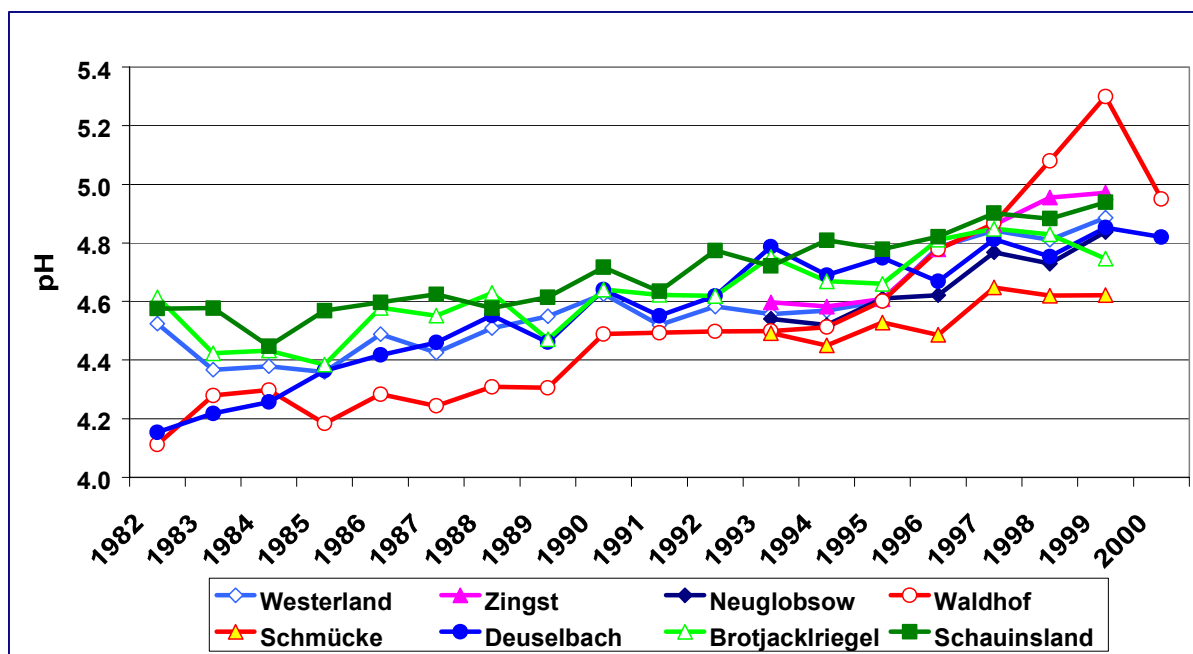


Abbildung 26: Jahresmittel des pH-Wertes von 1982 bis 2000 an den Messstellen des Umweltbundesamtes

Parallel zum Anstieg der pH-Werte hat die spezifische elektrische Leitfähigkeit, die ein Maß für den Gesamtgehalt der Ionen ist, im Zeitraum zwischen 1982 und 2000 deutlich abgenommen, wie Abbildung 27 zeigt. Eine Ausnahme ist Westerland, wo durch den starken Einfluss von Seesalz nur ein schwacher Rückgang zu beobachten ist (nicht abgebildet).

Die Abnahme des Gesamtgehaltes an Ionen im Regenwasser während der letzten zwei Jahrzehnte war verbunden mit einer Änderung der relativen Ionenverteilung. Im Jahre 2000 waren die prozentualen Anteile von H^+ und $\text{SO}_4^{=}$ geringer, die relativen Äquivalentkonzentrationen von NO_3^- und NH_4^+ dagegen höher als im Jahre 1984, wobei deren Absolutkonzentrationen ebenfalls abgenommen haben.

In Abbildung 28 bis Abbildung 30 ist der stark abnehmende Langzeittrend der Jahresmittel von H^+ und $\text{SO}_4^{=}$ zusammen mit dem leicht abnehmenden Konzentration von NO_3^- dargestellt.

Bezüglich der Langzeittrends von Kalium, Magnesium, Natrium und Chlorid wurden nur geringe und nicht einheitliche Änderungen der Konzentrationen während der letzten zwei Jahrzehnte beobachtet.

Konzentrationen von Schwermetallen im Niederschlag wurden im UBA-Messnetz z.T. im bulk-Niederschlag (Deuselbach und Waldhof), z.T. im wet-only Niederschlag (Westerland und Zingst) für die letzten 10 Jahre bestimmt. Vergleicht man den abnehmenden Trend der Konzentrationen der partikelgebundenen Schwermetalle mit dem Trend der Schwermetallkonzentrationen im Niederschlag, so ergeben sich für den Zeitraum zwischen 1989 und 2000 für Blei, Cadmium, Kupfer und Mangan ganz ähnliche Werte, wie Abbildung 31 beispielhaft für Blei zeigt.

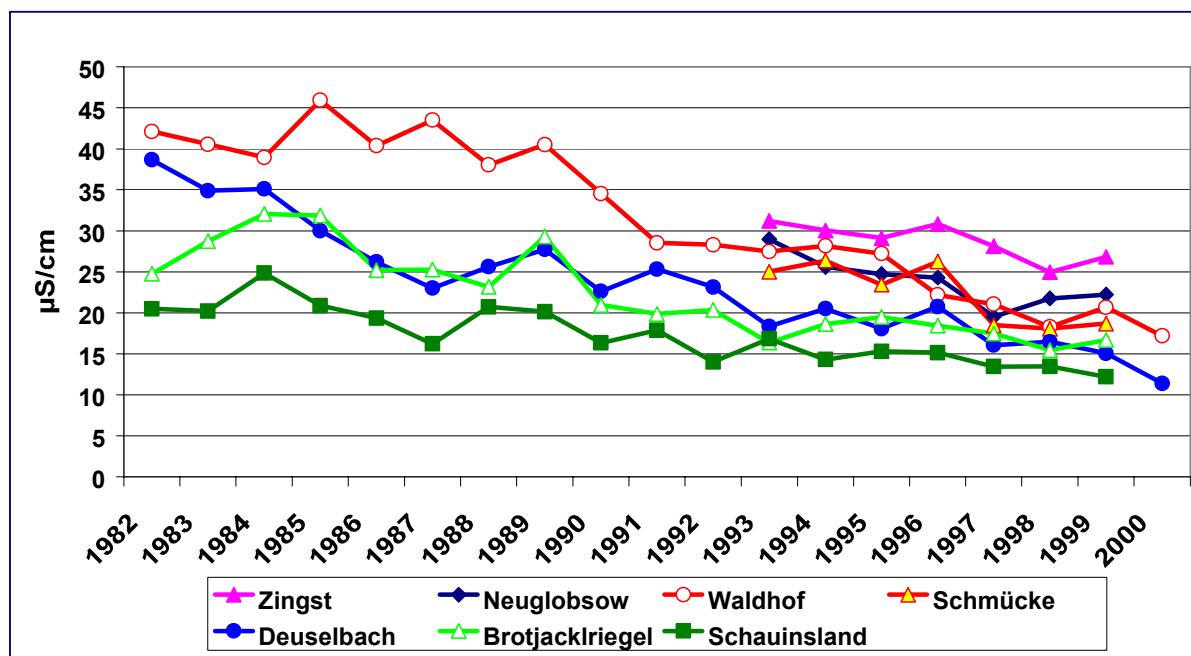


Abbildung 27: Jahresmittel der Leitfähigkeit des Niederschlags an den Messstellen des Umweltbundesamtes von 1982 bis 2000

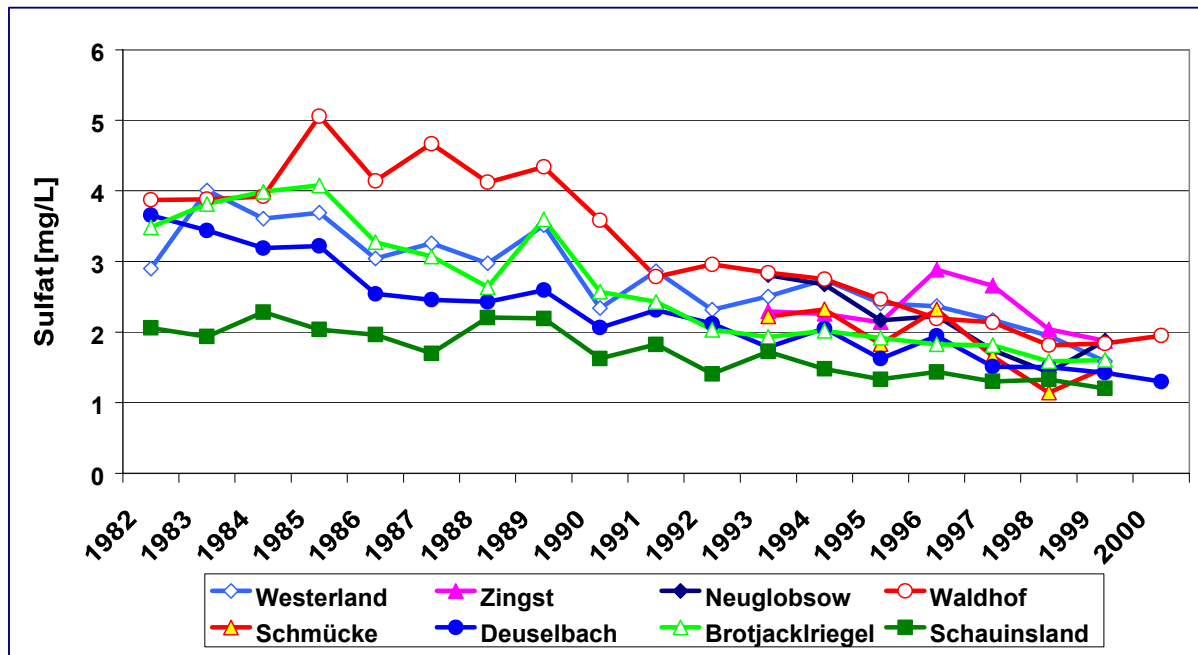


Abbildung 28: Jahresmittel des seesalzkorrigierten Sulfats im Niederschlag an den Messstellen des Umweltbundesamtes von 1982 bis 2000

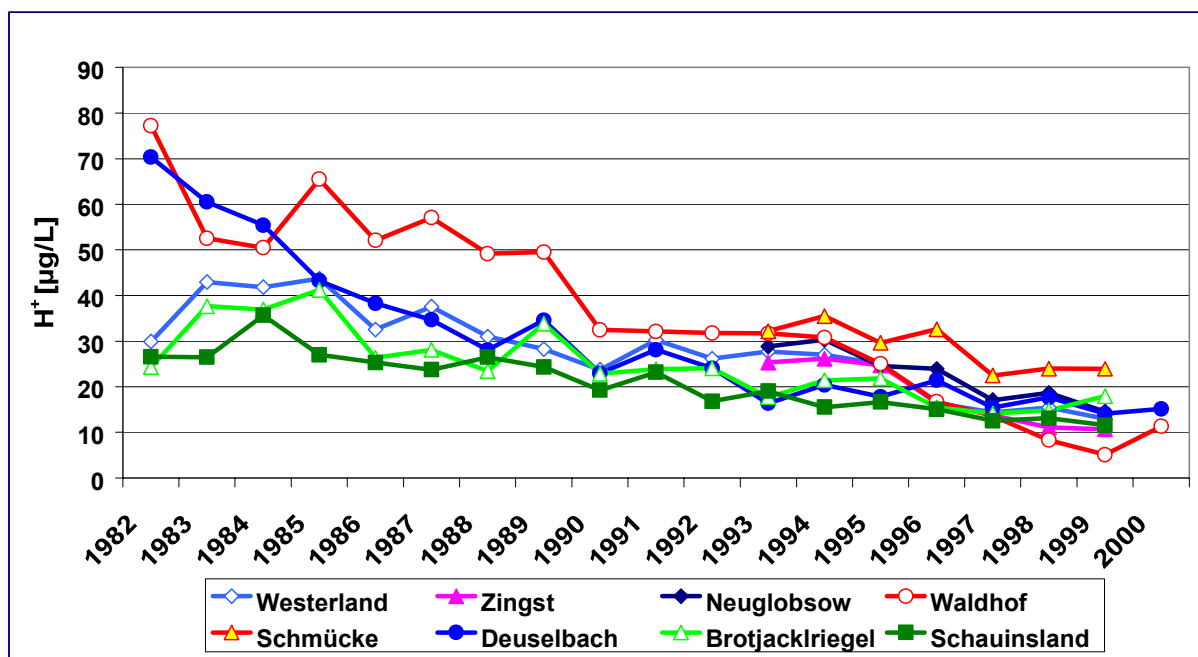


Abbildung 29: Jahresmittel der H^+ -Konzentration im Niederschlag an den Messstellen des Umweltbundesamtes von 1982 bis 2000

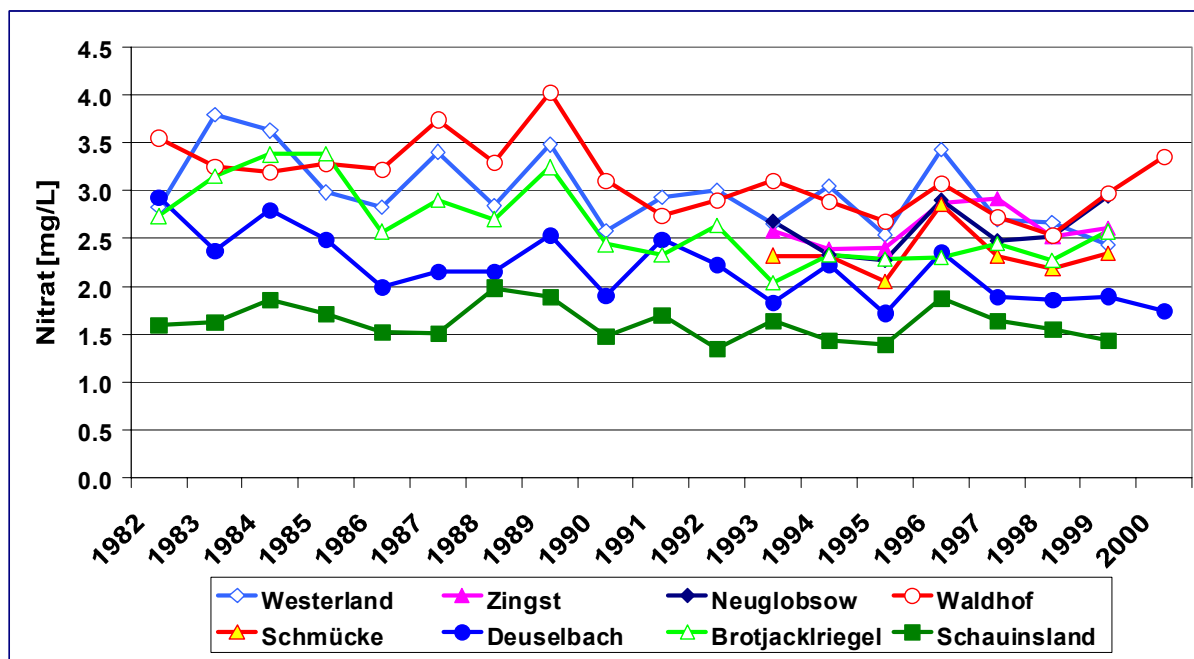


Abbildung 30: Jahresmittel von Nitrat im Niederschlag an den Messstellen des Umweltbundesamtes von 1982 bis 2000

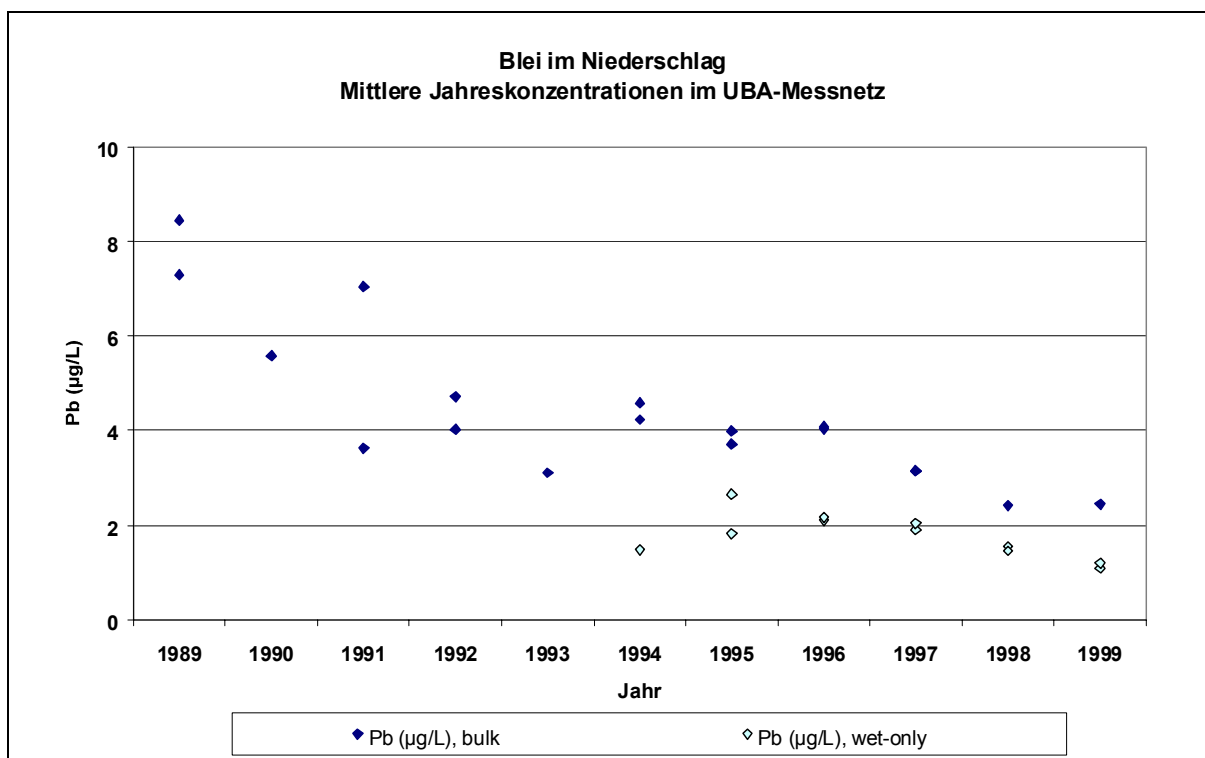


Abbildung 31: Mittlere Jahreskonzentrationen von Blei im Niederschlag an den Messstellen des Umweltbundesamtes von 1989 bis 1999

3.4.2 Depositionen von Ionen im Niederschlag

Da das großräumige Muster der Ionenkonzentrationen im Regen in Deutschland heute ziemlich homogen ist, wird die nasse Deposition in erster Linie durch die Regenmenge bestimmt, die auf Grund der orographischen und klimatologischen Gegebenheiten sehr große Unterschiede innerhalb Deutschlands aufweist. Das bedeutet, dass die räumliche Verteilung der nassen Deposition wesentlich inhomogener ist als die entsprechende Verteilung der Konzentrationen. Wegen der hohen jährlichen Regenmengen treten hohe nasse Depositionen vor allem an den Bergstationen auf.

Die jährlichen Regenmengen weisen zwar von Jahr zu Jahr erhebliche Schwankungen auf, ein systematischer Trend ist aber zwischen 1982 und 2000 nicht zu erkennen. Das bedeutet, dass die Langzeittrends der Deposition den entsprechenden Trends der Konzentrationen sehr ähnlich sind. Der stärkste Rückgang der nassen Deposition wurde dementsprechend bei den Ionen H^+ und SO_4^- beobachtet, wie die Abbildung 32 und Abbildung 33 eindrucksvoll zeigen.

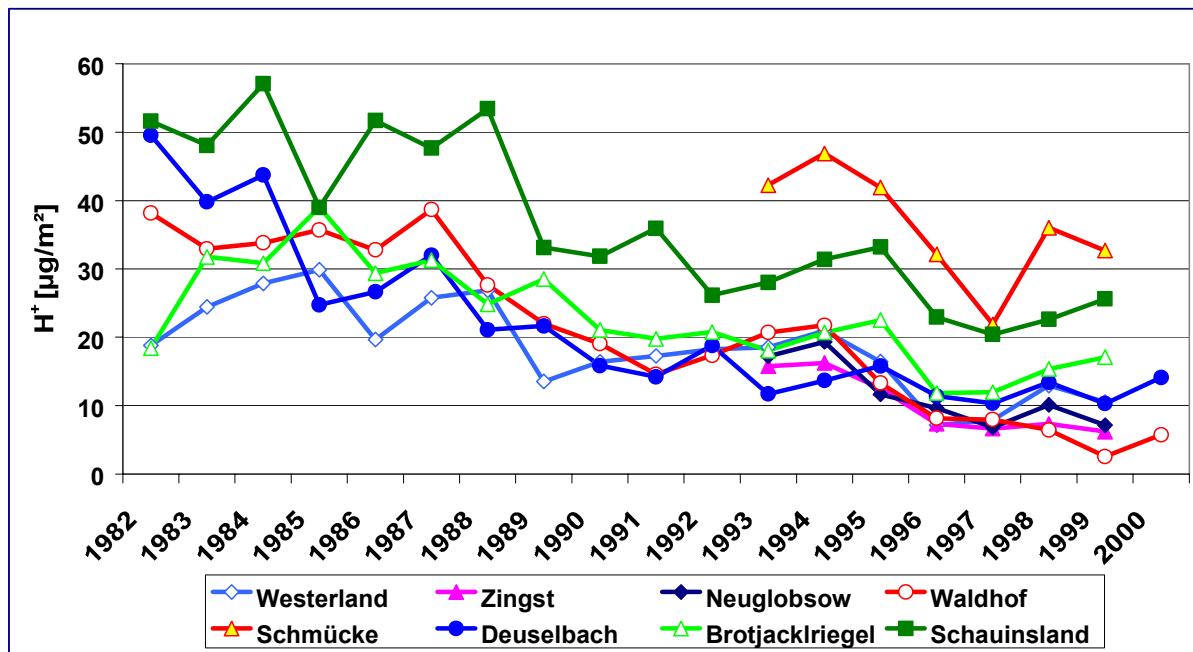


Abbildung 32: Jahresmittel der H^+ -Deposition im Niederschlag an den Messstellen des Umweltbundesamtes von 1982 bis 2000

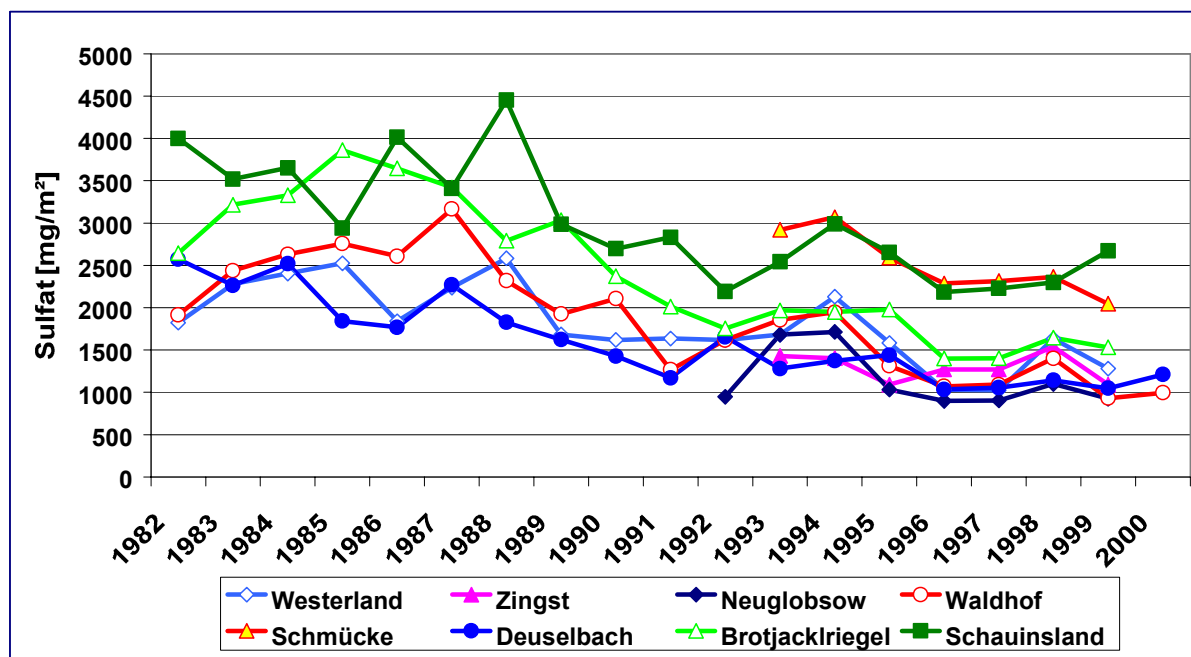


Abbildung 33: Jahresmittel der Deposition des seesalzkorrigierten Sulfats im Niederschlag an den Messstellen des Umweltbundesamtes von 1982 bis 2000

3.5 Danksagung

Einen besonderen Dank möchten die Autoren an die Mitarbeiterinnen und Mitarbeiter der Messstellen und der Zentrallabors richten, die z.T. bereits seit Ende der achtziger Jahre einen Beitrag zu den Messungen, Probenahmen und Analysen geleistet haben. Dies sind:

Westerland: Antje Adolphsen, Dieter Gräpel, Christa Meyer, Karla Oetting und Hans-Christof Ruprecht

Zingst: Gerd Borchardt, Udo Teuerkauf und Barnim Thees

Neuglobsow: Christina Babenzien, Olaf Barth, Christine Casper und Christel Schulze

Waldhof: Ilse Harbecke, Gertrud Lindow, Andreas Schwerin, Sigmar Schulze, Elisabeth Seeland, Erika Siebke und Wolfram Winkler

Schmücke: Herr Bartholome, Rita Junek, Thomas Neumann und Eike Straube

Deuselbach: Herbert Jost, Karl-Josef Rumpel, Karl-Otto Schmidt und Stefan Schäfer

Brotjacklriegel: Bernd Hlawatsch, Renate Enzesberger, Franz Schauer, Siegfried Strobel und Christine Veit

Schauinsland: Jürgen Birmelin, Jutta Fehrenbach, Bernd Fischer, Bernhard Fuchs, Walter Goldschmidt, Rolf Gaul, Lioba Hummel, Frank Meinhardt, Hubert Koslik und Marlies Koslik

Zugspitze: Stefan Glück, Christian Probst, Ludwig Ries, Ralf Sohmer und Michael Thomas

Langen: Stefanie Althoff, Christine Hoffmann, Gertrud Maier-Aulbach, Hermann Oehm, Françoise Riedel, Helga Reuver, Brigitte Schröder, Heidi Schwarz

3.6 Literatur

- (1) UBA(2000), *Air knows no borders*, Redaktion K. Uhse
- (2) Junge, C(1970), *Repräsentanz luftchemischer Messungen an Background-Stationen*, DFG Mitteilung VII, Kommission zur Erfassung der Luftverunreinigung, Mainz, OW. 1970, S. 5-20
- (3) UBA, II 6.4, *Strogies*, Dezember 2000 sowie UBA, Dez.1997 und Februar 1998, Einheiten: SO_2 (kt/a), NO_x (als NO_2 in kt/a), Staub (kt/a), CH_4 (kt/a), CO_2 (in Mt/a)
- (4) Beilke, S. und Wallasch, M. (2000), *Die Ozonbelastung in Deutschland seit 1990 und Prognose der zukünftigen Entwicklung*, Immissionsschutz, 5. Jahrgang, Heft Nr. 4, Dezember 2000, S. 149-155
- (5) Bericht der Enquet-Kommission des 11. Deutschen Bundestages, Schutz der Erdatmosphäre, 5/88 (1988)
- (6) ICPP (1996), *Climate Change 1995. Intergovernmental Panel on Climate Change*, 1996
- (7) UBA (1997), *Jahresbericht 1997*

4. ORGANISCHE SUBSTANZEN IN DER ATMOSPHERE UND IHR EINTRAG IN BODEN UND GRUNDWASSER

Ruprecht Schleyer und Barbara Raffius

4.1 Einleitung

In der Atmosphäre kommt eine Vielzahl organischer Substanzen menschlichen und natürlichen Ursprungs vor. Infolge gesetzlicher Maßnahmen (Bundes-Immissionsschutzgesetz, Kfz-Abgasvorschriften, Chemikalienverbotsverordnung u.a.) ist die Gesamtmenge der in Deutschland durch menschliche Aktivitäten in die Atmosphäre emittierten flüchtigen organischen Stoffe (Volatile Organic Compounds (VOC)) - ohne Methan - in den letzten Jahren rückläufig. Während sie für 1990 noch auf 3221 kt geschätzt wurde, betrug sie 1999 nur noch 1651 kt (Tabelle 10).

Hauptemissionsquelle ist die Lösungsmittelverwendung in Industrie, Gewerbe und Haushalten, gefolgt vom Straßenverkehr. Beide Emittentengruppen machen seit 1990 zusammen rund 80 % der Emissionen flüchtiger organischer Substanzen aus, wobei sich der Anteil des Straßenverkehrs aufgrund verbesserter Abgasreinigung kontinuierlich verringert.

Tabelle 10 Anthropogene Emissionen flüchtiger organischer Verbindungen (VOC) - ohne Methan - in die Atmosphäre Deutschlands, aufgeteilt in die einzelnen Emittentengruppen [UBA 2000].

Emittentengruppe	1990		1995		1999	
	[kt]	[%]	[kt]	[%]	[kt]	[%]
Lösungsmittelverwendung	1160	36,0	1050	51,9	1000	60,6
Industrieprozesse	153	4,8	130	6,4	138	8,4
Brennstoffgewinnung und -verteilung	220	6,8	91	4,5	54	3,3
übriger Verkehr	75	2,3	54	2,7	51	3,1
Straßenverkehr	1455	45,2	613	30,3	336	20,4
Haushalte	129	4,0	65	3,2	53	3,2
Kleinverbraucher	9	0,3	5	0,2	5	0,3
Industriefeuerungen	12	0,4	8	0,4	8	0,5
Kraft- und Fernheizwerke	8	0,2	7	0,3	6	0,4
Summe	3221		2024		1651	

Hinter den in Tabelle 10 zusammengestellten Emissionsmengen stehen eine Reihe von organischen Stoffgruppen und eine große Zahl organischer Einzelsubstanzen. Sie unterscheiden sich in ihren Emissionsquellen, ihren Quellstärken, ihrem Umweltverhalten und ihren Wirkungen. Ein Teil der luftgetragenen und luftbürtigen (in der Atmosphäre entstehenden) organischen Substanzen gelangt mit der Deposition auf die Oberfläche von Vegetation und Boden. Ob einzelne organische Substanzen über diesen Pfad trotz der Filter- Abbau- und Rückhaltefunktionen der Grundwasserüberdeckung das Grundwasser erreichen können, hängt von den Eigenschaften der Substanzen und von der standortbezogenen Beschaffenheit des

Untergrundes ab sowie von einem komplexen Zusammenspiel biologischer, physikalischer und chemischer Vorgänge im Untergrund.

4.2 Vorgehensweise

Im Rahmen einer in den Jahren 1996 bis 1999 von der LAWA (Länderarbeitsgemeinschaft Wasser) über den DVWK (Deutscher Verband für Wasser und Kulturbau) finanzierten Literaturstudie [Schleyer und Raffius 2000] wurden zu nachfolgend aufgelisteten 13 organischen Stoffgruppen mit zusammen weit über 100 organischen Einzelsubstanzen Informationen und Daten gesammelt, um mögliche Einflüsse auf das Grundwasser über den Luftpfad qualitativ und quantitativ abschätzen und bewerten zu können:

- Mineralölkohlenwasserstoffe (MKW): ausgewählte aliphatische Alkane, Alkene, Methyl-tert.-Butylether (MTBE)
- Leichtflüchtige Chlorkohlenwasserstoffe (LCKW): Chlorderivate von Methan, Ethan und Ethen
- Fluorchlorkohlenwasserstoffe (FCKW) und Halone
- Halogenessigsäuren: Chloressigsäuren und Trifluoressigsäure
- Benzol und Alkylderivate (BTEX)
- Chlorbenzole
- Phenol und Chlorphenole
- Nitrophenole und Methylnitrophenole
- Phthalate
- Polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK)
- Polychlorierte Biphenyle (PCB)
- Polychlorierte Dibenzodioxine und -furane (PCDD/F)
- Pflanzenschutzmittel (PSM): 12 ausgewählte Herbizide

Die möglichst aktuellen und für Deutschland repräsentativen Informationen und Daten zu diesen Organika lassen sich wie folgt gliedern:

- physikalisch-chemische Stoffkennndaten: Wasserlöslichkeit, Dampfdruck, Verteilungskoeffizienten zwischen den Phasen (Henry-Koeffizient, n-Octanol/Wasser-Verteilungskoeffizient, Sorptionskoeffizient)
- Produktionsmengen und Verwendung
- Quellen und Mengen von Emissionen in die Atmosphäre
- Konzentrationen, Zustand und Verhalten (Ab-/Umbau, Neubildung) in der Atmosphäre
- Mengen, Verhalten und Zustand bei der Deposition (Depositionsmechanismen, Konzentrationen im Niederschlagswasser, Depositionsraten)
- Konzentrationen, Zustand und Verhalten (Ab-/Umbau, Neubildung, Mobilität) im Untergrund (Bodenmatrix, Sickerwasser, Bodengas, Grundwasser)
- Human- und ökotoxikologische Wirkungen und Schwellenkonzentrationen sowie gesetzliche Grenzwerte

Die gesammelten Daten erlauben eine vergleichende Bewertung organischer Luftinhaltsstoffe hinsichtlich ihres Eintrags- und Gefährdungspotentials für das Grundwasser, der in Deutschland wichtigsten Trinkwasserressource.

4.3 Emissionen organischen Substanzen in die Atmosphäre

Anthropogene Emissionsquellen organischer Substanzen in die Atmosphäre können punktuell oder diffus sein. Typische punktförmige Quellen sind Fabriken oder Großfeuerungs- und Verbrennungsanlagen. Es handelt sich hierbei überwiegend um genehmigungsbedürftige Anlagen (Bundes-Immissionsschutzgesetz) mit einem hohen technischen Standard bei den Maßnahmen zur Emissionsminderung (Abluftreinigungsanlagen, geschlossene Stoffkreisläufe u.a.), so dass punktuelle Quellen bezüglich ihrer Emissionsmengen organischer Substanzen in die Atmosphäre in der Summe gegenüber den diffusen Quellen (z.B. Lösungsmittelanwendung, Kfz-Verkehr, Hausbrand, Pflanzenschutzmittelausbringung, Ausdünstungen aus Produkten) zurücktreten (Tabelle 11).

Einzelne Alkane und Toluol (Kfz-Abgase) sowie die Xylole (Anwendung als Lösungsmittel) erreichen Emissionsmengen von jeweils mehreren 100 000 t pro Jahr in Deutschland (Tabelle 11). Auch das humankarzinogene Benzol belegt mit 31 000 t (1994) noch einen der Spitzenplätze. Die jährlichen Emissionsmengen von PCDD/F liegen demgegenüber in Deutschland gegenwärtig bei unter 1 kg I-TE.

Natürliche Emissionsquellen organischer Substanzen sind Vulkanausbrüche, Waldbrände und insbesondere der Stoffwechsel von Organismen. Höhere Pflanzen (z.B. Bäume) emittieren in großem Umfang Isopren, Monoterpene (α -Pinen, β -Pinen, Camphen, Limonen u.a.) sowie Alkane, Alkene, Aromaten, Alkohole und kurzkettige aliphatische Carbonsäuren [KREUZIG ET AL. 1986, 1988, HOFFMANN et al. 1993]. Die emittierte Menge (Jahresmittel) beträgt in Deutschland 1998 547 kt/a biogene VOC [SEILER 2000] und 1723 kt/a anthropogene VOC [UBA 2000], d.h. die Jahresemissionen der biogenen VOC machen massenmäßig ca. 30% der anthropogenen VOC aus, was einen Anteil von etwa 24% der biogenen VOC an den Gesamtemissionen bedeutet. In jüngster Zeit stehen insbesondere die natürlich gebildeten halogenorganischen Verbindungen (z.B. von Bakterien, marinen Algen oder terrestrischen Pilzen) im Interesse der Wissenschaft. Es kommen insbesondere C₁ - C₄-Halogenkohlenwasserstoffe vor, z.B. Trichlormethan, Dibrommethan, Chlordibrommethan, Bromdichlormethan, Tribrommethan, Iodmethan, Chloriodmethan, Diiodmethan oder Iodethan [NAUMANN 1994]. Bei einzelnen Substanzen (z.B. Trichlormethan) überschreitet die natürliche Bildung weltweit die anthropogene Synthese um ein Vielfaches [SCHÖLER & HAIBER 1997].

Tabelle 11: Emissionen (Mengen und Hauptquellen, Deutschland) organischer Substanzen in die Atmosphäre.

Stoffgruppe	Verbindung	Menge [t/a]	Jahr(e)	Hauptquelle	Literatur
aliph. MKW	Σ C ₄ - C ₁₁ Einzelstoffe	810 000 bis 10 000er-Bereich ¹⁾	1994	Kfz-Verkehr	BUA 1997
	C ₁₈ - C ₃₃ - Einzelstoffe	keine Angaben		biogen	LEVSEN et al. 1990
LCKW	1,1,1-TCE Per	sehr gering 5000	1996 1996	(Verbot) Anwendung	ADAMS 1997
Halogen-Essigsäuren	TCAA MCAA	50 - 225 keine Angaben	1994	sek. Bildung	BUA 1996a
BTEX	Benzol	30 000	1994	Kfz-Verkehr	UBA 1997
	Toluol	200 000 ¹⁾	90er	Kfz-Verkehr	BOEHNCKE et al. 1997
	Xylole	200 000	1990	Anwendung	BERDOWSKI et al. 1997
Chlor-benzole	1,4-DCB HCB	470 10 ⁻³ -Bereich	1991 90er	Anwendung Verbrennung	BUA 1996b BUA 1994
Phenol und Chlor-phenole	Phenol	mehrere 10 000 ¹⁾	90/92	Verbrennung, sek. Bildung	BUA 1998
	PCP	sehr gering	90er	früh. Anwendung	FIEDLER et al. 1996
Nitro-phenole	4-NP DNOC	100er-Bereich keine Angaben	1989	sek. Bildung	BUA 1992
Phthalate	DEHP	1000 - 2000	1994	Ausdünstung	LEISEWITZ & SCHWARZ 1997
	DBP	400 - 500	1994	Ausdünstung	
PAK	Naphthalin	5900	1985	Kfz-Verkehr	BUA 1989
	6 Trinkw-PAK	420	1990	Verbrennung	BERDOWSKI et al. 1997
PCB		43	1990	Anwendung	BERDOWSKI et al. 1997
PCDD/F	2,3,7,8-Gruppe	< 10 ⁻³ (I-TE)	1994	Industrie	UBA 1997
PSM	Σ Pestizide	3000 - 9000 ¹⁾	90er	Anwendung	

1) geschätzt

4.4 Organische Substanzen in der Atmosphäre

Die aus anthropogenen und natürlichen Quellen stammenden organischen Substanzen werden durch Transportvorgänge in der Atmosphäre verteilt. Die Konzentrationen in der Außenluft (Immissionskonzentrationen) nehmen mit zunehmender Entfernung von der Quelle ab. Die Persistenz gegenüber photochemischem Abbau und meteorologische Gegebenheiten steuern dabei maßgeblich die Transportweite. Langlebige organische Substanzen können ubiquitär verbreitet werden.

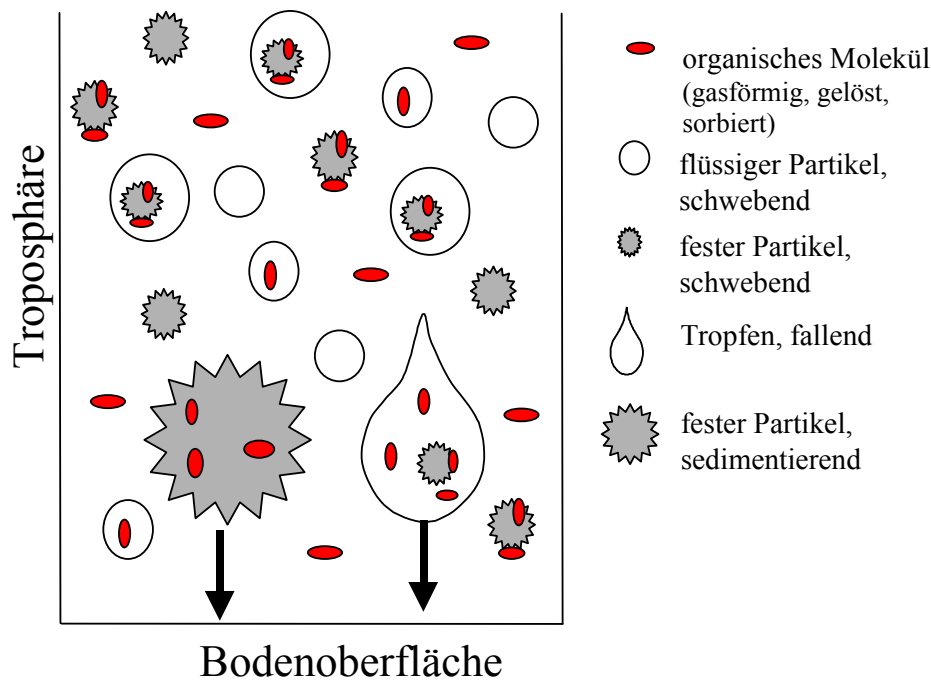


Abbildung 34: Vorliegen von organischen Substanzen in der Atmosphäre.

Beim photochemischen Abbau primär emittierter organischer Verbindungen können in der Atmosphäre sekundäre organische Substanzen entstehen. Beispiele sind halogenierte Essigsäuren (aus LCKW durch Reaktion mit OH- und Cl-Radikalen) sowie Nitrophenole und Methylnitrophenole (aus Benzol und Toluol durch Reaktion mit Stickoxiden).

Diese sekundären organischen Substanzen sind zum Teil langlebiger als ihre Edukte und wegen ihrer durch die Polarität bedingten vergleichsweise hohen Wasserlöslichkeit für den hier betrachteten Pfad von besonderer Bedeutung.

Je nach Stoffeigenschaften (Dampfdruck, Henry-Koeffizient u.a.) und meteorologischen Gegebenheiten (Temperatur u.a.) verteilen sich organische Substanzen in der Luft in unterschiedlichen Anteilen auf die drei Phasen. Leichtflüchtige organische Substanzen (z.B. LCKW, BTEX) liegen in der Atmosphäre nahezu vollständig gasförmig vor, leichtlösliche Säuren in Wassertröpfchen gelöst und schwerer flüchtige Substanzen (z.B. mehrkernige PAK, höherchlorierte PCDD) überwiegend oder vollständig an feste Partikel gebunden (Tabelle 12, Abbildung 34). Partikelgebundene Substanzen haben generell eine geringere Abbaurate als gasförmige.

Tabelle 12: Immissionskonzentrationen (Jahresmittelwerte) organischer Substanzen in quellenfernen Gebieten Deutschlands.

Stoffgruppe	Verbindung	Konzentration [ng/m ³]	Jahr(e)	vorwiegender Zustand	Literatur
aliph. MKW	Butan	2500	1997	gasförmig	ELLERMANN et al. 1997
	n-Hexan	400	1997	gasförmig	
LCKW	1,1,1-TCE	400	1997	gasförmig	RIEDEL & MÜLLER 1999
	Per	200	1997	gasförmig	LUA NRW 1998
Halogen- Essigsäuren	TCAA	0,04	1996	gasförmig	FRANK 1997
	MCAA	0,8	1996	+gelöst gasförmig +gelöst	
BTEX	Benzol	800	1997	gasförmig	LUA NRW 1998
	Toluol	1300	1997	gasförmig	RIEDEL & MÜLLER 1999
	Xylole	300	1997	gasförmig	
Chlor- benzole	1,4-DCB	k. A.			
	HCB	0,1	1992	gasförmig	BÜCHEN et al. 1993
Phenol und Chlor- phenole	Phenol	k. A.			
	PCP	0,1	1992	gasförmig partikelg- ebunden	BÜCHEN et al. 1993
Nitro- phenole	4-NP	90	1994	partikel- gebunden	LÜTTKE & LEVSEN 1997
	DNOC	6	1994	gasförmig	
Phthalate	Summe	0,5 - 3	88/90	gasförmig + partikel- gebunden	SCHIEDEK 1996
PAK	16 EPA- PAK	20	95/96	gasförmig + partikel- gebunden	GFA 1996
PCB	Summe	0,2	91/92	gasförmig	HIESTER & BRUCKMANN 1996
PCDD/F	2,3,7,8- Gruppe	0,03·10⁻³ (I-TE)	1992	gasförmig + partikel- gebunden	BÜCHEN et al. 1993
PSM	Atrazin	0,03	1994	gasförmig	NIESSNER & KOLTHOFF 1995
	Simazin	0,01	93/94	gasförmig	
	2,4-D	< 0,01	93/94	gasförmig	

k.A. keine Angaben in der Literatur

Tabelle 13: Mittlere Konzentrationen (meist Jahresmittelwerte) organischer Substanzen im Niederschlagswasser (nasse und gesamte Deposition) in quellenfernen Gebieten Deutschlands.

Stoffgruppe	Verbindung	Konzentration [ng/l]	Jahr(e)	vorwiegender Zustand	Literatur
aliph. MKW	C₄ - C₁₀- Einzelstoffe Σ C₁₈ - C₃₃ Einzelstoffe	gering¹⁾ < 1000 - 10 000 < 1000¹⁾	85/89	gelöst	LEVSEN et al. 1990 LEUENBERGER et al. 1988 SHU & HIRNER 1997
LCKW	1,1,1-TCE Per	<10 - 12 <10	93/94 93/94	gelöst gelöst	SCHLEYER et al. 1996
Halogen- Essigsäuren	TCAA MCAA	125 <20 - 700	1994 1994	gelöst gelöst	SCHLEYER et al. 1996 FRANK et al. 1995
BTEX	Benzol Toluol	< 15¹⁾ 30 - 60	88/89	gelöst gelöst	SCHLEYER et al. 1991
Chlor- benzole	1,4-DCB HCB	< 45 0,01 - 3,7	88/89 95/96	gelöst partikel- gebunden	SCHLEYER et al. 1991 KALLWEIT 1997
Phenol und Chlor- phenole	Phenol PCP	< 5600²⁾ 10¹⁾	89	gelöst partikel- gebunden	LEVSEN et al. 1990
Nitro- phenole	4-NP DNOC	< 50 200	93/94 93/94	partikel- gebunden gelöst	SCHLEYER et al. 1996
Phthalate	DBP DEHP	180 1500	1994 1994	gelöst partikelgebunden	SCHIEDEK 1996
PAK	16 EPA- PAK Naphthalin FLA BaP	170 < 15 50 6	96/97 88/89 1997 1997	gelöst + partikel- gebunden gelöst gelöst partikel- gebunden	KALLWEIT 1997, 1999 SCHLEYER et al. 1991 KALLWEIT 1999 KALLWEIT 1999
PCB	PCB-(6)- Stand. Einzelsubs	< 1 < 0,1	93/96 93/96	partikel- gebunden partikelgeb.	KALLWEIT 1997
PCDD/F	2,3,7,8- Gruppe	2·10⁻³ (I-TE)¹⁾	92/93	gelöst + partikelgeb.	WALLENHORST et al. 1995 FIEDLER 1996
PSM	Atrazin Simazin	50 32	92 91	gelöst gelöst	DANKWARDT et al. 1994 BÄCHMANN et al. 1993

1) Konzentration geschätzt oder aus Depositionsrate unter Annahme von 800 mm/a Niederschlag berechnet

2) Konzentration aus städtischem Bereich

Hohe Konzentrationen in der Außenluft an quellenfernen Standorten haben mit mehr als $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (1995 - 1997) beispielsweise die Kohlenwasserstoffe Butan, Buten und Toluol, im Bereich mehrerer $100 \text{ ng}/\text{m}^3$ liegen Benzol, Ethylbenzol, Xylole, n-Hexan und die leichtflüchtigen Chlorkohlenwasserstoffe Tetrachlormethan, 1,1,1-Trichlorethan und Tetrachlorethen (Tabelle 12). Sehr geringe Konzentrationen (10er fg I-TE/ m^3 -Bereich) weisen PCDD/F auf. In Quellennähe (z.B. Ballungsraum, Verkehrsknoten, Fabriken) können die Immissionskonzentrationen im Durchschnitt um den Faktor 10 - 100 erhöht sein.

4.5 Deposition organischer Luftinhaltsstoffe

Organische Substanzen in der Atmosphäre unterliegen neben dem Abbau einem weiteren wichtigen Eliminationsmechanismus: der Deposition. Dies ist definitionsgemäß ihr Austrag aus der Atmosphäre durch Ablage auf Akzeptoroberflächen (Vegetation, Boden u.a.). Depositionsvorgänge bilden somit die Schnittstelle zwischen Atmosphäre und Boden. Substanzen, die der Atmosphäre durch Deposition entzogen werden, gelangen zu einem Großteil in den Boden. In der Regel unterscheidet man zwischen trockener und nasser Deposition.

Die nasse Deposition ist der Austrag gelöster und partikelgebundener organischer Substanzen durch Regen, Schnee und Hagel. Die trockene Deposition ist die Ablagerung organischer Substanzen außerhalb von Niederschlagsereignissen mit Partikeln, schwebenden Tröpfchen (Tau, Nebel) sowie die Sorption von Gasen an Akzeptoroberflächen (Gasdeposition).

Bei den organischen Substanzen überwiegt meist die nasse Deposition gegenüber der trockenen. Der jeweils effektivste Depositionsmechanismus wird von den Eigenschaften des Stoffs und der Akzeptoroberfläche sowie von den meteorologischen Gegebenheiten gesteuert.

In Wäldern werden bei vielen organischen Substanzen höhere Depositionsraten gemessen als im Freiland, weil die Blätter und Nadeln von Bäumen auch in Trockenperioden eine wichtige Akzeptoroberfläche darstellen (Auskämmeffekt). Bei Niederschlagsereignissen wird diese Stofffracht zusätzlich abgewaschen und in den Boden eingetragen (Interzeptionsdeposition).

Gut wasserlösliche und an Partikel gebundene Stoffe werden am effektivsten mit dem Niederschlagswasser aus der Atmosphäre eliminiert. Im gering belasteten Freiland sind die sekundären Luftinhaltsstoffe Trichloressigsäure, 4-Nitrophenol, Dinitroortokresol (DNOC), und die Weichmacher Di-(2-ethylhexyl)-phthalat und Dibutylphthalat Substanzen, die im Niederschlagswasser (gelöst und partikelgebunden) Konzentrationen von mehreren $100 \text{ ng}/\text{l}$ erreichen können (Tabelle 13). Auch einzelne Herbizide können diesen Konzentrationsbereich erreichen und überschreiten dann bereits im Regenwasser den Grenzwert der Trinkwasserverordnung ($100 \text{ ng}/\text{l}$). In Wäldern sind die Konzentrationen meist um den Faktor 2 - 5 gegenüber dem Freiland erhöht, so dass einzelne organische Substanzen hier sogar die $1 \mu\text{g}/\text{l}$ -Marke im Niederschlagswasser (Bulk Deposition) überschreiten können.

4.6 Bodenpassage organischer Luftinhaltsstoffe

Im Boden angelangt hängt das weitere Schicksal der über die Deposition eingetragenen organischen Substanzen von ihren Stoffeigenschaften einerseits sowie von den Bodeneigenschaften des Standorts andererseits ab (Abbildung 35). Mobil im Untergrund sind Substanzen mit geringer Sorptionsaffinität an die Bodenmatrix; dies sind meist gut wasserlösliche Stoffe (z.B. Trichloressigsäure, 4-Nitrophenol). Kommt eine hohe Persistenz gegenüber Eliminationsmechanismen wie dem mikrobiologischen Abbau hinzu, können solche Substanzen nahezu ungehindert mit dem Sickerwasserstrom migrieren. Aber auch prinzipiell gut mikrobiologisch abbaubare organische Substanzen können im Untergrund langlebig sein, wenn ihre Konzentration unterhalb der Schwellenkonzentration für den mikrobiologischen Abbau liegt (ng/l-Bereich). Dies ist beim Eintrag über den Luftpfad nicht selten der Fall (z.B. Phthalate) [FURTMANN 1993, SCHIEDEK 1996].

Wenig mobil im Untergrund sind Substanzen mit hoher Sorptionsaffinität an die Festphase (z.B. PCDD, PCB). Solche Substanzen können jedoch mobile suspendierte Feststoffteilchen oder kolloidale Materie als Vehikel benutzen, um in tiefere Bodenbereiche verlagert zu werden [NIESSNER et al. 1994].

Von großer Bedeutung sind beim gelösten wie beim partikelgebundenen Transport Inhomogenitäten in der Hohlraumverteilung des Bodens, wie beispielsweise Makroporen (z.B. Schrumpfrisse, Kleinsäugerbauten), weil sich das Sickerwasser hier schnell und mit geringem Kontakt zum biologisch aktiven Oberboden in biologisch weniger aktive tiefere Bodenhorizonte bewegt.

Organische Substanzen mit sehr hohem Dampfdruck (z.B. FCKW) verteilen sich vorwiegend diffusiv-dispersiv im gasgefüllten Hohlraumanteil der ungesättigten Bodenzone und können so im Gleichgewichtszustand mit dem Grundwasser stehen [OSTER et al. 1996].

Für die Abschätzung, ob und in welchem Maße eine deponierte organische Substanz die ungesättigte Bodenzone zu passieren vermag, gilt es die substanzspezifische Depositionsrate, die substanzspezifische Mobilität und Persistenz im Untergrund sowie die standortbezogene Schutzfunktion der Grundwasserüberdeckung zu bewerten.

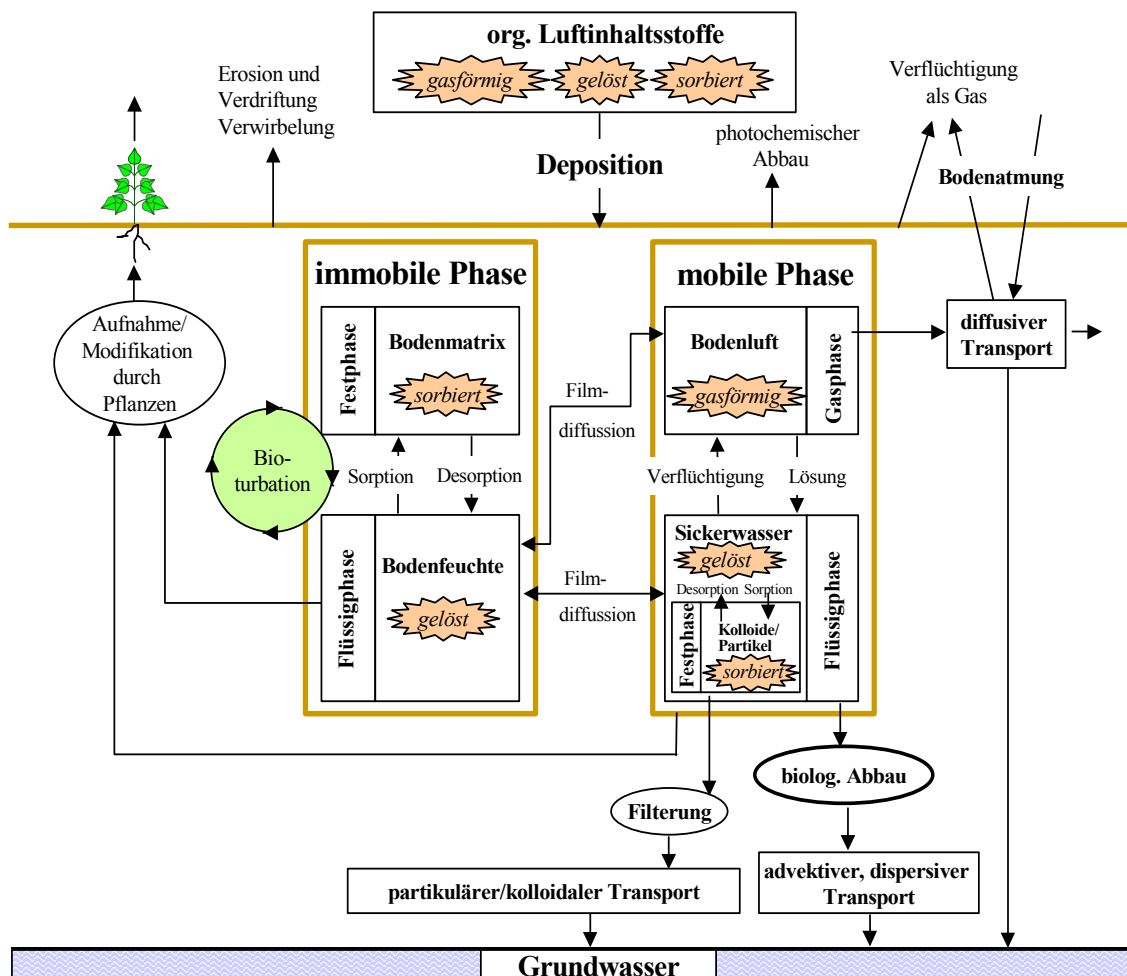


Abbildung 35: Schematische Darstellung der Phasen und Prozesse im Boden.

Prädestiniert für einen Eintrag über den Luftpfad in das Grundwasser sind organische Substanzen mit hoher Depositionsrate, mit hoher Mobilität und Persistenz im Untergrund an Standorten mit geringer Schutzfunktion der Grundwasserüberdeckung.

Für die vergleichende Bewertung der substanzspezifischen Größen Mobilität (auf der Basis der Wasserlöslichkeit) und Depositionsrate wurden die vorkommenden Wertespektren in fünf Intervalle eingeteilt (sehr gering, gering, mittel, hoch, sehr hoch), deren Klassengrenzen volle Zehnerpotenzen bilden. Die Persistenz wurde auf der Basis der vorliegenden Informationen in die gleichen fünf Intervalle eingestuft (Tabelle 14).

Tabelle 14: Vergleichende Abschätzung des Potenzials organischer Substanzen, die Grundwasserüberdeckung in gelöster Form mit dem Sickerwasserstrom zu passieren.

Stoff- gruppe	Ver- bindung	Depositions- rate	Mobilität	Persistenz	Potenzial ¹⁾
aliph. MKW	C₄ - C₁₀ C₁₈ - C₃₃	gering hoch	hoch - gering gering	mittel gering bis mittel	
LCKW	1,1,1-TCE Per	gering gering	hoch hoch	hoch hoch	
Halogen- Essigsäuren	TCAA MCAA	hoch hoch	sehr hoch sehr hoch	mittel (sehr) gering	+
BTEX	Benzol Toluol	gering mittel	hoch hoch	mittel mittel	+
Chlor- benzole	1,4-DCB HCB	gering sehr gering	hoch gering	mittel sehr hoch	
Phenol und Chlor- phenole	Phenol PCP	hoch gering	hoch mittel - hoch	sehr gering hoch	
Nitro- phenole	4-NP DNOC	mittel hoch	sehr hoch hoch	mittel mittel	+ +
Phthalate	DBP DEHP	hoch sehr hoch	mittel mittel	gering mittel - hoch	+
PAK	16 EPA- PAK	gering bis sehr gering	gering - hoch	gering bis sehr hoch	
PCB	PCB-(6)- Stand.	sehr gering	gering bis mittel	hoch bis sehr hoch	
PCDD/F	2,3,7,8- Gruppe	sehr gering	gering bis sehr gering	sehr hoch	
PSM	Atrazin Simazin	mittel mittel	hoch hoch	hoch hoch	+ +

1) Potenzial, die Grundwasserüberdeckung zu passieren

+ : keine der drei Bewertungsgrößen fällt in die Kategorie gering oder sehr gering

Das Ergebnis der vergleichenden Abschätzung zeigt (Tabelle 14), dass es vergleichsweise wenige organische Substanzen sind (TCAA, Toluol, 4-NP, DNOC, DEHP, Atrazin, Simazin), die ein erhöhtes Potenzial besitzen, nach ihrer Deposition aus der Atmosphäre die ungesättigte Bodenzone in gelöster Form mit dem Sickerwasserstrom zu passieren. Handelt es sich um einen Standort mit erhöhter Depositionsrate (z.B. Emittentennähe, Wald) oder einer geringen Schutzfunktion der Grundwasserüberdeckung (geringe Mächtigkeit, gute Wasserleitfähigkeit, geringe Sorptionskapazität, geringe mikrobiologischer Aktivität) ist bei diesen Substanzen mit einer Passage der ungesättigten Bodenzone und damit mit einem Eintrag in das Grundwasser zu rechnen.

4.7 Organische Luftinhaltsstoffe im Grundwasser

Es gibt bisher nur sehr vereinzelt experimentelle Untersuchungen, bei denen Grundwässer auf luftgetragene oder luftbürtige organische Substanzen untersucht wurden. Andere Quellen organischer Stoffe im Grundwasser wie Altlasten oder Landwirtschaft müssen hierbei ausgeschlossen werden können. In entsprechenden Grundwässern mit bewaldeten Einzugsgebieten wurden tatsächlich organische Substanzen (z.B. Mono-, Di- und Trichloressigsäure, 2-Nitrophenol als mögliches Abbauprodukt von 4-NP, einzelne Phthalate) in Konzentrationen bis zu mehreren 100 ng/l nachgewiesen [SCHLEYER et al. 1991, 1996, SCHIEDEK 1996]. Trichlormethan erreicht als pedogenes Abbauprodukt von Trichloressigsäure (Decarboxylierung) sogar den unteren µg/l-Bereich [SCHLEYER et al. 1996] (Tabelle 15). Die qualitative Übereinstimmung der im Grundwasser nachgewiesenen Substanzen mit denen mit hohem Migrationspotential in der ungesättigten Bodenzone (Tabelle 14) ist bemerkenswert.

Tabelle 15: Konzentrationen luftgetragener bzw. luftbürtiger Substanzen in schlecht geschützten Grundwässern.

Stoffgruppe	Verbindung	Konzentration [ng/l]		Jahr(e)	Literatur
		mittlere	maximale		
Phthalate	DEHP	500	1000	94/95	SCHIEDEK 1996
	DBP	100	500	88/89	SCHLEYER et al. 1991
Halogen-Essigsäuren	TCAA	< 25	200	93/94	SCHLEYER et al. 1996
	DCAA	< 25	180		
	MCAA	< 300	800		
LCKW	Trichlormethan (u.a. Abbauprodukt der TCAA)	100	4000	93/94	SCHLEYER et al. 1996
BTEX	Toluol	20	100	88/89	SCHLEYER et al. 1991
Nitrophenole	2-NP	< 150	1000	93/94	SCHLEYER et al. 1996
	DNOC	< 80	150		
PAK	Σ 16 EPA-PAK	250	1200	1993	NIESSNER et al. 1994
	Σ 6 TwV-PAK	200		90er	GRIMM-STRELE et al. 1994
	Naphthalin	50		1990	FIEDLER et al. 1997
	FLA	50		1990	FIEDLER et al. 1997
	B(a)P	50		1990	FIEDLER et al. 1997

In einer anderen Studie konnte sogar ein partikelgebundener Eintrag luftgetragener PAK in das Grundwasser unter besonderen Bedingungen (Münchner Schotterebene, Schrumpfrisse) bis maximal 1,2 µg/l für die Summe der EPA-PAK sowie von PCB in Spuren nachgewiesen werden [NIESSNER et al. 1994].

4.8 Schlussfolgerungen

Verglichen mit anderen Schadstoffquellen für das Grundwasser (z.B. Altlasten, Landwirtschaft) spielen die über den Luftpfad eingetragenen organischen Substanzen quantitativ nur eine untergeordnete Rolle. Ihr Eintrag findet jedoch flächendeckend und zusammen mit der Grundwasserneubildung statt. Einzugsgebiete von Trinkwasserfassungen lassen sich im Gegensatz zu den punktuellen Schadstoffquellen nicht gegenüber luftgetragenen Schadstoffeintrag schützen. Die Konzentrationen der in dieser Weise eingetragenen organischen Substanzen sind gering und liegen meist unterhalb bekannter toxikologischer Wirkschwellen. Sie bilden jedoch einen Beitrag zu dem Cocktail aus vielen anthropogenen Substanzen, die jede für sich betrachtet toxikologisch bedeutungslos erscheint, deren summarische und Kombinationswirkungen auf Mensch und Umwelt jedoch nahezu völlig unbekannt sind.

Die einzige Möglichkeit der Reduzierung luftgetragener Einträge in das Grundwasser sind Emissionsminderungen. Hierbei wurden bei vielen Stoffen in den letzten Jahren große Fortschritte erzielt (Tabelle 16), weitere Anstrengungen, insbesondere bei den diffusen Quellen, sind dennoch erforderlich (z.B. Phthalate, Mineralölkohlenwasserstoffe).

Weiterhin erscheint eine intensivere, kontinuierliche und einheitliche Beobachtung dieses Stoffpfades notwendig.

Tabelle 16: Emissionstendenzen organischer Substanzen in die Atmosphäre (90er Jahre) in Deutschland.

Stoffgruppe	Verbindung	Tendenz	Hauptursache(n)
aliph. MKW	C₄ - C₁₀	sinkend	Katalysator, Rückgewinnung von Dämpfen
LCKW	1,1,1-TCE Per	auf Null stark sinkend	Verzicht seit 1996 Auflagen
Halogen- Essigsäuren	TCAA	sinkend	Rückgang der Edukte (LCKW)
BTEX	Benzol	sinkend	Anwendungsbeschränkung Katalysator
	Toluol	leicht sinkend	Katalysator
Chlorbenzole	HCB	leicht sinkend	Verbot seit 1981
Phenol und Chlorphenole	Phenol	sinkend	Rückgang des Edukts Benzol, Abluftreinigung (Katalysator)
	PCP	leicht sinkend	Verbot seit 1989
Nitrophenole	4-NP	sinkend	Rückgang der Edukte Benzol und Toluol
	DNOC	sinkend	Rückgang der Edukte, PSM-Verbot 1989
Phthalate	DEHP	gleichbleibend	
	DBP	gleichbleibend	
PAK	16 EPA-PAK	sinkend	Abluftreinigung
PCB	PCB-(6)-Stand.	sinkend	Verbot seit 1989
PCDD/F	2,3,7,8-Gruppe	stark sinkend	Verbrennungstechnik Emissionsgrenzwerte
PSM	Summe	gleichbleibend	
	Atrazin	stark sinkend	Verbot seit 1991

4.9 Literatur

- Adams N. (1997): Emission von halogenierten Kohlenwasserstoffen in der BRD und in Europa.- In: Protokoll der 3. Sitzung des DECHEMA/GDCh/DBG Gemeinschaftsausschusses „Chemie der Atmosphäre“, 25. - 26.11.1997.
- Bächmann K., Hillmann R., Pfäfflin D., Scharf J. und Wiesiollek R. (1993): Messung von Pestiziden in der Atmosphäre und im Niederschlag.- UBA-Forschungsbericht Nr. 104 02 598, 240 S.
- Berdowski J., Baas J., Bloos J., Visschedijk A. und Zandveld P. (1997): The european atmospheric emission inventory of heavy metals and persistent organic pollutants.- UBA-Forschungsbericht Nr. 104 02 672, 30 S. + Anhang.
- Boehncke A., Mangelsdorf I. und Rosner G. (1997): Stoffströme von Benzol unter besonderer Berücksichtigung der Bundesrepublik Deutschland.- UWSF - Z. Umweltchem. Ökotox., 9 (6), 369-384.
- BUA (Beratergremium für umweltrelevante Altstoffe der Gesellschaft Deutscher Chemiker) (Hrsg.) (1989): Naphthalin.- BUA-Stoffbericht 39, VCH Verlags GmbH, Weinheim, 161 S.
- BUA (Beratergremium für umweltrelevante Altstoffe der Gesellschaft Deutscher Chemiker) (Hrsg.) (1992): 2-Nitrophenol, 4-Nitrophenol.- BUA-Stoffbericht 75, VCH Verlags GmbH, Weinheim, 178 S.
- BUA (Beratergremium für umweltrelevante Altstoffe der Gesellschaft Deutscher Chemiker) (Hrsg.) (1994): Hexachlorbenzol.- BUA-Stoffbericht 119, Hirzel Verlag, Stuttgart, 294 S.
- BUA (Beratergremium für umweltrelevante Altstoffe der Gesellschaft Deutscher Chemiker) (Hrsg.) (1996a): Trichloressigsäure/Natriumtrichloracetat.- BUA-Stoffbericht 167, Hirzel Verlag, Stuttgart, 236 S.
- BUA (Beratergremium für umweltrelevante Altstoffe der Gesellschaft Deutscher Chemiker) (Hrsg.) (1996b): p-Dichlorbenzol.- BUA-Stoffbericht 185, Hirzel Verlag, Stuttgart, 201 S.
- BUA (Beratergremium für umweltrelevante Altstoffe der Gesellschaft Deutscher Chemiker) (Hrsg.) (1997): Benzin.- BUA-Stoffbericht 200, Hirzel Verlag, 272 S.
- BUA (Beratergremium für umweltrelevante Altstoffe der Gesellschaft Deutscher Chemiker) (Hrsg.) (1998): Phenol.- BUA-Stoffbericht 209, Hirzel Verlag, Stuttgart, 462 S.
- Büchen M., Bender M., Hanewald K. und Liebl K. (1993): Immissionsbelastung der Atmosphäre durch polychlorierte Biphenyle (PCB) und andere Chloraromaten - Messergebnisse aus Hessen.- Schriften der Hessischen Landesanstalt für Umwelt, Bd. 151, Wiesbaden, 77 S.
- Dankwardt A., Wüst S., Elling W., Thurmann E.M. und Hock B. (1994): Determination of Atrazine in rainfall and surface water by enzyme immunoassay.- Environ. Sci. & Pollut. Res., 1 (4), 196-204.
- Ellermann K., Herkelmann S., Gladke D. und Pfeffer H.-U. (1997): Luftqualität in Nordrhein-Westfalen. Diskontinuierliche Luftqualitätsmessungen, Limes-Jahresbericht 1996, Reihe B - Schwebstaub und Inhaltsstoffe, Kohlenwasserstoffe.- Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen, Essen, 151 S.
- Fiedler H. (1996): Sources of PCDD/PCDF and impact on the environment.- Chemosphere, 3 (1), 55-64.
- Fiedler H., Hilpert M., Hub M. und Hutzinger O. (1996): Stoffbericht Pentachlorphenol (PCP).- Handbuch Altlasten und Grundwasserschadensfälle, Landesanstalt für Umweltschutz Baden-Württemberg, Nr. 25/1996, 160 S.
- Fiedler H., Mertens C., Morgenstern M., Scheidt M. und Hutzinger O. (1997): Stoffbericht polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK).- Handbuch Altlasten und Grundwasserschadensfälle, Texte und Berichte zur Altlastenbearbeitung 34, Landesanstalt für Umweltschutz Baden-Württemberg, 249 S.
- Frank H. (1997): Ökosystemeffekte durch Haloacetate.- In: Protokoll der 3. Sitzung des DECHEMA/GDCh/DBG-Gemeinschaftsausschuss „Chemie der Atmosphäre“, 25. - 26.11.1997.
- Frank H., Renschen D., Klein A. und Scholl H. (1995): Trace analysis of airborne haloacetates.- J. High Resol. Chromatogr., 18, 83-88.
- Furtmann K. (1993): Phthalate in der aquatischen Umwelt.- Schriftenreihe des Landesamtes für Wasser und Abfall des Landes Nordrhein-Westfalen, 6, 177 S. + Anhang.

- GFA (Gesellschaft für Arbeitsplatz- und Umweltanalytik mbH) (1996): Immissionsbelastung durch polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAH) im Untersuchungsgebiet Untermain 1995/96.- Bericht 62100-014 B01 im Auftrag der Hessischen Landesanstalt für Umwelt, 294 S.
- Grimm-Strele J., Burk K., Barufke K.-P., Feuerstein W., Heidland S., Kaltenbach D., Maisch M., Regner B., Schuhmann D., Seifert D., Stekker D., Weiller-Schäfer M. und Werner K. (1994): Grundwasserüberwachungsprogramm: Geogen geprägte Hintergrundbeschaffenheit – Ergebnisse aus dem BasisMessnetz.- Schriften der Landesanstalt für Umweltschutz Baden-Württemberg, 94 S.
- Hiester E. und Bruckmann P. (1996): Deutlicher Rückgang der PCDD/PCDF-Belastung der Außenluft in Nordrhein-Westfalen von 1988 bis 1994.- In: LUA NRW (Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen) (Hrsg.): Jahresbericht 1995.- Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen, 224 S.
- Hoffmann T., Jacob P., Linscheid M. und Klockow D. (1993): Measurements of biogenic hydrocarbons an their atmospheric degradation in forests.- Intern. J. Environ. Anal. Chem., 52, 29-37.
- Kallweit D. (1997 und 1999): persönliche Mitteilung (Umweltbundesamt).
- Kreuzig R., Gebefügi I. und Korte F. (1986): Leichtflüchtige Kohlenwasserstoffe biogenen und anthropogenen Ursprungs in der Luft von Waldgebieten.- Forstw. Cbl., 105 (5), 381-444.
- Kreuzig R., Gebefügi I., Bahadir M. und Korte F. (1988): Konzentrationen biogener und anthropogener Kohlenwasserstoffe im Vertikalprofil eines Fichtenhochwaldes.- Forstw. Cbl., 107 (6), 342-347.
- Leisewitz A. und Schwarz W. (1997): Stoffströme wichtiger endokrin wirksamer Industriechemikalien.- UBA-Forschungsbericht Nr. 106 01 076, 159 S.
- Leuenberger C., Czuczwa J., Heyerdahl E. und Giger W. (1988): Aliphatic and polycyclic aromatic hydrocarbons in urban rain, snow and fog.- Atmosph. Environm., 22, 695-705.
- Levsen K., Behnert S., Prieß B., Svoboda M., Winkeler H.-D. und Zietlow J. (1990): Organic compounds in precipitation.- Chemosphere, 21 (9), 1037-1061.
- LUA NRW (Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen) (Hrsg) (1998): Bericht über die Ergebnisse der Immissionsmessungen 1997.- Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen, Essen, 69 S.
- Lüttke J. und Levsen K. (1997): Phase partitioning of phenol and nitrophenols in clouds.- Atmosph. Environm., 16, 2649-2655.
- Naumann K. (1994): Natürlich vorkommende Organohalogene.- Nachr. Chem. Tech. Lab., 42 (4), 389-392.
- Nießner R. und Kolthoff R. (1995): Untersuchung der Vorgänge der Luftverfrachtung von Pestiziden (insbesondere Triazinherbizide).- Deutscher Verein des Gas- und Wasserfaches e.V., Bericht Teil A, 189 S.
- Nießner R., Zajec A., Schäfer O. und Kühnhardt M. (1994): Einfluss der Wechselwirkung organischer Luftschadstoffe (PAH's, PCB's) im atmosphärischen Aerosol und Niederschlag auf die Qualität oberflächennaher Grundwässer.- Bericht im Auftrag des BayFORKLIM (Bayrisches Klimaforschungsprogramm), Lehrstuhl für Hydrogeologie, Hydrochemie und Umweltanalytik der Technischen Universität München, 73 S.
- Oster H., Sonntag C. und Münnich K. (1996): Methodische Aspekte zur Datierung von Grundwasser mittels FCKW F11, F12 und F113.- Vom Wasser, 86, 205-216.
- Riedel F. und Müller J. (1999): Persönliche Mitteilung (Umweltbundesamt).
- Schiedek T. (1996): Vorkommen und Verhalten von ausgewählten Phthalaten in Wasser und Boden.- Schriftenreihe Tübinger Geowissenschaftliche Arbeiten der Universität Tübingen, Reihe C, Nr. C 33, 112 S.
- Schleyer R. und Raffius B. (2000): Grundwassergefährdung durch organische Luftschadstoffe.- DVWK Materialien, 1/2000, 385 S.
- Schleyer R., Renner I. und Mühlhausen D. (1991): Beeinflussung der Grundwasserqualität durch luftgetragene organische Schadstoffe.- WaBoLu-Hefte, 5/1991, 96 S.
- Schleyer R., Fillibeck J., Hammer J. und Raffius B. (1996): Beeinflussung der Grundwasserqualität durch Deposition anthropogener, organischer Stoffe aus der Atmosphäre.- WaBoLu-Hefte, 10/1996, 321 S.
- Schöler H.F. und Haiber G. (1997): Bildung und Verbleib natürlicher halogenorganischer Verbindungen in Wasser, Böden und Sedimenten.- In: Matschullat J., Tobschall H.J. und Voigt H.-J. (Hrsg.): Geochemie und Umwelt - Relevante Prozesse in Atmo-, Pedo- und Hydrosphäre.- Springer Verlag, Heidelberg, 151-159.

- Seiler W. (2000): *BMBF-Troposphärenforschungsprogramm, Ergebnisbericht des Koordinators*, 2. Juli 2000.
- Shu P. und Hirner A. (1997): *Polyzyclische aromatische Kohlenwasserstoffe und Alkane in Niederschlägen und Dachabflüssen.- Vom Wasser*, 89, 247-259.
- Simpson D.A., Guenther C.N., Hewitt C.N. und Steinbrecher R. (1995): *Biogenic emissions in Europe, I. Estimates and uncertainties.- Journal of Geophysical Research*, 100 (D11), 875-890.
- UBA (Umweltbundesamt) (Hrsg.) (1997): *Daten zur Umwelt 1997.- Erich Schmidt Verlag, Berlin*, 570 S.
- UBA (Umweltbundesamt)(Hrsg.)(2000): *Daten zur Umwelt 2000: .- Erich Schmidt Verlag, Berlin*, 380 S.
- Wallenhorst Th., Krauß P. und Hagenmaier H. (1995): *PCDD/F in ambient air and deposition in Baden-Württemberg, Germany.- Organohalogen Compounds*, 24, 157-161.

4.10.1 Abkürzungen

1,1,1-TCE	1,1,1-Trichlorethan
1,4-DCB	1,4--Dichlorbenzol
2-NP, 4-NP	2- bzw. 4-Nitrophenol
BaP	Benzo(a)pyren
DBP	Dibutylphthalat
DCAA	Dichloressigsäure (dichloro acetic acid)
DEHP	Di-(2-ethylhexyl)-phthalat
DNOC	2-Methyl-4,6-dinitrophenol (Dinitroorthokresol)
EPA-PAK	16 PAK-Einzelstoffe der US-EPA (amerikanische Umweltbehörde)
FLA	Fluoranthren
HCB	Hexachlorbenzol
I-TE	Internationale toxische Äquivalente
MCAA	Monochloressigsäure (monochloro acetic acid)
PCB-(6)-Standard	PCB-28, PCB-52, PCB-101, PCB-138, PCB-153, PCB-180
PCP	Pentachlorphenol
Per	Tetrachlorethen
TCAA	Trichloressigsäure (trichloro acetic acid)
TwV-PAK	6 PAK-Einzelstoffe mit Summengrenzwert in der Trinkwasserverordnung

5. GESUNDHEITLICHE RISIKEN DURCH MIKROORGANISMEN IN DER UMGEBUNGSLUFT AM BEISPIEL DER BIOLOGISCHEN ABFALLVERWERTUNG IN KOMPOSTIERUNGSANLAGEN

Rüdiger Hofmann

5.1 Einleitung

Die Sammlung, der Transport, die Beseitigung und die Verwertung von Siedlungsabfällen sind stets verknüpft mit dem Vorkommen von Mikroorganismen. Insbesondere bei der biologischen Abfallverwertung (Kompostierung und Vergärung) sind die Menge und die Artenvielfalt von Mikroorganismen wichtige Qualitätskriterien, die entscheidend sind für den Erfolg des Verwertungsprozesses. Hinsichtlich des vorkommenden Organismenspektrums gibt es jedoch signifikante Unterschiede zwischen beispielsweise frischem Biomüll und den fertigen Kompostprodukten. Einen großen Anteil an der Mikrobenpopulation haben mikroskopische Pilze. Die in den Abfällen zu messenden Konzentrationen von Bakterien, Viren, Pilzen oder Parasiten sind eng verknüpft mit der Höhe des organischen Substratangebots, das ihnen in den Abfällen dargeboten wird. Bei der heute allgemein durchgeführten „getrennten Abfallsammlung“ sind also diesbezüglich Unterschiede in den verschiedenen Abfallfraktionen zu erwarten. Deshalb mag es zunächst überraschend klingen, wenn in einer Studie aus dem Jahr 1996 festgestellt wird, dass keine wesentlichen Unterschiede in der Höhe der Organismenkonzentration bei verschiedenen Abfallfraktionen (Bioabfälle, Restmüll und ‘Gelber Sack’ (*Conrad et al., 1996*)) gefunden wurden. Doch dieses Ergebnis kann lediglich als ein Beleg dafür gewertet werden, dass die Vermehrung und das Wachstum von Mikroorganismen außer durch das Substratangebot noch durch andere Faktoren (wie beispielsweise dem pH-Wert, der Sauerstoffversorgung, der Temperatur, der Feuchtigkeit, der biologischen Verwertbarkeit der vorhandenen Substrate oder der Konkurrenzsituation im vorhandenen Mikroökosystem) beeinflusst wird. Für die Bewertung eines Mikroökosystems ist es deshalb wichtig, dass nicht nur die Quantität einer Mikrobenpopulation festgestellt wird, sondern dass auch die Qualität der vorhandenen Organismen einer näheren Betrachtung unterzogen werden sollte.

Das Risikopotential, dem Beschäftigte oder auch Normalbürger ausgesetzt sind, wenn sie mit mikrobiell belastetem Müll umgehen oder weil sie in der Nähe einer biologischen Abfallbehandlungsanlage wohnen, ist nahezu unbekannt. Die Art der Infektionsübertragungswege spielt für die Beurteilung des Risikopotentials eine entscheidende Rolle. Oral bedingte Infektionen, die in vielen anderen Bereichen (z.B. Übertragungsweg Lebensmittelaufnahme) dominieren, sind bei der Entsorgung und Verwertung von Siedlungsabfällen nur von untergeordneter Bedeutung. Die aerogene (luftgetragene) Keimbelastung, die eine Aufnahme von Mikroorganismen, Endotoxinen, Mycotoxinen usw. vor allem auf dem Inhalationsweg bedeutet, dominiert hier alle anderen Übertragungswege und ist als bedeutsamer einzuschätzen als die durch orale, enterogene, perkutane oder durch Schnitt-, Biss- und Stichverletzungen verursachten Infektionsgefahren. Aus diesem Blickwinkel ist für die Bewertung des

Gesundheitsrisikos beim Menschen die Anzahl oder die Konzentration der Mikroorganismen in der Müllmatrix oder im Kompost (KBE/g) eher unbedeutend. Für die Bewertung bedeutsam ist hingegen die Freisetzungsrates von Organismen in das Umgebungsmedium Luft und die in Luft gemessene Konzentration der Mikroorganismen (KBE/m³).

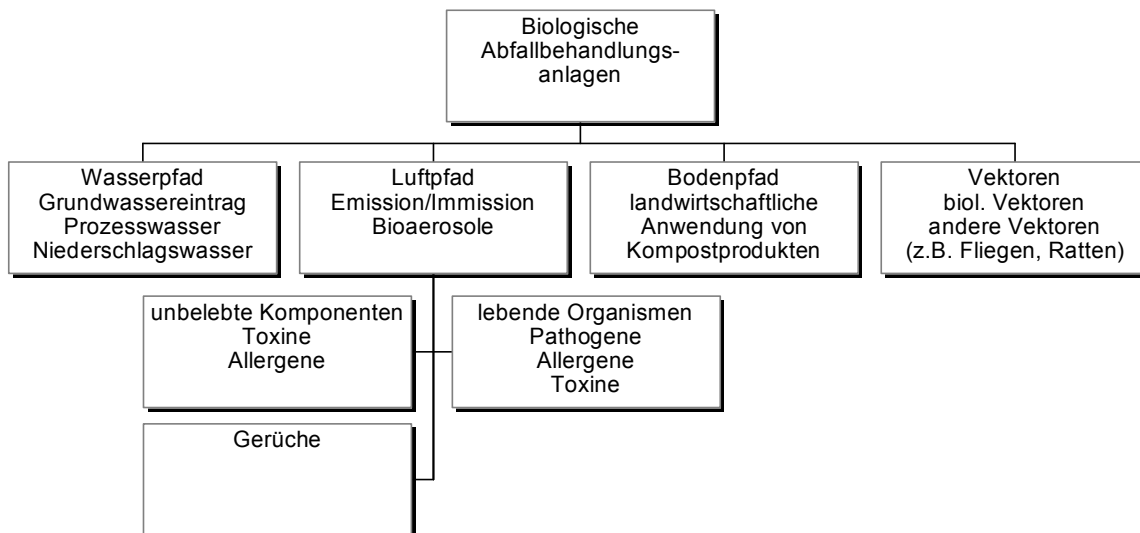


Abbildung 36: Freisetzungswege von biologischen Agenzien aus Anlagen zur biologischen Abfallbehandlung und die Zusammensetzung emittierter Bioaerosole

Bei der Freisetzung von Mikroorganismen und der gesundheitlichen Bewertung einer Organismenkonzentration in einem Bioaerosol ist insbesondere die Tenazität, das heißt, die Überlebensfähigkeit der Organismen im Luftmedium ein wichtiger Faktor. Für die Beurteilung des medizinischen Risikos ist in erster Linie das Vorkommen von pathogen wirkenden Organismen relevant. Die Bewertung des Risikopotentials von Mikroorganismen erfolgt lt. Biostoffverordnung in 4 Risikostufen: 1 = fehlendes (bis sehr geringes) Risiko; 2 = geringes (bis mäßiges) Risiko; 3 = mäßiges (bis hohes) Risiko; 4 = hohes Risiko. Tabelle 17 zeigt beispielhaft eine Liste von Pilz- und Bakteriengattungen, die entweder in Kompostsubstraten oder in der Umgebungsluft von Kompostierungsanlagen nachgewiesen werden konnten. Sowohl bei den Pilzen als auch bei den Bakterien findet man zahlreiche Arten, von denen bekannt ist, dass sie nach der Biostoffverordnung den Risikostufen 1 oder 2 zugeordnet werden müssen.

Dies bedeutet, dass es unter den in Abfällen und Kompostmaterialien vorkommenden Mikroorganismen einige Arten gibt, von denen bekannt ist, dass sie 'fakultativ pathogene' Wirkungen beim Menschen, aber auch bei Tieren und Pflanzen ausüben können. Für die Entfaltung solcher Wirkungen bedarf es jedoch weiterer begünstigender Faktoren. So hat man beispielsweise bei einigen Arten von Organismen Infektionsschwellenwerte beobachtet, unterhalb derer man kaum typische Infektionen beobachten kann. Außerdem ist der Gesundheitszustand des Empfängerorganismus - funktionsfähige Immunabwehr von entscheidender Bedeutung dafür, ob eine Infektion stattfinden kann oder nicht. Bei der abfallhygienischen Betrachtung müssen hinsichtlich der Übertragung von pathogenen Organismen zum Menschen neben dem bereits oben erwähnten Luftpfad (biologische Aerosole) insbesondere biologische Vektoren (zum Beispiel Fliegen und Ratten) mit in die Betrachtung einbezogen werden. Da die fertigen Kompostprodukte vor allem landwirtschaftlich verwertet

werden, sollte außerdem bedacht werden, dass auch auf dem Nahrungsweg eventuell Übertragungskreisläufe ausgebildet werden können.

Hinsichtlich des Wirkungspotentials von Bioaerosolen muss unterschieden werden zwischen Infektionserregern (lebende Organismen) und toxisch bzw. allergen wirkenden Komponenten (sowohl lebende als auch tote Organismen, Bestandteile von Organismen und Stoffwechselprodukte). Für die Akzeptanz von biologischen Abfallbehandlungsanlagen bei der Bevölkerung sind außerdem mögliche Geruchsemissionen von entscheidender Bedeutung (siehe hierzu auch Abbildung 36).

Tabelle 17: Gattungen von Mikroorganismen (Bakterien und Pilze) in Kompostmaterialien und im Aerosol aus Kompostierungsanlagen nach K. Diehl und R. Hofmann (1996)

BAKTERIEN	PILZE
Acinetobacter	Absidia
Aerococcus	Acremonium
Aeromonas	Alternaria
Bacillus	Arthrinium
Brucella	Fusarium
Cellulomonas	Botryotrichum
Citrobacter	Arthrotrichum
Clavibacter	Scopulariopsis
Clostridium	Aspergillus
Escherichia	Botrytis
Klebsiella	Chaetomium
Microbacterium	Cladosporium
Micrococcus	Doratomyces
Nocardia	Mucor
Paenibacillus	Neurospora
Proteus	Olpitrichum
Pseudomonas	Chrysosporium
Salmonella	Paecilomyces
Serratia	Penicillium
Shigella	Rhizomucor
Staphylococcus	Rhizopus
Streptococcus	Sepedonium
Vibrio	Stemphylium
Yersinia	Trichoderma
	Trichothecium
	Trichurus

Die Freisetzungsrates von Mikroorganismen aus Kompostierungsanlagen ist sehr stark abhängig von der Art und der zeitlichen Dauer des Emissionsvorganges. Grundsätzlich kann diesbezüglich unterschieden werden zwischen verschiedenen Arten von Quelltypen:

- Kontinuierliche Quellen Biofilter (geschlossene Bauweise)
Kompostmieten (Rotte in ruhender Kompostmiete)
- Nichtkontinuierliche Quellen Kompostmieten (Umsetzungszeitpunkte)
Siebvorgänge des Kompostmaterials
Störstoffauslese
Transport von Kompostmaterialien
Andere freisetzungrelevante Tätigkeiten
- Diffuse Quellen Hallentore
Andere kaum quantifizierbare Quellen

Einfluss auf die Immissionsbelastung haben insbesondere die Parameter Quellstärke, Partikelgröße, die Windgeschwindigkeit, die Windrichtung, der Turbulenzgrad, die Außentemperatur, die Geländemorphologie und der Bebauungscharakter in der Anlagennachbarschaft.

5.2 Messmethoden und Messtechnik

Die Erfassung luftgetragener Mikroorganismen erfolgt heute in der Mehrzahl aller Fälle durch sogenannte 'Luftkeimsammler'. Mit den zur Verfügung stehenden Methoden werden Luftproben eines möglichst genau zu spezifizierenden Volumens gesammelt und anschließend wird in diesen Proben die Anzahl der kultivierbaren Organismen erfasst. Anders als bei der Messung des Staubgehalts, wo die Gesamtmenge, die Anzahl und die Größe der Partikel direkt erfasst werden kann, handelt es sich hierbei bei den meisten Methoden um indirekte Verfahren, denn lebende Organismen können erst nach dem Zwischenschritt einer Kultivierung gemessen werden. Zu diesem Zweck werden die Organismen in bzw. auf ein bestimmtes Nährmedium gebracht und es erfolgt eine Kultivierung unter definierten Wachstumsbedingungen (beispielsweise Malz-Extrakt-Agar, 30° C, 5 Tage Kultivierung). Erst im Anschluss an diesen Kultivierungsschritt wird eine quantitative bzw. semiquantitative Auswertung vorgenommen, indem der Bewuchs des Nährmediums festgestellt wird. Die gebräuchlichste Methode zur Kultivierung von Mikroorganismen ist das Ausbringen der Organismen auf festen Agarnährmedien in Petrischalen und eine Auszählung der kultivierbaren Einheiten (KBE) nach einem Wachstumszeitraum von 1-5 Tagen.

Die Anwendung von mikrobiologischen Arbeitsmethoden bei der Bewertung der Emissions- und Immissionssituation in Kompostierungsanlagen bedeutet für die Überwachung von großtechnischen Anlagen eine neue Dimension der Anlagenkontrolle. Im Vergleich zu beispielsweise der Messung einer Staubbelastung oder der einer Stoffkonzentration ist allerdings die exakte Erfassung mikrobiologischer Parameter sehr schwierig und in vielen Fällen sogar unmöglich. Es gibt sehr viele Einflussmöglichkeiten, die den Zustand der Messparameter verändern. Dies betrifft nicht nur das Wachstum und die Vermehrung der Mikroorganismen, sondern auch die Probenahme und die dabei angewandte Technik.

Für die Einsammlung der Luftproben mit Luftkeimsammlern stehen grundsätzlich unterschiedliche Sammelverfahren zur Verfügung. Die Extraktion der Mikroorganismen aus der Luft ist unter Anwendung folgender Prinzipien möglich:

- Filtration
- Sedimentation
- Impingement (Auswaschen der Partikel in Flüssigkeit)
- Impaktion (Abscheidung aufgrund der Trägheit der Partikel)
- Präzipitation im elektrischen Feld

Derzeit gibt es auf dem Markt über 100 verschiedene Geräte, die diesbezüglich verwendet werden. Die gebräuchlichsten Geräte waren über lange Jahre der 'All-Glass-Impinger' und der 'Andersen Kaskaden Impaktor'. Seit etwa 1995 mit Einführung des BIA Methodenhandbuchs (*BIA, 1995*) und Übernahme gezielter Arbeitstechniken für die Belange des Arbeitsschutzes gewinnt in Deutschland ganz besonders die Filtrationsmethode an Bedeutung. Die Art der Sammlung nimmt insbesondere Einfluss auf die Überlebensraten der in den Proben enthaltenen Mikroorganismen. Jede Sammelmethode weist spezifische Vor- und Nachteile auf und keine Methode ist geeignet, alle Arten und Konzentrationsbereiche von Mikroorganismen abzudecken.

Die Qualität eines Luftkeimsammelgerätes kann gemessen werden an der physikalischen und biologischen Sammeleffizienz. Die physikalische Sammeleistung bezeichnet die Zahl der aufgefangenen Partikel im Verhältnis zur tatsächlichen Zahl der Partikel im untersuchten Luftvolumen. Der in diesem Zusammenhang benutzte 'cut off-Wert' gibt einen Partikeldurchmesser an, bei dem genau 50% aller vorhandenen Partikel abgeschieden werden. Die Sammeleistung eines Gerätes ist vor allem abhängig von der Geometrie des Lufteinlasses am Gerät (Schlitzform und Größe), von der Entfernung zwischen Lufteinlass und Abscheidemedium und von der Geschwindigkeit des Lufteintritts. Die biologische Sammeleistung ist ein Maß für die Überlebensfähigkeit bzw. Vermehrungsfähigkeit der aufgefangenen Mikroorganismen. Die Aufprallgeschwindigkeiten der Organismen auf ein Nährmedium (20 bis 40 m/s und mehr) und die Austrocknung von Mikroorganismen im Luftstrom sind diesbezüglich ganz wesentliche Stressfaktoren, welche die Größe der Messwerte entscheidend beeinflussen.

Bei Vergleichen zwischen verschiedenen Sammelverfahren zeigen Impinger-Geräte gegenüber vielen Arten von Mikroorganismen die beste Sammeleistung. Diese Geräte haben jedoch Nachteile beim Praxiseinsatz (z.B. zu hohes Gewicht, es besteht keine Möglichkeit zur Erfassung von personenbezogenen Expositionsdaten usw.). Impaktoren sind insbesondere anfällig gegen Austrocknung und ihre biologische Sammeleistung ist sehr stark abhängig vom verwandten Agarnährmedium. Außerdem werden bei hohen Konzentrationen von Mikroorganismen die Petrischalen häufig überladen, so dass es nicht mehr möglich ist, die Anzahl der koloniebildenden Einheiten auszuwerten. Auch bei Filtrationsgeräten ist die Austrocknung der limitierende Faktor für die Probenahmezeit. Die Streubreite der Ergebnisse bezüglich der Sammeleistung und der Anzahl der ermittelten Mikroorganismen kann beträchtlich sein und die Variationsbreite bei Verwendung des Maßstabes KBE (koloniebildende Einheiten) beträgt nicht selten mehrere Zehnerpotenzen. Diese Feststellung betrifft sowohl unterschiedliche Sammelverfahren als auch unterschiedliche Anwender von einzelnen Sammelverfahren.

Seit einigen Jahren gibt es intensive Bestrebungen zu einer Vereinheitlichung der Messverfahren. Hintergrund dieser Bestrebungen ist die EG-Richtlinie 90/679/EWG - Schutz der Arbeitnehmer gegen Gefährdung durch biologische Arbeitsstoffe - aus dem Jahr 1990, die seit Feb. 1999 in Form der Biostoffverordnung in nationales Recht umgesetzt wurde. Um die vielfach unzureichenden Erkenntnisse hinsichtlich der Expositionsverhältnisse von Arbeitnehmern beim Umgang mit biologischen Arbeitsstoffen zu verbessern und zu erweitern, ist es notwendig, dass vermehrt Messungen der Raumluftkonzentration von Mikroorganismen durchgeführt werden. Dabei wird angestrebt, dass mit Hilfe von standardisierten Messverfahren solche Messungen miteinander verglichen werden können. Am 15. November 1996 wurden mit der TRBA 405 (Technische Regeln Biologische Arbeitsstoffe) und 430 (1996) erstmals technische Regeln für eine standardisierte Erfassung von Bakterien und Pilzen (TRBA 430) sowie von Schimmelpilzen und Hefen (TRBA 405) in der Raumluft an Arbeitsplätzen vorgelegt. In der TRBA 405 (Schimmelpilze und Hefen) wird außerdem die Filtrationsmethode zur Durchführung der Messungen empfohlen.

Die Anwendung von denselben oder von ähnlichen Messverfahren aus den Bereichen des Arbeitsschutzes auch für die Erfassung einer Emissions- und Immissionsbelastung durch luftgetragene Mikroorganismen aus Kompostierungsanlagen ist noch offen. Im VDI/DIN innerhalb der "Kommission Reinhaltung der Luft" (KRdL) gibt es seit 1997 verschiedene Unterarbeitsgruppen, die sich u.a. mit diesen Fragestellungen befassen. Die Bestrebungen der Arbeitsgruppen konzentrierten sich zunächst auf die vollständige Erfassung des "Ist-Zustandes" und in einer zweiten Phase wird derzeit angestrebt, dass konkrete Empfehlungen für die Durchführung von Luftkeimmessungen in der Umgebung von Kompostierungsanlagen erarbeitet werden sollen. Die Ergebnisse der Ermittlung des "Ist-Zustandes" findet man bei Eikmann und Hofmann (1999). Es zeigt sich schon heute, dass es mit großer Wahrscheinlichkeit kein einzelnes Messverfahren geben wird, das alle Forderungen, die an die Erfassung von luftgetragenen Mikroorganismen im Umfeld von Kompostierungsanlagen gestellt werden müssen, erfüllen kann.

Neben den zahlreichen Methoden zur Erfassung von lebenden Mikroorganismen werden vereinzelt auch Verfahren zum Nachweis von nicht mehr lebensfähigen bzw. vermehrungsfähigen oder kultivierbaren Mikroorganismen sowie von einzelnen Bestandteilen oder Stoffwechselprodukten der Organismen angewandt. So hat beispielsweise der Nachweis von Endotoxinen, bei denen es sich um Bestandteile von gram-negativen Bakterien aus der Zellmembran handelt, mittlerweile einen Stellenwert erreicht, der eventuell erwarten läßt, dass er ähnlich den MAK-Werten für eine Bewertung des Gesundheitsrisikos an Arbeitsplätzen benutzt werden könnte. Bei Kompostierungsprozessen und hier insbesondere als Bestandteil von emittierten Bioaerosolen spielen Endotoxine wahrscheinlich aber nur eine untergeordnete Rolle. Dies zeigen die Erfahrungen zahlreicher Arbeitsgruppen, die Endotoxine an Arbeitsplätzen in Kompostierungsanlagen bestimmt haben.

Besonders zu erwähnen sind auch die Methoden zum Nachweis einer Gesamtzahl von Organismen (kultivierbare und nicht kultivierbare Organismen). Die Mehrzahl der hierzu vorhandenen Verfahren beruht auf zumeist sehr arbeitsintensiven mikroskopischen Techniken unter Anwendung unterschiedlicher Anfärbungsmethoden. Aber auch relativ neue Techniken wie beispielsweise PCR-Methoden (Polymerase Chain Reaction) zum Nachweis von spezifischen DNA-Bestandteilen ermöglichen Aussagen sowohl über lebende als auch über tote Organismen. Ohne auf weitere Details einzugehen, sollen an dieser Stelle die besonders erwähnenswerten Ergebnisse eines mikroskopischen Verfahrens nach Palmgren et al. (1986) genannt werden. Bei einem Vergleich der Konzentrationswerte ermittelt mit einem

herkömmlichen Kultivierungsverfahren und mit dem mikroskopischen Gesamtzellzahl-Verfahren zeigte sich, dass nur ca. 2% der Zellen, die als Gesamtzellzahl ermittelt wurden, tatsächlich auch kultivierbar waren (*Palmgren, 1998*). Dies könnte also bedeuten, dass die herkömmlichen Methoden zur Erfassung von Luftkeimzahlen unter Anwendung eines Kultivierungsschrittes bereits einen systematischen Fehler beinhalten, der in der Größenordnung eines Faktors von ca. 10^2 zu niedrige Messwerte liefert.

Wie aufwendig die biologische Analytik aufgrund der sehr komplexen Randbedingungen werden kann, soll beispielhaft an einer definierten Messsituation - Beschwerde von Anwohnern einer Kompostierungsanlage - geschildert werden. Die Durchführung der Messung einer Immissionsbelastung in einem solchen Fall würde bedeuten, dass es für eine wenig zuverlässige Beurteilung mindestens 6-10 Messpunkte (2 Punkte luvseitig zur Anlage; 2 Anlagen Messpunkte; 3-6 Messpunkte in Windrichtung und im Beschwerdegebiet) geben müsste. Eine Messkampagne sollte mindestens 3 Messtage umfassen und pro Messpunkt sollten zwischen 5-10 verschiedene Messparameter erfasst werden. Eine statistische Absicherung der Messwerte wäre nur möglich, wenn an allen Punkten bis zu 10 Parallelmessungen durchgeführt würden. Unter weiterer Berücksichtigung des durch die mikrobiologischen Arbeitsmethoden entstehenden Aufwandes (Verdünnungsreihen zur Ermittlung der Organismenkonzentration; Isolierung von einzelnen Organismen oder von Organismengruppen für eine Identifizierung usw.) wird sehr schnell deutlich, dass bereits bei einer nur in kleinem Maßstab durchzuführenden Messung eine große Anzahl von Kulturansätzen benötigt wird. Man muss an dieser Stelle die Frage stellen, ob dieser Aufwand tatsächlich zu rechtfertigen wäre.

5.3 Bewertungskriterien für Messwerte

In der Literatur findet man inzwischen eine gute Datenlage zur Konzentration von Mikroorganismen in der Umgebungsluft von Abfällen oder Kompostmaterialien. Auch für das Umfeld von biologischen Abfallbehandlungsanlagen findet man relativ viele Messwerte zur Immissionsbelastung. Der Tatbestand, dass es trotzdem bis heute weder eine Bewertungsgrundlage für das gesundheitliche Risiko gibt, noch ernst zu nehmende Grenz- oder Richtwerte für eine mikrobielle Luftbelastung erkennbar sind, deutet allerdings an, dass es andere und wahrscheinlich grundlegende Probleme sind, die diesen Zielen entgegenstehen.

Alle bis heute existierenden und oben beschriebenen Messverfahren zur Erfassung der mikrobiellen Luftbelastung sind in der Aussagekraft limitiert, weil die Methoden keine kontinuierlichen Messungen ermöglichen. Das heißt, die meisten der genannten Methoden sind sowohl hinsichtlich der Messstelle als auch des -zeitpunktes als Punktmessungen zu betrachten. Eine Aussage zum zeit- oder ortsabhängigen Konzentrationsverlauf ist kaum möglich. Die Größe des Messwerts ist außerdem sehr stark abhängig von den Kultivierungsbedingungen und dem Wachstum der Mikroorganismen im Kultivierungszwischenschritt. Alternative Verfahren zur Messung von luftgetragenen Mikroorganismen wie z.B. die Verwendung von Burkhard-Sporenfallen oder Methoden zur Erfassung von nicht vermehrungsfähigen Organismen, die prinzipiell für kontinuierliche Messungen besser geeignet sind, beinhalten anderer Nachteile (z.B. mangelhafte Sammeleffizienz, zu hoher Auswertungsaufwand usw.), so dass sie für diese Zwecke ebenfalls nicht verwendet werden können.

Die Wirkungsseite luftgetragener Mikroorganismen auf den Menschen ist ebenfalls äußerst vielfältig. Insbesondere die Charakteristik einer Exposition hinsichtlich der Art der Exposition, der Expositionsdauer und der Höhe der Exposition sind die entscheidenden Bewertungskriterien

diesbezüglich. Trotzdem gibt es bei der Wirkung biologischer Aerosole auf den Menschen keine klaren Dosis-Wirkungsbeziehungen und dem individuellen Zustand des Empfängerorganismus kommt bei der Auslösung einer Infektion oder bei der Entwicklung einer allergischen Symptomatik eine entscheidende Bedeutung zu. Aus vielen Berufssparten ist es bekannt, dass der Umgang mit biologischen Arbeitsstoffen gesundheitliche Konsequenzen nach sich ziehen kann und es gibt zahlreiche Belege (anerkannte Berufskrankheiten wie z.B. Farmerlunge) dafür, dass Menschen an Arbeitsplätzen (Landwirtschaft, Pilzzüchtereien etc.), an denen mit einer erhöhten Exposition von biologischen Aerosolen gerechnet werden muss, einem erhöhten Erkrankungsrisiko unterliegen.

In der medizinischen Mikrobiologie unterscheidet man zwischen obligat pathogenen (z.B. *Mycobacterium tuberculosis*; Infektionserreger der TBC) und opportunistisch bzw. fakultativ (augenblicklich günstig) pathogenen Mikroorganismen. Die pathogenen Wirkungen dieser Organismen können hervorgerufen werden durch Infektion, toxische Wirkungen und Allergien (Deiniger 1993 a + b). Die Gesundheitsrisiken, denen man speziell beim Umgang mit Abfällen ausgesetzt ist, können folgendermaßen zusammengefasst werden:

- Infektionserkrankungen, die durch den Austrag spezifischer Bakterien oder Viren verursacht werden (z.B. pathogene Streptococcen oder Salmonellen)
- Relativ seltene Infektionserkrankungen durch fakultativ pathogene Pilze (z.B. *Aspergillus fumigatus*), die bei einer Schwächung der körpereigenen Abwehr bestimmte Krankheitsbilder (z.B. Aspergillom oder Aspergillose) auslösen können.
- Durch Endotoxine (gram-negative Bakterien) oder andere toxische Substanzen verursachte entzündliche, grippeähnliche Erkrankungen
- Allergische Erkrankungen der Atemwege, für die neben den individuellen, konstitutionellen Faktoren die Expositionshäufigkeit sowie die Konzentration und Beschaffenheit der inhalierten Allergene von Bedeutung sind.

Das Erkrankungsrisiko an Arbeitsplätzen in Kompostierungsanlagen war in den Jahren 1996-1998 Gegenstand einer umfangreichen wissenschaftlichen Studie (*Schappler-Scheele et al., 1998*). Insgesamt etwa 250 Beschäftigte aus 42 Kompostierungsanlagen wurden sowohl einer Befragung zu ihrem Gesundheitszustand als auch intensiven arbeitsmedizinischen Untersuchungen (jeweils zwei Untersuchungen im Abstand von einem Jahr) unterzogen. Im Rahmen der Studie konnte erfreulicherweise kein erhöhtes Erkrankungsrisiko für die Beschäftigten in Kompostierungsanlagen nachgewiesen werden.

Das Ergebnis der Studie ist nach der Auffassung des Umweltbundesamtes jedoch noch nicht ausreichend für eine endgültige Beurteilung des Gesundheitsrisikos an Arbeitsplätzen in Kompostierungsanlagen. So wird beispielsweise weder der Effekt von Langzeitexpositionen hinreichend berücksichtigt, noch gibt es klare Aussagen zum sogenannten "healthy worker effect". Der "healthy worker effect" berücksichtigt, dass die gesundheitliche Bewertung eines auf freiwilliger Basis untersuchten Patienten Klientels, bei dem es sich fast ausschließlich um Personen im aktiven Beschäftigungsverhältnis handelt, unter Umständen zu einem falsch positiven Untersuchungsergebnis führt, weil eine wichtige oder repräsentative Personengruppe bei den Untersuchungen nicht hinreichend mit berücksichtigt werden konnte (Personen, die für die Art der untersuchten Tätigkeit nicht in Frage kommen, weil sie aus gesundheitlichen Gründen nicht dazu geeignet sind und Arbeitnehmer, die zum Zeitpunkt der Untersuchung entweder erkrankt waren oder auf grund von gesundheitlichen Befindlichkeitsstörungen vorzeitig aus der Berufssparte ausgeschieden waren). Eine andere Komponente, um die eine ähnlich geartete Studie erweitert werden sollte, ist der Vergleich zwischen dem objektiv und

subjektiv wahrgenommenen Gesundheitszustand. Laut den Ergebnissen einer ähnlichen Studie des Landesgesundheitsamtes Baden-Württemberg (P.M. Bittighofer–Untersuchungen der gesundheitlichen Gefährdung von Arbeitnehmern in Wertstoffsortieranlagen, 1998) hatte sich dort gezeigt, dass diese Angaben für eine gesundheitliche Bewertung besonders relevant sind. Die Arbeitnehmer aus Wertstoffsortieranlagen und von Deponien bewerteten im Vergleich zu einer Kontrollgruppe von Arbeitnehmern aus der öffentlichen Verwaltung ihren allgemeinen Gesundheitszustand bei einer Befragung besser als diese, sowohl bei den speziell tätigkeitsbezogenen Angaben als auch bei den klinischen Parametern zeigten sich allerdings deutlich schlechtere Werte als bei den Arbeitnehmern der Kontrollgruppe.

Für die Bewertung eines Erkrankungsrisikos bei Anwohnern von Kompostierungsanlagen auf Grund von Immissionsbelastungen müssen wahrscheinlich weitere Faktoren berücksichtigt werden. So ist beispielsweise der Gesundheitszustand der Anwohner anders zu bewerten als der von Beschäftigten in den Anlagen. In der Bevölkerung ist außerdem davon auszugehen, dass der Anteil von Personen, die besonderen Risikogruppen zuzuordnen sind, größer ist. Auf der anderen Seite ist es sehr wahrscheinlich, dass die Expositionsbelastung im Umfeld der Anlagen deutlich geringer ausfällt als im unmittelbaren Wirkungsbereich der Emissionsquellen. Hier ist beispielsweise die Frage zu klären, wie eine lang anhaltende Exposition von niedriger Dosis gegenüber einer kurzzeitigen aber dafür eher hohen Exposition zu bewerten ist. Hinsichtlich der Geruchsbelastung, die von Kompostierungsanlagen ausgeht, muss geklärt werden, inwieweit die hierdurch hervorgerufenen Belästigungsfaktoren zu einer Veränderung der Risikobewertung beitragen.

Eine diesbezüglich durchgeführte Untersuchung im Bundesland Hessen, bei der drei verschiedene Kompostierungsanlagen unter 'worst case Bedingungen' betrachtet wurden (Eikmann *et al.* 1999), hatten zur Folge, dass eine der drei untersuchten Anlagen geschlossen werden musste. Dieses aufsehenerregende Ergebnis führte zu einer starken Verunsicherung sowohl in der Bevölkerung als auch bei den Anlagenbetreibern.

Die Freisetzung und Ausbreitung von Mikroorganismen aus biologischen Abfallbehandlungsanlagen und der diesbezügliche Einfluss auf die Nachbarschaft wird seit vielen Jahren intensiv diskutiert. In vielen Bundesländern gibt es Empfehlungen oder Leitlinien dazu, wie groß die Entfernung zwischen einer Anlage und der nächsten Wohnbebauung und/oder anderen sensiblen Bereichen mindestens sein sollte (beispielsweise Abstandserlass aus NRW [1990]). Es lagen jedoch über lange Zeiten keine Angaben dazu vor, wie groß der Einfluss einer Anlage tatsächlich ist. In den diesbezüglich geführten Diskussionen war beispielsweise immer wieder das Argument zu hören, dass bereits nach sehr kurzen Entfernungen eine so große Verdünnung der emittierten Organismen stattgefunden hat, dass schon bei Abständen zwischen 50-200 Metern keine erhöhten Konzentrationswerte von Mikroorganismen mehr festgestellt werden könnten. Zum Beweis wurden nicht selten Messwerte angeführt. Die Unzulänglichkeit der angewandten Messverfahren hinsichtlich solcher Aussagen wurde allerdings nur selten erwähnt oder diskutiert. Literaturangaben, die einen Anlageneinfluss auch bei größeren Abständen vermuten ließen oder sogar nachweisen konnten, wurden bislang ebenfalls ignoriert.

Mit der Studie "Messungen zur Ausbreitung luftgetragener Keime aus Kompostwerken und Anaerobanlagen" (Gerbl-Rieger *et al.*, 1998) wurde dann eine Untersuchung vorgestellt, aus der hervorgeht, dass der Einfluss der Anlagen über eine Entfernungen von 100-200m hinausreicht. Als Untersuchungsmethode wurden Luftkeimmessungen nach dem Filtrationsverfahren (Sartorius MD8; Gelatinefilter; indirekte Methode) angewandt. In 5 ausgewählten Anlagen (3 Kompostierungs- und 2 Vergärungsanlagen) wurden ca. 40.000

mikrobiologische Einzelmesswerte festgestellt. Im Vergleich zur Hintergrundbelastung (2 Messpunkte luvseitig; 100 m und 200 m Abstand zur Anlage) wurden sowohl Konzentrationswerte in den Anlagen (bis zu 5 Messpunkte: Anlagenhalle, Rottehalle, Tätigkeit, Biofilter) als auch Immissionswerte (bis zu 9 Messpunkte; leeseitig zur Anlage in einem Abstand von 50 m, 100 m, 200 m und 500 m) bestimmt. Als mikrobiologische Parameter wurden Schimmelpilze 22° C, Schimmelpilze 30° C; Aspergillus spp. 45° C, Schwärzepilze 22° C, Schwärzepilze 30° C, Gesamtbakterien 22° C, Gesamtbakterien 37° C, gram-negative Bakterien 37° C, Pseudomonas aeruginosa 37° C, Clostridien 37° C, Actinomyceten 30° C und Actinomyceten 50° C gemessen.

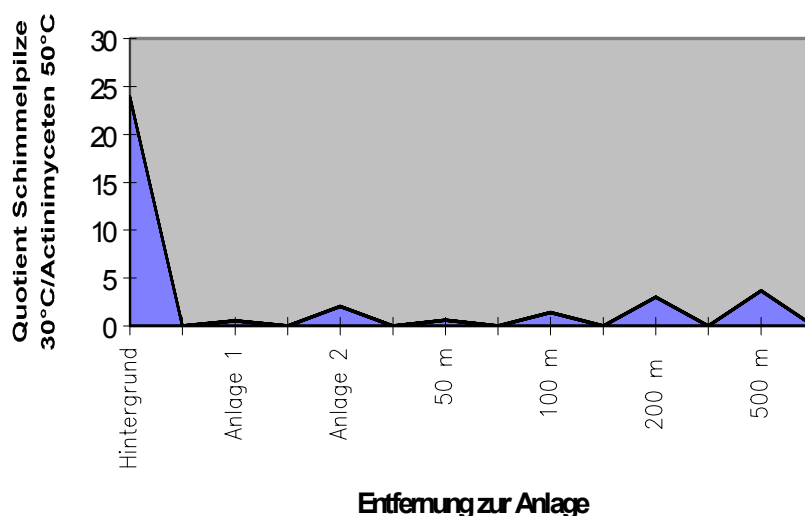


Abbildung 37: Mikrobiologische Immissionsbelastungen im Umfeld biologischer Abfallbehandlungsanlagen nach Gerbl-Rieger et al. (1998); hier: Quotient der Belastungen Schimmelpilze 30° C / Actinomyceten 50° C; Jahresmittelwerte aus 5 Anlagen

Der Einfluss einer biologischen Abfallbehandlungsanlage auf die Nachbarschaft ist besonders gut zu erkennen, wenn die Messwerte bestimmter mikrobiologischer Parameter zueinander ins Verhältnis gesetzt werden. Als besonders geeignet für diese Zwecke wurde die Quotientenbildung der Parameter Schimmelpilze 30° C / Actinomyceten 50° C; Schimmelpilze 22° C / Actinomyceten 50° C und Schimmelpilze 30° C / Gesamtbakterien 37° C bezeichnet. In Abbildung 37 ist der Mittelwert des Quotienten Schimmelpilze 30° C / Actinomyceten 50° C (aus allen Messungen in allen 5 Anlagen) beispielhaft graphisch dargestellt. Das Vorhandensein von thermophilen Actinomyceten (50° C) an den Messpunkten ist ein guter Indikator dafür, dass auch in einem Abstand von 500 Metern zu den Anlagen der Einfluss noch deutlich erkennbar ist. Bei einem Vergleich von offenen und geschlossenen Anlagentypen zeigt sich allerdings erwartungsgemäß, dass der Anlageneinfluss von offenen Anlagen deutlich weiter reicht als bei geschlossenen Anlagen. Bei eingehausten Anlagentypen mit einer Abgabe der Abluft über einen Biofilter konnte der anlagenspezifische Einfluss bis in eine Entfernung von etwa 200 Metern Abstand nachgewiesen werden.

5.4 Emissionsminderungsmaßnahmen

Zusammenfassend ist festzustellen, dass eine biologische Verwertung von Siedlungsabfällen in biologischen Abfallbehandlungsanlagen immer verknüpft ist mit dem Vorkommen von unterschiedlichen Arten von Mikroorganismen. Es konnte gezeigt werden, dass im Verlauf der Behandlungsmaßnahmen eine permanente Freisetzung von Organismen stattfindet, deren gesundheitliches Gefährdungspotential allerdings noch offen ist. Hinsichtlich einer Belastungssituation in der näheren Umgebung von relevanten Anlagen gibt es offensichtlich deutliche Unterschiede je nachdem, ob die Anlagen in baulich offenem oder geschlossenem Zustand betrieben werden. Es ist allerdings weiterhin unklar, ob und inwieweit gesundheitliche Beeinträchtigungen durch die Freisetzung von Mikroorganismen zu erwarten sind. Bezüglich der Expositionsbelastung darf es zunächst als ein positives Signal gewertet werden, dass in einer großen Studie, bei etwa 250 Beschäftigten von Kompostierungsanlagen, die in einem Abstand von etwa 1 Jahr wiederholt untersucht wurden, also bei Personen, die einer relativ hohen Expositionsbelastung unterworfen sind, keine gesundheitlichen Auswirkungen der Exposition festgestellt werden konnten. Andere zu diesem Punkt vorliegenden Untersuchungen kommen allerdings teilweise zu leicht unterschiedlichen Ergebnissen, so dass die diesbezüglichen Bewertungsgrundlagen noch weiter verifiziert werden müssen. Auch wenn bisher keine direkten gesundheitlichen Auswirkungen bei den Anwohnern von Kompostierungsanlagen aufgrund der mikrobiellen Belastungssituation festgestellt werden konnten, so sind an die Höhe der Immissionsbelastung in der Umgebung der Anlagen grundsätzlich strengere Anforderungen zu stellen als an die Belastungssituation an den Arbeitsplätzen.

Nach dem BundesImmissionsSchutzGesetz (§ 5 Abs. 1 Nr. 1. U. 2; BImSchG) gilt grundsätzlich, dass die Anlagen so errichtet und betrieben werden müssen, dass „.....*erhebliche Belästigungen nicht hervorgerufen werden können*“ und „*Vorsorge gegen schädliche Umwelteinflüsse getroffen wird.....*“. Dies bedeutet, dass in Bereichen, in denen die Erheblichkeit einer Belästigung nicht abgeschätzt werden kann, das Vorsorgeprinzip angewendet werden muss. Als Vergleichsmaß für eine Bewertung des Belästigungsfaktors sollte die normale Außenluftqualität herangezogen werden. Während Geruchsbelastungen messtechnisch relativ einfach festgestellt werden können, gibt es für die Messung von Keim- und Mikroorganismenbelastungen weder genormte Verfahren, noch ist etwas dazu bekannt, mit welchem gesundheitlichen Risiko hier gerechnet werden muss. Die Anwendung des Vorsorgeprinzips muss deshalb zunächst so verstanden werden, dass eine Minimierung der Emissionsströme angestrebt wird. Diesem Bemühen sollte bereits bei der Planung einer Anlage Rechnung getragen werden, aber auch technische Maßnahmen beim Anlagenbetrieb oder die Einhaltung von einfachen Hygieneregeln können zu einer Verbesserung der Emissionssituation beitragen. Einen Überblick zu für diese Zwecke geeigneten Maßnahmen findet man in Tabelle 18.

Für eine umweltverträgliche und problemlose Verwertung von Siedlungsabfällen werden Anlagen benötigt, die eine Verwertung ermöglichen, ohne dass es bei dem Betrieb der Anlagen zu neuen Belastungen kommt. Aus dieser Sicht sollte auch die biologische Abfallbehandlung unter der Maßgabe betrieben werden, dass jede Art eines Austrags von Schadstoffen in die Umwelt grundsätzlich vermieden wird. Das Erreichen eines Betriebszustandes von Kompostierungsanlagen ohne zusätzliche Emissionen in die Umwelt erscheint nicht nur technisch möglich, sondern es ist realistisch, dass dieser Zustand durch eine konsequente Anwendung von bereits bestehenden Techniken sogar relativ rasch erreicht werden könnte. Auf diese Art könnten nicht nur zusätzliche Belastungen für Mensch und Umwelt vermieden

werden, sondern auch aus ökonomischer Sicht wäre ein derartiger Betrieb von Anlagen attraktiv, da die Kosten für eine aufwendige Routineüberwachung der Anlagen weitgehend vermieden werden könnten.

Tabelle 18: Einige Maßnahmen zur Verminderung der Emissions- und Immissionsbelastung bei der Planung und beim Betrieb von Kompostierungsanlagen.

Emissionsminderungsmaßnahmen
Anlagenplanung: <ul style="list-style-type: none"> - Geeignete Standortauswahl für Anlagen - Einhaltung von Schutzabständen zur angrenzenden Wohnbevölkerung - Anlagenbetrieb in geschlossenen Systemen - Lüftungstechnische Maßnahmen mit geregelter Ablufterfassung - Reinigung der Abluft über Biofilter, Biowäscher etc. - Berücksichtigung von Immissionsprognosen für den Anlagenbetrieb - Vermeidung diffuser Emissionsquellen (Anlieferung über Schleusen) - etc.
Anlagenbetrieb: <ul style="list-style-type: none"> - Regelmäßige Reinigung der Betriebsflächen und Arbeitsgeräte - Regelmäßige Wartung des Abluftfiltersystems (Biofilter) - Minimierung von freisetzungsrelevanten Tätigkeiten - Minimierung von Staubbelastungen (Staubschürzen, Befeuchten der Kompostmaterialien beim Umgang usw.) - Zeitliche Planung von freisetzungsrelevanten Tätigkeiten nach Immissionsschutzgesichtspunkten (Berücksichtigung der Windrichtung, Tageszeit usw.) - Vermeidung von diffusen Emissionsquellen (offene Hallentore, offene Kompostmieten etc.) - Ordnungsgemäßer Betrieb der Anlagen hinsichtlich geforderter Hygienisierungsbedingungen - Vermeidung von Reinfektionen und Verschleppungen (Schwarz/Weiß-Bereiche der Anlage; Luftführung; Prozesswasser; Arbeitsmaschinen; Fahrzeuge) - etc.

5.5 Literatur

- Abstandserlaß aus NRW - „Immissionsschutz in der Bauleitplanung“ - RdErl.d.Ministers f.Umwelt, Raumordnung und Landwirtschaft vom 21.03.1990 - V B 3 -8804.25.1 (V Nr. 2/90)*
- Anonym; Berufsgenossenschaftliches Institut für Arbeitssicherheit; BIA-Arbeitsmappe 14. Lieferung II/95 “Messverfahren für biologische Agenzien” (1995)*
- Bittighofer P.M.; Untersuchungen der gesundheitlichen Gefährdung von Arbeitnehmern in Wertstoffsortieranlagen; in: Biologische Arbeitsstoffe, Schriftenreihe der Bundesanstalt für Arbeitsschutz und Arbeitsmedizin, Tagungsbericht Tb 88, 119-137 (1998)*
- Conrad M., Kern M., Wiemer K.; Vergleich von mikrobiologischen Emissionen von Bioabfall-, Restmülltonnen und DSD-Säcken, Müll und Abfall 11, 743-750 (1996)*
- Deininger C.; Pathogene Bakterien, Pilze und Viren am Arbeitsplatz; Staub-Reinhaltung der Luft 53, 293-299 (1993)*
- Deininger C.; Gefährdungen durch biologische Agenzien am Arbeitsplatz. Berufsgenossensch. Inst. F. Arbeitssicherheit (BIA)-Handbuch 21. Lfg., X, 1-11 (1993)*
- Diehl K., Hofmann R.; Literaturstudie zu Hygieneproblemen von Kompostierungsanlagen unter Berücksichtigung der möglichen Gesundheitsgefahren in der Nähe lebender Anwohner; WaBoLu Heft des Umweltbundesamtes 11/96 (1996)*
- Eikmann Th., Hofmann R.; Stand von Wissenschaft, Forschung und Technik zu siedlungshygienischen Aspekten der Abfallentsorgung und -verwertung; Tagungsband, Hsg. Schriftenreihe des Vereins für Wasser, Boden und Lufthygiene Band 104 und Kommission Reinhaltung der Luft (KRDL) im VDI und DIN Band 30 (1999)*
- Eikmann Th., Kämpfer P. et al.; Abschlußbericht des Forschungsvorhabens - Epidemiologische Untersuchungen bei Anwohnern von 3 verschiedenen Kompostierungsanlagen in Hessen und Erfassung der Konzentration von luftgetragenen Mikroorganismen sowie von MVOC im Umfeld der Anlagen; Veröffentlichung des Abschlußberichts voraussichtlich (1999)*
- Gerbl-Rieger S., Fanta D., Danneberg G., Thelen R., und Simon R.; Messungen zur Ausbreitung luftgetragener Keime aus Kompostwerken und Anaerobanlagen; in: Tagungsband der Deutschen Veterinärmedizinischen Gesellschaft e.V. “Gesundheitliche Risiken durch Keimemissionen bei Einsammeln, Transport und Verarbeitung häuslicher Abfälle, 25. Und 26. März, Seiten 115-148 (1998)*
- Palmgren U., Ström G., Malmberg P., Blomquist G.; The Nucleopore Filter Method: A Technique For Enumaration of Viable and Nonviable Airborne Microorganisms; Am. J. Ind. Hyg. 10, 325-327 (1986)*
- Palmgren U.; persönliche Mitteilung (1998)*
- Schappler-Scheele B., Schürmann W., Hartung J., Benning Ch., Missel K.; Abschlußbericht des Forschungsvorhabens “Untersuchung der gesundheitlichen Gefährdung von Arbeitnehmern der Abfallwirtschaft in Kompostierungsanlagen” von der Bundesanstalt für Arbeitsschutz und Arbeitsmedizin (Projekt Nr. 04.006; 1998)*
- TRBA (Technische Regeln Biologische Arbeitsstoffe) vom Ausschuß für biologische Arbeitsstoffe (ABAS) des Bundesministeriums für Arbeit und Sozialordnung (15.11.1996) 405 “Anwendung von Messverfahren für luftgetragene biologische Arbeitsstoffe”430“ Verfahren zur Bestimmung der Schimmelpilz/ Hefenkonzentration in der Luft am Arbeitsplatz”*

6. EIN BEITRAG ZUR CHARAKTERISIERUNG DES SEEKLIMAS AN DER DEUTSCHEN NORDSEEKÜSTE

*Carsten Stick, Siegfried Beilke, Karin Uhse, Antje Adolphsen, Eckhard Hundhausen,
Markus Wallasch und Rainer Berg*

Carsten Stick, Eckhard Hundhausen: Institut für Medizinische Klimatologie der Christian-Albrechts-Universität zu Kiel

Siegfried Beilke, Karin Uhse, Markus Wallasch: Umweltbundesamt, Messnetzzentrale Langen

Antje Adolphsen: Umweltbundesamt, Messstelle Westerland

Rainer Berg: Umweltbundesamt, Pilotstation

6.1 Einleitung

Die Seeluft gilt als Synonym für unbelastete saubere Luft, während die Luftverschmutzung als typisch für städtische Gebiete und für Industriezentren angesehen wird. Im folgenden Beitrag werden die Konzentrationen einiger typischer Luftschadstoffe (Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid und Ozon) verglichen, die an zwei Stationen des Umweltbundesamtes gemessen wurden, nämlich an der Küstenstation in Westerland auf der Nordseeinsel Sylt und an der städtischen Station in Frankfurt am Main.

6.2 Schwefeldioxid und Stickstoffdioxid

Die über den Zeitraum 1988 bis 1997 gemessenen Konzentrationen von Schwefeldioxid und Stickstoffdioxid sind an der Küste wesentlich geringer als beispielsweise in der Stadt Frankfurt am Main (Abbildung 38). Die mittleren Konzentrationen beliefen sich in Westerland auf etwa $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für SO_2 und rund $9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für NO_2 bzw. etwa $24 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für SO_2 und etwa $70 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für NO_x in Frankfurt. Selbst im Ballungsgebiet übertreffen die Konzentrationen für diese Verbrennungsindikatoren die empfohlenen Grenzwerte für die Luftqualität nicht.

An der Küste sind die Konzentrationen vernachlässigbar gering und bei Seewind kaum noch zu messen (Abbildung 39). Leicht erhöhte Schwefeldioxidkonzentrationen ($>20 \mu\text{g}/\text{m}^3$) wurden zwischen 1993 und 1997 in Westerland nur noch in Luftmassen gemessen, die vor ihrer Ankunft auf Sylt starke SO_2 -Emissionsgebiete in Brandenburg, Sachsen, Sachsen-Anhalt sowie Tschechien und Polen überquert hatten, wie Abbildung 40 deutlich zeigt. Die Zuordnung der auf Sylt gemessenen täglichen NO_2 -Konzentrationen zur jeweils herrschenden lokalen Windrichtung zeigt in dem Polardiagramm der Abbildung 42 ebenfalls eine deutliche Abhängigkeit von der Windrichtung. Wie beim SO_2 sind auch beim NO_2 die Konzentrationen bei Wind aus westlichen bis nördlichen Richtungen am geringsten. Bei Landwind fällt auf, dass Tage mit Konzentrationen unter $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ praktisch fehlen.

Im Gegensatz zu SO_2 , wo die höchsten Konzentrationen bei Luftmassentransporten aus Südost beobachtet werden, traten die höchsten NO_2 -Konzentrationen auf Sylt in Luftmassen aus Südwest auf, d.h. in Luft, die auf ihrem Weg nach Sylt zuvor Gebiete mit hohen Emissionen von Stickoxiden (Großraum Paris, London, Belgien, Niederlande, Ruhrgebiet) überquert haben (siehe Abbildung 41).

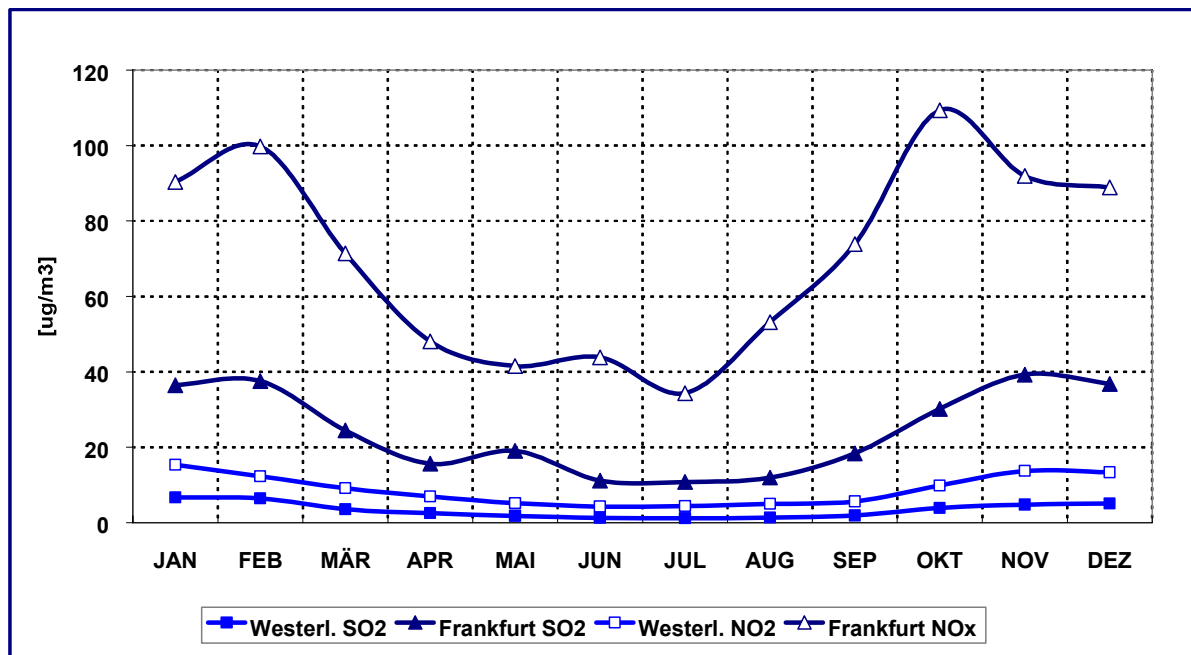


Abbildung 38: Mittlere Jahressgänge der Schwefeldioxid- und Stickstoffdioxidkonzentration in Westerland/Sylt und in Frankfurt/Main. Dargestellt sind die Mittelwerte aus den Jahren 1988 bis 1997. Die Werte zeigen deutliche jahreszeitliche Schwankungen. Durchgehend sind die Konzentrationen in Westerland erheblich geringer als in Frankfurt.

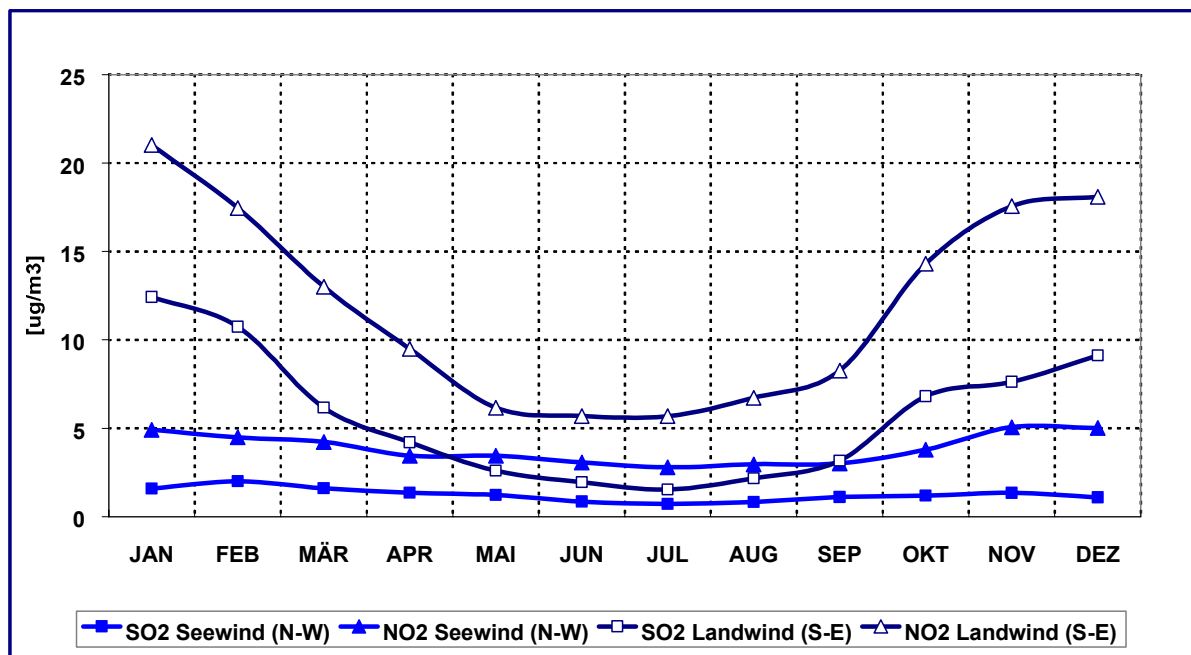


Abbildung 39: Mittlere Jahressgänge der Schwefeldioxid- und Stickstoffdioxidkonzentration in Westerland/Sylt bei Seewind (Sektor Nordwest) und bei Landwind (Sektor Südost). Bei Seewind sind die Konzentrationen für beide Schadstoffe nicht nur jeweils erheblich geringer, sondern es sind auch die jahreszeitlichen Schwankungen weniger ausgeprägt als bei Landwind. Beim Vergleich mit Abbildung 38 ist der kleinere Bereich der Y-Skala zu berücksichtigen.

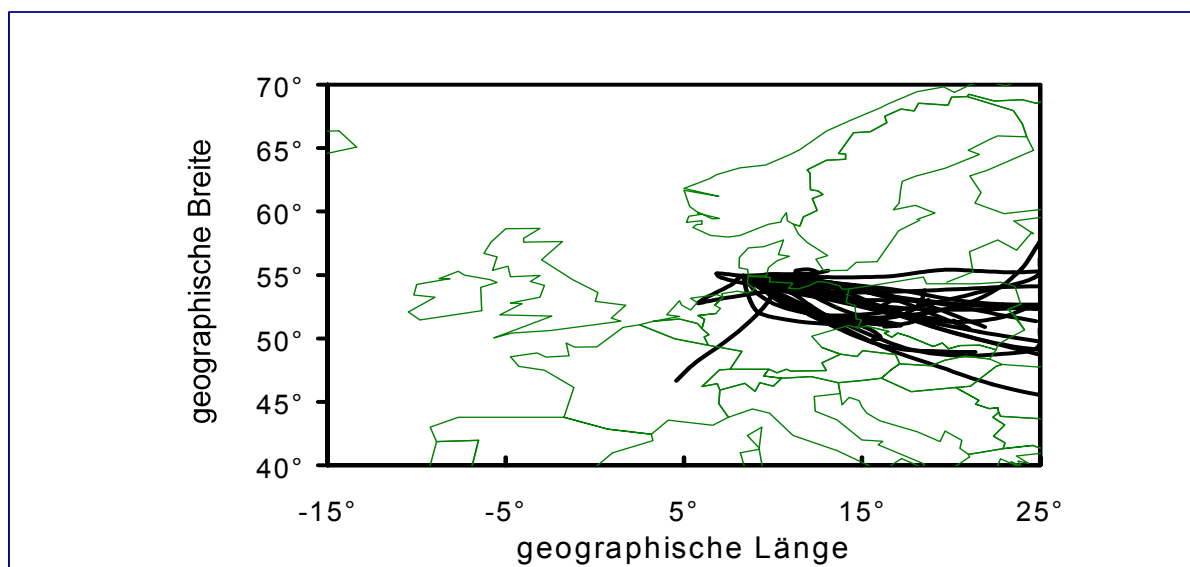


Abbildung 40: Rückwärtstrajektorien für Tage in 1993 bis 1997, an denen die Schwefeldioxidkonzentrationen in Westerland $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ überschritten. Dargestellt sind die aus den Windfeldern der Nordhemisphäre rekonstruierten Zugbahnen der Luftmassen während der letzten 2 Tage vor Erreichen des Messortes. Es wird deutlich, dass Luft mit erhöhten SO_2 -Konzentrationen während dieser Zeit ausschließlich das europäische Festland, vor allem Brandenburg, Sachsen, Sachsen-Anhalt sowie Tschechien und Polen überquert hat.

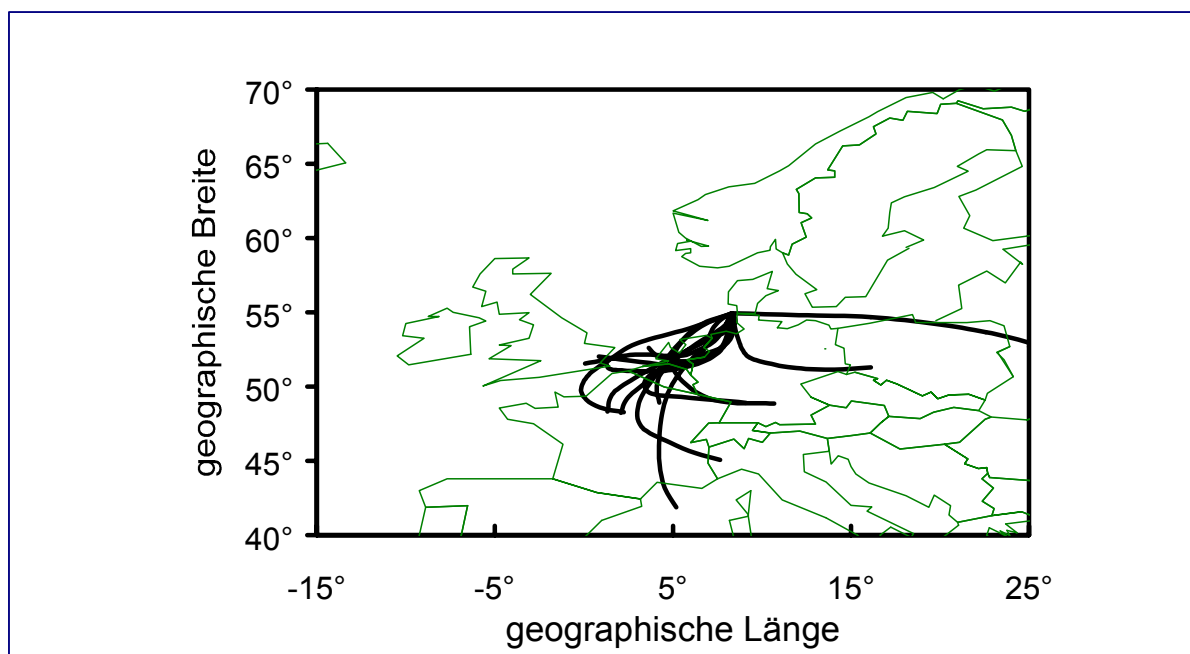


Abbildung 41: Rückwärtstrajektorien für Tage in 1993 bis 1997, an denen die Stickstoffdioxidkonzentrationen in Westerland $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ überschritten. Dargestellt sind die aus den Windfeldern der Nordhemisphäre rekonstruierten Zugbahnen der Luftmassen während der letzten 2 Tage vor Erreichen des Messortes.

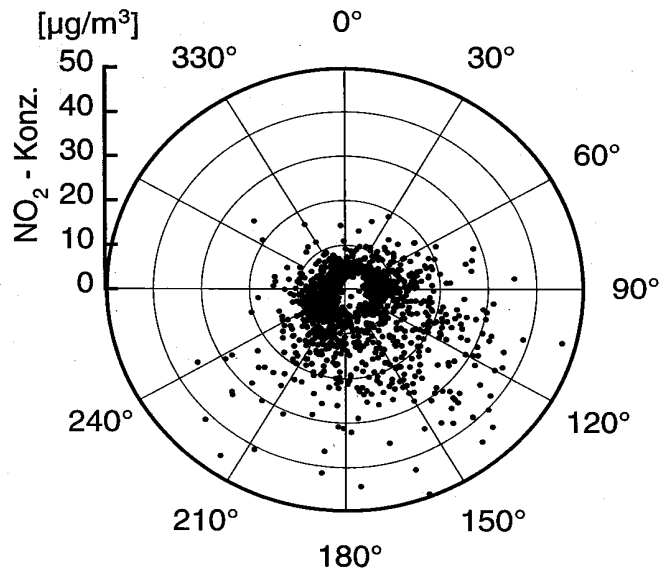


Abbildung 42: Zuordnung der 1803 von 1993 bis 1997 gemessenen Tagesmittel der NO_2 -Konzentration zu den korrespondierenden lokalen Windrichtungen im Polardiagramm. Fünf Werte aus dem Sektor 90° bis 210° liegen oberhalb des dargestellten Konzentrationsbereichs. Die höchsten NO_2 -Konzentrationen wurden bei Winden aus östlichen, südlichen bis südwestlichen Richtungen etwa zwischen 90° und 240° gemessen (Landwind). Bei Winden aus westlichen und nördlichen Richtungen (Seewind) sind die Konzentrationen deutlich geringer. Bemerkenswert ist ein asymmetrisch um den Nullpunkt gelegener Bereich, in dem sich speziell bei Landwind keine Messwerte finden.

6.3 Ozon

Die Ozonkonzentrationen dagegen weisen ein völlig gegensätzliches Verhalten zu SO_2 und NO_2 auf (Abbildung 43). Die mittleren Konzentrationen (Jahresmittel von 1984 bis 1997) sind in Westerland höher ($58 \mu\text{g}/\text{m}^3$) als in Frankfurt ($25 \mu\text{g}/\text{m}^3$). Wenn der Wind in Westerland von See weht, sind die Werte zudem noch höher und die täglichen Schwankungen sind weniger ausgeprägt (siehe Abbildung 44). In Frankfurt dagegen - und in geringerem Ausmaß auch bei Landwind in Westerland - zeigt die mittlere Ozonkonzentration einen typischen Tagesgang mit minimalen Werten am Morgen und Spitzenwerten am frühen Nachmittag (Abbildung 43).

Das erhöhte Ozonkonzentrations-Niveau in Westerland lässt sich hauptsächlich der nordhemisphärischen Ozonhintergrundbelastung zuschreiben, welche in der freien Troposphäre der mittleren Breiten herrscht (siehe auch Abbildung 45). Luftmassen, die vor Erreichen der Messstelle keinerlei Landkontakt hatten, führen zu Ozon-Tagesmitteln von $79 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und Tagesmaxima von $89 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (jeweils als Median). Für die geringeren Konzentrationen in Frankfurt ist der Ozonabbau durch katalytisch wirksame Substanzen verantwortlich. Diese Substanzen sind in der Stadt im Überschuss vorhanden. Sie werden hier hauptsächlich durch den Straßenverkehr emittiert, während sie in der unbelasteten Luft an der Küste weitgehend fehlen. Daher treten hier Tage mit Ozonmaxima von unter $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ nur auf, wenn die Luftmassen zuvor dichtbesiedelte Regionen überquerten, wie Abbildung 46 zeigt.

Stundenmittel über $160 \mu\text{g}/\text{m}^3$ Ozon werden in Westerland ebenfalls nur erreicht, wenn die Luftmassen vorher über dichtbesiedelte Regionen des europäischen Festlands oder Englands zogen, wie in Abbildung 47 zu sehen ist. Weit überdurchschnittliche sowie weit unterdurchschnittliche Ozonkonzentrationen an der Küste stammen also ausnahmslos aus

Luftmassen, die durch Emissionen über dem Festland kontaminiert wurden – ähnlich wie bei erhöhten Konzentrationen von SO_2 und NO_2 .

Trotz der höheren mittleren Ozonkonzentrationen an der See sind die Werte so niedrig, dass gesundheitsgefährdende Wirkungen mit aller Wahrscheinlichkeit ausgeschlossen werden können. Insgesamt kann die Qualität der Luft an der deutschen Nordseeküste nach unseren Messungen auf Sylt als sehr gut bezeichnet werden.

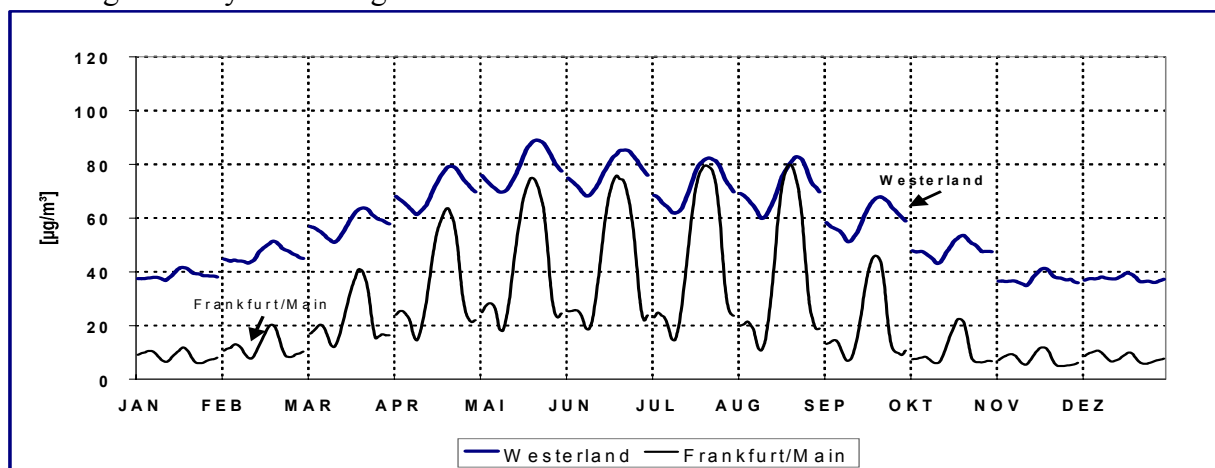


Abbildung 43: Mittlere monatliche Tagesgänge der Ozonkonzentrationen in Westerland und Frankfurt aus den Jahren 84 bis 97. Abgebildet sind die von 1 bis 24 h für jede Stunde des Tages über den jeweiligen Monat gemittelten Werte. In Westerland schwanken die Ozonkonzentrationen im Tagesverlauf vergleichsweise wenig. In Frankfurt zeigen sich dagegen sehr markante Tagesschwankungen. Im Sommer sind die Tagesgänge stark, im Winter gering ausgeprägt.

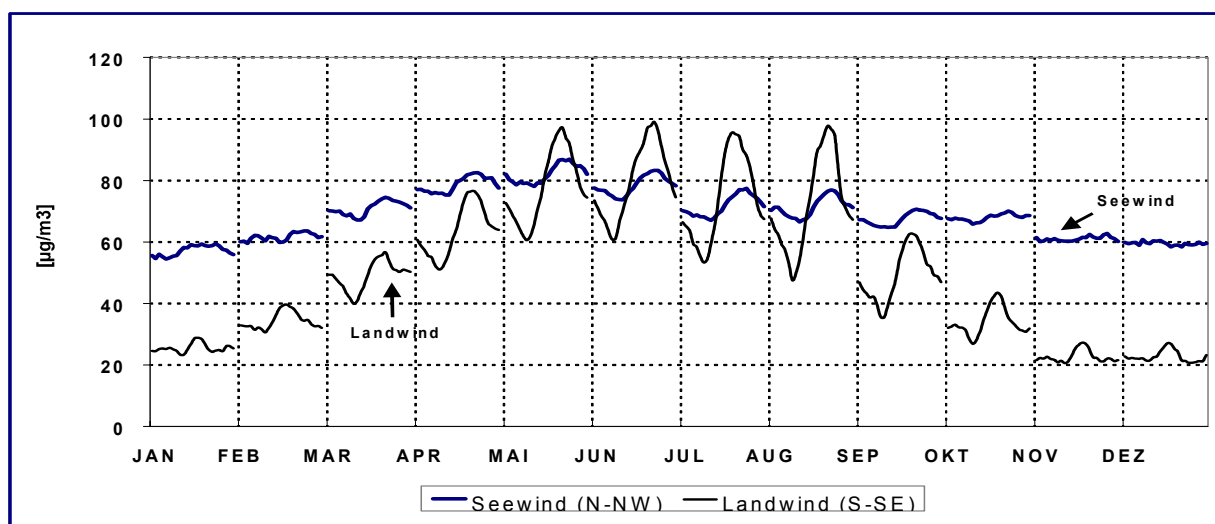


Abbildung 44: Mittlere monatliche Tagesgänge der Ozonkonzentrationen in Westerland bei Seewind (Sektor Nordwest) und bei Landwind (Sektor Südost). Während die Ozonkonzentration bei Seewind nur geringe Tagesschwankungen auf einem vergleichsweise hohen Niveau zeigt, sind die Änderungen bei Landwind sowohl im Tages-, als auch im Jahresverlauf stärker.

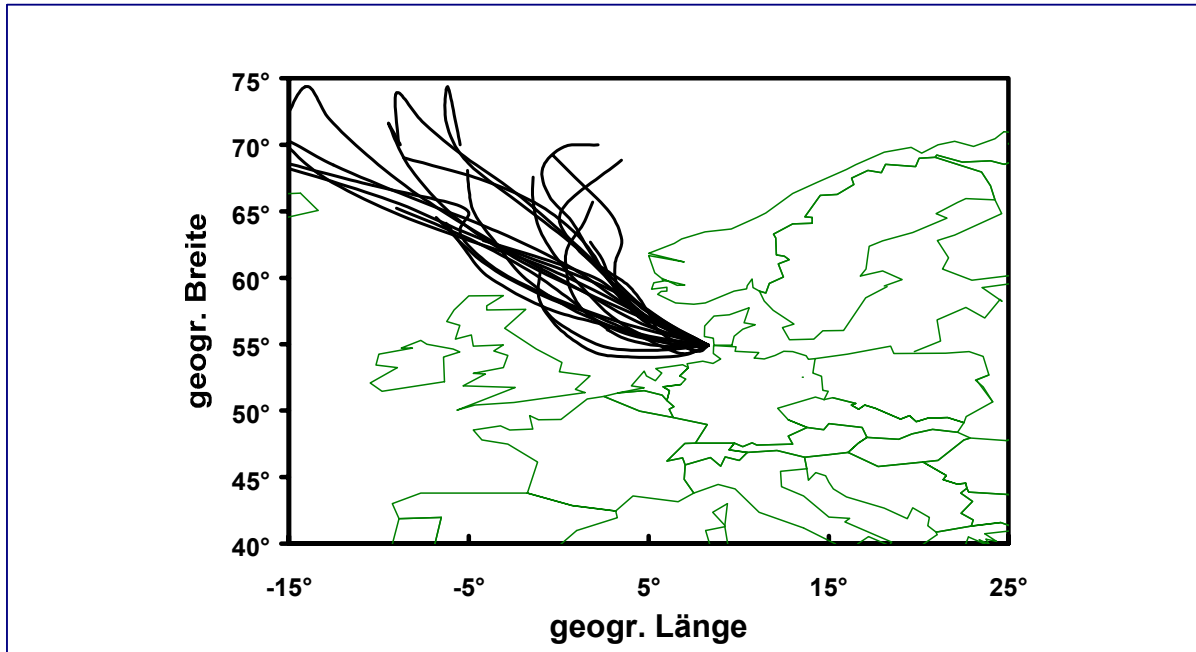


Abbildung 45: Rückwärtstrajektorien aus dem Jahr 1995 für solche Luftmassen, die während der 2 Tage vor Eintreffen auf Sylt ausschließlich über See gezogen sind. Der Median der Ozonkonzentrationen in Luftmassen, die diesen Zugbahnen folgten, lag bei $79 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für die Tagesmittel, für die Tagesmaxima bei $89 \mu\text{g}/\text{m}^3$ während die Mediane der Tagesmittel für SO_2 und NO_2 lediglich $0.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (SO_2) bzw. $2.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (NO_2) betrugen.

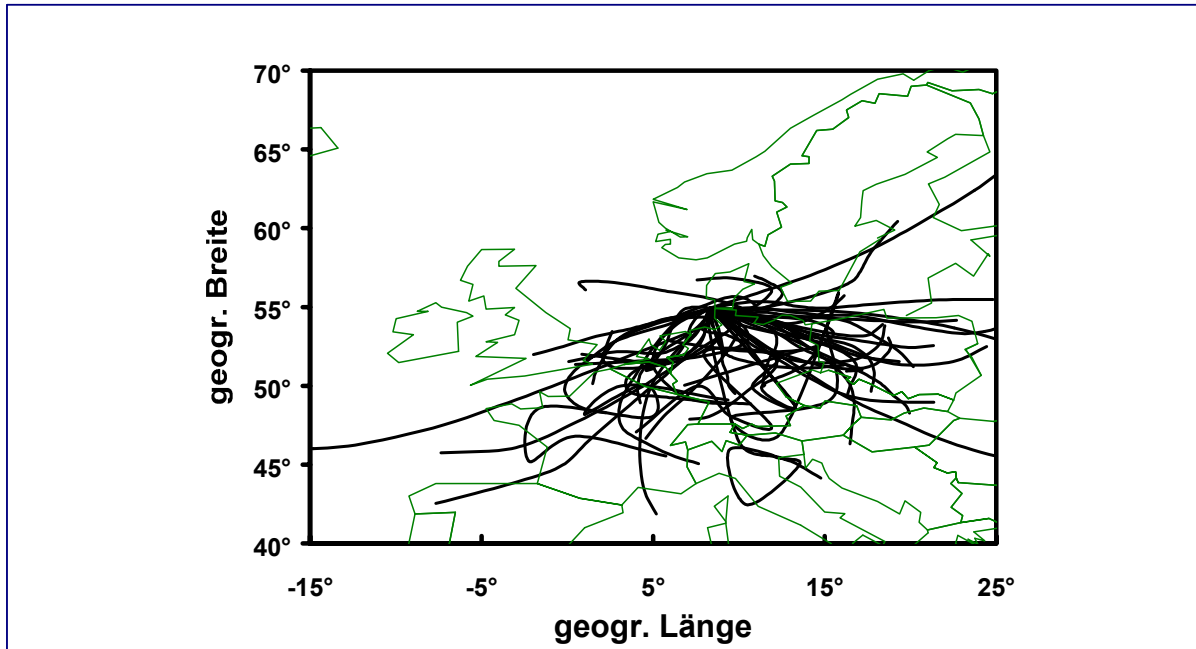


Abbildung 46: Rückwärtstrajektorien für Tage, an denen das höchste Stundemittel der Ozonkonzentration in Westerland maximal $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ betrug (1993 bis 1997). Dargestellt sind die aus den Windfeldern der Nordhemisphäre rekonstruierten Zugbahnen der Luftmassen während der letzten 2 Tage vor Erreichen des Messortes. Es wird deutlich, dass Luft mit geringen Ozonkonzentrationen während dieser Zeit nahezu ausschließlich das europäische Festland überquert hat.

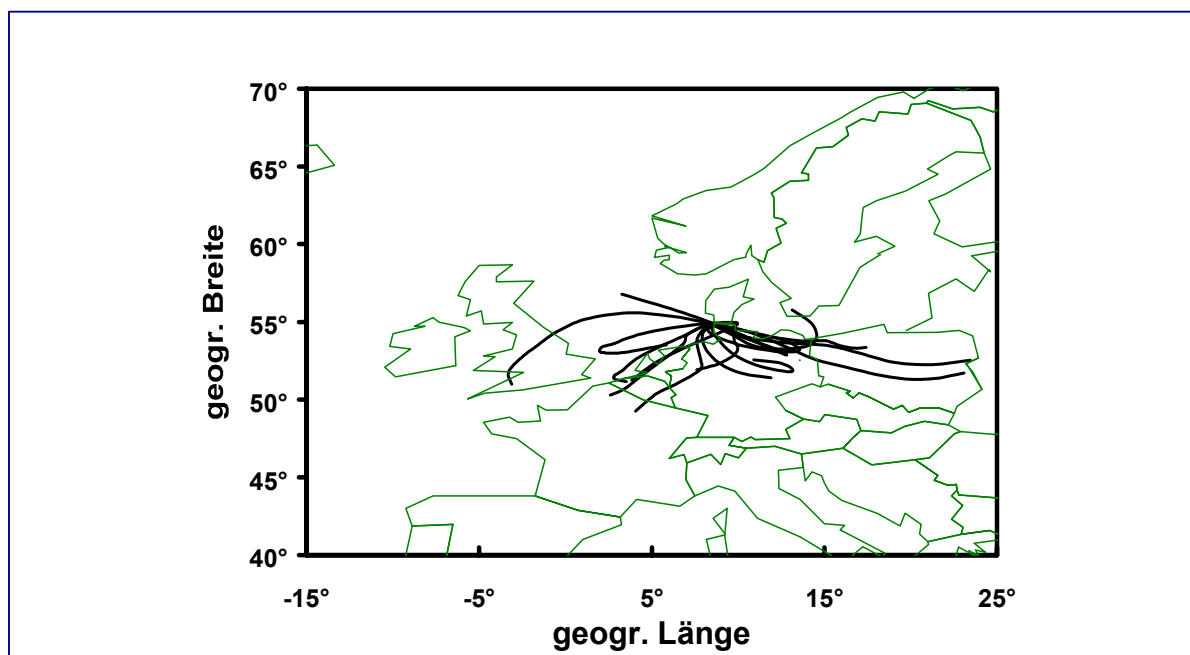


Abbildung 47: Zugbahnen für Luftmassen, bei deren Eintreffen am Messort erhöhte Ozonkonzentrationen von über $160 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Stundenmittel gemessen wurden. Es ist zu erkennen, dass die Luft in diesen Fällen während der vorangegangenen 2 Tage dichtbesiedelte Regionen Südenglands und Mitteleuropas überquert hat. Für die über der Nordsee abbrechende Trajektorie zeigt eine über 5 Tage zurückreichende Analyse, dass die Luftmassen ebenfalls den europäischen Kontinent überquert hatten.

6.4 Literatur

- Stick C, Beilke S, Adolphsen A, Hundhausen E, Pielke L, Uhse K. Die lufthygienische Charakterisierung des Seeklimas an der deutschen Nordseeküste im Vergleich zum Binnenland. *Physikalische Medizin - Rehabilitationsmedizin - Kurortmedizin*, Heft 3, 8. Jahrgang, Juni 1998, S. 75-83
- Stick C, Beilke S, Uhse K, Adolphsen A, Hundhausen E, Wallasch M. Die lufthygienische Situation an der deutschen Nordseeküste im Hinblick auf SO_2 und NO_2 . *Physikalische Medizin - Rehabilitationsmedizin - Kurortmedizin*, Heft 10, 2000, S. 176-183
- Stick C, Beilke S, Uhse K, Adolphsen A, Hundhausen E, Wallasch M. Ist Ozon ein geeignetes Maß, um die Luftqualität zu beurteilen? *Physikalische Medizin - Rehabilitationsmedizin - Kurortmedizin*, 2001, zur Veröffentlichung eingereicht
- Olson M P, Oikawa K K, Macafee A W. A trajectory model applied to the long range transport of air pollutants: a technical description and some model intercomparisons. *Tech. Rep. LRTAP 78-4, Air Quality and Inter-Environmental Research Branch, Atmospheric Environment Service, Downsview, Ontario, Canada, 1978*

7. DIE UV-STRAHLUNG IN DEUTSCHLAND

Siegfried Beilke und Markus Wallasch

7.1 Einleitung

Der besorgniserregende Abbau der stratosphärischen Ozonschicht, hauptsächlich hervorgerufen durch vom Menschen erzeugte chlor- und bromhaltige Verbindungen (z.B. FCKW, Halone), führt mit hoher Wahrscheinlichkeit zu einem Anstieg der ultravioletten Sonnenstrahlung an der Erdoberfläche und damit zu einer Gefährdung der Biosphäre.

Die größte Ozonabnahme wurde seit den frühen 80er Jahren über der Antarktis ("Ozonloch") mit bis zu 60% Ozonverlust gegenüber dem Ozongehalt vor 1980 beobachtet. Deshalb verwundert es nicht, dass eine Zunahme der bodennahen UV-Strahlung (genauer: der UV-B-Strahlung) als Folge der abnehmenden stratosphärischen Ozongehalte zuerst über der Antarktis und in deren Einflussbereich gemessen wurde (*Ref. 1*). Inzwischen wurde eine inverse Beziehung zwischen abnehmenden Ozongehalt und zunehmender UV-Strahlung auch für andere Regionen unserer Erde nachgewiesen (*Ref. 2, 3, 4*).

Eine zunehmende UV-Strahlung wirkt schädigend auf das Wachstum und die Entwicklung von Mikroorganismen (Plankton), Pflanzen und Tieren und kann zur Erhöhung von Erkrankungen beim Menschen führen.

Vor dem Hintergrund des auch über Europa beobachteten Abbaus der stratosphärischen Ozonschicht soll im Folgenden der heutige Wissensstand bezüglich der räumlichen Verteilung und der zeitlichen Entwicklung der UV-Strahlung in Deutschland dargestellt werden.

7.2 Allgemeine Grundlagen

Die von der Sonne emittierte optische Strahlung umfasst ein weites Spektrum. Sie reicht vom langwelligen Infrarot (IR) über die sichtbare Strahlung bis hin zur kurzwelligen ultravioletten Strahlung (UV). Die UV-Strahlung wiederum wird unterteilt in drei Bereiche: UV-A, UV-B und UV-C (Tabelle 19):

Die sehr kurzwellige Strahlung im UV-C-Bereich wird durch molekularen Sauerstoff (O₂) und Ozon (O₃) bereits in größeren Höhen (Stratosphäre und Mesosphäre) absorbiert und erreicht den Erdboden nicht. Im UV-B-Bereich zwischen 290 und 320 nm wird etwa 90% der extraterrestrischen Strahlung durch das atmosphärische Ozon absorbiert, im Wesentlichen in der Stratosphäre, und nur etwa 10% erreichen die Erdoberfläche. Dagegen gelangt das UV-A fast ungeschwächt zur Erdoberfläche.

Der UV-Anteil (UV-A und UV-B) macht etwa 6% der gesamten solaren bodennahen Strahlungsenergie aus. Obwohl der UV-B-Anteil an der gesamten Sonnenstrahlung mit weniger als 1% außerordentlich gering ist, sind dessen schädigende Wirkungen in der Biosphäre am größten.

Tabelle 19: *Einteilung der UV-Bereiche: 1 Nanometer(nm) entspricht 10^{-9} Meter (m).*

UV-Bereich	Wellenlänge	UV-Durchlässigkeit der Atmosphäre
UV-A	320-400 nm	Gelangt fast vollständig auf die Erdoberfläche
UV-B	290-320 nm	Wird zu etwa 90% in der Atmosphäre durch O ₃ absorbiert
UV-C	200-290 nm	Wird fast vollständig in der Atmosphäre durch O ₂ und O ₃ absorbiert

Die aus dem interplanetaren Raum eintreffende UV-Strahlung wird auf ihrem Weg durch die Atmosphäre zum Erdboden auf vielfache Weise durch Absorption und Streuung an Gasmolekülen, Aerosolteilchen und Wolkentröpfchen sowie durch Rückemission beeinflusst. Ein großer Teil der UV-B-Strahlung gelangt somit nicht direkt, sondern nach Streuung in der Atmosphäre indirekt auf die Erde. Die Streuung der direkten Sonnenstrahlung erzeugt die diffuse Himmelsstrahlung. Die Summe von direkter und diffuser Sonnenstrahlung wird als Globalstrahlung bezeichnet. Die diffuse Strahlung liefert bei allen Sonnenhöhen den dominierenden Beitrag zur UV-Strahlung. (Ref. 5)

7.3 Einflussfaktoren der bodennahen UV-B-Strahlung

Neben dem gesamten Ozongehalt der Atmosphäre werden die in Bodennähe gemessenen UV-Spektren auch durch andere Einflussgrößen wie beispielsweise Sonnenstand, Höhe der Station, Bewölkung, vertikale Verteilung des Ozons, Gehalt an Aerosolen und Spurengasen sowie die Rückstreuung am Erdboden (Albedo) bestimmt.

7.3.1 Ozon

Die Absorption im UV-B-Bereich ist stark wellenlängenabhängig, wobei die kürzeren Wellenlängen entsprechend der Zunahme der Werte für den Ozon-Absorptionskoeffizienten wesentlich stärker absorbiert werden als die längeren. Im Bereich zwischen 320 und 290 nm fällt die globale Bestrahlungsstärke mit abnehmenden Wellenlängen (zunehmende Energie der Lichtquanten) um mehr als 5 Zehnerpotenzen ab. Im Gegensatz zum UV-B absorbiert Ozon im UV-A-Bereich kaum.

7.3.2 Sonnenwinkel

Den größten Einfluss auf das bodennahe UV-B hat die Sonnenhöhe, die von der geographischen Breite sowie von der Tages- und Jahreszeit abhängt. Mit zunehmender Sonnenhöhe nimmt auch die UV-Strahlung zu, da der Lichtweg durch die Atmosphäre kürzer wird.

Die größte Sonnenhöhe zur Mittagszeit auf einer geographischen Breite von 50° N (z.B. Frankfurt/M) wird mit 63° um den 21. Juni erreicht, die niedrigste Sonnenhöhe zur Mittagszeit mit ca. 16° um den 21. Dezember.

7.3.3 Höhe über NN

Die Höhe über NN stellt eine zusätzliche geographische Einflussgröße für die Bestrahlungsstärke dar.

Da die südlichen Regionen in Deutschland im Allgemeinen höher gelegen sind als die norddeutschen Flachlandstationen, ergibt sich hieraus eine Verstärkung des breitenabhängigen Süd-Nord-Gefälles.

7.3.4 Bewölkung

Die Bewölkung übt für mittlere nördliche Breiten neben dem Sonnenstand den zeitlich wie räumlich am stärksten variierenden Einfluss auf die UV-Strahlung aus. Dabei spielen unter anderem Bedeckungsgrad, Wolkenart, Wolkenhöhe und Mächtigkeit sowie mikrophysikalische Wolkenparameter eine Rolle. Diese Größen lassen sich nur statistisch erfassen und ihr Einfluss auf die UV-Strahlung ist im Einzelnen theoretisch nur unvollständig beschreibbar.

Modellrechnungen sowie Satellitenmessungen scheinen zu zeigen, dass die Strahlungsschwächung durch Wolken in geringem Maße von der Wellenlänge abhängt (*Ref. 2, 6*).

7.3.5 Aerosole und Spurengase

Das atmosphärische Aerosol beeinflusst die bodennahe UV-Strahlung durch Streuung und Absorption. Des Weiteren kann das Aerosol durch Abbau des stratosphärischen Aerosols (z.B. nach Vulkanausbrüchen) die bodennahe UV-B-Strahlung indirekt beeinflussen. Die bodennahe UV-Strahlung kann durch Änderungen des atmosphärischen Aerosolgehaltes erhöht oder vermindert werden. Etwa 99% des atmosphärischen Aerosols befindet sich in der Troposphäre und nur etwa 1% in der darüber liegenden Stratosphäre. Obwohl sich nur 10% des Ozons in der Troposphäre befinden, schwächt dieses Ozon wegen der starken Streuung der UV-Strahlung am Aerosol infolge des größeren Lichtweges wahrscheinlich die UV-B-Strahlung stärker als es seinem geringen Anteil von nur 10% entspricht (*Ref. 7*).

Neben Ozon absorbieren auch andere Spurengase (z.B. SO_2 , NO_2) Sonnenstrahlung im UV-B-Bereich. Deren Einfluss auf die UV-B-Strahlung ist jedoch vernachlässigbar gering.

7.3.6 Albedo

Auf den nichtpolaren Breiten der Nordhalbkugel liegt die Reflektivität der Erdoberfläche (Albedo) im UV-Bereich unterhalb von 10% für die meisten Oberflächen und meteorologischen Bedingungen (*Ref. 2*). Ausnahmen bilden Schnee- und Wasserflächen, wo die Albedo-Werte größer sein können. Die mittels Satelliten gemessenen Reflexivitäten liegen zwischen 2% über vegetations-bedeckten Landoberflächen und etwa 8% über Teilen der Wüste Sahara. Mit 10 bis 90% der einfallenden UV-B-Strahlung reflektieren Schneeflächen am stärksten.

7.4 Messungen der UV-Strahlung

Zuverlässige UV-B-Messdaten existieren wegen erheblicher messtechnischer Probleme erst ab Ende der 80er Jahre. Die vor dieser Zeit fast ausschließlich mittels integraler UV-B-Messungen (z.B. Robertson-Berger-Spektrometer) gewonnenen Daten sind angesichts der erheblichen zeitlichen Variabilität und der vergleichsweise sehr geringen UV-B-Zunahme nicht geeignet, eine Zunahme von UV-B als Folge der stratosphärischen Ozonabnahme nachzuweisen. Hierfür werden Spektralradiometer benötigt, die in schmalen Wellenlängenintervallen das gesamte UV-B-Spektrum aufnehmen können (z.B. Bentham 150, 300 M-Spektralradiometer). Seit Ende der 80er-Jahre wurden weltweit eine Vielzahl von Messungen mit Spektralradiometern durchgeführt (*Ref. 2*).

7.4.1 UV-Messungen in Deutschland

Seit Juli 1993 betreibt das Umweltbundesamt (UBA) gemeinsam mit dem Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) ein UV-Messnetz zur kontinuierlichen, spektral aufgelösten Messung der bodennahen solaren UV-Strahlung bei 60 verschiedenen Wellenlängen zwischen 290 und 450 nm (UV-B und UV-A). Das Messnetz besteht aus den 4 Stationen Zingst (Ostseeküste), Langen (Rhein-Main-Gebiet), Schauinsland (Südschwarzwald) und Neuherberg (Stadttrand von München). In der Zwischenzeit wurde das Messnetz durch vier zusätzliche, assoziierte Stationen erweitert, die vom LfU Bayern (Kulmbach), BAuA Dortmund, DWD Potsdam sowie von der Uni Kiel in Westerland (Sylt) betrieben werden. Die UV-Messungen erfolgen mit den spektral hochauflösenden Bentham-150 M Geräten.

Spektral aufgelöste UV-B-Messungen werden auch an den 3 Meteorologischen Observatorien (MO) des Deutschen Wetterdienstes (DWD) mittels Brewer-Spektrometer durchgeführt: am MO Hohenpeißenberg seit 1990, am MO Potsdam seit 1993 und am MO Lindenberg seit 1995.

Die Aufgabe des UV-Messnetzes von BfS und UBA ist die kontinuierliche Überwachung der bodennahen solaren UV-Strahlung mit einer für die Feststellung eines langzeitigen Trends und Bewertung von dessen Folgen ausreichenden Genauigkeit. Während das BfS den medizinisch-strahlenhygienischen Aspekt der UV-Strahlung untersucht, obliegt dem UBA die Bewertung der UV-Strahlung aus ökologischer und luftchemischer Sicht.

Ein Hauptziel für das UBA ist hierbei die Feststellung von Langzeittrends als Folge der auch über Deutschland beobachteten Abnahme der stratosphärischen Ozonschicht. In Abbildung 48 sind die im Jahre 2000 in Deutschland operierenden UV-Messstationen dargestellt.

Die Messdaten unterliegen einer strengen Qualitätskontrolle und Qualitätssicherung, wodurch sich eine Datenqualität erreichen lässt, die den hohen Anforderungen wie z.B. dem Nachweis einer möglichen Zunahme der bodennahen UV-B-Strahlung als Folge der Abnahme des stratosphärischen Ozons genügt (Ref. 8, 9).

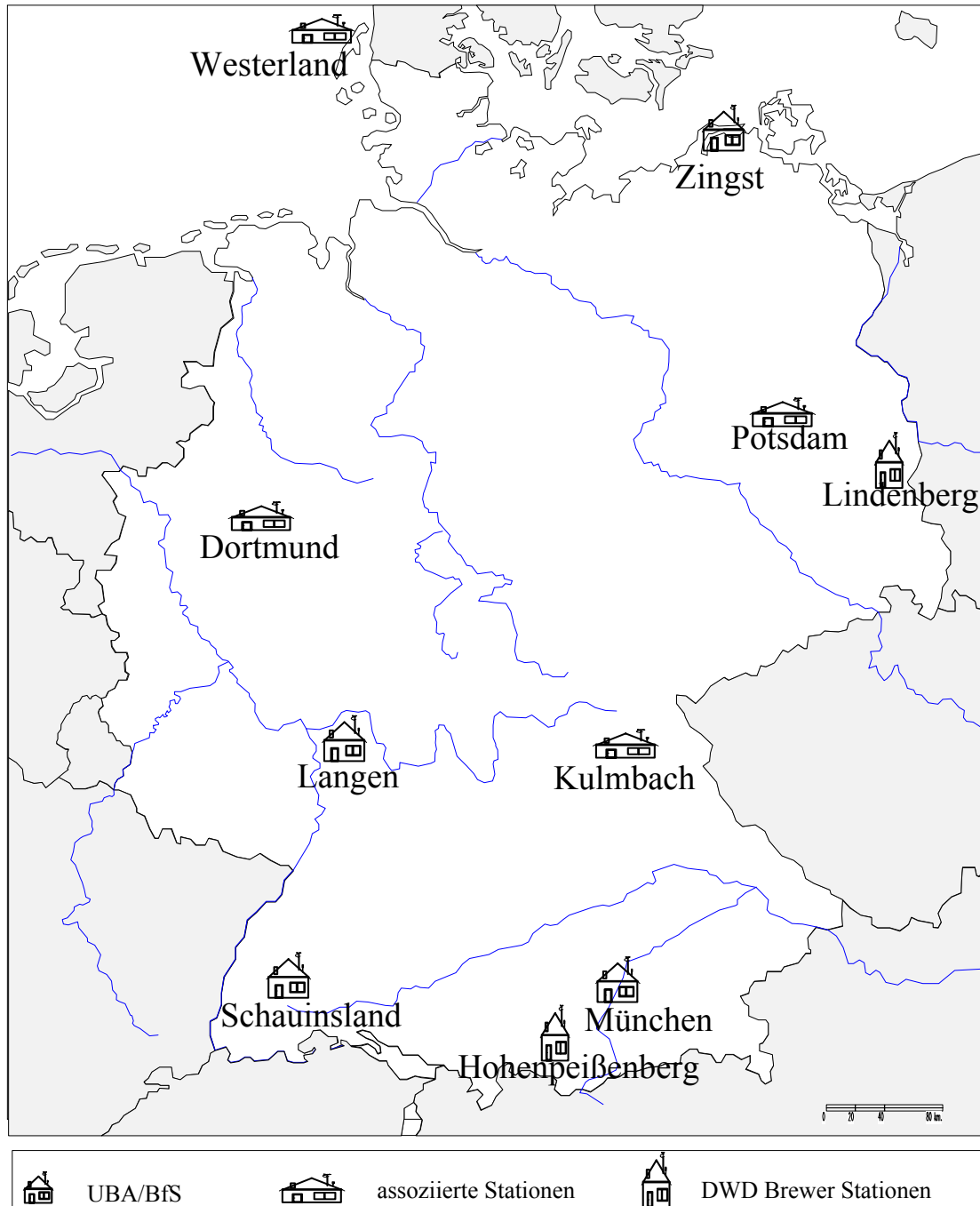


Abbildung 48: UV-Messstationen in Deutschland, die im Jahre 2000 die UV-Strahlung mittels Spektralradiometern (Bentham, Brewer) gemessen haben

7.4.2 Ergebnisse

Die bisherigen Ergebnisse der Messungen in den UV-Messnetzen von UBA/BfS und DWD lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Die jahreszeitliche Variabilität, die durch den Sonnenstand hervorgerufen wird, ist erheblich. Das Verhältnis zwischen den Tagesmaximalwerten im Winter und im Sommer beträgt bei der Wellenlänge von 300 nm etwa 1:1000, bei den maximalen sommerlichen Tagesmitteln von UV-B bzw. UV-A etwa 1:50 bzw. 1:20.
- Das Süd-Nord-Gefälle der Bestrahlungsstärke bei 300 nm ist mit ca. 20 bis 40 % höheren maximalen sommerlichen Werten in Neuherberg bzw. Schauinsland gegenüber Zingst recht ausgeprägt. Dagegen sind die Unterschiede bei UV-B und vor allem beim UV-A wesentlich geringer.
- Für Stationen auf gleicher geographischer Breite (Schauinsland, Neuherberg) ist auch der Einfluss der Stationshöhe erkennbar. An der höher gelegenen Station Schauinsland (1205 m ü. NN) sind bei vergleichbaren Ozonsäulen die maximalen Strahlungswerte bei 300 nm um etwa 25% höher als an der Station Neuherberg (493 m ü. NN). Für die maximalen UV-B-Tagesmittel sind die Unterschiede mit ca. 10% geringer, während bei den entsprechenden UV-A-Werten keine sichtbaren Unterschiede mehr auftreten.
- Wechselnde Bewölkung verursacht erhebliche Unterschiede der UV-Bestrahlungsstärke von Tag zu Tag bis zu einem Faktor 10 und mehr.
- Mit einem im UBA (Langen) entwickelten Verfahren (*Ref. 10*) konnte der Jahresgang des Gesamtozons (Stratosphäre und Troposphäre) an den 4 Stationen im UV-Messnetz von UBA/BfS bestimmt werden. Die Messungen haben ein Maximum in den Monaten Februar, März und April (ca. 380 DU) und ein Minimum im Oktober und November (280 DU) ergeben, in guter Übereinstimmung mit den langjährigen Messungen des Deutschen Wetterdienstes am Meteorologischen Observatorium Hohenpeißenberg (MOH, DWD). (DU = Dobson Units)
- Die im Messnetz von UBA/BfS bisher durchgeführten Messungen konnten die inverse Beziehung zwischen abnehmenden Ozongehalten der Stratosphäre und zunehmender UV-B-Strahlung eindeutig nachweisen, wenn auch nur für kurze Zeitspannen. Danach verursachte beispielsweise eine Abnahme der Ozonsäule um 20 % in etwa eine Verdoppelung der Strahlung bei der sehr kurzen Wellenlänge von 300 nm. Die entsprechende Zunahme für die gesamte UV-B-Strahlung (290-320 nm) betrug dagegen nur etwa 20%.
- Nach Untersuchungen am Meteorologischen Observatorium Hohenpeißenberg des Deutschen Wetterdienstes (MOH, DWD) haben die Jahresmittelwerte für das Gesamtozon (Stratosphäre und Troposphäre) zwischen 1968 und 1999 um etwa 10% abgenommen, d.h. um etwa 3% pro Dekade. In den letzten 10 Jahren hat sich dieser Trend beschleunigt (*Ref. 11, 12*). Als Folge der Ozonabnahme müsste die UV-B-Strahlung angestiegen sein.
- Die Frage, ob und wie viel die UV-B-Strahlung in Deutschland als Folge der abnehmenden Ozonkonzentrationen langfristig zugenommen hat, kann auf der Basis der UV-Messungen im UBA/BfS-Messnetz noch nicht beantwortet werden, da die Messreihen mit nur 7 Jahren

zu kurz sind und die Variabilität der anderen Einflussfaktoren um Größenordnungen über den zu erwartenden Langzeit-Änderungen der UV-B-Strahlung liegt.

- Eine Erhöhung der UV-Strahlung als Folge der langfristigen Ozonabnahme konnte aber am Meteorologischen Observatorium Hohenpeißenberg des Deutschen Wetterdienstes während der letzten 30 Jahre indirekt festgestellt werden (*Ref. 11*)
- Eine ausführliche Darstellung der räumlichen Verteilung und der zeitlichen Entwicklung der UV-Strahlung in Deutschland vor dem Hintergrund des stratosphärischen Ozonabbaus sowie möglicher Auswirkungen zunehmender UV-Strahlung ist im Jahresbericht 1999 aus dem Messnetz des Umweltbundesamtes (*Texte 58/00, S.158-190*) enthalten. Der Jahresbericht kann bezogen werden bei der Bibliothek des UBA, Bismarckplatz 1, 14193 Berlin.

7.5 Literatur

(1) CEC (1993)

Environmental UV Radiation, Causes. Effects-Consequences, DG XII/D-1, Sep. 1993

(2) WMO,(1998)

Global Ozone Research and Monitoring Project-Report No.44, Scientific Assessment of Ozone Depletion:1998

(3) WMO (1991)

Global Ozone Research and Monitoring Project, Report No.25, Scientific Assessment of Ozone Depletion, 1991.

(4) Herman, J.R. et al. (1996)

UV-B increases (1979-1992) from decreases in total ozone, Geoph. Research Letters 23, pp.2117-2120.

(5) Stick, C. (2001)

Die ultraviolette Sonnenstrahlung, aktinische Komponente des Reizklimas. Jubiläumsschrift zum 25jährigen Bestehen des Fördervereins „Forschungsstation Medizinische Klimatologie Westerland“ e.V., Verlag Dr. Kovac, S. 21-34.

(6) Kylling et al. (1997)

Transmittance of a cloud is wavelength-dependent in the UV-range: Physical interpretation, Geoph.Research Letters 24, pp.397-400, 1997.

(7) Brühl and Crutzen (1989)

On the disproportionate role of tropospheric ozone as a filter against solar UV-B radiation, Geoph. Research Letters, Vol.16, No.7, pp. 703-706.

(8) Bundesamt für Strahlenschutz (BfS, 1998)

Qualitätssicherung und Qualitätskontrolle im solaren UV-Monitoring, Messnetz des BfS/UBA, Jahresbericht 1998

(9) Steinmetz, M. (1997)

Continuous solar UV monitoring in Germany, J. Photochem. Photobiol. B:41, 1997, pp.181-187.

(10) Wallasch, M. (1997)

Bestimmung der Ozonsäulendichte aus Spektren der Globalbestrahlungsstärke, Vortrag: 32. Messtechnisches Kolloquium, Berlin, 5.-7.Mai 1997.

(11) Winkler, P.; Gantner, L. und Köhler, U. (1998)

Hat sich wegen der langfristigen Ozonabnahme die UV-Strahlung erhöht ?, Abschlussbericht zum Projekt "U 10", Bayerisches Klimaforschungsprogramm Bay FORKLIM, Meteorologisches Observatorium Hohenpeißenberg, Deutscher Wetterdienst, Dezember 1998.

(12) Köhler, U.; Vandersee, W. und Winkler, P. (1995)

Spektrale und integrale Messungen der UV-B-Strahlung im Vergleich zu Ozonmessungen, Abschlussbericht zum BayFORKLIM-Projekt, B110, DWD Meteorologisches Observatorium Hohenpeißenberg, April 1995.

(13) UBA (2000)

Jahresbericht 1999 aus dem Messnetz des Umweltbundesamtes, Texte 58/00, Berlin, Dezember 2000.

8. FERNERKUNDUNG VON LUFTVERUNREINIGUNGEN MITTELS KORRELATIONS-SPEKTROSKOPIE (COSPEC)

Siegfried Beilke, Wolfgang Grosch und Dieter Jost

8.1 Einleitung

Im Jahre 1979 wurde von der Pilotstation Frankfurt des Umweltbundesamtes ein in Kanada entwickeltes Fernerkundungssystem zur Messungen von Luftschadstoffen (SO_2 , NO_2) erprobt und eine Reihe von Anwendungsmöglichkeiten vorgeschlagen. Das Barringer Korrelations-spektrometer (COSPEC) ist ein auf einem optischen Verfahren basierendes Fernmessgerät mit dem der Gesamtgehalt an Schwefeldioxid (SO_2) und Stickstoffdioxid (NO_2) in einer Luftsäule über dem Gerätestandort gemessen werden kann. Der Einsatz dieser Technik in einem fahrenden Messwagen oder in einem Flugzeug erlaubt die quantitative Bestimmung dieser beiden Gase über der Fahrt- bzw. Flugroute. Diese Traversenfernmessetechnik wurde damals eingesetzt, um die Ausbreitung von Rauchfahnen sowie die Emissionsstärke von Punkt- und Flächenquellen zu bestimmen. Des Weiteren wurde diese Technik vom Umweltbundesamt erstmals eingesetzt, um die grenzüberschreitenden Massenflüsse von SO_2 und NO_2 vor allem zwischen der damaligen DDR und der CSSR und der Bundesrepublik quantitativ zu bestimmen (Ref. 1).

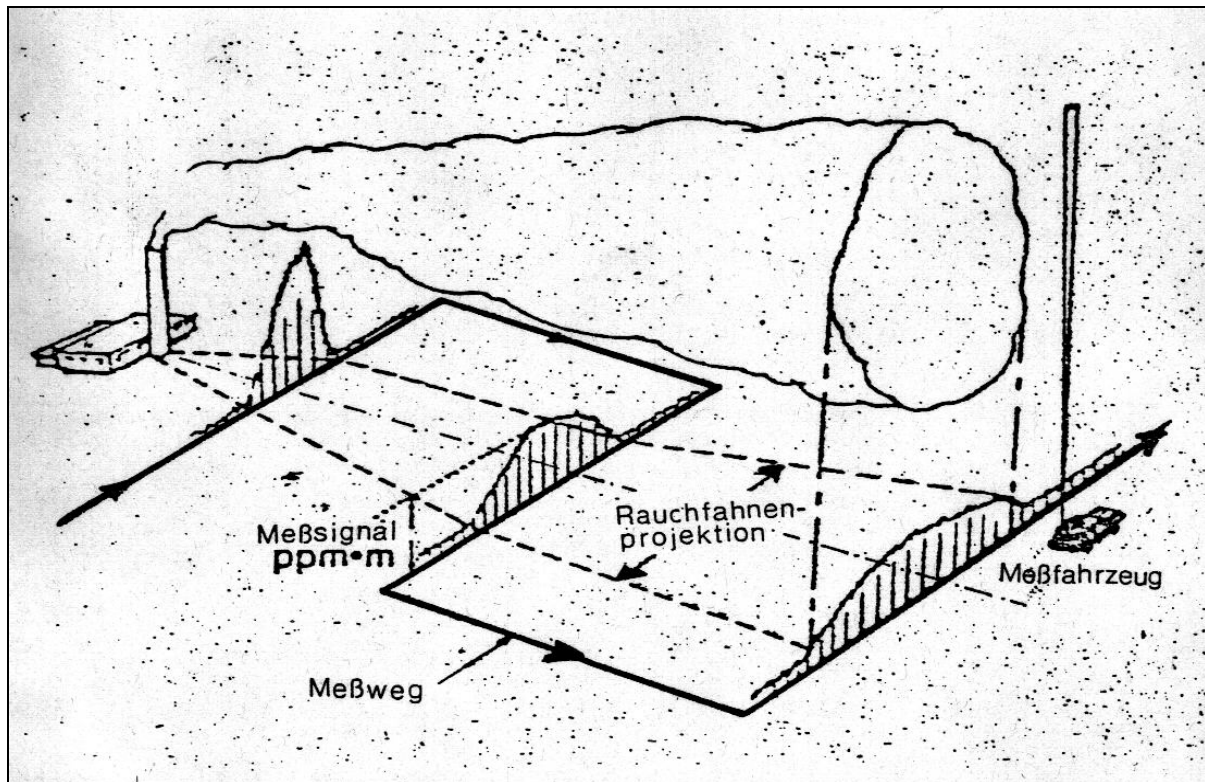


Abbildung 49: Prinzip der COSPEC-Traversenfernmessetechnik

Eine andere Einsatzmöglichkeit des COSPEC, die inzwischen weltweite Verbreitung gefunden hat, wurde Anfang der 80er Jahre von der Pilotstation des Umweltbundesamtes vorgeschlagen und erfolgreich erprobt: Das System erlaubt die quantitative Bestimmung von chemischen Umwandlungen von Spurengasen in der Luft wie beispielsweise die quantitative Umwandlung von Stickstoffmonoxid (NO) zu Stickstoffdioxid (NO₂). Umwandlungsprozesse dieser Art finden z.B. in den Abgasfahnen von Großfeuerungsanlagen statt. Abbildung 49 zeigt das Prinzip dieser Traversenfernmessstechnik.

In den folgenden Abschnitten werden einige Anwendungen des COSPEC-Fernmessverfahrens beispielhaft dargestellt.

8.2 Ausgewählte Messergebnisse

8.2.1 Bestimmung der Emissionen von Flächenquellen

Messungen zur Bestimmung der Emissionen von Flächenquellen wurden in mehreren Messkampagnen im Januar und Mai 1980 erfolgreich im und um das Ruhrgebiet durchgeführt.

Bei der Berechnung der Gastransporte und der Emissionen musste streng darauf geachtet werden, dass vor und während der Messfahrten stationäre meteorologische Verhältnisse herrschten, vor allem bezüglich Windgeschwindigkeit und Windrichtung. Die unter diesen Bedingungen ermittelten, im Wesentlichen Emissionen aus dem Ruhrgebiet zuzuordnenden Massenflüsse lagen zwischen 25 und 38 kg/s ($\pm 50\%$) für SO₂ sowie zwischen 9 und 14 kg/s ($\pm 30\%$) für NO₂, in guter Übereinstimmung mit den auf Grund statistischer Verfahren ermittelten Emissionskatastern. Die heutigen SO₂ - Emissionen des Ruhrgebietes liegen sehr wahrscheinlich um mehr als einen Faktor 10 unter den damaligen Emissionen, die heutigen NO_x - Emissionen haben dagegen weniger stark abgenommen.

Im Gegensatz zur erfolgreichen Messung der SO₂- und NO₂-Transporte im Ruhrgebiet konnten auf dem Frankfurter Flughafen unter der An- und Abflugschneise Anfang der 80er Jahre keine gegenüber dem Hintergrund erhöhten vertikal integrierten Konzentrationen festgestellt werden. Der Grund liegt neben der geringen Messempfindlichkeit des damaligen SO₂-COSPEC-Gerätes auch an den damals im Vergleich zu den anderen Emissionsquellen relativ geringen Emissionen der startenden und landenden Flugzeuge.

8.2.2 Bestimmung von grenzüberschreitenden Transporten

Messungen zur Bestimmung von grenzüberschreitenden Transporten von SO₂ und NO₂ wurden zwischen 1981 und 1985 schwerpunktmäßig entlang der Grenzen zwischen der Bundesrepublik und der DDR/CSSR durchgeführt. Als Messträger für die COSPEC-Geräte dienten dabei Flugzeuge (Geosens (NL) und DFVLR (Oberpfaffenhofen)) sowie Messwagen (UBA, Pilotstation Frankfurt sowie Bayerisches Landesamt für Umweltschutz, München, *Ref. 1, 2, 3*). Die Abbildung 50 und Abbildung 51 zeigen die Routen für die flug- und bodengestützten Traversenmessungen

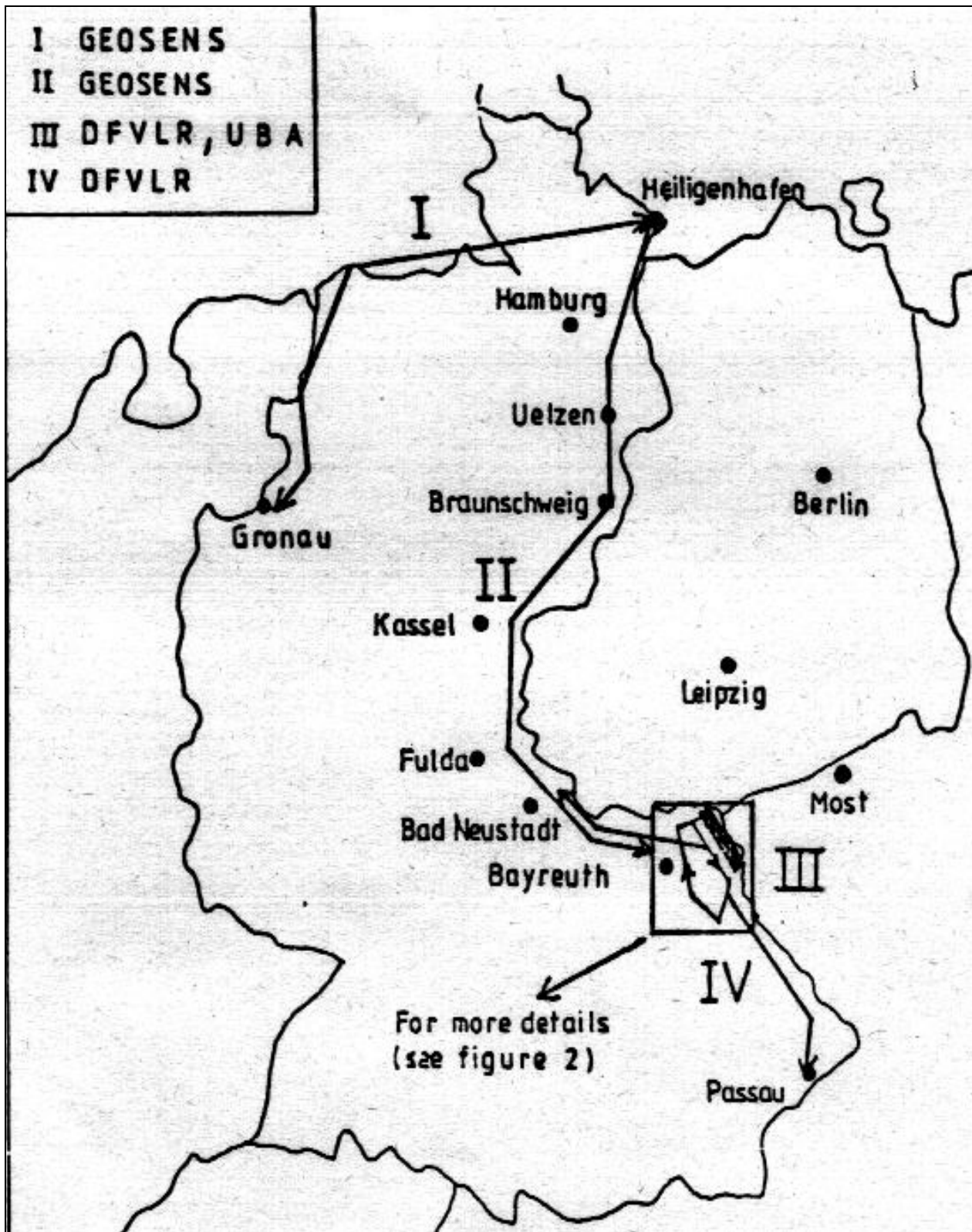


Abbildung 50: Einsatz der COSPEC-Geräte zur Messung von grenzüberschreitenden Transporten von Luftverunreinigungen in Flugzeugen (GEOSSENS, Rotterdam, DFVLR, Oberpfaffenhofen) und Messwagen (UBA, Pilotstation sowie BLfU, München), (Ref. 2)

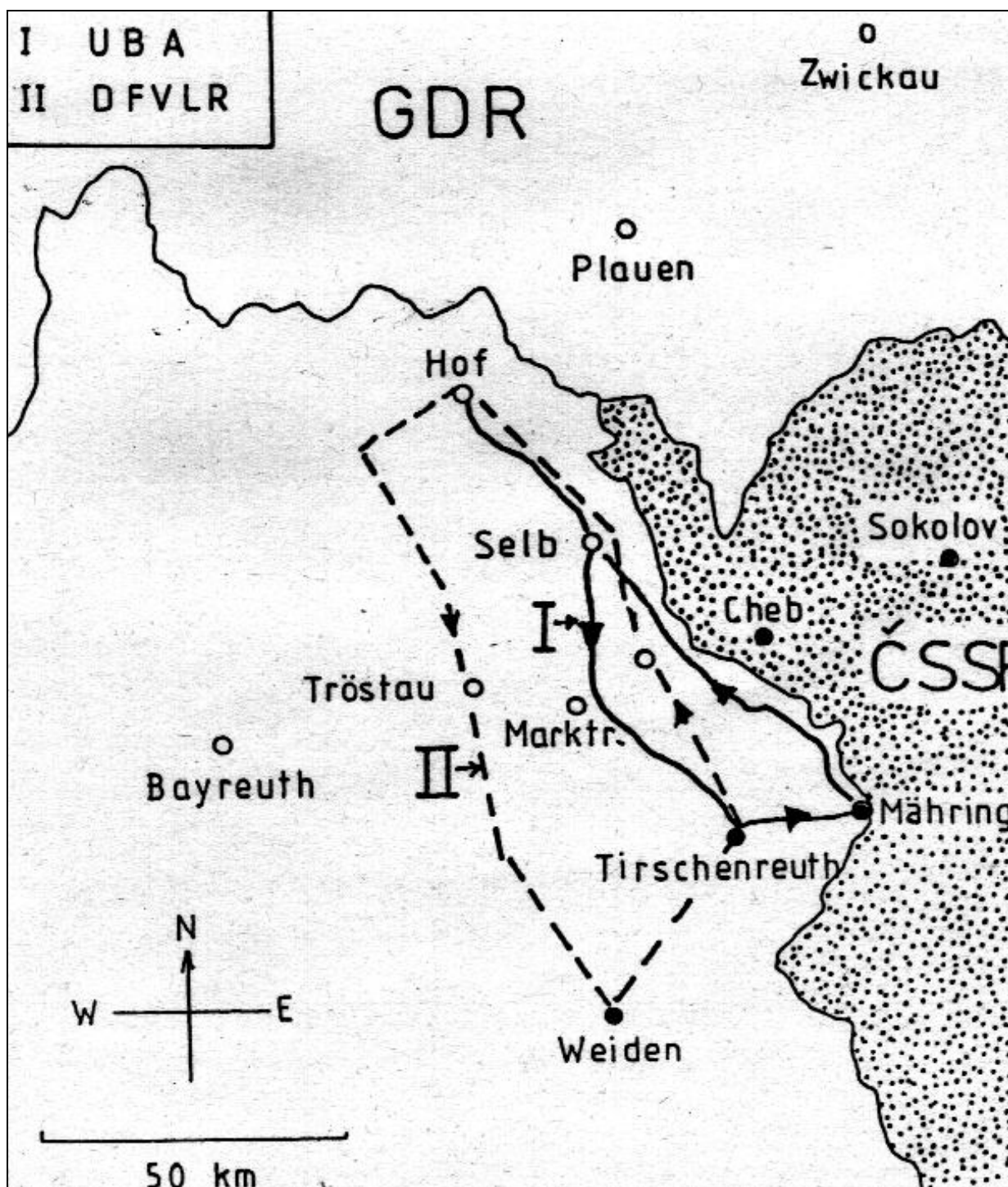


Abbildung 51: Einsatz der COSPEC-Geräte zur Messung von grenzüberschreitendem Transport von Luftverunreinigungen im nordostbayerischen Grenzgebiet (gestrichelt: Flugzeugmessungen der DFVLR, durchgezogene Linie: UBA-Messwagen), (Ref. 2)

Der Schwerpunkt für den Einsatz der COSPEC-Messwagen war das nordostbayerische Grenzgebiet, wo im Winter bei Nord- bis Ostwinden entlang der Grenze zur DDR und zur CSSR Episoden mit hohen Schwefeldioxidimmissionen und mit Belästigungen durch "Katzendreckgeruch" auftraten. Die SO_2 -Konzentrationen im nordostbayerischen Grenzgebiet haben damals die heute unvorstellbar hohen Werte von über 1 mg/m^3 erreicht.

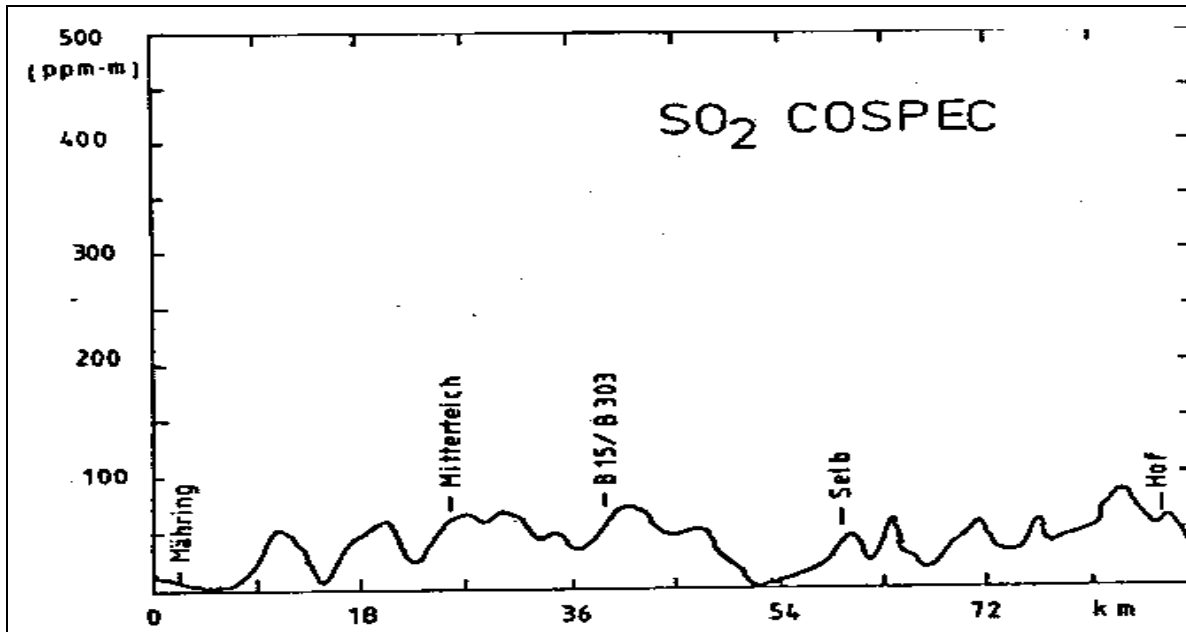


Abbildung 52: Linienintegrale der Konzentration von SO_2 am 14. Januar 1985 gemessen mit UBA COSPEC-Messwagen im nordostbayerischen Grenzgebiet über eine Traverse von ca. 90 km bei Wind aus Nordost (Import von Luftverunreinigungen)

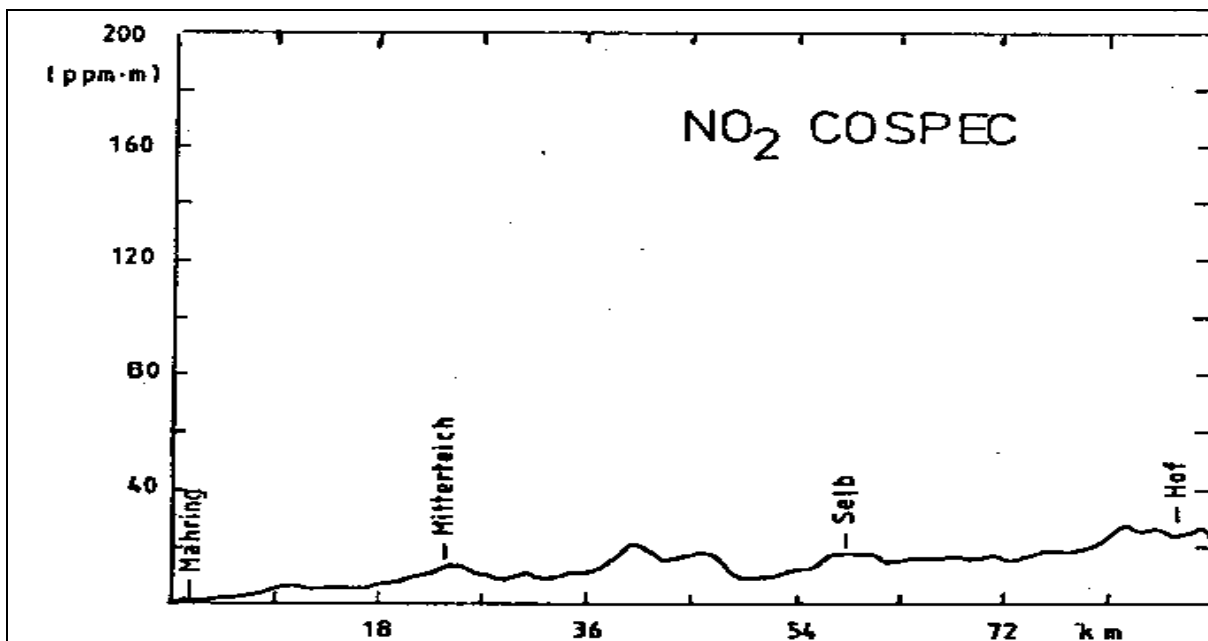


Abbildung 53: Linienintegrale der Konzentration von NO_2 am 14. Januar 1985 gemessen mit UBA COSPEC-Messwagen im nordostbayerischen Grenzgebiet über eine Traverse von ca. 90 km bei Wind aus Nordost (Import von Luftverunreinigungen)

Abbildung 52 und Abbildung 53 zeigen als Beispiel die mit dem UBA-Messwagen am 14. Januar 1985 gemessenen Linienintegrale der SO_2 - und NO_2 -Konzentrationen im nordostbayerischen Grenzgebiet bei Wind aus Nordost. Die entsprechenden Massenflüsse über den ca. 90 km langen Grenzabschnitt betrugen für SO_2 etwa 22 kg/s und für NO_2 etwa 5 kg/s.

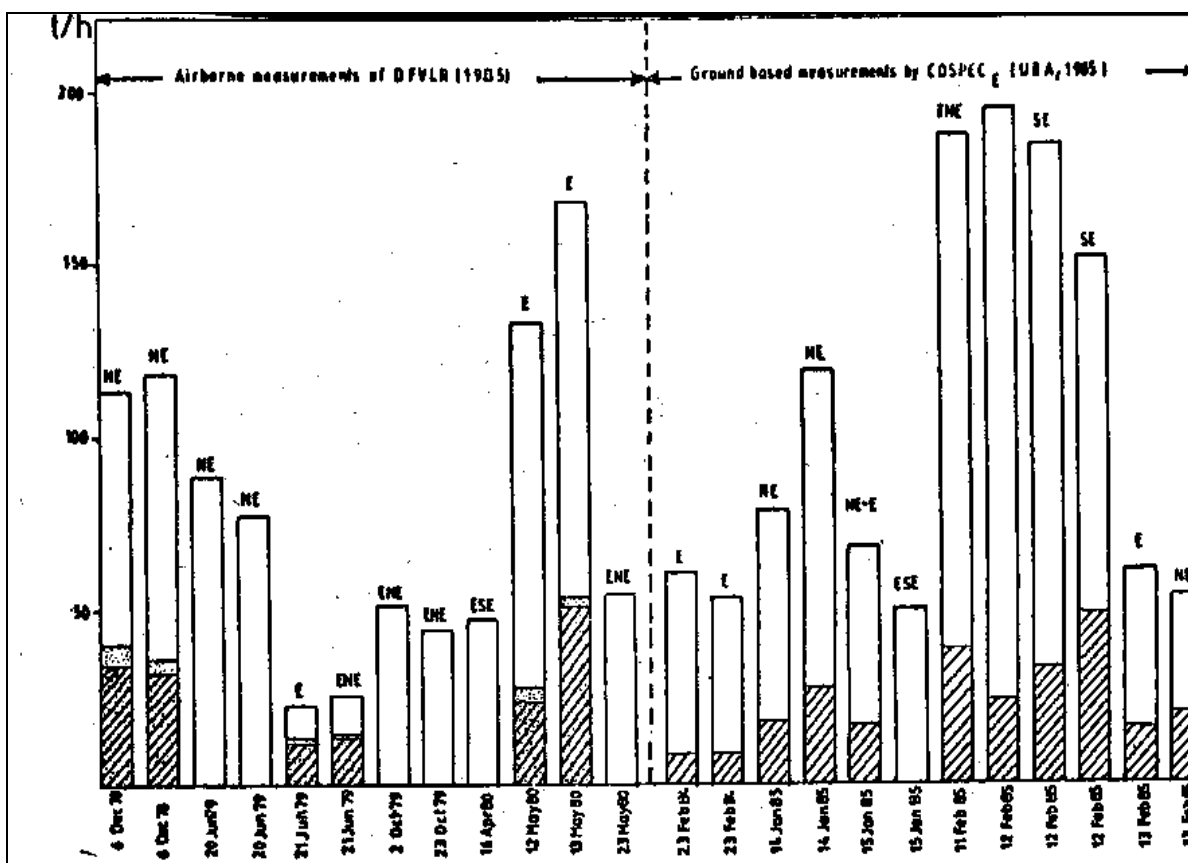


Abbildung 54: Berechnete grenzüberschreitende Importe von SO₂ (weiß) und NO_x (schattiert)(NO_x) in Nordostbayern über einen Grenzabschnitt von ca. 90 km auf der Basis der COSPEC-Bodenmessungen (rechts) sowie der Flugzeugmessung (links)

Abbildung 54 zeigt die Ergebnisse aller mit dem COSPEC - Messwagen bestimmten Massenflüsse von SO₂ und NO_x (im Wesentlichen NO₂) über einen ca. 90 km langen Grenzabschnitt im nordostbayerischen Grenzgebiet bei Wind aus Nordost, Ost bis Südost. Im Gegensatz zu heute wurden in den frühen 80er Jahren weit größere SO₂- als NO_x- Mengen bei östlichen Winden importiert.

Die Abbildung 55 und Abbildung 56 zeigen je ein Beispiel für einen Messflug entlang der gesamten Grenze zwischen der Bundesrepublik und der DDR/CSSR über eine Länge von ca. 700 km bei Wind aus Südost (Import von Luftschadstoffen, Abbildung 55) bzw. zwischen der Bundesrepublik und der DDR über eine Länge von etwa 600 km bei Wind aus Nordwest (Export von Luftschadstoffen, Abbildung 56, die unterschiedlichen Maßstäbe sind zu beachten).

Ein Vergleich zwischen importierten und exportierten Schadstoffmengen und eine Hochrechnung auf jährliche Werte auf der Basis der beiden Episodenmessungen ist nicht möglich, da die Messungen an unterschiedlichen Tagen mit sehr unterschiedlichen Emissionsbeiträgen und Transportbedingungen durchgeführt wurden.

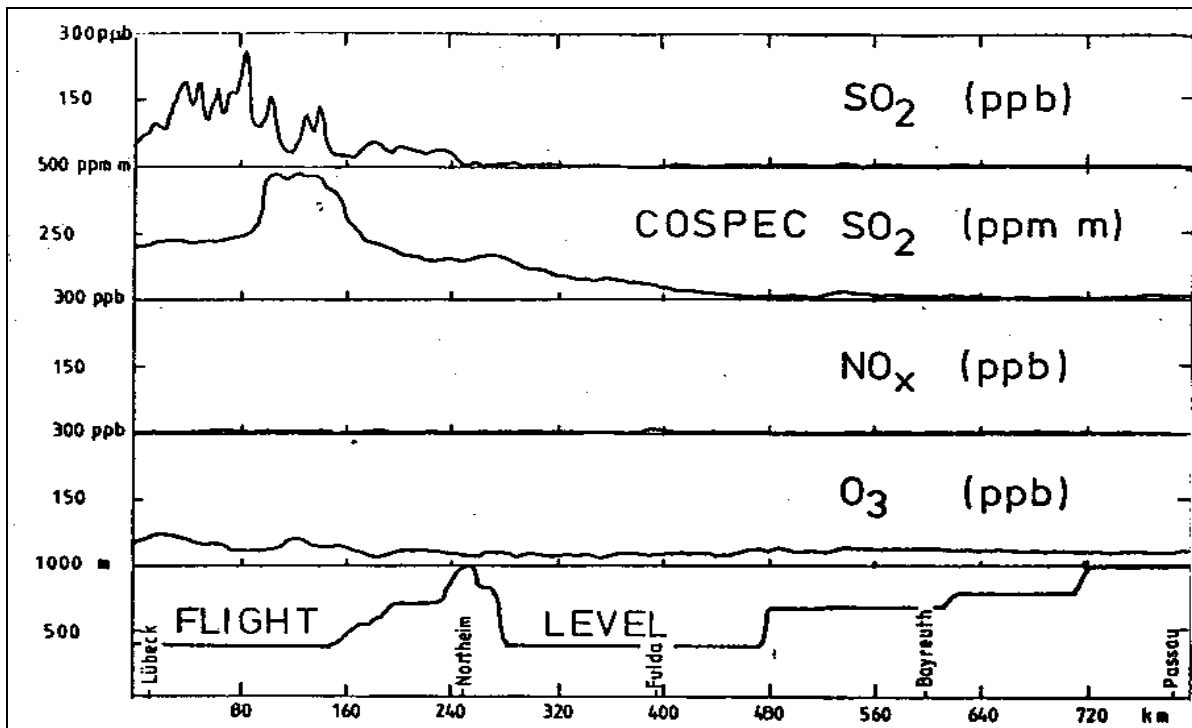


Abbildung 55: Ergebnisse von Flugzeugmessungen zum grenzüberschreitenden Transport von SO_2 , NO_x und O_3 über die Grenze zwischen der Bundesrepublik und der DDR/CSSR am 22. August 1984, Wind aus Südost (d.h. Import von Luftverunreinigungen)

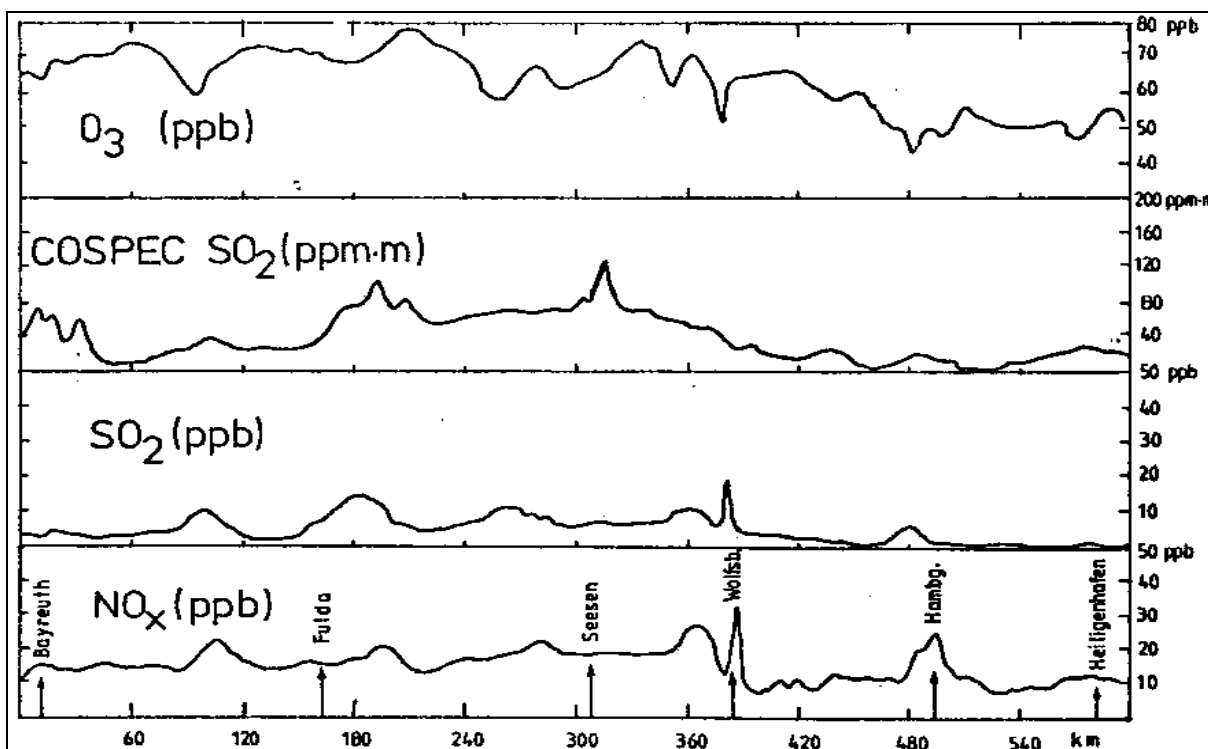


Abbildung 56: Ergebnisse von Flugzeugmessungen zum grenzüberschreitenden Transport von SO_2 , NO_x und O_3 über die Grenze zwischen der Bundesrepublik und der DDR/CSSR am 18. Juni 1985, Wind aus Nordwest (d.h. Export von Luftverunreinigungen). Die unterschiedlichen Maßstäbe in Abbildung 55 gegenüber Abbildung 56 sind zu beachten.

8.2.3 Bestimmung der Umwandlung von NO zu NO₂ in Abgasfahnen

Anfang der 80er Jahre war die Oxidation von NO zu NO₂ speziell in Abgasfahnen großer Punktquellen wie beispielsweise von Kraftwerken ein Problem von hohem Interesse. Diese Oxidation ist ein komplizierter Prozess, der von einer Vielzahl chemischer und physikalischer Prozesse abhängt. In der Atmosphäre erfolgt die Oxidation des an der Schornsteinmündung emittierten NO weitgehend durch O₃. Die Bestimmung der NO-Umwandlung mit dem Fernmesssystem des UBA beruht auf der Messung des Verhältnisses von NO₂ zu SO₂ in verschiedenen Entfernungen vom Kraftwerk, wobei das SO₂ als quasi-inerter Tracer benutzt wurde. Die Ergebnisse werden angegeben als prozentuales Oxidationsverhältnis NO₂/NO_x, integriert über den Rauchfahnenquerschnitt, mit NO_x=NO+NO₂. Eine ausführliche Beschreibung der Messmethode sowie der für die Bestimmung der NO-Oxidation gemachten weiteren Annahmen ist in Literaturveröffentlichungen enthalten (Ref. 4, 5). Messungen zur Bestimmung der NO-Umwandlung wurden zwischen 1980 und 1982 in den Abgasfahnen der damals kohlebefeuchten Kraftwerke Staudinger (Hanau) und Wilhelmshaven durchgeführt.

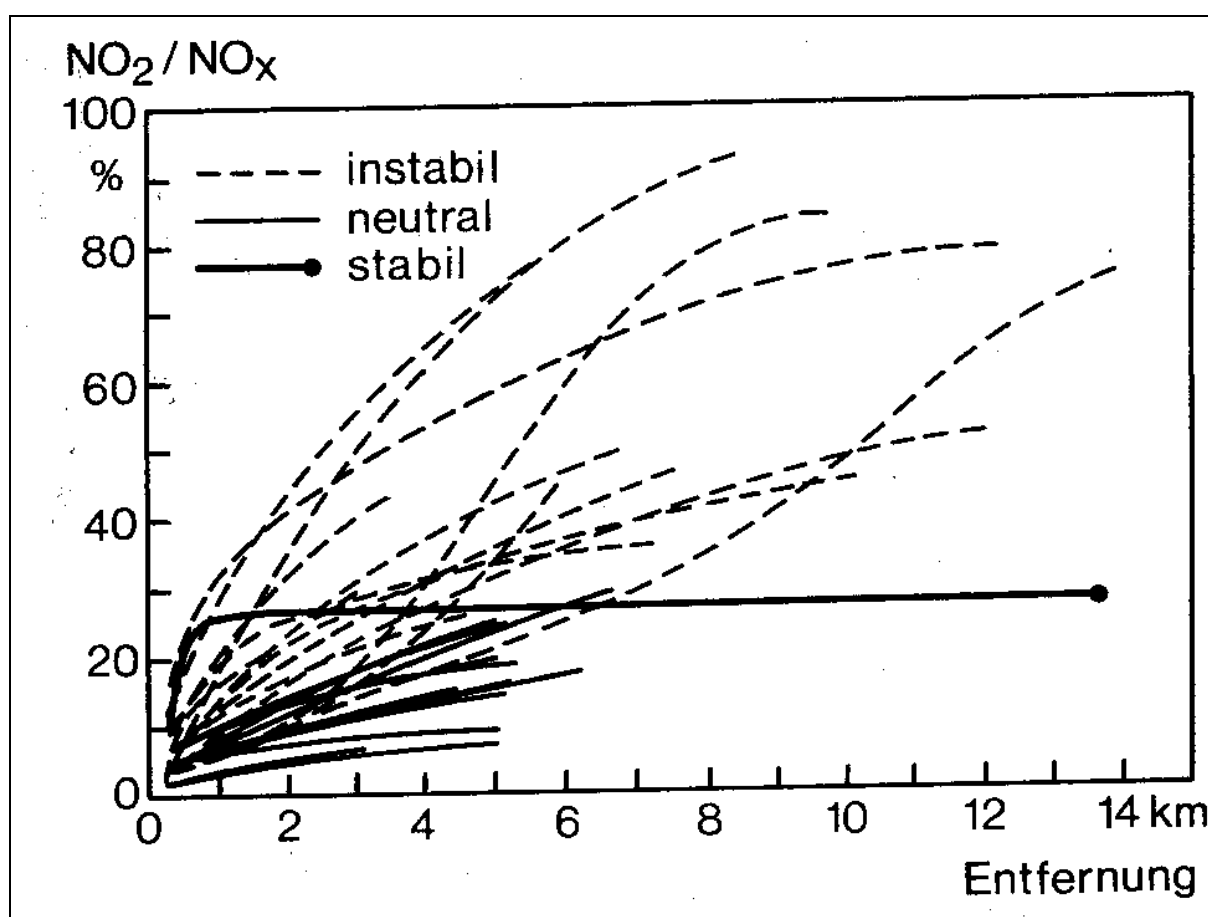


Abbildung 57: Prozentuales Oxidationsverhältnis NO₂/NO_x, integriert über den Fahnenquerschnitt als Funktion des Abstandes, gemessen an der Abgasfahne des Kraftwerkes Staudinger (Hanau)

In Abbildung 57 sind die Ergebnisse von 29 Messungen an der Abgasfahne des Kraftwerkes Staudinger beispielhaft dargestellt. Die höchsten NO-Oxidationsraten wurden bei instabilen atmosphärischen Bedingungen gefunden (Pasquill-Stabilitätsklassen B und C), geringere Umwandlungsraten ergaben sich bei stabiler Bedingungen (Pasquillklassen D für neutrale und

E für leicht stabile atmosphärische Bedingungen). Die niedrigste NO₂-Bildung wurde bei bedecktem Himmel und leichtem Regen- oder Schneefall gemessen. Der Grund liegt wahrscheinlich auch in einer stark reduzierten photochemischen Aktivität verbunden mit extrem geringen Ozonkonzentrationen.

An der Abgasfahne des Kraftwerkes Wilhemshaven (Nordseeküste) wurden wegen der Besonderheiten der Land- See-Windverhältnisse während einer Messperiode vom 11. bis 13. Mai 1982 etwas geringere NO-Oxidationsraten gefunden als an der Abgasfahne des Kraftwerkes Staudinger (*Ref. 6*).

Die Ergebnisse der COSPEC-Fernmessungen an den Abgasfahnen der Kraftwerke Staudinger und Wilhemshaven lassen sich wie folgt zusammenfassen (*Ref. 6*):

- An der Schornsteinmündung liegt NO_x weitgehend als NO vor. In den meisten Fällen betrug der NO-Anteil mehr als 98%.
- Die NO-Umwandlung wird im Wesentlichen durch die Geschwindigkeit bestimmt, mit der sich die Abgasfahne mit der ozonhaltigen Umgebungsluft mischt. Die Oxidationsrate ist bei instabilen Bedingungen (schnellere Vermischung der Fahne mit der Außenluft) wesentlich größer als bei neutralen und stabilen atmosphärischen Bedingungen.
- Für instabile atmosphärische Bedingungen zeigen die vorliegenden Messungen eine ausgeprägte Abhängigkeit der NO-Oxidationsrate von der O₃-Konzentration. Die Oxidationsrate nimmt mit steigenden Ozongehalt der Umgebungsluft stark zu.
- Die über den gesamten Fahnenquerschnitt integrierte NO-Oxidationsrate nahm in den meisten Fällen mit zunehmender Entfernung vom Kraftwerk ab. Dieses Verhalten entspricht der Durchmischung der Fahne mit Außenluft. In den meisten Fällen erwies sich für den Nahbereich (bis ca. 10 km) die Breite der Fahne als gutes Maß für die Durchmischung.
- Die maximale NO-Oxidationsrate betrug 80 bis 90%, in guter Übereinstimmung mit Modellrechnungen.
- In der Regel verlief die Oxidation langsam. In der Mehrzahl der Fälle wurde 50% des emittierten NO erst in Entfernungen von mehr als 10 km vom Kraftwerk zu NO₂ oxidiert.
- Die integrierte NO-Oxidation in der Abgasfahne der Kraftwerke kann nicht als ein Prozess erster Ordnung beschrieben werden. Dies kompliziert eine Behandlung der NO-Oxidation in Ausbreitungsmodellen.
- Die von Beilke et al. (1981, *Ref. 4*) aus der Literatur zusammengestellten, auf Grund von in-situ Flugzeugmessungen ermittelten NO-Oxidationszeiten waren in guter Übereinstimmung mit den mittels COSPEC-Fernmessung vom Boden aus bestimmten Zeiten (*Ref. 6*).

8.3 Literatur:

- (1) Rabl,P.; Beilke,S. und Paffrath,D. (1987)
Lufthygienische Situation in Nordostbayern. Teil 1: Messungen grenzüberschreitender Schadstofftransporte nach Nordostbayern. Bericht des Bayerischen Landesamtes für Umweltschutz, München.
- (2) Beilke, S.; Berg,R. and Grosch, W. (1985)
Preliminary results on measurements of transboundary fluxes of air pollutants across the border between the FRG and its eastern neighbours. Proceedings: EG-Symposium, Bilthoven, NL, 23-25 Sept.1985, S.20-30, Project COST 611.
- (3) Beilke,S.; Berg,R.; Grosch,W.; Blommers,A.; Jansen, F.W. and J. Lelieveld (1986). *Air sampling flights at low altitudes along the border between the Federal Republic of Germany and its neighbours", Proceedings: 4th European Symposium on Physico-Chemical Behaviour of Atmospheric Pollutants, Stresa, Italy, 23-25 Sept.1986, pp..685 - 703.*
- (4) Beilke,S.; Markusch,H. and D.Jost (1981)
Measurements of NO-oxidation in power plant plumes by correlation spectroscopy. Proceedings: 2nd European Symposium on Physico-Chemical Behaviour of Atmospheric Pollutants, Varese, Italy, 29 Sept.-1 October 1981, pp.448 - 459.
- (5) Millan,M.M.; Gallant,A.J. and Turner,H.E. (1976)
The application of correlation spectroscopy to the study of dispersion from tall stacks, Atm.Env.10, 1976, pp.499 - 511.
- (6) Elshout, A. and Beilke,S. (1984)
Die Oxidation von NO zu NO₂ in Abgasfahnen von Kraftwerken, VGB Kraftwerkstechnik, Juli 1984, S. 648 - 654.

9. FLÜCHTIGE ORGANISCHE VERBINDUNGEN (VOC)

Jürgen Müller, Françoise Riedel, Christine Hoffmann und Ralph Hubscher

9.1 Trends flüchtiger organischer Luftverunreinigungen (VOC) in Stadt- und Landluft

9.1.1 Einleitung

Seit zwei Jahrzehnten werden an der Pilotstation die Konzentrationen organischer Luftverunreinigungen (VOC = Volatile Organic Compounds) gemessen. An Messstellen in Stadt- und Landluft erfolgt eine regelmäßige Probenahme, um die zeitlichen Trends und das Konzentrationsgefälle zwischen Orten unterschiedlicher Luftqualität zu beobachten. Zur Probenahme der VOC wurden Absorptionsröhrchen mit Aktivkohle verwendet. Die Probenahmedauer betrug 24 Stunden und wurde zehnmal monatlich durchgeführt.

VOC mit einer atmosphärischen Verweilzeit kleiner als 3 Tage (insbesondere aliphatische und aromatische Kohlenwasserstoffe) spielen eine wichtige Rolle als Vorläufer bei der Bildung von Photosmog (auch „Sommersmog“ genannt). VOC mit atmosphärischer Verweilzeit von mehreren Monaten und Jahren (z.B. Fluorchlorkohlenwasserstoffe) gelangen in die Stratosphäre, beeinflussen die Ozonschicht und sind oft klimarelevant.

Einige VOC wirken direkt toxisch, z.B. Benzol oder die Lösungsmittel Trichlorethen (Tri) und Tetrachlorethen (Per). Einige VOC sind partiell photosmog- und klima- als auch gesundheitsrelevant (z.B. Chloroform oder 111-Trichlorethan).

9.1.2 Ergebnisse

- Für die Kohlenwasserstoffe Isopentan, Pentan und Hexan (Abbildung 58) wurde in Stadtluft (Wohngebiet Offenbach/M.) im Verlauf der letzten Jahre eine Konzentrationsabnahme gemessen. Dies wurde durch die Zunahme der Katalysatorfahrzeuge bewirkt. An den Mittelgebirgsstationen Deuselbach (Hunsrück) und Schauinsland (Schwarzwald) ist diese deutliche Abnahme nicht zu beobachten, was möglicherweise durch vermehrten Ausflugsverkehr im Sommer wie im Winter verursacht wird.
- Die aromatischen Kohlenwasserstoffe Toluol und Benzol (Abbildung 59) verzeichnen in Stadtluft ebenfalls Konzentrationsabnahmen. Benzol ist aufgrund der verminderten Beigabe im Benzin (weniger als 1%) und die Zunahme von Katalysatorfahrzeugen deutlich zurückgegangen. In der Mittelgebirgsluft ist für Toluol keine Abnahme zu beobachten (Abbildung 58).

- Die FCKW-Verbindung R 113 (Trichlor 112 Trifluor 122 Ethan) mit der atmosphärischen Verweilzeit von 5 Jahren hat sich im Verlauf der letzten Jahre auf einen fast gleichen Wert in Stadt- und Landluft eingependelt (Abbildung 60).
- Das Lösungsmittel Chloroform (Abbildung 60) (Verweilzeit 140 Tage) ist im Jahre 1997 in Deuselbach deutlich zurückgegangen, da lokale Quellen reduziert wurden.
- Die langlebigen Lösungsmittel Trichlorethan 111 (Verweilzeit 3 Jahre) und Tetrachlor-kohlenstoff (Verweilzeit 50 Jahre) sind fast homogen über Stadt- und Landluft verteilt (Abbildung 61).
- Die kurzlebigen Lösungsmittel Trichlorethen, (Handelsname Tri), mit einer Verweilzeit von 11 Tagen und Tetrachlorethen (Handelsname Per), mit einer Verweilzeit von 50 Tagen, zeigen zwischen Offenbach und Schauinsland deutliche Unterschiede. Aufgrund lokaler Quellen ist dies in Deuselbach, insbesondere für Tetrachlorethen, nicht der Fall.

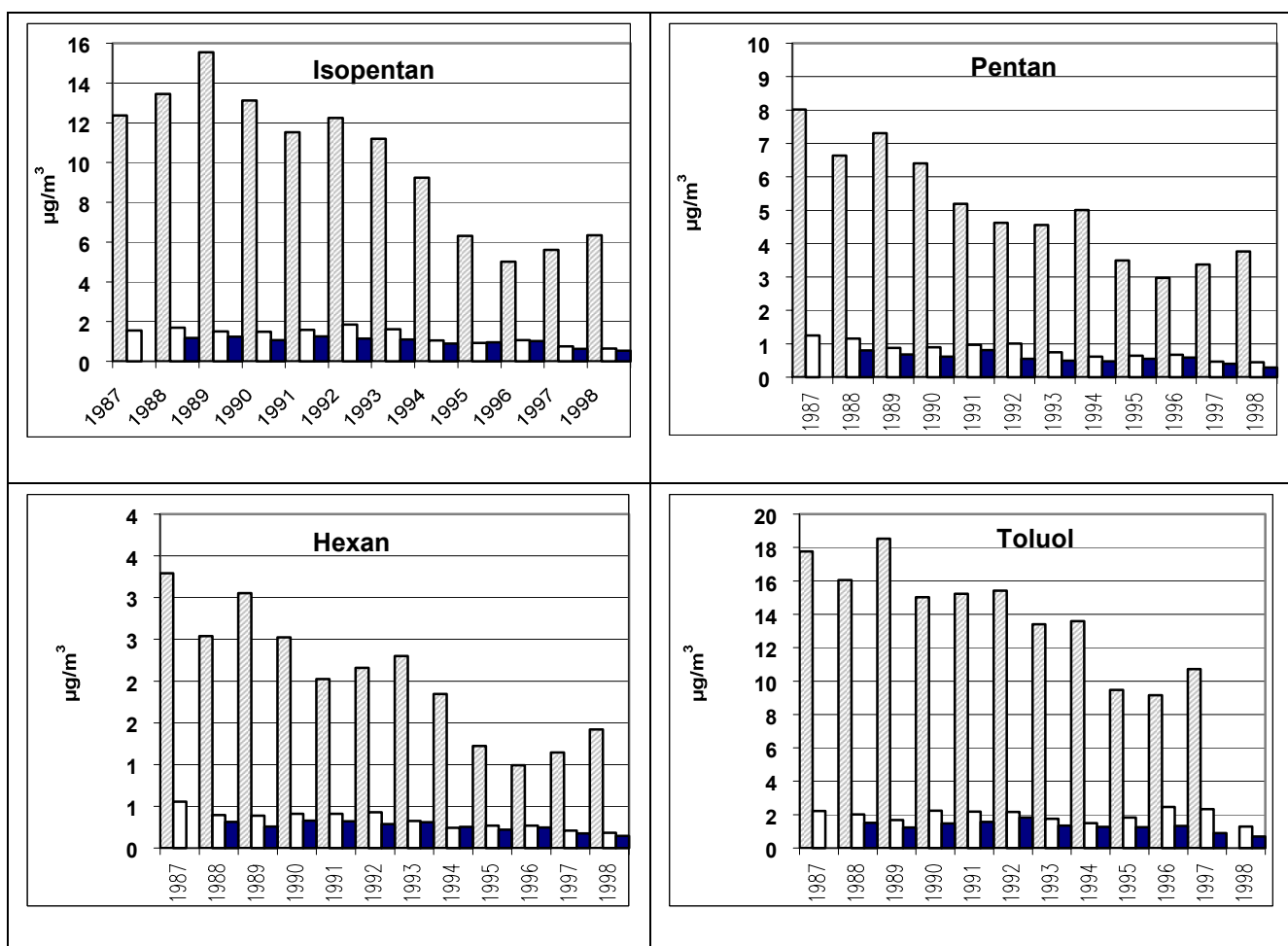


Abbildung 58: Konzentrationstrends der Jahresmittelwerte von Pentan, Isopentan, Hexan und Toluol in Offenbach (schraffiert), Deuselbach (Hunsrück) (weiß) und Schauinsland (Schwarzwald) (schwarz)

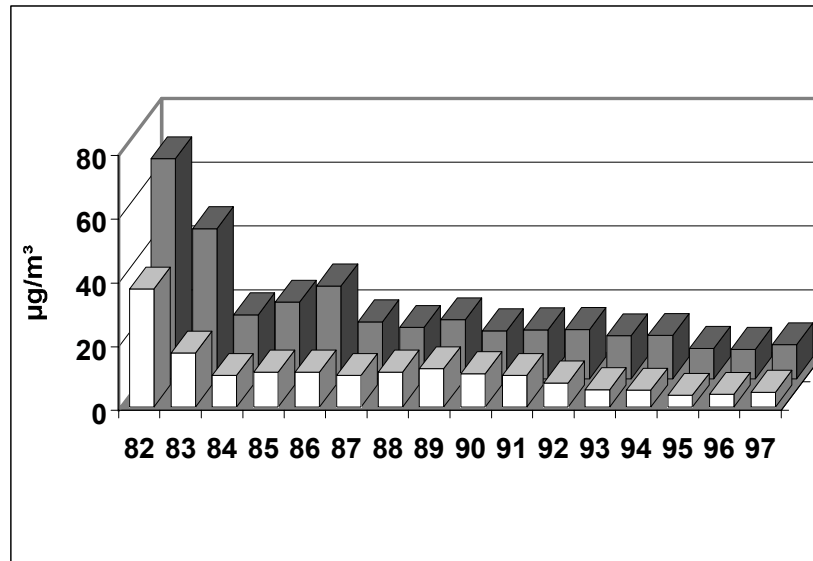


Abbildung 59: Konzentrationstrends der Jahresmittelwerte von Toluol in Offenbach, Deuselbach und Schauinsland (grau) sowie Benzol in Offenbach/M (weiß).

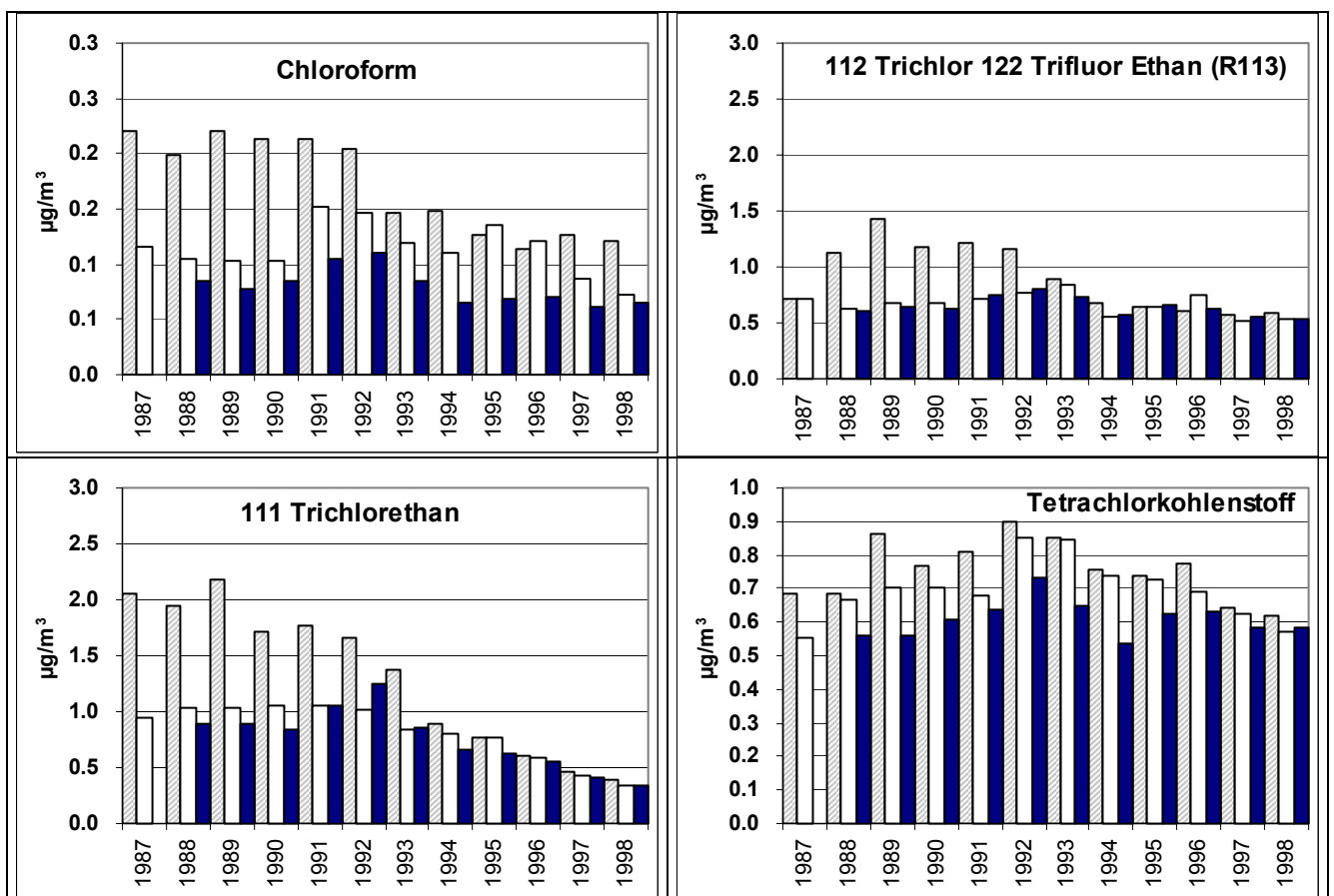


Abbildung 60: Konzentrationstrends der Jahresmittelwerte von R 113, Chloroform, Trichlorethan 111 und Tetrachlorkohlenstoff in Offenbach (schraffiert), Deuselbach (weiß) und Schauinsland (schwarz)

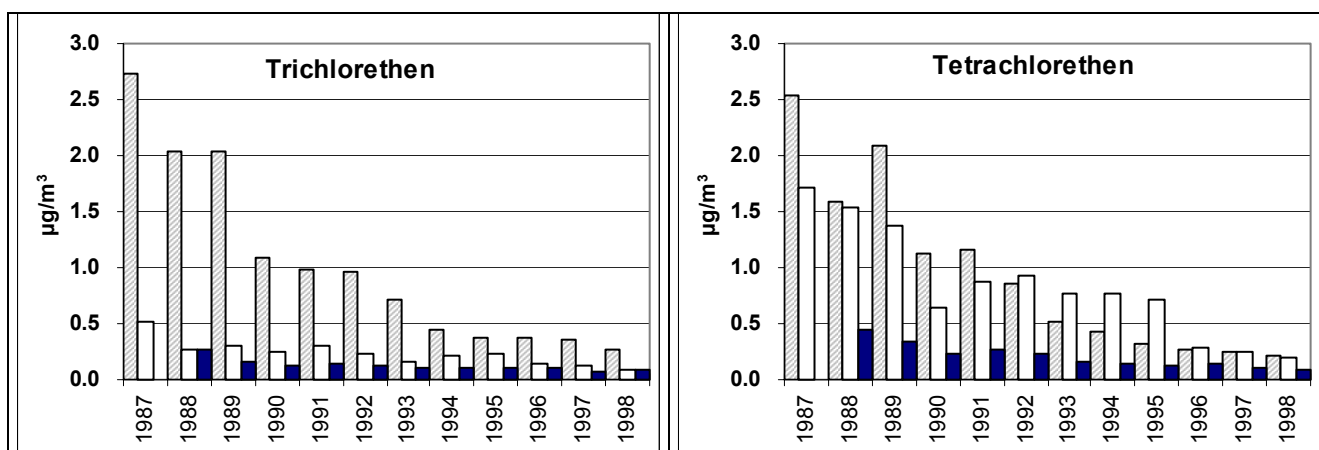


Abbildung 61: Konzentrationstrends der Jahresmittelwerte von Trichlorethen (Tri) und Tetrachlorethen (Per) in Offenbach (schraffiert), Deuselbach (weiß) und Schauinsland (schwarz)

9.2 Isopren, ein natürlicher Photosmogvorläufer

Isopren gehört zu den biogenen flüchtigen Kohlenwasserstoffen, die bei Temperaturerhöhung und Lichteinwirkung von Bäumen hauptsächlich im Sommer emittiert werden. Es ist ein natürlicher Photosmogvorläufer, der ebenso wie die insbesondere durch Verbrennungsquellen freigesetzten Kohlenwasserstoffe zur Bildung von Photooxidantien (Ozon, Peroxyacetylnitrat (PAN), Formaldehyd, etc.) beiträgt.

Voraussetzung für die Photosmogbildung sind als Vorläufersubstanzen neben Kohlenwasserstoffen auch Stickoxide sowie Sonneneinstrahlung. Falls Stickoxide, die überwiegend mit Kfz-Abgasen emittiert werden, in Waldgebiete gelangen, kann dort an strahlungsreichen Sommertagen auch Photosmog entstehen.

9.3 Messung flüchtiger organischer Luftverunreinigungen (VOC) an Orten unterschiedlicher Verkehrsdichte

Um das Konzentrationsgefälle flüchtiger organischer Verbindungen (VOC) zwischen Straßen unterschiedlicher Verkehrsdichte zu ermitteln, erfolgten mobile Probenahmen. Zur Messung der VOC kamen zwei Verfahren zur Anwendung:

Die Luft wird über Aktivkohle geleitet, wobei die VOC auf der Oberfläche haften bleiben. Zum Nachweis der gesammelten Komponenten genügt es, etwa 50 l Luft anzusaugen. Im Labor werden die VOC mittels Benzylalkohol von der Aktivkohle desorbiert. Die Analyse erfolgt mittels Dampfraum-Gaschromatografie (GC). Die Trennung der Komponenten im GC wird mit einer Kapillarsäule durchgeführt. Hinter der Trennsäule erfolgt der Nachweis der chlorierten Verbindungen mittels ECD- und der der aliphatischen und aromatischen Kohlenwasserstoffe mittels FID-Detektor.

Die Messluft wird über Tenaxröhrchen angesaugt, wobei 10 l zum Nachweis der VOC-Komponenten ausreichen. Im Labor erfolgt die Analyse mittels GC. Hierbei wird die Probeneingabe mit Hilfe automatischer thermischer Desorption (ATD) durchgeführt. Da im Unterschied zur Dampfraum-GC das gesamte Probengut in die Trennsäule aufgegeben wird, braucht man beim Sammeln im Gegensatz zur Dampfraum-GC weniger Messluft. Die Trennung der Komponenten erfolgt mit Kapillarsäulen. Der Nachweis wird mit ECD- und FID-Detektor geführt.

In Tabelle 20 sind die Konzentrationsmittelwerte vormittäglicher Messfahrten auf der Autobahn, im Verlauf der Standzeit am Flughafen und bei der Rückfahrt auf einer Stadtstraße exemplarisch aufgeführt.

Auf der Autobahn und der luftaustauscharmen Stadtstraße waren die Aromatenkonzentrationen in der gleichen Größenordnung. Beim Aufenthalt am Flughafen, abseits der Autobahn, waren die Konzentrationen deutlich niedriger. Für die chlorierten Kohlenwasserstoffkomponenten, die in Autoabgasen kaum vorhanden sind, wurden an allen Messorten Konzentrationen gleicher Größenordnung gemessen.

Tabelle 20: Mittlere Konzentrationen in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ von aromatischen und chlorierten Kohlenwasserstoffen auf Autobahnen, Flughafen und Stadtstraßen, gemessen an 8 Werktagen zwischen dem 16. Oktober 1996 und dem 3. Februar 1997.

Messort und Uhrzeit	Größe	Benzol	Toluol	Ethylbenzol	m+p-Xylol	Styrol	o-Xylol
A3 09:00-09:30	Mittelw.	3.5	8.7	1.2	2.7	0.3	2.1
	Max.	5.0	13.8	1.9	0.5	0.5	3.9
	Min.	1.1	2.4	0.5	0.1	0.1	0.8
A5 09:30-10:00	Mittelw.	6.4	14.2	1.3	4.9	0.6	3.1
	Max.	16.2	45.7	3.8	16.3	2.1	9.5
	Min.	1.6	3.5	0.4	1.5	0.1	0.9
Flughafen 10:20-11:20	Mittelw.	2.8	4.6	0.8	1.9	0.4	2.1
	Max.	12.3	14.0	2.7	5.9	1.2	7.3
	Min.	0.5	3.5	0.1	0.2	0.1	0.3
Stadtstraße 11:30-12:20	Mittelw.	6.0	12.1	2.2	4.9	0.6	3.0
	Max.	12.8	23.7	4.2	9.3	1.1	5.8
	Min.	1.5	3.6	0.5	1.1	0.1	0.8

Messort und Uhrzeit	Größe	111-Tri-chlorethan	Tetrachlor-kohlenstoff	Trichlor-ethen (Tri)	Tetrachlor-ethen (Per)
A3 09:00-09:30	Mittelw.	1.0	0.9	1.5	0.3
	Max.	2.8	1.7	2.9	1.2
	Min.	0.4	0.4	0.8	0.1
A5 09:30-10:00	Mittelw.	1.0	1.0	1.5	0.3
	Max.	2.5	1.5	2.6	0.7
	Min.	0.5	0.6	1.0	0.1
Flughafen 10:20-11:20	Mittelw.	0.6	0.8	1.0	0.2
	Max.	0.9	1.6	2.1	0.6
	Min.	0.3	0.4	0.3	0.1
Stadtstraße 11:30-12:20	Mittelw.	0.9	1.0	1.4	0.3
	Max.	1.7	1.5	2.7	0.7
	Min.	0.4	0.4	0.5	0.1

9.4 Räumliche und zeitliche Varianzen, Reaktionsraten und Verweilzeiten flüchtiger organischer Verbindungen (VOC)

Hauptbestandteile der organischen Luftverunreinigungen sind gasförmige Kohlenwasserstoffe (KW), die überwiegend durch Verbrauch fossiler Brennstoffe in Industrie, Haushalt und Verkehr in die Außenluft gelangen. Die KW zählen neben Stickoxiden zu den Vorläufersubstanzen bei der photochemischen Smogbildung. Viele halogenierte Kohlenwasserstoffe (FCKW und CKW) sind ebenfalls leichtflüchtig und wurden durch Gebrauch als Treibgas, Kühl-, Lösung- und Reinigungsmittel in der Atmosphäre freigesetzt. Im Gegensatz zu den kurzlebigen KW sind die FCKW und CKW an der Photosmogbildung kaum beteiligt. Die FCKW und mehrere CKW sind in der Troposphäre inert und werden erst in der Stratosphäre durch harte UV-Strahlung zerlegt. Als Verursacher der Ozonlochbildung stellen sie eine Gefahr für die Biosphäre dar. Der Gebrauch von FCKW ist deshalb weltweit eingeschränkt oder verboten worden.

In Abbildung 62 sind die Relativprofile der 9 gemessenen Verbindungen an den Stationen Frankfurt/M., Deuselbach (Hunsrück) und Schauinsland (Schwarzwald) aufgezeichnet. Hierbei wurde die Summe der Einzelkonzentrationen als 100% festgesetzt. Obwohl die Absolutkonzentrationen in Stadtluft weit höher als in Mittelgebirgsluft liegen, weisen die Relativprofile weitgehend gleichförmigen Verlauf auf.

In Abbildung 63 sind die monatlichen Standardabweichungen, gemessen im Jahr 1990, an den drei Messstationen dargestellt. Der Abbau organischer Verbindungen in Luft erfolgt hauptsächlich durch Reaktion mit OH-Radikalen. Bei Annahme einer Reaktion Pseudo-1. Ordnung besteht für die atmosphärische Verweilzeit T eine umgekehrte Proportionalität zur OH-Konzentration der Luft und der Reaktionskonstanten k_{OH} :

$$(1) \quad T \sim \frac{1}{k_{OH}[OH]}$$

Je kleiner die Reaktionsraten, desto geringere Standardabweichungen werden beobachtet. Dies wird auch in Abbildung 64 deutlich, in der die Standardabweichungen in Abhängigkeit von den Reaktionsraten aufgetragen sind. Die Standardabweichung ist proportional zum negativen Logarithmus der Reaktionskonstante:

$$(2) \quad \Delta S \sim -\log k_{OH}$$

In Tabelle 21 ist das Konzentrationsgefälle der Jahresmittelwerte (gemessen 1990) zwischen Großstadtluft (Frankfurt/M.), Mittelgebirgsluft (Deuselbach, Schauinsland) und Reinluft (Izaña, Kanarische Inseln) aufgeführt. Die Messwerte spiegeln die räumliche Homogenisierung mit zunehmender Verweilzeit der Verbindungen wider. R 113, Tetrachlorkohlenstoff sowie 111-Trichlorethan besitzen neben ihrer thermodynamischen Stabilität, die geringe photochemische Abbauraten bewirken, auch niedrigere Wasserlöslichkeit und hohe Flüchtigkeit, so dass sie sich unabhängig vom Ort der Quelle global ausbreiten können.

Tabelle 21: Mittelwerte der Stationen Frankfurt/M. (Stadtluft), der Mittelgebirgsstationen Deuselbach und Schauinsland und der Reinluftstation Izaña (Kanarische Inseln), gemessen 1990.

Verbindung	Frankfurt/M. ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Deuselbach (Hunsrück) 420 m Höhe	Schauinsland (Schwarzwald) 1205 m Höhe	Izaña (Kan. Inseln) 2500 m Höhe	Verweilzeit
R 113	100 % (0,679)	84 %	84 %	k.M.	110 a
Tetrachlorkohlenstoff	100 % (0,76)	102 %	71 %	63 %	47 a
111-Trichlorethan	100 % (0,89)	91 %	74 %	32 %	6,1 a
Chloroform	100 % (0,15)	73 %	47 %	22 %	0,4 a
Perchlorethylen	100 % (0,43)	79 %	33 %	4 %	0,3 a
Trichlorethylen	100 % (0,45)	47 %	22 %	1 %	11 d
Isopentan	100 % (9,23)	11 %	10 %	3 %	3 d
Pentan	100 % (5,00)	12 %	9 %	k.M.	3 d
Hexan	100 % (1,85)	13 %	14 %	3 %	3 d
Toluol	100 % (13,59)	11 %	9 %	2 %	2,5 d

k.M. = keine Messung

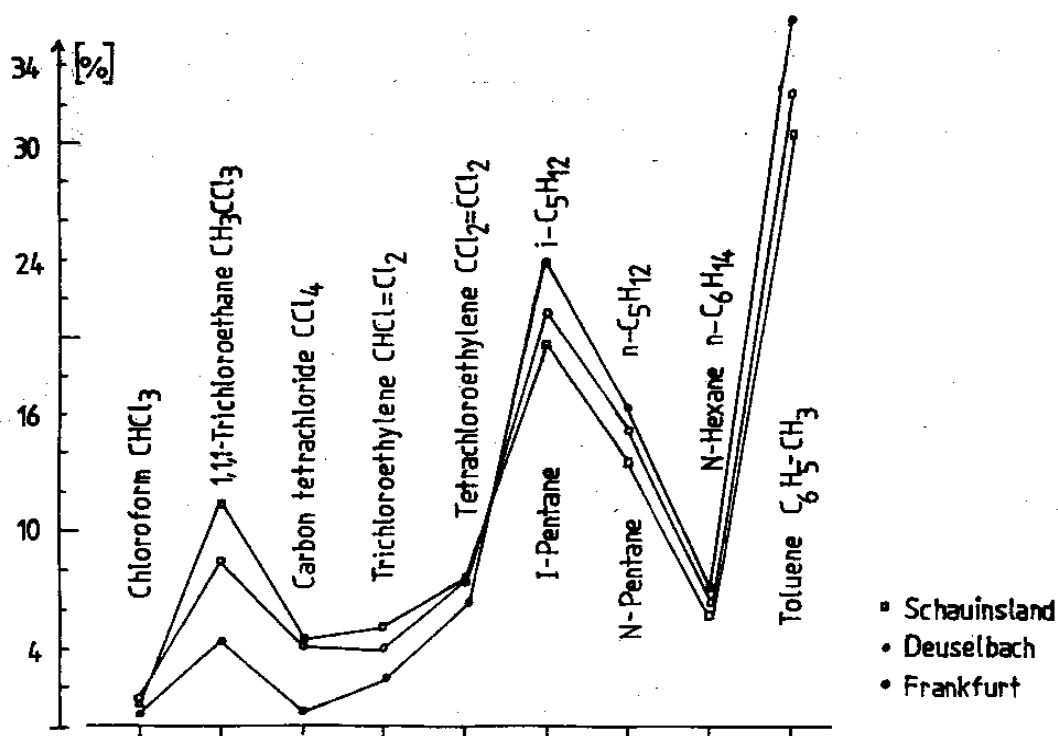


Abbildung 62: Relativprofile (relativer Anteil jeder Verbindung) der Messorte Frankfurt/M., Deuselbach (Hunsrück) und Schauinsland (Schwarzwald)

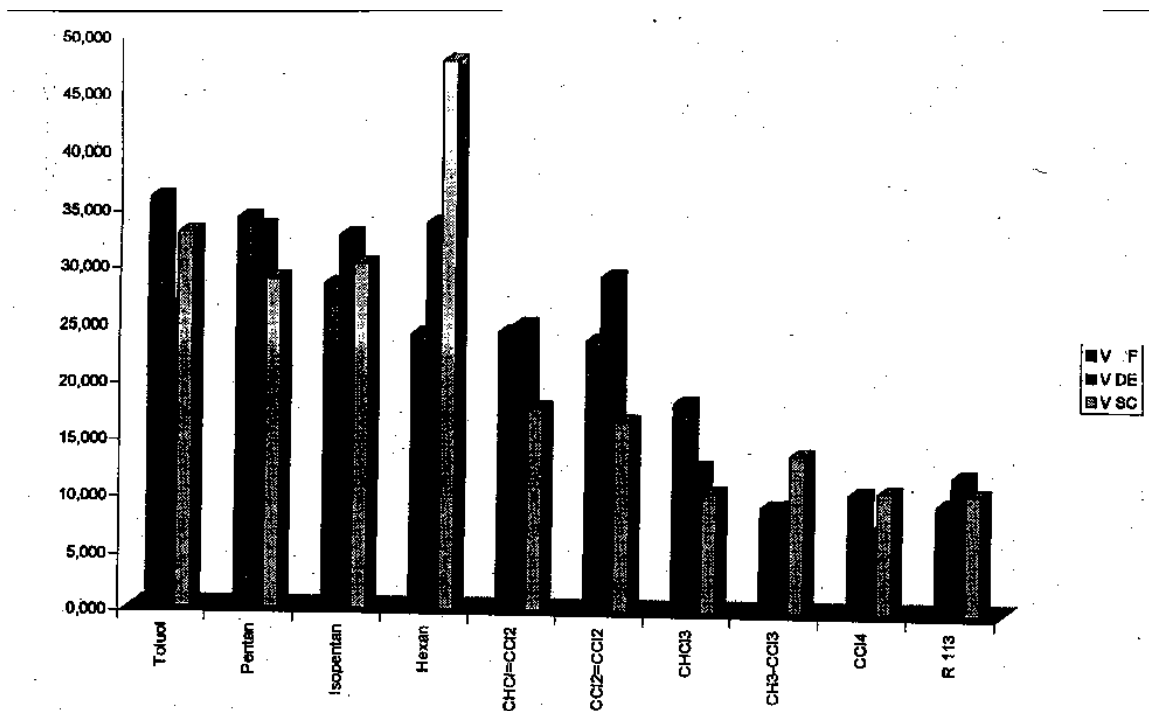


Abbildung 63: Standardabweichungen der gemessenen Konzentrationen im Jahr 1990 der Messorte Frankfurt/M., Deuselbach und Schauinsland in Prozent.

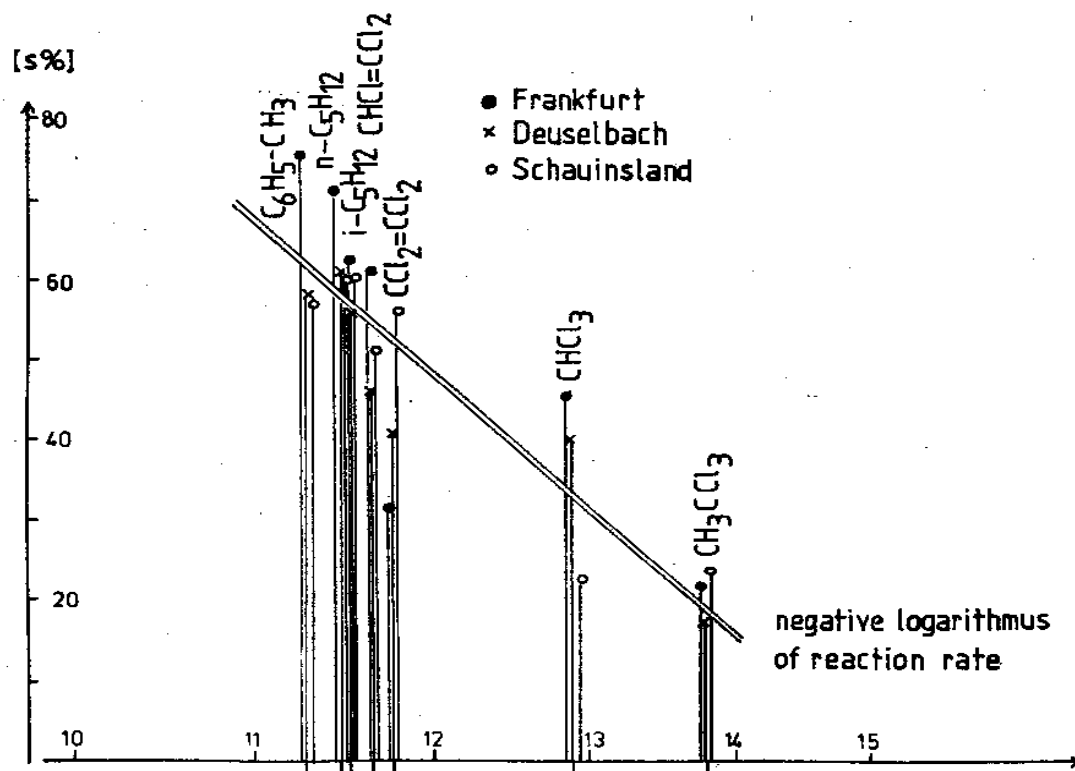


Abbildung 64: Standardabweichungen in Abhängigkeit vom negativen Logarithmus der Reaktionsrate mit OH-Radikalen an den Messorten Frankfurt/M., Deuselbach und Schauinsland

10. STAUBMESSUNGEN DER PILOTSTATION

10.1 Staub- und Schwermetallkonzentrationen an autofreien Sonntagen

Jürgen Müller, Christine Hoffmann, Ernestine Kuger-Hoberg, Ingrid Münchrath und Helga Reuver

Die autofreien Sonntage während der Ölkrise im November und Dezember 1973 boten Gelegenheit, die Schadstoffkonzentrationen der Luft bei Einstellung der Kfz-Quellen zu beobachten.

Da an Sonntagen die industrielle Produktion weitgehend ruhte und damit die Abgasquellen vermindert wurden, verblieben als Hauptquellen lediglich der Hausbrand und die Heizkraftwerke. Die Schwermetallaerosole stammten großteils von Kfz-Abgasen, und es war von Interesse, die Höhe der Konzentrationsrückgänge festzustellen.

In Abbildung 65 sind die Konzentrationen von Schwebstaub, Blei, Cadmium, Eisen und Mangan für die Zeit vom 3. bis 18. Dezember 1973, die innerhalb der zwei autofreien Sonntage lagen, dargestellt. Zusätzlich ist die für diese Zeit herrschende Windgeschwindigkeit vektoriell aufgetragen. Das Sammelgerät erfasste Teilchen bis zum Radius von etwa 30 μm . Die gravimetrisch ermittelten Staubkonzentrationen schwankten zwischen einem Maximalwert von 280 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ an einem Wochentag und 70 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ an den autofreien Sonntagen (Abbildung 65).

Für Blei waren die Unterschiede zwischen den autofreien Sonntagen und der sonstigen Zeit besonders stark ausgeprägt. Bei einer durchschnittlichen Konzentration von etwa 1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ sank der Wert auf 0,04 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Im Vergleich zu normalen Sonntagen lag die Konzentration um den Faktor 10 niedriger. An normalen Wochentagen zu dieser Zeit betrug der Bleianteil im Gesamtstaub etwa 1%, während an den autofreien Sonntagen das Verhältnis auf 0,0006% zurückgegangen war. Ein noch größerer Rückgang wurde nicht festgestellt, da durch Wind auch stets Straßenstaub aufgewirbelt wird, der Blei enthält.

In Abbildung 66 sind die Schwermetallkonzentrationen der autofreien Sonntage von Dezember 1973 mit den „normalen“ Sonntagen vom Dezember 1974 verglichen. Der Konzentrationsunterschied war bei Blei am stärksten ausgeprägt.

Mittlerweile, d.h. fast drei Jahrzehnte später, ist es durch die Umstellung auf bleifreies Benzin gelungen, dass die Bleikonzentrationen auch an Wochentagen noch niedriger liegen als einst an den autofreien Sonntagen.

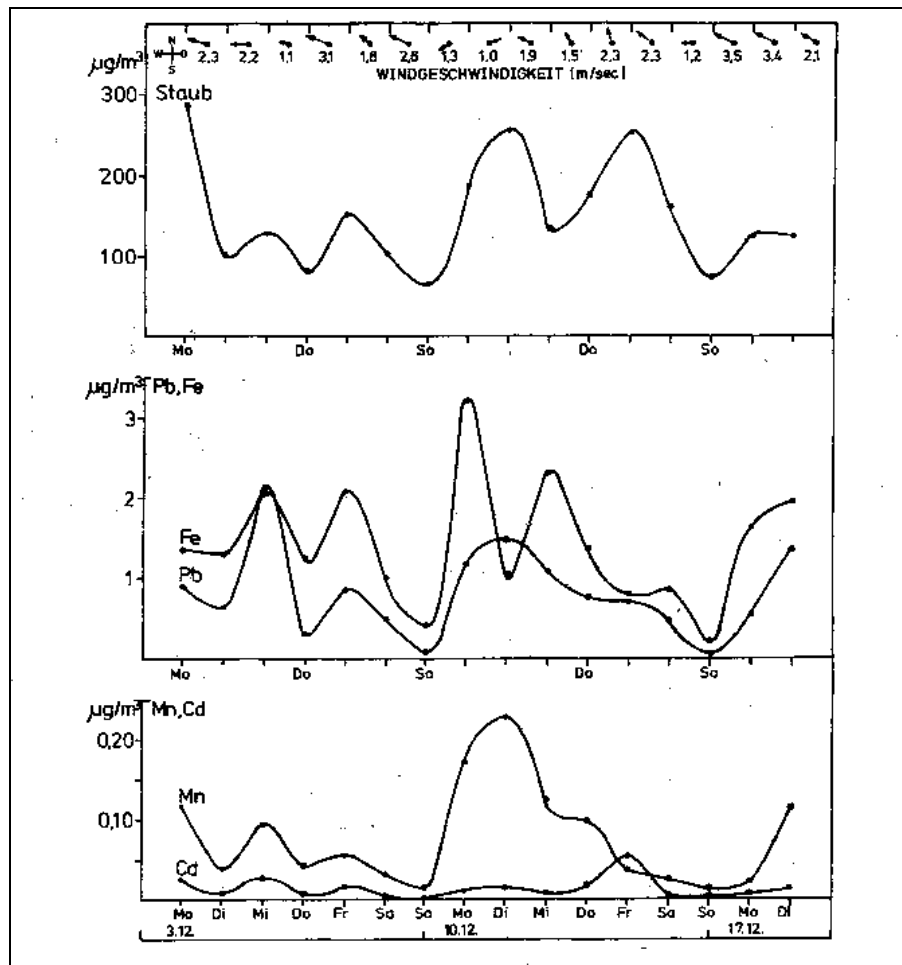


Abbildung 65: Schwermetalle (Pb, Fe, Mn, Cd) und Schwebstaub, gemessen in Frankfurt/M.-Westend (Wohn- und Bürogebiet) im Dezember 1973 mit autofreien Sonntagen am 9.12.1973 und 16.12.1973

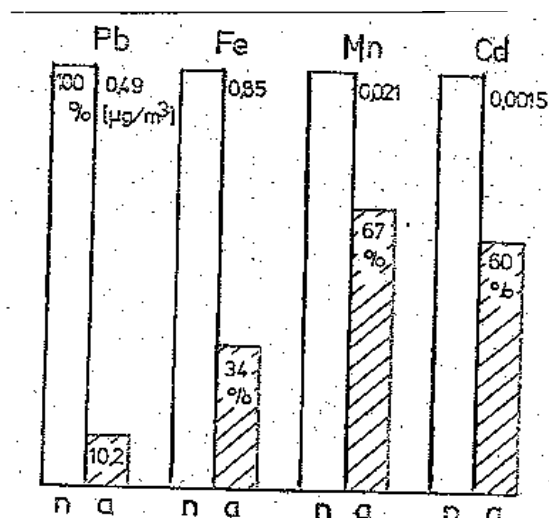


Abbildung 66: Schwermetalle (Pb, Fe, Mn, Cd) im Schwebstaub, gemessen an autofreien Sonntagen im Dezember 1973 (a) und an normalen Sonntagen im Dezember 1974 (n) in Frankfurt/M.-Westend

10.2 Messung von Nanopartikeln

Jürgen Müller und Rainer Berg

Aufgrund toxischer Eigenschaften sowie vieler technischer und medizinischer Anwendungsmöglichkeiten sind Nanopartikel zu einem Schwerpunkt experimenteller Untersuchungen geworden.

Neuere Experimente und Feldmessungen mit hochauflösenden Teilchenzahlmessgeräten haben ergeben, dass der Schwebstaub der Außenluft im Submikronbereich (Partikeldurchmesser unterhalb $1\ \mu\text{m} = 10^3\ \text{nm}$ (PM_{10})) eine trimodale Verteilung aufweist. Maximale Partikelpopulationen befinden sich bei 3 – 10 nm (Nukleationsmodus), bei 20 – 80 nm (Aitkenmodus) und bei 250 – 700 nm (Akkumulationsmodus). Die trimodale Submikronverteilung wurde sowohl in Stadtluft als auch in Landluft und wie aus der Literatur bekannt ist, auch in kontinentaler und maritimer Reinluft gemessen.

Die Trimodalverteilung wird beobachtet, obwohl die Partikel in Nanogröße auf unterschiedlichste Art in der Luft gebildet (Sekundäraerosole) oder aus vielerlei Quellen (insbesondere aus Verbrennungsquellen) als Primäraerosole in die Luft emittiert werden. In der jetzigen Vorstellung der Partikelbildung wird angenommen, dass aus Molekülen, Ionen oder Metallen unter bestimmten Bedingungen thermodynamisch stabile Cluster (Zusammenballungen) entstehen, die eine kritische Größe zwischen 1 und 3 nm erreichen. Unterhalb dieser Größe findet aufgrund der großen Oberflächenspannung schnell wieder eine Teilchenauflösung statt. Das Wachstum zu stabilen ultrafeinen Partikeln zwischen 3 und 10 nm Größe geschieht in Stadtluft überwiegend durch Kondensation von Gasen an der Oberfläche der Partikel und in Reinluft durch Koagulation (Vereinigung zusammenstoßender Partikel).

Theoretisch, experimentell und anhand von Feldmessungen ist bisher am meisten die Bildung von ultrafeinen Sulfatteilchen untersucht worden, die bei der Partikelbildung in der freien Atmosphäre immer noch eine dominante Rolle spielen. Durch schwefelfreien Treibstoff kann deshalb eine erhebliche Minderung bei der Emission der Anzahl ultrafeiner Teilchen erzielt werden. Mit dem „Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) System“ kann die Partikelanzahlverteilung zwischen 5 und 250 nm gemessen werden. In Abbildung 67 sind gemessene Partikelanzahlverteilungen der Außenluft, gemessen beim Dienstgebäude in Langen, dargestellt. Die Einzelmessungen schwanken um ein Maximum bei 30 nm, ein weiteres liegt unterhalb 10 nm. In Abbildung 68 ist die Anzahlgrößenverteilung, gemittelt über einen Meßzeitraum von 49 Tagen zwischen August 2000 und Januar 2001, aufgezeichnet. Der Aitkenkernmodus mit einem Maximum beim Partikeldurchmesser von 30 nm ist in Langen, einer Kleinstadt in der Rhein-Main-Region, deutlich ausgeprägt.

Abbildung 69 stellt die mittlere Anzahlgrößenverteilung dar, die auf dem Kleinen Feldberg im Taunus (Mittelgebirgskuppe in 830 m Höhe) im März 2001 über einen Meßzeitraum von 12 Tagen ermittelt wurde. Die Partikel des Nukleationsmodus (unterhalb 10 nm) sind in Mittelgebirgsluft langlebiger, da aufgrund niedrigerer Luftverschmutzung das Wachstum der ultrafeinen Partikel durch Kondensation von Gasen auf der Oberfläche und durch Koagulation deutlich langsamer als in Stadtluft vonstatten geht. Der Aitkenkernmodus, in Stadtluft stets ausgeprägt, war auf dem Kleinen Feldberg, als zur Meßzeit auch hohe Windgeschwindigkeiten herrschten, kaum erkennbar. Durch weitere Messungen soll das Verhalten der Nanopartikel bei unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen ermittelt werden.

Da Nanopartikel der Außenluft auch Metalle enthalten und die Größe des Partikeldurchmessers beim Einatmen eine wichtige Rolle spielt, wurden künstliche Metallpartikel hergestellt. Zu diesem Zweck wurden Metalldrähte elektrisch erhitzt, damit durch Verdampfung Metallpartikel erzeugt werden konnten.

In Abbildung 70 sind die gemessenen Anzahlverteilungen mehrerer untersuchter Metalle dargestellt. Die Experimente ergaben, dass die Größe des Durchmessers mit maximaler Partikelanzahl vom Schmelz- und Siedepunkt des erhitzten Metalls abhängt.

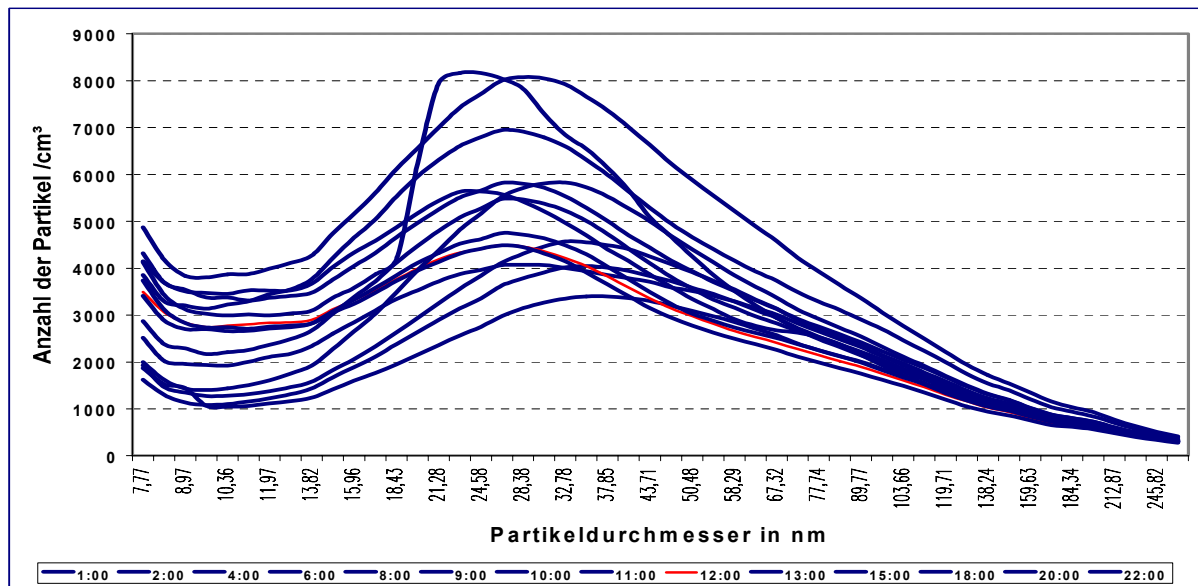


Abbildung 67: Gemessene Anzahlgrößenverteilung der Nanopartikel in Langener Außenluft (Messung zwischen 1:00 Uhr und 22:00 Uhr)

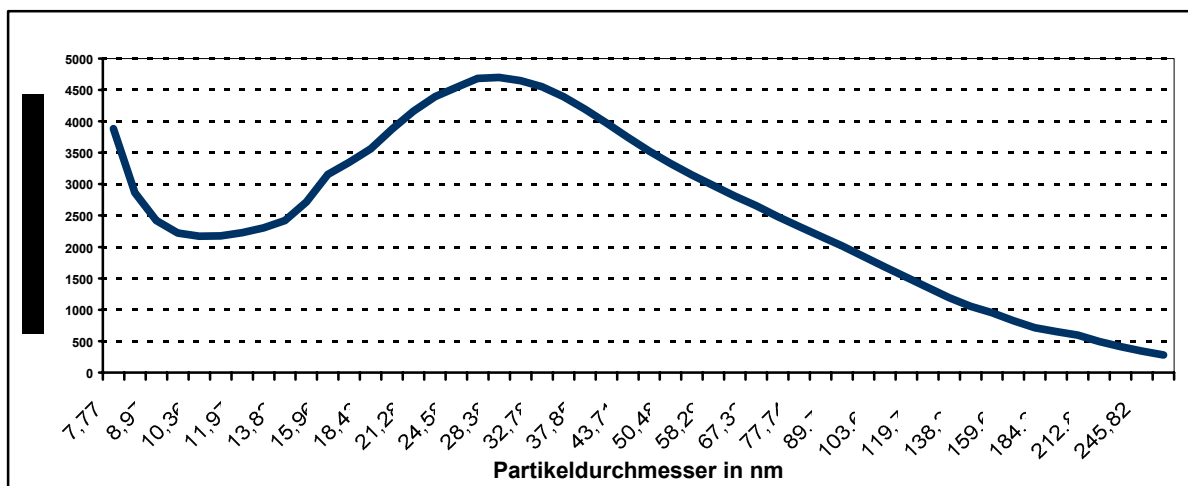


Abbildung 68: Anzahlgrößenverteilung der Nanopartikel in Außenluft am Dienstgebäude Langen (Mittelwert über einen Meßzeitraum von 49 Tagen zwischen August 2000 und Januar 2001)

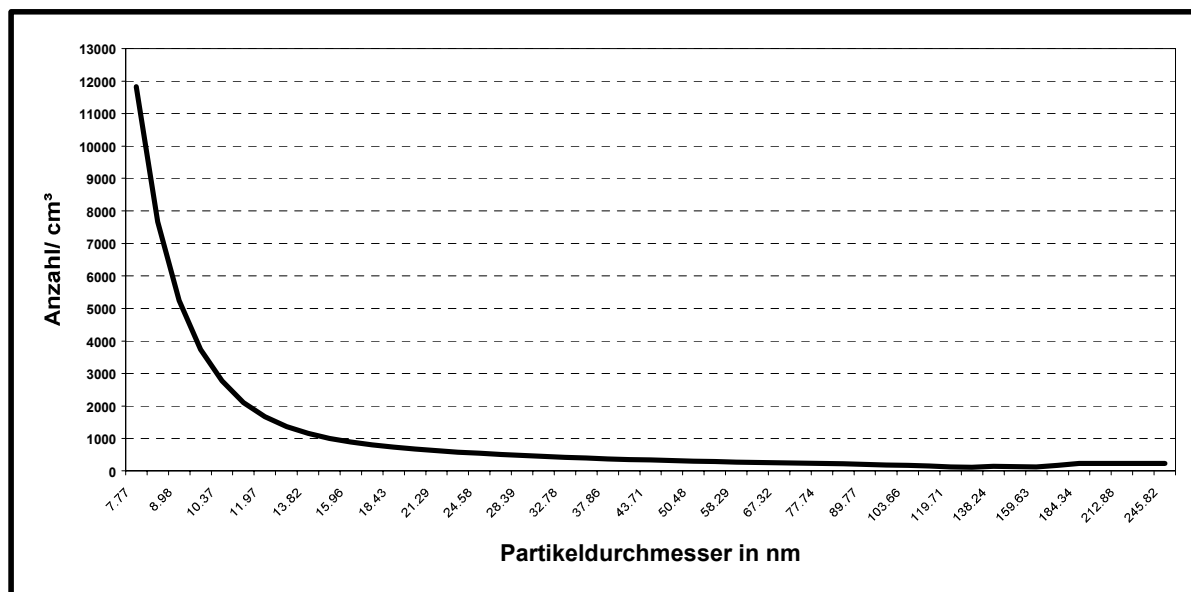


Abbildung 69: Anzahlgrößenverteilung der Nanopartikel, gemessen in 930 m Höhe auf dem Kleinen Feldberg (Ts.)

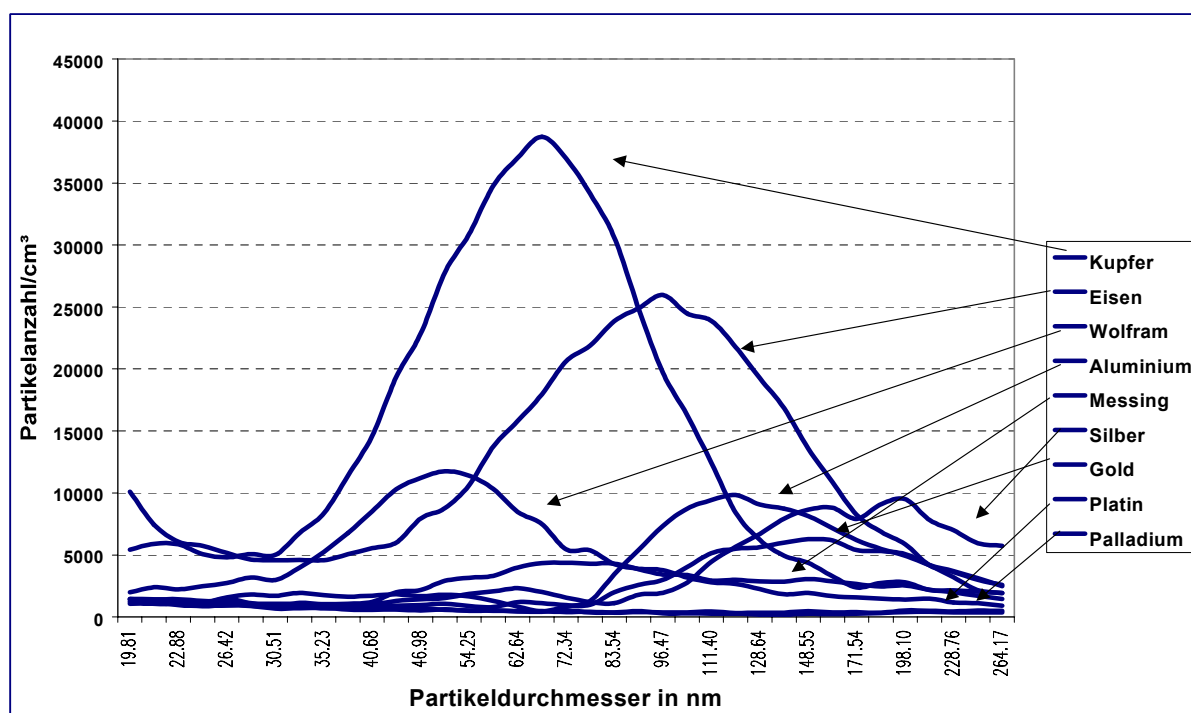


Abbildung 70: Gemessene Anzahlgrößenverteilungen der Nanopartikel von elektrisch erhitzten Metalldrähten

11. POLYCHLOR-DIBENZO-DIOXINE UND -FURANE IN DER LUFT, IM SCHWEBSTAUB UND IM GESAMTNIEDERSCHLAG IM UBA-MESSNETZ

Wilhelm Knoth

11.1 Einleitung

Polychlor-dibenzo-dioxine und -furane (PCDD/F) wurden niemals gezielt synthetisiert, sondern entstehen als Nebenprodukt der Synthese von chlorierten organischen Verbindungen (z. B. Polychlorierten Biphenylen (PCB), Pentachlorphenol (PCP), bei der Produktion von Zellstoff und bei allen thermischen Prozessen (Metallgewinnung und -recycling, Hausbrand, Abfallverbrennung). Sie zählen wegen ihrer hohen chemischen, physikalischen und biologischen Stabilität zur Gruppe der persistenten organischen Verbindungen (Persistent Organic Pollutant, POP).

In Deutschland ist der Eintrag von PCDD/F in die Umwelt durch Verbote und Verordnungen weitgehend minimiert worden. Da aber noch nicht überall auf der Welt emissionsmindernde Maßnahmen ergriffen wurden und PCDD/F, wie andere mittel- bis schwerflüchtige organische Verbindungen in der Luft sowohl in der Gas- als auch in der Partikelphase über die Grenzen weiträumig transportiert werden (Long Range Transboundary Air Pollution), werden diese Verbindungen weiter in die Böden eingetragen. Sie können über den Pfad Boden-Pflanze-Tier (Fleisch- und Milchprodukte) zu einer Belastung des Menschen am Ende der Nahrungskette mit diesen toxischen Stoffen führen (Persistent Bioaccumulative Toxic, PBT).

Um die gegenwärtige Belastungssituation als auch Langzeitänderungen der Bodenqualität zu beobachten, hat das Umweltbundesamt im Bereich der Messstellen des Immissionsmessnetzes Bodenprobenahmestellen eingerichtet. Die Probenahmestellen befinden sich in ländlichen Gegenden fern von Punktquellen, um den Einfluss dieser ferngetragenen Schadstoffe über die Luft und den Gesamtniederschlag zu verfolgen.

11.2 Ergebnisse

Während zwei Probenahmekampagnen, 1989/90 in den alten und 1996/97 in den neuen Bundesländern, wurden Luft (8 Messstellen), Schwebstaub (11 Messstellen) und Gesamtniederschlag (26 Messstellen) untersucht. An jeder Messstelle wurde je 1 Probe für den Zeitraum Herbst/Winter und Frühling/Sommer gesammelt. Bodenprofile von der Deckschicht (Streu) bis zu Unterbodenhorizonten der drei Nutzungsarten Wald, Grünland und Acker wurden entnommen. 30 Wald-, 18 Grünland- und 20 Ackerprofile, insgesamt 242 Bodenhorizonte wurden auf PCDD/F analysiert. Damit wird bezweckt, Informationen über den Belastungszustand und die unterschiedlichen Eintrags- sowie Verteilungsmechanismen in den verschieden genutzten Böden bei gleicher großräumiger Eintragssituation zu gewinnen. Die

Bodenprobenahmestellen wurden eingemessen um die Wiederauffindbarkeit sicherzustellen und spätere Nachuntersuchungen zu ermöglichen (Grupe, 1990, Schmotz, 1997).

Die vollständigen Ergebnisse der Bodenuntersuchungen (Knoth, 1999, Rotard, 1994, Umweltbundesamt 1997 und 2000) und die toxischen Äquivalente der Luft-, Schwebstaub- und Gesamtniederschlaguntersuchungen wurden schon vorgestellt (Knoth, 2000).

Die Probenahmemethoden für Luft, Schwebstaub und Gesamtniederschlag sind in Tabelle 22 wiedergegeben. Bei den Luftproben wurden die Glasfaserfilter und Polyurethan-Schäume und bei den Schwebstaubproben die Teilfilter von Herbst/Winter und Frühling/Sommer gepoolt und nach Zugabe von 17 $^{13}\text{C}_{12}$ -markierten PCDD/F-Standards mit Toluol im Heiextraktor nach Knöfler-Böhm mit Dean-Stark-Wasserabscheider extrahiert. Die Reinigung der Extrakte erfolgte mit einem 3-stufigen säulenchromatographischen Clean up (Makro Al_2O_3 B Super I; SiO_2 - AgNO_3 , H_2SO_4 , NaOH ; Mini Al_2O_3 B Super I) und die Messung mittels hochauflösender Gaschromatographie/hochauflösender Massenspektrometrie (HRGC/HRMS) (VDI 3498).

Die statistische Auswertung der PCDD/F-Messungen wird für die Luft in Tabelle 25, für den Schwebstaub in Tabelle 27 und für den Gesamtniederschlag in Tabelle 29 wiedergegeben.

Aus den gemessenen Konzentrationen der PCDD/F-Kongenere wurden sowohl die internationalen toxischen Äquivalente (I-TEQ) als auch die neuen der Weltgesundheitsorganisation (WHO-TEQ) durch Multiplikation mit den toxischen Äquivalenzfaktoren (I-TEF bzw. WHO-TEF), die die relative toxische und biologische Wirksamkeit bezogen auf das 2,3,7,8-TCDD berücksichtigen, berechnet. Die PCDD/F-Kongenere, deren Konzentration kleiner oder gleich der Nachweisgrenze war, wurden dabei nicht berücksichtigt (Tabelle 23).

Tabelle 22: PCDD/F in Luft, Schwebstaub und Gesamtniederschlag – Probenahmemethoden

Luft VDI 3498 Entwurf	Verfahren mit kleinem Filter Glasfaserfilter, D 40,5 mm, 2 Polyurethan-Schäume, D 55 mm, H 50 mm Low Volume Sammler, konst. Luftdurchsatz 2 m ³ /h, Sammelzeitraum 30 d
Schwebstaub VDI 2463	Glasfaserfilter, D 140 mm, analysierter Teilfilter, D 31,8 mm High Volume Sammler, konst. Luftdurchsatz 60 m ³ /h, Sammelzeitraum 1 d
Gesamt- niederschlag VDI 2119 modifiziert	Löbner-Liesegang-Trichter aus rostfreiem Stahl mit Adsorber-Kartusche Glasfaser-Soxhletthülse, ID 33 mm, H 130 mm 2 Polyurethan-Schäume, D 55 mm, ab 1996/97 65 mm, H 50 mm ab 1996/97 mit Cellulosenitrat-Membranfilter, Porengröße 3 µm, D 50 mm Verbesserte Version. Sammelzeitraum 180 d (Abbildung 74, Abbildung 75)

Tabelle 23: Toxische Äquivalenzfaktoren I-TEF (NATO/CCMS, 1988) und WHO-TEF (Van den Berg 1998)

PCDD	I-TEF	WHO-TEF	PCDF	I-TEF	WHO-TEF
2,3,7,8-TCDD	1	1	2,3,7,8-TCDF	0,1	0,1
1,2,3,7,8-PeCDD	0,5	1	1,2,3,7,8-PeCDF	0,05	0,05
1,2,3,4,7,8-HxCDD	0,1	0,1	2,3,4,7,8-PeCDF	0,5	0,5
1,2,3,6,7,8-HxCDD	0,1	0,1	1,2,3,4,7,8-HxCDF	0,1	0,1
1,2,3,7,8,9-HxCDD	0,1	0,1	1,2,3,6,7,8-HxCDF	0,1	0,1
1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	0,01	0,01	1,2,3,7,8,9-HxCDF	0,1	0,1
OCDD	0,001	0,0001	2,3,4,6,7,8-HxCDF	0,1	0,1
			1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	0,01	0,01
			1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	0,01	0,01
			OCDF	0,001	0,0001

Höhere PCDD/F toxische Äquivalente wurden im Herbst/Winter gemessen und reichen von 7,6 bis 27,4 fg/I-TEQ m³ (fg = femtogramm) (50-Perzentil 13,7) in der Luft und von 8,3 bis 26,9 (50-Perzentil 14,9) im Schwebstaub. Im Frühling/Sommer sind die Werte niedriger. Sie reichen in der Luft von 4,0 bis 19,6 (50-Perzentil 6,1) und im Schwebstaub von 5,8 bis 20,2 (50-Perzentil 7,3) (siehe Tabelle 24 und Tabelle 26 sowie Abbildung 71 und Abbildung 72).

Diese Beobachtung gilt auch für die PCDD/F toxischen Äquivalente im Gesamtniederschlag, nur sind die Unterschiede zwischen Herbst/Winter und Frühling/Sommer geringer. Die Werte reichen von 1,5 bis 14,5 pg/I-TEQ m²d (pg = pikogramm) (50-Perzentil 3,3) im Herbst/Winter und von 1,0 bis 17,9 (50-Perzentil 2,6) im Frühling/Sommer (siehe Tabelle 28 und Abbildung 73).

Der Gesamtniederschlag an PCDD/F pro Jahr in Deutschland wird aus diesen Messungen auf 130 bis 2400 g I-TEQ/a (50-Perzentil 340 g) geschätzt: Gesamtniederschlag 1,0 bis 17,9 (50-Perzentil 2,6) pg/m²d x Fläche Deutschlands 3,6 x 10¹¹ m² x 365 d

Tabelle 24: PCDD/F in der Luft im UBA-Messnetz - toxische Äquivalente

Messstelle	Sammelzeitraum		I-TEQ		WHO-TEQ	
	A	B	A	B	A	B
			[fg/m ³]		[fg/m ³]	
Brotjacklriegel	3/94-9/94	9/94-3/95	4,0	8,6	4,2	9,2
Deuselbach	2/94-8/94	8/94-2/95	19,6	23,8	20,2	26,6
Neuglobsow	3/97-8/97	8/96-3/97	4,4	27,4	4,7	29,9
Schauinsland	3/94-9/94	9/94-3/95	5,0	7,6	5,3	8,2
Schmücke	2/97-8/97	8/96-2/97	5,8	11,7	6,3	12,6
Waldhof	3/94-8/94	8/94-3/95	14,8	14,2	15,4	15,3
Westerland	4/94-10/94	10/94-4/95	6,6	13,1	6,8	14,1
Zingst	3/97-8/97	8/96-3/97	6,3	15,8	6,7	17,0
Min			4,0	7,6	4,2	8,2
Max			19,6	27,4	20,2	29,9
Mittel			8,3	15,3	8,7	16,6
50Perz			6,1	13,7	6,5	14,7
90Perz			16,2	24,9	16,8	27,6
10Perz			4,3	8,3	4,6	8,9

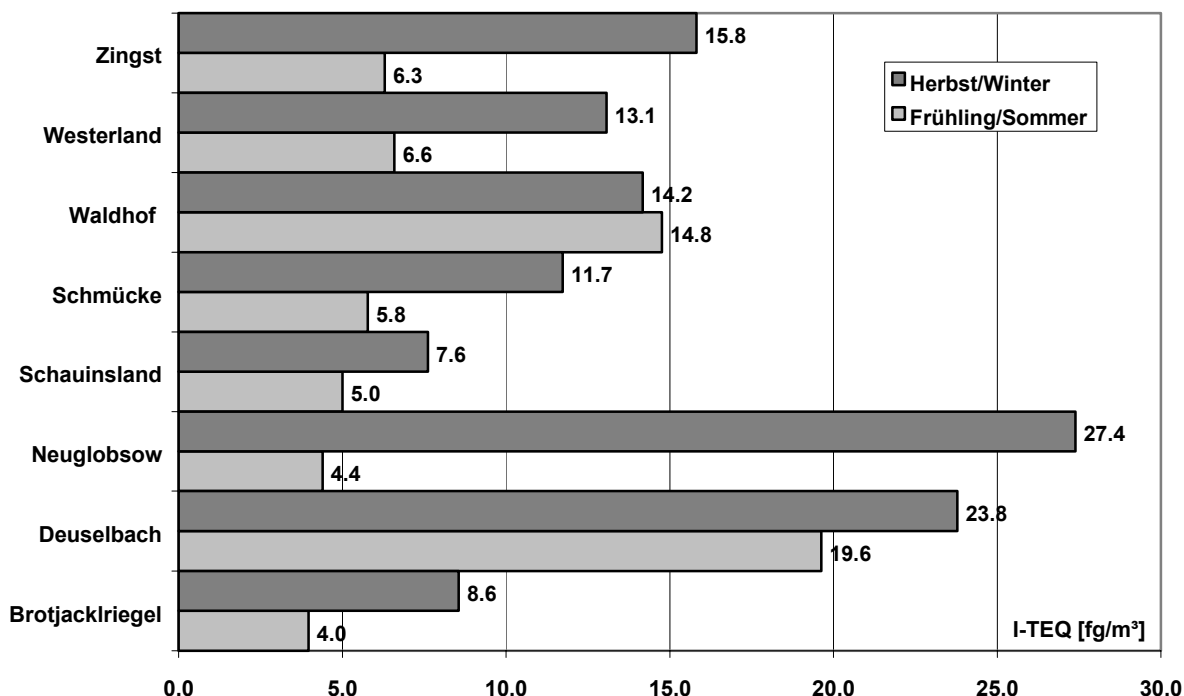


Abbildung 71: PCDD/F in der Luft im UBA-Messnetz - Internationale toxische Äquivalente

Tabelle 25: PCDD/F in der Luft im UBA-Messnetz - toxische Kongenere, Summe der Chlorhomologen und toxische Äquivalente - Sammelzeiträume A und B

PCDD/F [fg/m³]	n	Min	Max	Mittel	50Perz	90Perz	10Perz	NWG
2,3,7,8-TCDD	16	<0,3	1,0	0,4	0,3	0,9	<0,3	0,3
Summe TCDD	16	10,8	96,7	36,5	35,0	56,6	14,5	
1,2,3,7,8-PeCDD	16	0,7	6,6	2,4	1,8	4,6	0,9	0,5
Summe PeCDD	16	15,6	90,4	39,1	30,1	80,8	16,9	
1,2,3,4,7,8-HxCDD	16	1,1	8,0	3,1	2,4	6,1	1,5	0,6
1,2,3,6,7,8-HxCDD	16	1,3	11,8	4,9	4,2	8,2	1,6	0,6
1,2,3,7,8,9-HxCDD	16	1,4	11,3	5,2	4,4	11,0	2,0	0,6
Summe HxCDD	16	20,4	140	65,7	54,3	132	25,6	
1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	16	23,6	172	73,6	62,5	136	25,3	0,9
Summe HpCDD	16	42,4	247	125	117	225	48,2	
OCDD	16	97,1	554	282	282	424	133	1,0
PCDD	16	214	950	549	544	885	246	
2,3,7,8-TCDF	16	1,7	18,4	7,8	6,2	15,8	3,0	0,3
Summe TCDF	16	88,9	1082	243	160	378	110	
1,2,3,7,8+(4,8)-PeCDF	16	1,1	17,4	6,5	4,7	12,4	2,8	0,3
2,3,4,7,8-PeCDF	16	2,5	20,7	7,6	5,7	14,7	3,0	0,3
Summe PeCDF	16	47,5	252	111	90,7	187	50,4	
1,2,3,4,7,8+(7,9)-HxCDF	16	2,4	18,8	7,3	4,4	13,7	2,8	0,5
1,2,3,6,7,8-HxCDF	16	1,1	18,8	7,3	4,4	15,3	2,6	0,5
1,2,3,7,8,9-HxCDF	16	<0,5	10,3	2,3	1,8	4,0	<0,5	0,5
2,3,4,6,7,8-HxCDF	16	2,1	18,0	6,9	4,8	15,8	2,3	0,5
Summe HxCDF	16	29,1	189	86,3	78,7	145	34,2	
1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	16	9,2	197	35,2	19,1	52,6	9,9	0,9
1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	16	<0,9	18,4	4,4	2,7	8,9	1,4	0,9
Summe HpCDF	16	12,6	348	61,5	33,1	120	13,8	
OCDF	16	6,2	572	99,7	24,1	340	8,4	0,9
PCDF	16	209	1434	602	455	1194	229	
PCDD/F	16	423	2358	1150	959	1930	505	
I-TEQ	16	4,0	27,4	11,8	10,1	21,7	4,7	1,2
WHO-TEQ	16	4,2	29,9	12,7	10,9	23,4	5,0	1,4

Tabelle 26: PCDD/F im Schwebstaub im UBA-Messnetz - toxische Äquivalente

Messstelle	Sammelzeitraum		I-TEQ		WHO-TEQ	
	A	B	A	B	A	B
			[fg/m ³]		[fg/m ³]	
Ansbach	3/94-9/94	9/94-3/95	6,5	26,9	6,9	28,9
Bassum	2/94-8/94	8/94-2/95	10,9	24,5	12,3	26,5
Brotjacklriegel	3/94-9/94	9/94-3/95	6,4	11,7	6,6	12,5
Deuselbach	2/94-8/94	8/94-2/95	12,1	14,9	13,0	15,6
Hohenwestedt	4/94-10/94	10/94-4/95	5,8	11,2	6,3	11,8
Meinerzhagen	2/94-8/94	8/94-2/95	12,5	19,5	13,2	20,6
Rottenburg	3/94-9/94	9/94-3/95	20,2	8,3	21,1	8,8
Schauinsland	3/94-9/94	9/94-3/95	6,6	8,6	6,9	9,0
Starnberg	3/94-9/94	9/94-3/95	6,8	10,6	7,1	11,6
Waldhof	3/94-8/94	8/94-3/95	7,3	18,9	8,0	20,7
Westerland	4/94-10/94	10/94-4/95	7,5	18,4	8,5	19,5
Min			5,8	8,3	6,3	8,8
Max			20,2	26,9	21,1	28,9
Mittel			9,3	15,8	10,0	16,9
50Perz			7,3	14,9	8,0	15,6
90Perz			12,5	24,5	13,2	26,5
10Perz			6,4	8,6	6,6	9,0

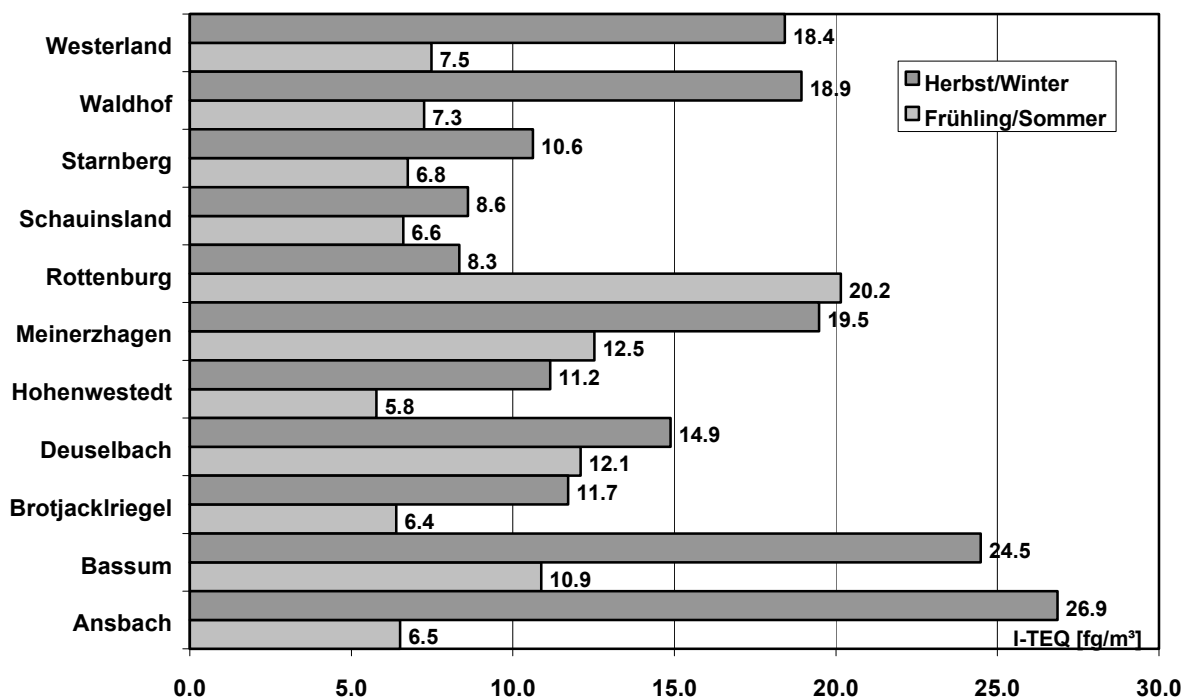


Abbildung 72: PCDD/F im Schwebstaub im UBA-Messnetz – Internationale toxische Äquivalente

Tabelle 27: PCDD/F im Schwebstaub im UBA-Messnetz - toxische Kongenere, Summe der Chlorhomologen und toxische Äquivalente - Sammelzeiträume A und B

PCDD/F [fg/m³]	n	Min	Max	Mittel	50Perz	90Perz	10Perz	NWG
2,3,7,8-TCDD	22	<0,3	1,2	0,5	0,4	1,0	<0,3	0,3
Summe TCDD	22	5,1	47,3	20,8	16,1	41,2	8,8	
1,2,3,7,8-PeCDD	22	0,6	5,1	2,4	2,2	4,1	1,2	0,4
Summe PeCDD	22	9,6	81,9	36,4	30,9	56,0	15,2	
1,2,3,4,7,8-HxCDD	22	1,6	11,9	4,9	3,9	9,0	2,1	0,5
1,2,3,6,7,8-HxCDD	22	1,8	11,4	5,7	5,0	10,5	2,6	0,5
1,2,3,7,8,9-HxCDD	22	2,6	17,6	7,4	6,2	13,0	3,5	0,5
Summe HxCDD	22	34,6	187	88,0	76,0	148	38,8	
1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	22	28,3	181	90,1	75,4	167	37,7	0,8
Summe HpCDD	22	52,5	331	167	142	301	72,7	
OCDD	22	104	754	347	326	591	160	0,9
PCDD	22	209	1232	659	555	1116	316	
2,3,7,8-TCDF	22	3,5	31,5	12,7	8,9	27,2	4,4	0,3
Summe TCDF	22	37,8	208	107	96,3	198	47,8	
1,2,3,7,8+(4,8)-PeCDF	22	2,6	15,5	7,7	5,8	14,0	3,2	0,3
2,3,4,7,8-PeCDF	22	2,3	19,7	7,1	5,6	12,3	3,4	0,3
Summe PeCDF	22	32,9	174	89,4	68,8	159	44,0	
1,2,3,4,7,8+(7,9)-HxCDF	22	2,0	13,9	6,9	5,6	12,1	3,1	0,4
1,2,3,6,7,8-HxCDF	22	2,4	12,2	6,8	5,7	11,9	3,4	0,4
1,2,3,7,8,9-HxCDF	22	<0,4	4,7	1,5	0,9	2,8	<0,4	0,4
2,3,4,6,7,8-HxCDF	22	2,9	14,2	7,5	6,3	12,9	3,2	0,4
Summe HxCDF	22	25,7	122	64,1	50,6	108	31,5	
1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	22	8,4	51,3	24,6	17,1	41,3	10,4	0,8
1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	22	1,0	9,4	4,2	3,5	7,0	1,6	0,8
Summe HpCDF	22	12,3	77,7	37,7	27,3	60,9	16,7	
OCDF	22	7,8	42,8	20,6	17,0	34,7	9,5	0,8
PCDF	22	139	574	318	236	557	156	
PCDD/F	22	414	1805	978	924	1627	484	
I-TEQ	22	5,8	26,9	12,5	11,0	20,1	6,5	1,0
WHO-TEQ	22	6,3	28,9	13,4	12,0	21,1	6,8	1,2

Tabelle 28: PCDD/F im Gesamtniederschlag im UBA-Messnetz - toxische Äquivalente

Messstelle	Sammelzeitraum		I-TEQ		WHO-TEQ	
	A	B	A [pg/m²d]	B [pg/m²d]	A [pg/m²d]	B [pg/m²d]
Angermünde	3/97-8/97	8/96-3/97	1,7	3,2	1,8	3,4
Ansbach	3/94-9/94	9/94-3/95	2,1	2,4	2,3	2,5
Bassum	2/94-8/94	8/94-2/95	2,7	3,7	2,8	3,9
Brotjacklriegel	3/94-9/94	9/94-3/95	2,5	6,6	2,7	7,0
Deuselbach	2/94-8/94	8/94-2/95	3,0	4,7	3,2	5,0
Gartow	3/94-8/94	8/94-3/95	1,7	2,6	1,8	2,7
Gittrup	2/94-8/94	8/94-2/95	3,8	6,2	4,0	6,6
Herleshausen	2/94-8/94	8/94-2/95	2,6	6,8	2,9	7,6
Hohenwestedt	4/94-10/94	10/94-4/95	2,0	4,9	2,1	5,3
Leinefelde	2/97-8/97	8/96-2/97	17,9	13,3	19,9	15,2
Lindenberg	3/97-8/97	8/96-3/97	2,8	2,1	3,0	2,4
Meinerzhagen	2/94-8/94	8/94-2/95	8,6	14,5	8,9	15,4
Melpitz		8/96-3/97		3,0		3,2
Neuglobsow	3/97-8/97	8/96-3/97	1,0	1,9	1,1	2,1
Regnitzlosau	3/94-9/94	9/94-3/95	1,4	3,3	1,5	3,3
Rodenberg	3/94-8/94	8/94-3/95	2,8	5,2	2,9	5,5
Rottenburg	3/94-9/94	9/94-3/95	2,7	1,5	2,8	1,6
Schauinsland	3/94-9/94	9/94-3/95	6,8	6,5	7,1	6,7
Schmücke	2/97-8/97	8/96-2/97	4,7	8,5	5,0	9,1
Starnberg	3/94-9/94	9/94-3/95	3,2	2,9	3,4	3,1
Ueckermünde	3/97-8/97	8/96-3/97	2,1	2,9	2,3	2,9
Usingen	1/94-7/94	7/94-1/95	3,1	3,3	3,3	3,5
Waldhof	3/94-8/94	8/94-3/95	2,1	2,7	2,2	2,8
Westerland	4/94-10/94	10/94-4/95	1,9	3,4	2,0	3,6
Wiesenburg	3/97-8/97	8/96-3/97	1,5	2,5	1,6	2,8
Zingst	3/97-8/97	8/96-3/97	1,2	1,7	1,3	1,8
Min			1,0	1,5	1,1	1,6
Max			17,9	14,5	19,9	15,4
Mittel			3,4	4,6	3,7	5,0
50Perz			2,6	3,3	2,8	3,5
90Perz			6,0	7,6	6,3	8,4
10Perz			1,4	2,0	1,5	2,3

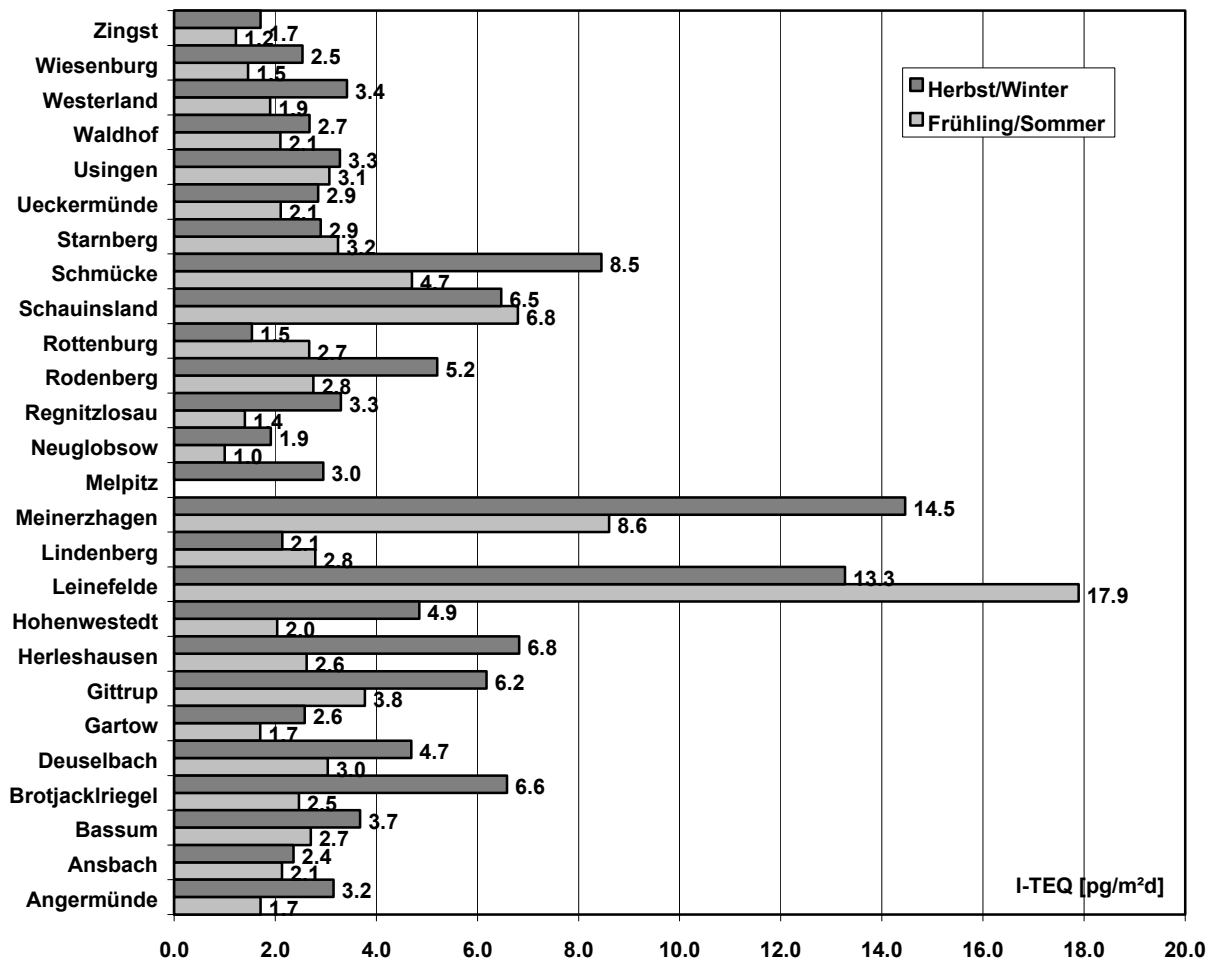
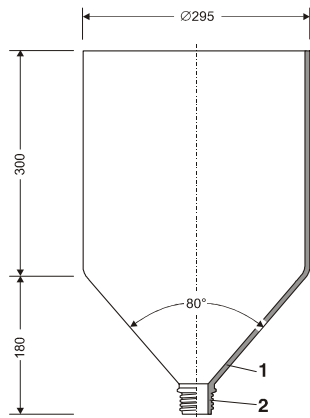


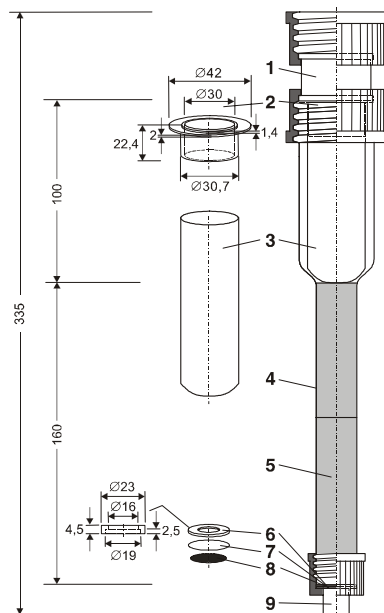
Abbildung 73: PCDD/F im Gesamtniederschlag im UBA-Messnetz - Internationale toxische Äquivalente

Tabelle 29: PCDD/F im Gesamtniederschlag im UBA-Messnetz - toxische Kongenere, Summe der Chlorhomologen und toxische Äquivalente - Sammelzeiträume A u. B

PCDD/F [pg/m ² d]	n	Min	Max	Mittel	50Perz	90Perz	10Perz	NWG
2,3,7,8-TCDD	47	<0,1	0,8	<0,1	<0,1	0,2	<0,1	0,1
Summe TCDD	51	0,9	84,0	7,0	2,9	11,8	1,4	
1,2,3,7,8-PeCDD	51	<0,2	4,3	0,8	0,5	1,6	0,3	0,2
Summe PeCDD	51	2,4	146	14,3	7,3	20,2	3,8	
1,2,3,4,7,8-HxCDD	51	0,3	33,0	2,0	1,0	2,4	0,4	0,2
1,2,3,6,7,8-HxCDD	51	0,3	25,2	2,4	1,5	3,5	0,6	0,2
1,2,3,7,8,9-HxCDD	51	0,3	33,0	2,9	1,5	4,7	0,7	0,2
Summe HxCDD	51	4,8	558	37,1	18,5	51,3	10,4	
1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	51	4,6	223	47,9	35,2	85,0	16,9	0,3
Summe HpCDD	51	8,9	427	89,0	66,8	153	31,5	
OCDD	50	19,5	470	111	82,8	181	39,4	0,4
PCDD	51	37,4	1195	257	185	623	92,3	
2,3,7,8-TCDF	51	0,2	3,5	1,4	1,1	2,7	0,6	0,1
Summe TCDF	51	5,9	61,8	21,3	15,5	35,5	9,5	
1,2,3,7,8+(4,8)-PeCDF	51	0,6	7,7	2,1	1,6	3,9	0,9	0,1
2,3,4,7,8-PeCDF	51	0,6	6,9	2,0	1,6	3,8	0,9	0,1
Summe PeCDF	51	8,5	86,9	24,5	19,5	42,1	11,5	
1,2,3,4,7,8+(7,9)-HxCDF	51	0,8	9,1	2,6	2,0	4,8	1,1	0,2
1,2,3,6,7,8-HxCDF	51	0,3	7,5	1,5	1,0	4,0	0,4	0,2
1,2,3,7,8,9-HxCDF	51	<0,2	8,0	1,5	1,3	3,0	0,2	0,2
2,3,4,6,7,8-HxCDF	51	0,5	10,3	2,4	1,7	4,6	0,9	0,2
Summe HxCDF	51	7,7	87,1	23,8	17,4	45,4	9,0	
1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	51	2,7	83,9	15,3	11,7	24,5	5,6	0,3
1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	50	0,4	13,8	2,3	1,6	4,4	0,6	0,3
Summe HpCDF	51	3,6	126	23,1	18,2	41,0	8,1	
OCDF	50	0,5	90,1	10,3	7,9	17,0	2,7	0,3
PCDF	51	30,4	384	103	80,8	182	47,9	
PCDD/F	51	68	1430	359	265	761	148	
I-TEQ	51	1,0	17,9	4,0	2,9	6,8	1,7	0,4
WHO-TEQ	51	1,0	19,9	4,3	3,0	7,6	1,8	0,5



- 1 Trichter** aus Laborflasche, Borosilikat Glas, Inhalt 20 l, Art.-Nr. 21 801 91, Schott, Mainz, Boden abgeschliffen, Rand verschmolzen, Sammelfläche 0,057 m²
- 2 DIN-Gewinde GL 45**



- 1 Schraubkupplung** mit 2 DIN Gewinden GL 45 – GL 45, PTFE/PBTP, Art.-Nr. H 901-05, Bohlender, Lauda-Königshofen
- 2 Adapter**, PTFE
- 3 Glasfaser-Soxhlehülse**, Sorte 603 gh, ID 30 mm, H 100 mm, Art.-Nr. 37 15 36, Schleicher & Schuell, Dassel
- 4 Gewinderohr** mit 2 DIN Gewinden GL 45 – GL 25, Borosilikate Glas
- 5 Polyurethan-Schaum**, D 22 mm, H 76 mm, vorgereinigt, 2 Stück, Art.-Nr. 2-0600, Supelco, Deisenhofen
- 6 Filter Kassette**, PTFE
- 7 Cellulosenitrat-Membranfilter**, Porengröße 3,0 µm, D 25 mm, Art.-Nr. 11 302-025 N, Sartorius, Göttingen
- 8 Edelmetallfritte**, Porengröße 10 µm, D 3/4", Dicke 1/16", Art.-Nr. A-336-02, Upchurch, Oak Harbor, USA
- 9 Chromatographie-Anschluß**, PTFE/PBTP, Bohrung D 0,8 mm, GL 25 – UNF 1/4" 28 G, Art.-Nr. F 755-09, Bohlender, Lauda-Königshofen

Abbildung 74: Bulk-Sammler (oben)

Abbildung 75: Adsorber-Kartusche (unten)

11.3 Danksagung

Ich danke meinen Kollegen Dr. W. Christmann und Dr. W. Rotard für Ihre kollegiale Zusammenarbeit, Herrn H. Schiege, V. Schinz, U. Stang und den MitarbeiterInnen des Messnetzes für die Probenahme, Frau A. Gramzow, P. Kutschera, T. Kalefe, S. Dornhöfer und J. Nebhuth für die Extraktion und das Clean up, Dr. J. Pribyl für die Analyse der Proben mittels HRGC/HRMS und Frau M. Jung für das Anfertigen der Abbildung 74 und Abbildung 75.

11.4 Literatur

- Grupe, M., 1990. *Belastung von Immission, Deposition und Boden im Bereich des UBA-Messnetzes mit PCDD/F, PCB, chlororganischen Pestiziden und leichtflüchtigen Kohlenwasserstoffen, Dokumentation der Bodenprobenahme in den alten Bundesländern, UBA-F+E-Vorhaben 10 70 10 16/12.*
- Knoth, W., Rotard, W., Christmann, W., 1999. *Background Levels of PCDD/F in Soils of Germany. Organohalogen Compounds 43, 173-177.*
- Knoth, W., Rotard, W., Christmann, W., Pribyl, J., 2000. *Background Levels of PCDD/F in Ambient Air, Particulate Matter and Deposition in Germany. Organohalogen Compounds 46, 467-470.*
- NATO/CCMS (North Atlantic Treaty Organisation/Committee on Challenges of Modern Society), 1988. *International Toxicity Equivalency Factor (I-TEF) Method of Risk Assessment for Complex Mixtures of Dioxins and Related Compounds. Pilot Study on International Information Exchange on Dioxins and Related Compounds. Report No. 176.*
- Rotard, W., Christmann, W., Knoth, W., 1994. *Background Levels of PCDD/F in Soils of Germany (Old Laender). Chemosphere 29, 2193-2200. Old/new name, Waldhof/Langenbrügge, Gartow/Höhbeck, Münster-Gittrup/Gittrup.*
- Schmotz, W., Parachnowitsch, O., Fröhlich, J., 1997. *Belastung von Immission, Deposition und Boden im Bereich des UBA-Messnetzes mit PCDD/F, PCB, chlororganischen Pestiziden und leichtflüchtigen Kohlenwasserstoffen, Dokumentation der Bodenprobenahme in den neuen Bundesländern, UBA-F+E-Vorhaben 10 70 10 16/12.*
- Umweltbundesamt 1997. *Daten zur Umwelt, 6. Ausgabe, Erich Schmidt Verlag, Berlin, 202-205 oder URL: <http://www.umweltbundesamt.org/dzu/Y00632.html>*
- Umweltbundesamt 2000. *Daten zur Umwelt, 7. Ausgabe, Erich Schmidt Verlag, Berlin, 188-194.*
- Van den Berg, M., et al., 1998. *Toxic Equivalency Factors (TEFs) for PCBs, PCDDs, PCDFs for Humans and Wildlife. Environmental Health Perspectives 106, 775-792.*
- VDI 2119, Blatt 3, Ausgabe 1972-06. *Messung partikelförmiger Niederschläge, Bestimmung des partikelförmigen Niederschlags mit dem Hibernia- und Löbner-Liesegang-Gerät. Beuth Verlag, Berlin.*
- VDI 2463, Blatt 1, Ausgabe 1999-11, dt./eng. *Messen von Partikeln, Gravimetrische Bestimmung der Massenkonzentration von Partikeln in der Außenluft. Grundlagen. Beuth Verlag, Berlin.*
- VDI 3498 Blatt 2, 1999-10-12. *Messen von Immissionen, Messen von Innenraumluft, Messen von PCDD/F, Verfahren mit kleinem Filter, Beuth Verlag, Berlin.*

12. OPTIMIERUNG DES „WET-ONLY“- NIEDERSCHLAGSMESSNETZES IM HINBLICK AUF EINE RESSOURCENSCHONENDE AUFGABENERFÜLLUNG

Markus Wallasch

12.1 Zusammenfassung

Es wird gezeigt, dass eine Verringerung der Zahl der Messstationen von derzeit 30 auf etwa 20 möglich ist ohne dass Einbußen im Informationsgehalt der Messungen zu befürchten sind.

Es wird eine optimierte Messnetzstruktur vorgestellt, die trotz der geringeren Stationszahl zu einer verbesserten räumlichen Abdeckung Deutschlands führt.

Mit dem im Rahmen dieser Untersuchung verwendeten Konzept der „reduzierten Konzentration“ ist es möglich, eine zuverlässige flächendeckende Interpolation der Messwerte durchzuführen. Durch Kombination mit entsprechenden Daten der Niederschlagsmenge (DWD) können dann räumlich hochaufgelöste Karten der nassen Deposition erstellt werden, deren Aussagekraft deutlich über derjenigen bisher üblicher Darstellungen der Depositionsdaten liegt.

12.2 Einleitung

12.2.1 Anlass

Der Anlass für die Umgestaltung des wet-only-Messnetzes war zunächst organisatorischer Art dahingehend, dass eine Neuausschreibung der im Auftrag durchgeführten Messungen erforderlich war.

Aus wissenschaftlicher Sicht sind die folgende Punkte Anlass für eine Optimierung des wet-only-Messnetzes :

- Die derzeitige Stationsanzahl (#30) erscheint zu hoch.
- Die Stationsverteilung ist geographisch inhomogen.
- Die Emissions- und Immissionssituation in Deutschland hat sich seit der Einrichtung des wet-only-Messnetzes erheblich verändert, wodurch sowohl eine Anpassung der Aufgaben als auch eine Anpassung der Struktur motiviert wird.

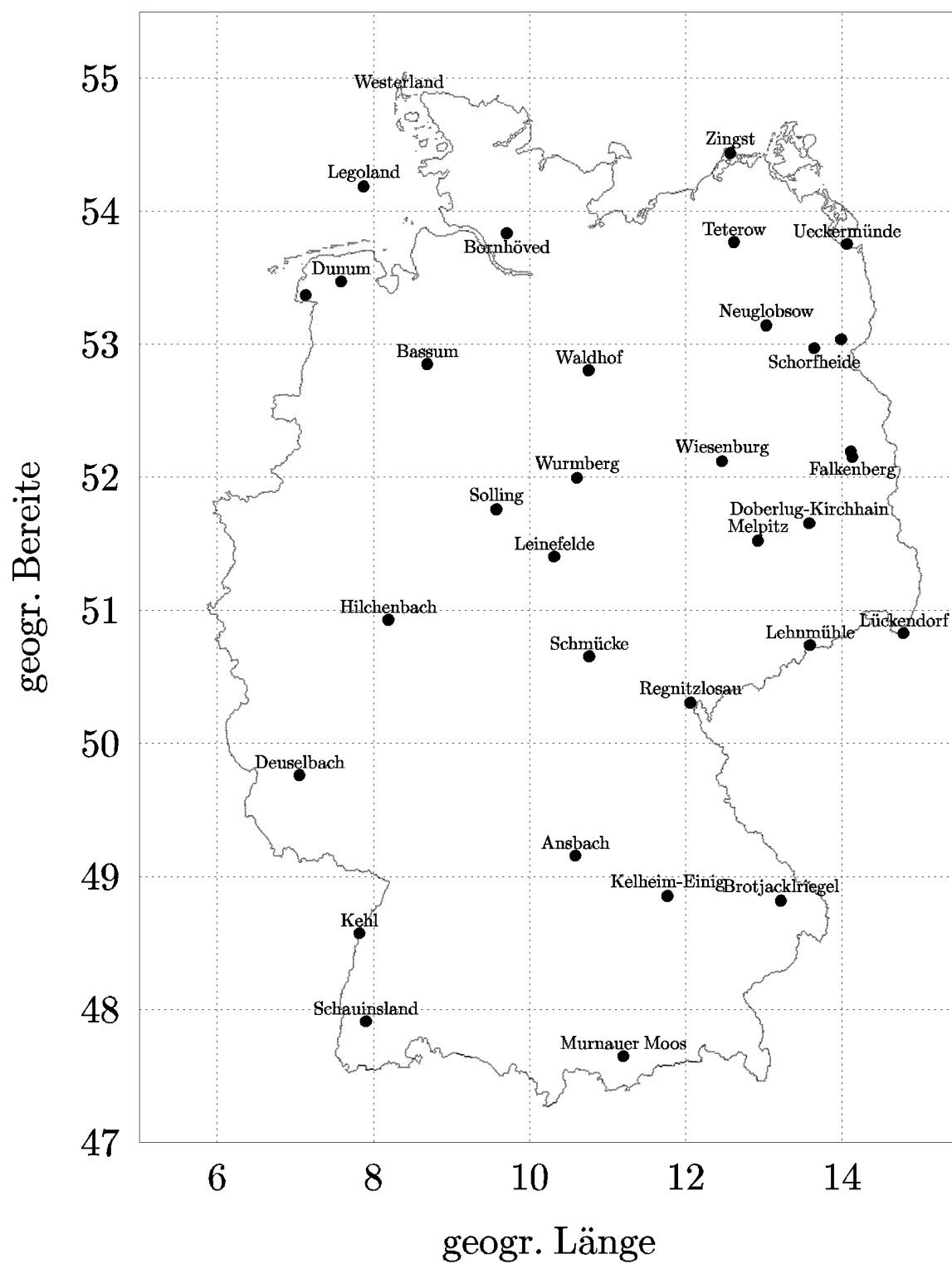


Abbildung 76: Wet-only-Messstellen, Stand 1999

12.2.2 Aufgabe der Niederschlagsmessungen im Rahmen des UBA-Luftmessnetzes

Als primäre Aufgabe des „wet-only“-Messnetzes wird festgelegt:

Die Ermittlung des großräumigen (deutschlandweiten) Verteilungsmusters der nassen Deposition von Schwefel und Stickstoff mit dem Ziel der Feststellung der großräumigen Belastung und der Verfolgung der Wirksamkeit von belastungs-mindernden Maßnahmen.

Es wird also die (großräumige) Interpolation von Punktmessungen in die Fläche angestrebt. Eine Betrachtung kleinskaliger, lokaler Effekte oder die unmittelbare Bestimmung der Deposition auf ausgewählten Flächen wird somit bewusst nicht als Kernaufgabe betrachtet.

12.2.3 Ziel der Optimierung

Ziel der Optimierung der Messnetzstruktur ist Einsparung von Ressourcen bei verbesserter (oder zumindest gleichbleibenden) Qualität der Aufgabenerfüllung. Diese Ziel soll erreicht werden durch:

- Verringerung der Stationszahl.
- Herbeiführen einer räumlich homogenen Stationsverteilung

12.2.4 Kriterium der Optimalität:

Optimal ist die Stationsanzahl und die Stationsverteilung, welche geeignet ist, mit dem geringst möglichen Aufwand das großräumige (deutschlandweite) Verteilungsmuster der nassen Deposition mit der angestrebten Genauigkeit und nötigen Sicherheit zu erfassen.

Gegebenenfalls sind jedoch weitere organisatorische Randbedingungen zu berücksichtigen, die zu Abweichungen von der optimalen Struktur führen können.

12.3 Methode

12.3.1 Ablauf

Der methodische Ablauf der Optimierung läßt sich in zwei wesentliche Schritte unterteilen:

- Untersuchen, ob die bisher vorliegenden Messungen ein großräumiges Verteilungsmuster erkennen lassen.
- Fall ja, feststellen, welche Stationszahl und welche Stationsverteilung zur Wiedergabe dieses Verteilungsmusters erforderlich ist.

12.3.2 Grundlagen

- Die nasse Deposition D ist das Produkt aus der Niederschlagsmenge G und der Ionen-Konzentration c : $D = c \cdot G$
- Die Variabilität der Deposition wird weitgehend durch die Variabilität Niederschlagsmenge verursacht. Die Niederschlagsmenge variiert räumlich sehr stark (auf einer Skala von 0.1 - 1 km). Die Ursache hierfür sind intensive Wechselwirkung zwischen meteorologischen und orographischen Faktoren. Daraus folgt:
 - Es ist eine sehr hohe Messstationszahl für die Niederschlagsmenge erforderlich (einige 1000 für Deutschland, z.B. DWD: ca. 4000 Niederschlagsmessstellen).
 - Der Repräsentanzradius einer Depositionsmessung ist sehr gering (einige 100 m bis einige km).
 - Depositionsmessungen sind nicht unmittelbar in die Fläche interpolierbar.
- Die Variabilität der Ionen-Konzentrationen im Niederschlag wird ebenfalls zu einem erheblichen Anteil durch die Niederschlagsmenge bewirkt: höhere Niederschlagsmengen führen zu niedrigeren Konzentrationen. Daher sollten Konzentrationen ebenfalls nicht unmittelbar in die Fläche interpoliert werden.
- Die Niederschlagsmengenabhängigkeit der Konzentrationen gehorcht jedoch einem empirisch gut gesicherten Gesetz:

$$c/c_0 = (G/G_0)^a$$

$$a = -0.35$$

c : Konzentration

G : Niederschlagsmenge

G_0 : frei wählbarer Referenzwert

c_0 : Konzentration bei G_0

Damit kann eine „reduzierte Konzentration“ $c^* = c \cdot (G_0/G)^a$ bestimmt werden. Diese weist dann keine Niederschlagsmengenabhängigkeit mehr auf. Die räumliche Variabilität der reduzierten Konzentration fällt daher wesentlich geringer aus als die der Konzentration bzw. der Deposition und kann daher großräumig interpretiert werden. Daraus folgt:

- Die maßgebliche Größe bei der Betrachtung der räumlichen Verteilung Niederschlagsinhaltsstoffe ist die reduzierte Konzentration.
- Die folgenden Untersuchungen zur Optimierung der Depositionsmessnetzstruktur werden daher anhand der Jahreswerte der reduzierten Konzentrationen durchgeführt. Hierbei wird für G_0 eine Jahresniederschlagsmenge von 700 mm zugrunde gelegt. Es werden exemplarisch die Ergebnisse für das Jahr 1998 gezeigt. Die Jahre 1997 und 1999 ergeben sehr gut damit übereinstimmende Ergebnisse.

12.4 Ergebnisse

12.4.1 Betrachtung der derzeitigen Stationsverteilung

Die Stationsverteilung ist stark nord-ost-lastig. Insbesondere der mittlere Westen Deutschlands wird schlecht abgedeckt (Abbildung 76).

12.4.2 Betrachtung der räumlichen Verteilung der reduzierten Konzentrationen von Sulfat und Gesamtstickstoff

- Die Unterschiede zwischen den einzelnen Messstationen sind vergleichsweise gering (niedrigster Wert ca. 50% des höchsten Wertes; relative Standardabweichung des Mittelwertes ca. 30%). Die Verteilung ist also vergleichsweise „schmal“.
- Die räumliche Verteilung der reduzierten Konzentrationen für Sulfat (seesalzkorrigiert) und Gesamtstickstoff (= Nitrat + Ammonium) zeigt ein klar erkennbares und einheitliches Muster (Abbildung 77 und Abbildung 78):
 - Vergleichsweise niedrige Werte im Süden Deutschlands (südlich von ca. 50° N).
 - Höhere Werte im mittleren Teil (ca. 50° N bis ca. 52.5° N). Besonders hohe Werte treten in dieser Region im Westen sowie bei Sulfat auch im Osten (Erzgebirge) auf.
 - niedrigere Werte im Norden (nördlich von 52.5° N) .
- In Anlehnung an diese Beobachtung wird die Fläche Deutschlands in 3 Hauptregionen unterteilt:
 - Region Nord: nördlich von 52.5° N.
 - Region Mitte: zwischen 50° N und 52.5° N.
 - Region Süd: südlich von 50° N
- Die Regionen Nord und Süd werden dann jeweils in zwei Sektoren (West und Ost), die Region Mitte in drei Sektoren (West, Mitte, Ost) unterteilt. Es ergeben sich so sieben annähernd flächengleiche Sektoren, die dem Konzentrationsmuster angepasst sind.

- Für jeden Sektor werden nun Mittelwerte und Standardabweichungen für Sulfat bzw. Gesamtstickstoff mit den jeweils in den Sektoren liegenden Messstationen berechnet. Dazu werden zunächst alle Stationen herangezogen (Abbildung 79). Anschließend wird zur Untersuchung des Einflusses einer Verringerung der Stationszahl ein zahlenmäßig reduzierter Stationssatz verwendet (Abbildung 80). Als Kriterien für die Stationsauswahl werden zugrundegelegt:
 - Es sollen pro Sektor zwei Stationen verwendet werden.
 - Unter den ausgewählten Stationen sollen auf jeden Fall die personell besetzten Stationen sein. (Westerland, Zingst, Waldhof, Neuglobsow, Deuselbach, Schmücke, Zingst, Brotjacklriegel).
 - Abweichungen von diesen Kriterien ergeben sich im Sektor „Mitte-West“, da in diesem Sektor nur eine Station zur Verfügung steht, sowie im Sektor „Mitte-Ost“ wo im Gebiet des Erzgebirges eine zusätzliche Station berücksichtigt wird um die dortigen hohen Sulfatwerte geeignet wiedergeben zu können.
 - Der Vergleich der Ergebnisse für die beiden Stationssätze ist in Abbildung 81 und Abbildung 82 dargestellt. Man erkennt eine hervorragenden Übereinstimmung sowohl der Mittelwerte als auch der Standardabweichungen zwischen den beiden Stationssätzen. Damit ist gezeigt, dass eine Verringerung der Stationszahl ohne Informationsverlust möglich ist.

$[N_{\text{ges.}}]^{\star}/(\text{mg/l}), 1998$

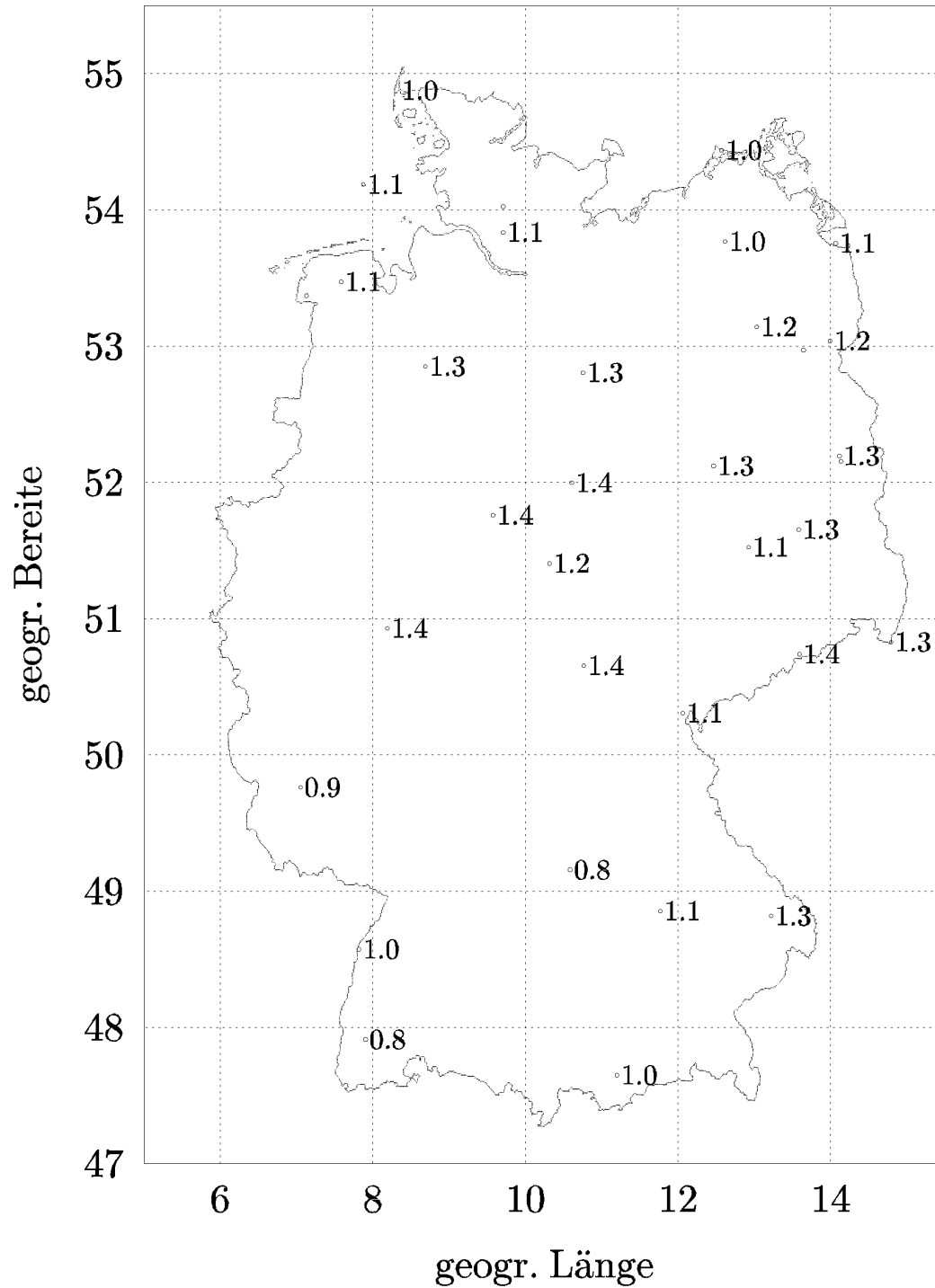


Abbildung 77: Geographische Verteilung der reduzierten Konzentration des Gesamtstickstoffs, 1998 (Bezugsniederschlagsmenge: 700 mm/Jahr)

$[\text{NSS-SO}_4^-]^\star / (\text{mg/l}), 1998$

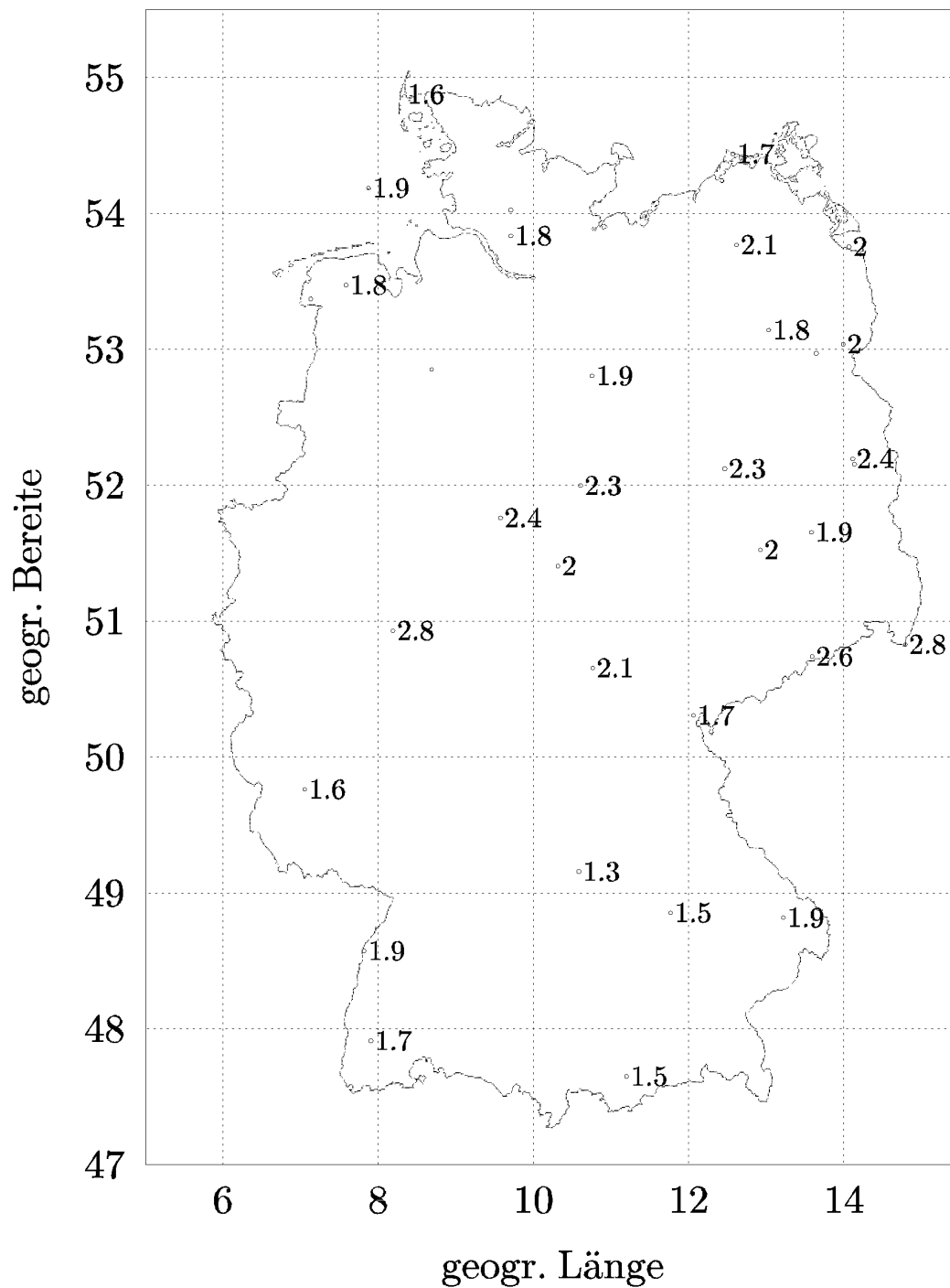


Abbildung 78: Geographische Verteilung der reduzierten Konzentration des seesalz-korrigierten Sulfats, 1998 (Bezugsniederschlagsmenge: 700 mm/Jahr)

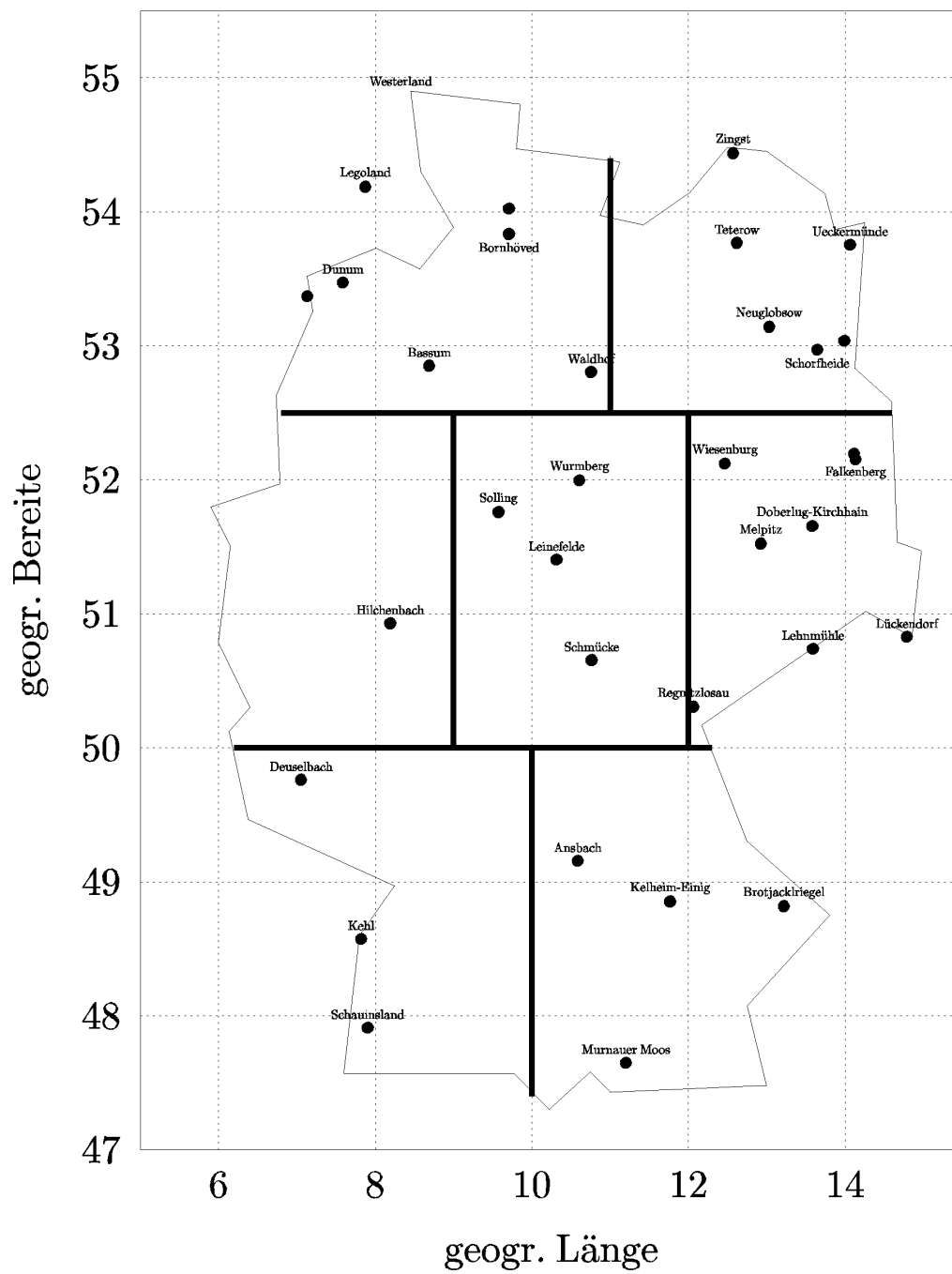


Abbildung 79: Regioneneinteilung mit vollständigem Stationssatz

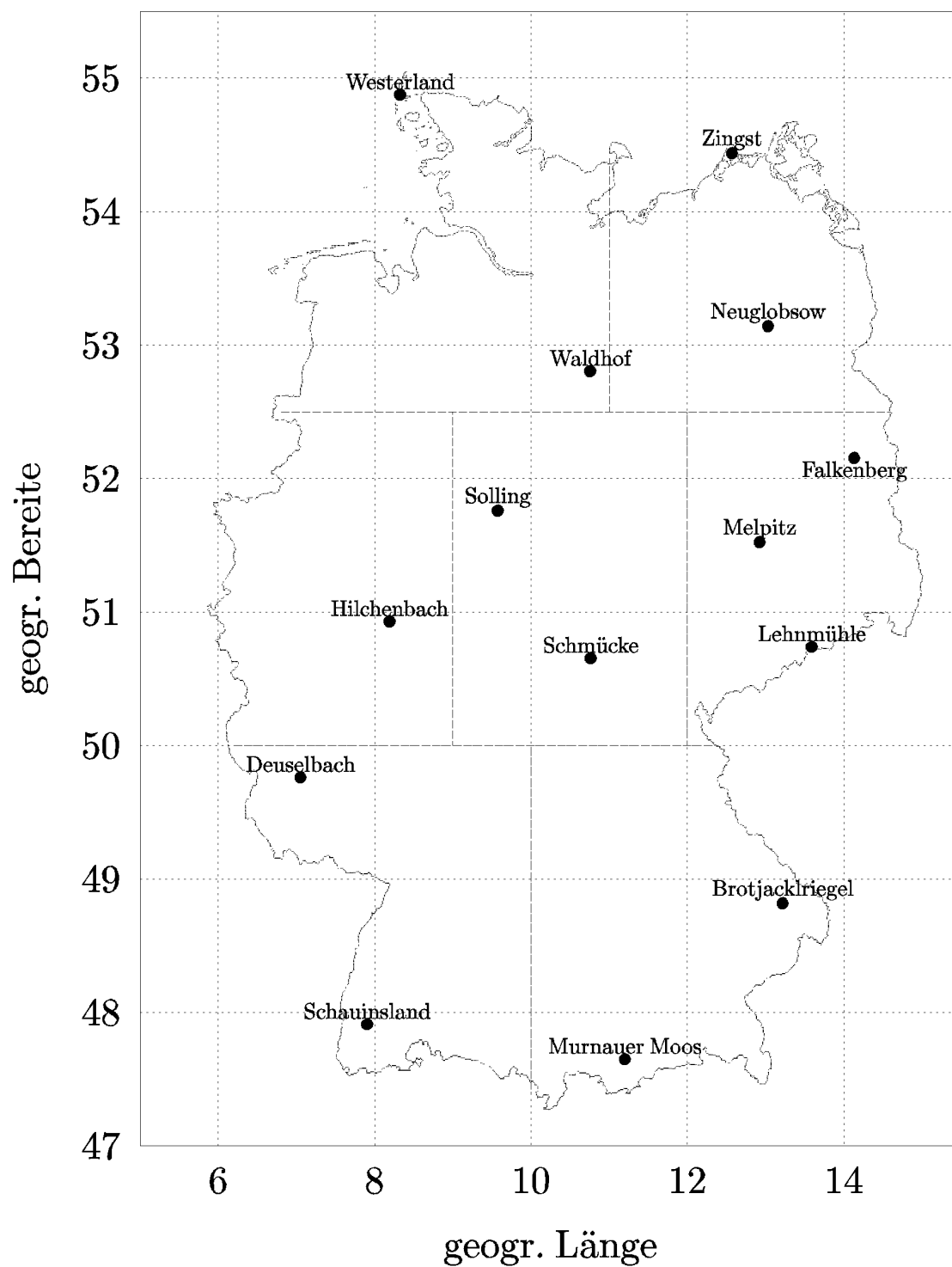


Abbildung 80: Einteilung in Regionen mit reduziertem Stationssatz

$[\text{NSS} - \text{SO}_4^{2-}]^* / \text{mg l}^{-1} \quad 1998$

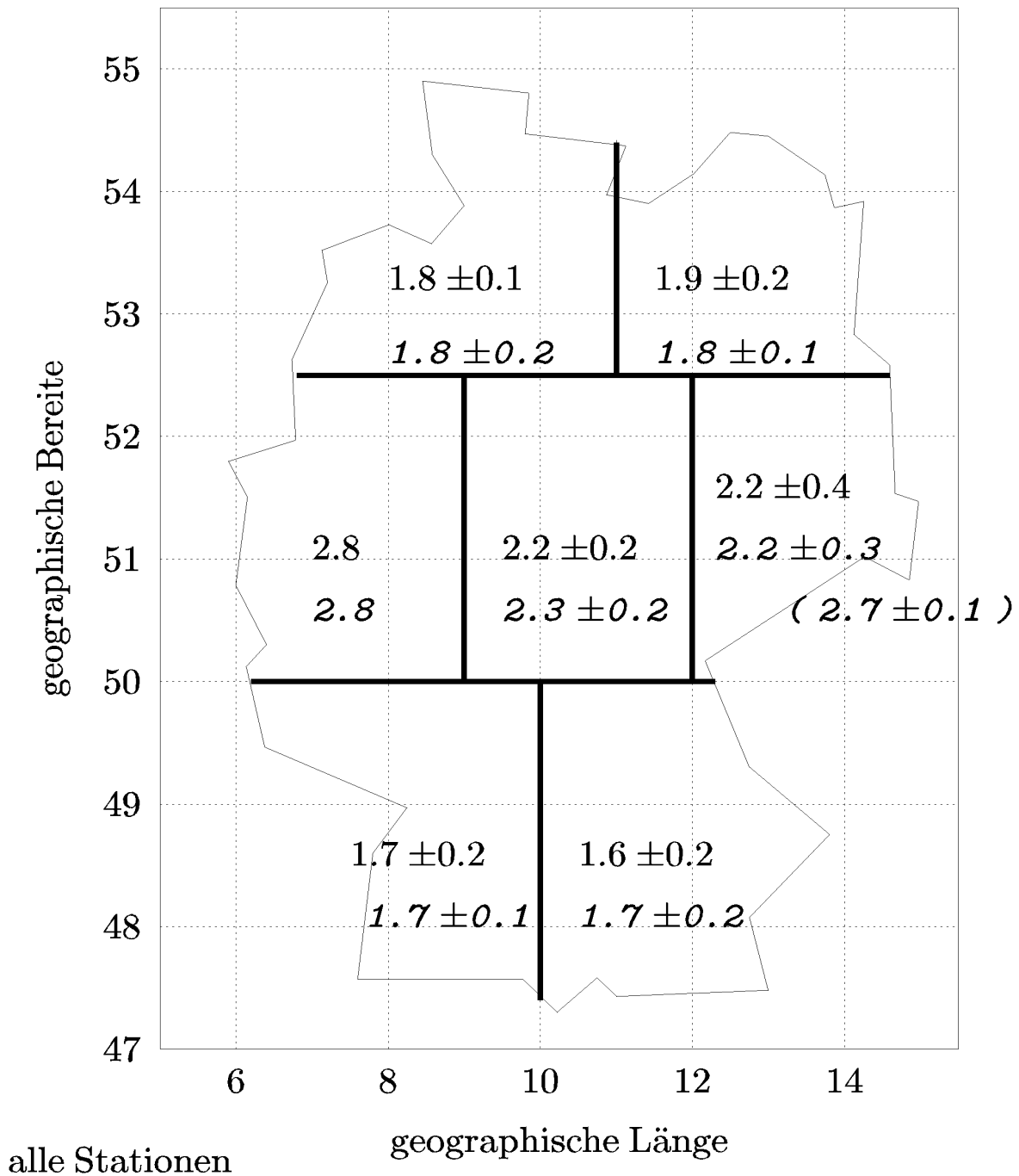
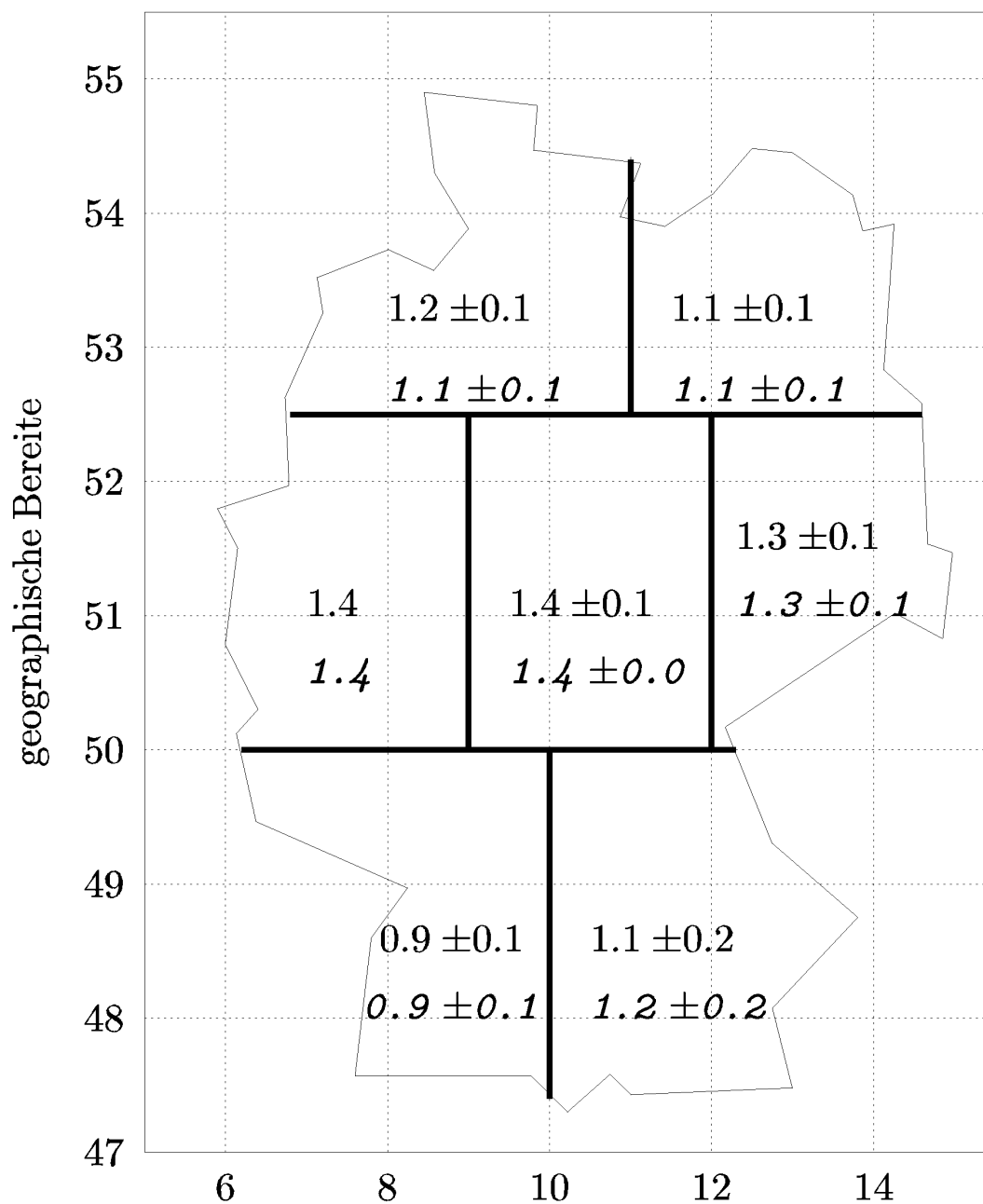


Abbildung 81: Gebietsmittel der reduzierten Konzentration von Sulfat (seesalzkorrigiert) für die vollständige und die reduzierte Stationszahl (Bezugsniederschlagsmenge: 700 mm/Jahr)

$[N_{\text{ges.}}]^{\star} / \text{mg l}^{-1}$ 1998



alle Stationen

geographische Länge

reduzierte Stationszahl

Abbildung 82: Gebietsmittel der reduzierten Konzentration von Gesamtstickstoff für die vollständige und die reduzierte Stationszahl (Bezugsniederschlagsmenge: 700 mm/Jahr)

12.5 Die optimierte Messnetzstruktur

Die Sektoreneinteilung und die Stationsauswahl der oben dargelegten Auswertung dient dazu, zu zeigen, dass eine Verringerung der Stationszahl grundsätzlich möglich ist. Für den angestrebten Zweck der Flächeninterpolation ist jedoch der reduzierte Stationssatz nur eingeschränkt geeignet, da die Stationsverteilung zu inhomogen ist um die Übergänge zwischen den Sektoren gut darstellen zu können. Es wird daher im folgenden ein optimierter Stationssatz dargestellt, von dem ausgegangen werden kann, dass er die Erfordernisse der Flächeninterpolation erfüllt. Dabei werden gleichzeitig Standortverlagerungen berücksichtigt, die sich aus anderweitig begründeten Veränderungen im Luftmessnetz ergeben (Aufgabe der Standorte Murnauer Moos und Ansbach). In Abbildung 83 ist die „neue“ Stationsverteilung dargestellt. Es ergibt sich eine Verringerung der Stationszahl von derzeit 30 auf 20 Stationen. Im einzelnen ergeben sich folgende Veränderungen:

- **entfallende Stationen (#11) :**

Region Nord: Bornhöved, Bassum, Teterow, Ueckermünde, Kienhorst

Region Mitte: Wurmberg, Leinefelde, Wiesenburg, Doberlug-Kirchhain, Lückendorf

Region Süd: Kehlheim-Einig

- **durch kleinräumige Verlagerung entstehende Stationen (#2):**

Region Süd: Öhringen (Ersatzstandort für Ansbach)
Raisting (Ersatzstandort für Murnauer Moos)

- **neu hinzukommende Stationen (#1):**

Region Mitte: Station im westlichen Münsterland (Bocholt/Coesfeld)

Begründung der Stationsauswahl:

- Westerland, Waldhof, Zingst, Neuglobsow, Deuselbach, Schmücke, Schauinsland, Brotjacklriegel: Personell besetzte Messstellen, „Kernstationen“ des Luftmessnetzes
- Dunum: Abdeckung des Nordwestens und der Nordsee
- Hilchenbach: (bisher) einzige Station im Bereich Mitte/West
- Westl. Münsterland: Schließen der Abdeckungslücke im Westen (Hauptanströmrichtung, Abgrenzen der „hohen“ Hilchenbacher Werte nach Westen)
- Solling: Abdeckung des Bereichs nördliche Mitte (Wurmberg liegt zu nahe an Waldhof, Leinefelde zu nahe an Schmücke), Zusammenarbeit mit Uni Göttingen
- Melpitz: Zusammenarbeit mit IFT Leipzig (gemeinsames Messfeld)

- Falkenberg: Zusammenarbeit mit DWD (gemeinsames Messfeld)
- Lehnmühle: Abdeckung der „Sonderregion“ Erzgebirge
- Kehl: POP-Messungen an gleicher Stelle
- Regnitzlosau: Markiert den Übergang Mitte-Süd im Osten.
- Öhringen: Abdecken des mittleren Südens
- Raisting: Abdeckung des Voralpengebiets
- Helgoland: Forderung der Meeresschutzprogramme, auf Inseln zu messen

12.6 Flächeninterpolation

Die reduzierten Konzentrationen von Sulfat und Gesamtstickstoff zeigen ein „glattes“ Verteilungsmuster. Mit geeigneten Methoden sind sie daher verlässlich interpolierbar. Die Abbildung 84 zeigt die mit einem Kriging-Verfahren auf ein Raster interpolierten Werte der reduzierten Konzentration von Sulfat auf der Grundlage des vollständigen Stationssatzes. Um die Übersichtlichkeit der Darstellung zu erhalten wurde ein vergleichsweise sehr grobes Raster gewählt. Neben den Werten selbst ist der statistische Prädiktionsfehler angegeben, der durchweg im Bereich von nur etwa 10 bis 15% liegt.

Durch Kombination der auf ein entsprechendes Raster interpolierten reduzierten Konzentration mit den räumlich hochaufgelösten Niederschlagsfeldern des DWD (1 km x 1 km - Raster) lassen sich entsprechend hoch aufgelöste Depositionsfelder generieren. Die nasse Deposition ergibt sich dabei aus der reduzierten Konzentration und der Niederschlagsmenge gemäß:

$$D = c * (G/G_0)^a G$$

Die resultierenden Depositionskarten können zur Zeit aus darstellungstechnischen Gründen leider noch nicht vorgestellt werden. Geht man davon aus, dass die Unsicherheit der Werte für Niederschlagsmengen ebenfalls in der Größenordnung von nicht mehr als 10 bis 15% liegt, so ergibt sich für die Deposition eine Unsicherheit von etwa 20%, was für eine flächendeckende Darstellung als außerordentlich gut zu bewerten ist. Die so gewonnenen Depositionskarten dürften somit von erheblichem Wert für diejenigen Arbeitsgebiete sein, bei denen die nasse Deposition von Stickstoff- und Schwefelkomponenten eine Rolle spielt, wie z.B. Boden- und Gewässerökologie, Agrar- und Forstwissenschaft, Hydrologie usw.

Danksagung

Wir danken Frau Andrea Kreis und Herrn Volker Vent-Schmidt vom Deutschen Wetterdienst für die unbürokratische Überlassung von Niederschlagsdaten.

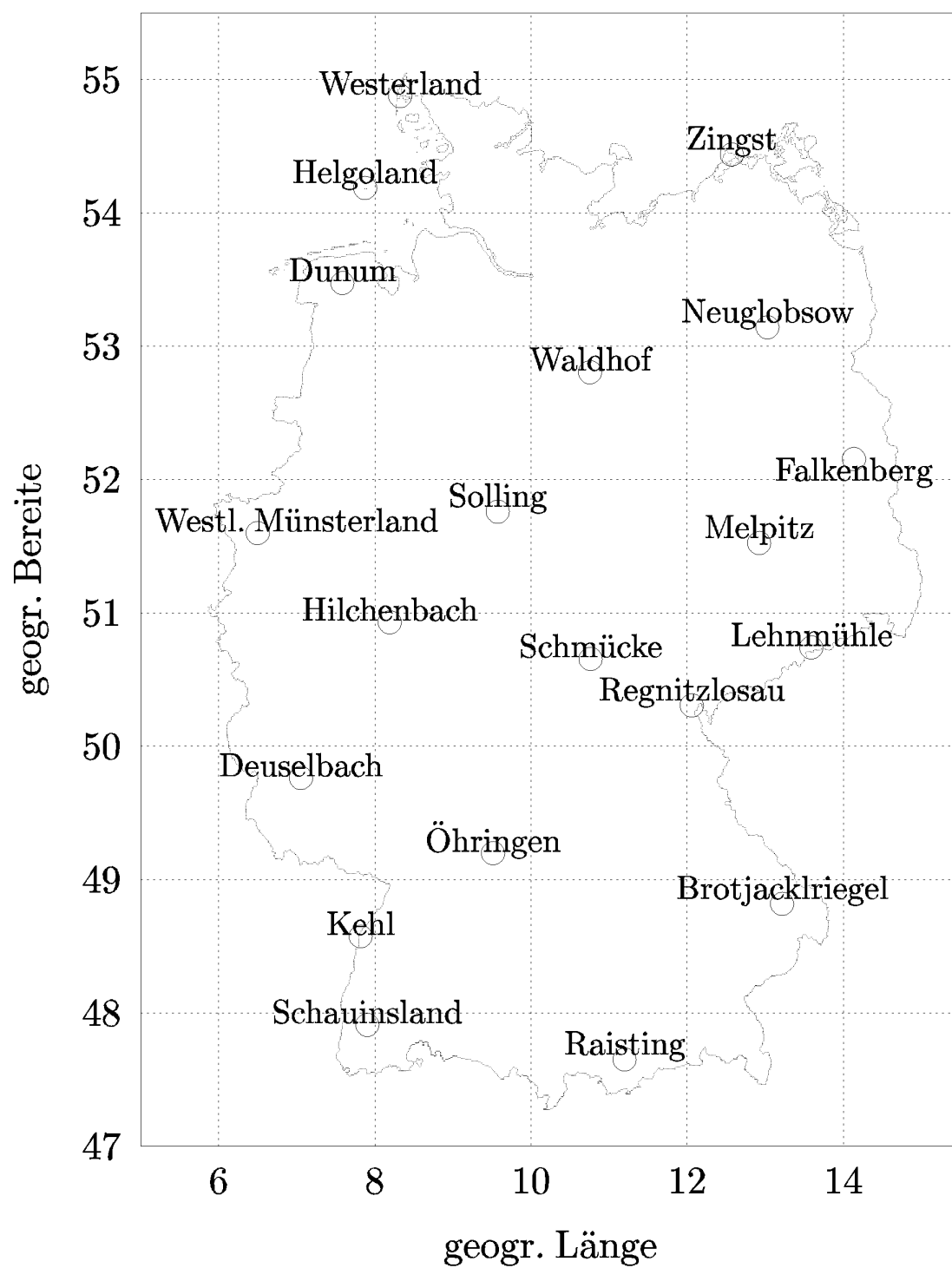


Abbildung 83: Messstellen des neu gestalteten wet-only-Messnetztes

$$[\text{SO}_4^{2-}]^* / (\text{mg l}^{-1}), 1998$$

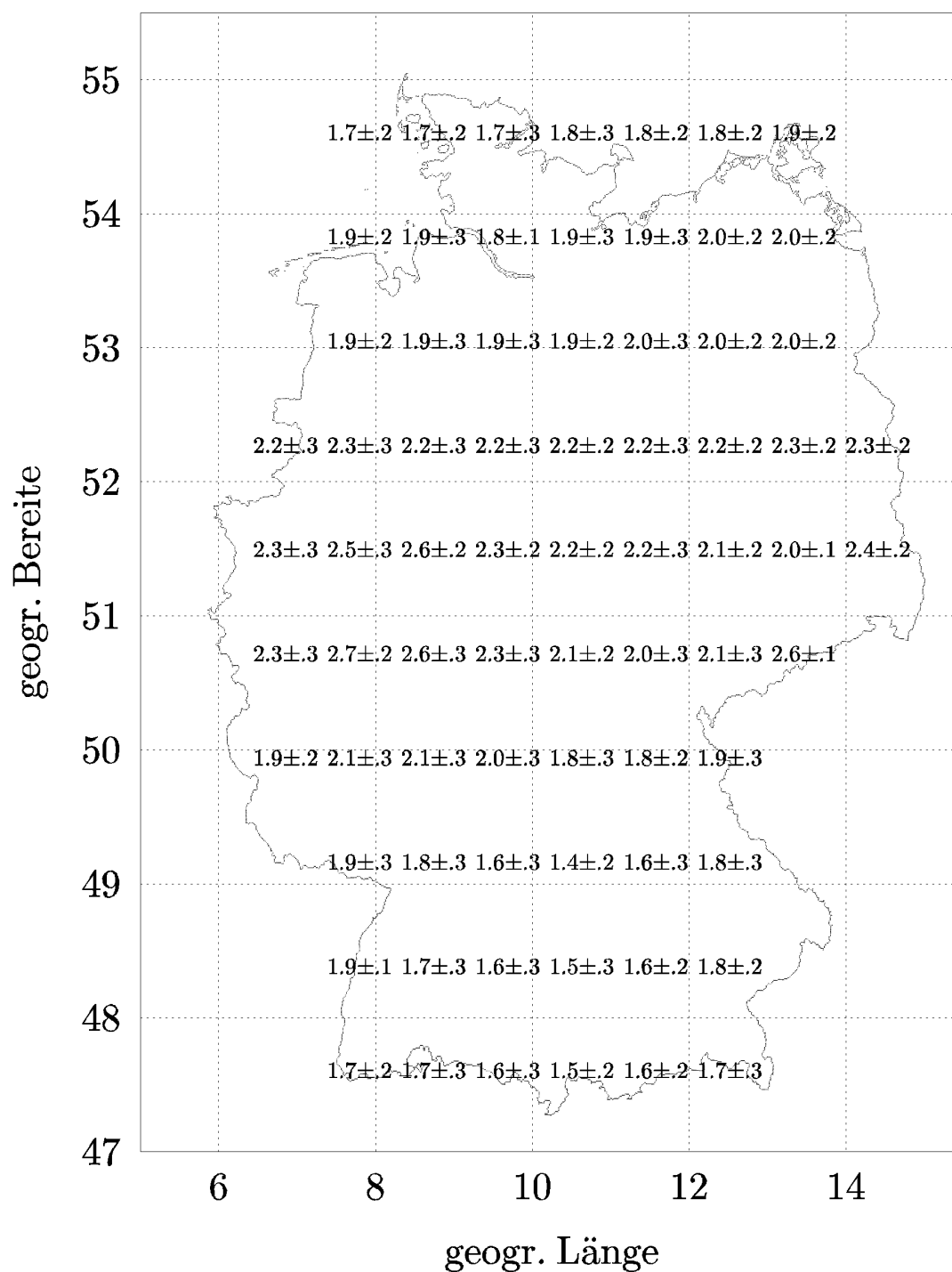


Abbildung 84: Beispiel für eine Flächeninterpolation

13. 10 JAHRE INTEGRIERTES ÖKOSYSTEM-MONITORING IM NATIONALPARK BAYERISCHER WALD

Burkhard Beudert und Rüdiger Hofmann

13.1 Einleitung

Seit dem Jahr 1990 gibt es eine Beteiligung der Bundesrepublik Deutschland an dem Dauerbeobachtungsprogramm „**International Co-operative Programme on Integrated Monitoring on Air Pollution Effects on Ecosystems (ICP IM)**“. Die Durchführung der Aufgabenstellung obliegt dem Umweltbundesamt. Auf zur Zeit 2 Dauerbeobachtungsflächen:

1. Forellenbachgebiet im Nationalpark Bayerischer Wald (Bayern)
2. Messstation Neuglobsow im Naturschutzgebiet Stechlin (Brandenburg)

werden umfangreiche Umweltbeobachtungen an Niederschlags-, Boden- und biotischen Proben vorgenommen, mit deren Hilfe der Einfluss luftgetragener gasförmiger Schadstoffe auf die jeweiligen Ökosysteme erschlossen werden soll. Das international einheitliche Untersuchungsprogramm basiert auf der „UN/ECE-Konvention über den grenzüberschreitenden Transport von Luftverunreinigungen“ aus dem Jahr 1988.

Ziel des Programms ist es, die Veränderungen in Ökosystemen infolge von Schadstoff- und Nährstoffeinträgen oder infolge von Klimaänderungen frühzeitig zu erkennen. Durch die laufende Beobachtung (= Monitoring) und Erfassung des Zustands von Ökosystemen sollen geeignete Daten und Informationen gewonnen werden, mit denen es möglich ist, Veränderungen der biotischen Teile eines Ökosystems (Pflanzen, Tiere) mit den Veränderungen in ihrem Lebensraum (Schadgasbelastung, Bodenversauerung, Nährstoffeinträge, Klimaänderungen) in Beziehung zu setzen. Die Messdaten dienen der Ableitung wichtiger Bewertungsgrößen (critical loads, critical levels) und der Entwicklung und Überprüfung von Prognosemodellen als Grundlage für politische Entscheidungen. Voraussetzung hierfür sind langjährige Untersuchungsreihen, die durch Kontinuität in Raum, Methodik und Personal eine hohe und vergleichbare Datenqualität aufweisen.

Bei der Suche nach geeigneten Standorten zur Durchführung des Integrated Monitoring Programms fiel die Wahl auf den **Nationalpark Bayerischer Wald**, weil es hier mehrere günstige Ausgangsbedingungen gab. Ein wichtiges Kriterium war beispielsweise das Nichtvorhandensein von bedeutenden lokalen Schadstoffquellen, was als Voraussetzung dafür genannt werden muss, dass mit den geplanten Messungen tatsächlich der Schadstoffeintrag aus dem Ferntransport erfasst werden kann. Des weiteren ließ der Standort erwarten, dass alle Reaktionen auf Umwelteinflüsse über einen langen Zeitraum nahezu ungestört erfasst werden können. Das Gebiet des Nationalparks ist per Rechtsverordnung vor lokalen Einflüssen geschützt, und es ist zulässig, von einer nahezu natürlichen Entwicklung der Wälder zu sprechen, ohne dass diese beispielsweise durch Bewirtschaftungsmaßnahmen gestört wird. Auch andere aus dem internationalen Programm resultierende Forderungen, wie beispielsweise

der Punkt, dass es sich bei einem Messstandort um ein abgeschlossenes Wassereinzugsgebiet handeln sollte, wurden von dem Forellenbachgebiet hinreichend erfüllt.

Hinsichtlich des Programmziels, dass mit Hilfe des Integrated Monitoring die Einwirkung von gasförmigen Schadstoffen auf ein Ökosystem erfasst werden soll und dass man mit Hilfe der durchgeführten Messungen nähere Informationen dazu erhalten will, wie sich beispielsweise Emissionsminderungsmaßnahmen auswirken, werden nachfolgend einige Entwicklungen im wasser gebundenen Stoffhaushalt des Beobachtungsgebiets vorgestellt. Am Beispiel eines 95 Jahre alten Buchenbestands (Dauerbeobachtungsfläche B1, Schachtenebene; 820 m ü. NN) werden Veränderungen des Depositionsverhaltens in den Jahren 1990 bis 2000 aufgezeigt, und es wird dargestellt, welche Auswirkungen diese Veränderungen auf die Bodensickerwasserqualität und auf die Vegetation im Untersuchungsgebiet hatten. In einem zweiten Schwerpunkt sollen der Einfluss einer natürlichen Störung auf das Ökosystem und die damit einhergehenden Veränderungen bei wichtigen Messparametern vorgestellt werden. Hier wird am Beispiel eines seit 1996 infolge von Borkenkäferbefall abgestorbenen Fichtenbestands (Dauerbeobachtungsfläche F1, Schachtenau 815 m ü. NN) gezeigt, wie markant sich auch solche Veränderungen auf die Messparameter auswirken können. Schließlich werden in einem letzten Punkt qualitative Veränderungen des Grundwassers und des Bachwassers vorgestellt. Es wird untersucht welchen Einfluss die hier zu beobachtenden Veränderungen auf die Populationsdynamik von Bachforellen im Forellenbach haben. Dabei wird deutlich, dass es bei den Gewässereigenschaften in ihrer Gesamtheit zahlreiche Überlagerungseffekte gibt, die beispielsweise sowohl den rückläufigen Schadstoffeintrag aus der Atmosphäre als auch die Effekte eines wieder ansteigenden Nitrataustrags aus der Fläche (Reaktion auf einen Borkenkäferbefall) widerspiegeln.

13.2 Das Untersuchungsgebiet

Das im Nationalpark Bayerischer Wald (Lkr. Freyung-Grafenau, Regierungsbezirk Niederbayern) liegende Forellenbachgebiet ist ein 0.69 km² großer Geländeausschnitt (Rachel-Lusen-Zug) im Inneren Bayerischen Wald. Die mittlere Höhenlage beträgt 888 m ü. NN (787 - 1292 m ü. NN), die mittlere Hangneigung beträgt 12%. Die großen Höhenunterschiede innerhalb des Gebietes verursachen steile klimatische Gradienten: Mit zunehmender Höhenlage sinken die Jahresmitteltemperaturen der Luft von etwa 6,5 auf 3,5 - 4°C und die durchschnittlichen jährlichen Niederschlagssummen steigen von etwa 1350 mm bis auf über 1900 mm an.

Die geologische Struktur des Untersuchungsgebiets wird geprägt vom grobkörnigen Älteren Finsterauer Kristallgranit, der fast vollständig das Liegende des Untersuchungsgebietes bildet. Dominierende Bodenformen sind durchlässige saure Braunerden und Lockerbraunerden aus solifluidal verlagertem Verwitterungsmaterial, die in den erodierten Steilhanglagen mit Silikat-Syrosem und Rankern vergesellschaftet sind und Podsolierungsmerkmale unterschiedlicher Intensität aufweisen. Die Mineralböden sind im gesamten Gebiet tiefreichend versauert und an pflanzenverfügbaren Nährstoffen verarmt. Die mineralischen Oberböden lassen sich mit pH_{H2O}-Werten von 3.8 ± 0.3 in den Al/Fe-Pufferbereich, die Unterböden mit pH_{H2O}-Werten von 4.4 - 4.5 in den Austauscher/Al-Pufferbereich einordnen (ULRICH 1981). Das Nährstoffangebot an austauschbaren Ca²⁺, Mg²⁺ und K⁺ ist bei geringer effektiver Austauschkapazität und Basensättigungsgraden von kleiner 10% auf sehr niedrigem Niveau.

Wichtigste Baumart des Forellenbachgebiets ist die Fichte (*Picea abies* Karst. L.), die klimatisch bedingt, in den Tal- und Hochlagen des Gebietes Reinbestände bildet und im Bergmischwald der Hanglagen mit Buche, Bergahorn und Tanne vergesellschaftet ist. Aufgrund einer Massenentwicklung des Borkenkäfers (Buchdrucker, *Ips typographus*) und des durch ihn verursachten Fichtensterbens sank der Flächenanteil der Fichtenbestände von 69% (1990) auf 42% (1999). Abgestorbene Fichtenbestände haben mit einem Anteil von ca. 27 % und in ihrer Eigenschaft als Sukzessionsflächen somit eine ähnliche Bedeutung erlangt wie die Buchenbestände (31%).

Die Immissionssituation im Untersuchungsgebiet war in den Jahren 1991 bis 1999 durch relativ niedrige und leicht abnehmende Konzentrationen von SO_2 ($0,5 - 3 \mu\text{g m}^{-3}$) und NO_2 ($3,7 - 5,5 \mu\text{g m}^{-3}$) geprägt (nasschemische Bestimmungsverfahren). Gemessene O_3 -Konzentrationswerte betrugen im Jahresmittel zwischen 57 (1996) und $82 \mu\text{g m}^{-3}$ (1999). Maximalwerte der Ozonkonzentration von $> 180 \mu\text{g m}^{-3}$ (Tageswerte) wurden seit Juli 1994 nicht mehr gemessen. Die kumulative Ozonexposition (AOT40) war in fast allen Jahren größer als 10000 ppb h^{-1} und lag damit oberhalb eines Schwellenwertes, ab dem mit einem zunehmenden Risiko für Wachstumsbeeinträchtigungen bei Bäumen zu rechnen ist (SKÄRBY und KARLSSON 1996). Buchen des Bestands B1 wiesen insbesondere im Jahr 1995 (AOT40: 19000 ppb h^{-1}) variable Schäden an den Blättern der Lichtkrone auf, die der kombinierten Wirkung einer hohen Einstrahlungsleistung und einer hohen Ozondosis zugeschrieben werden können (BAUMGARTEN 1998). Diese Schäden erwiesen sich in den Folgejahren als reversibel.

13.3 Die Deposition von Schwefel- und Stickstoffverbindungen sowie von Säuren und mögliche Zusammenhänge mit Veränderungen bei der Bodensickerwasserqualität und bei biologischen Parametern

13.3.1 Der Gehalt an Schwefelverbindungen und der Säuregehalt

Als Folge der in Deutschland und Europa getroffenen Luftreinhaltemaßnahmen ist seit 1988 sowohl bei den schwefelhaltigen Schadstoffen als auch hinsichtlich des zeitlichen Phänomens „Saurer Regen“ ein stetiger Rückgang der Schadstoffbelastungen (Immissions- und Depositionswerte) festzustellen. Davon betroffen sind insbesondere oxidierte Schwefelverbindungen und die freie Säure (UBA 2000). So kann z.B. im Buchenbestand B1 des Forellenbachgebiets, in dem der Schwefel- und der Säureeintrag wie bereits oben erwähnt vor allem auf den weitreichenden Schadstofftransport zurückgeführt werden kann, seit dem Jahr 1991 bei den niederschlagsgewichteten Jahresmittelwerten der SO_4^{2-} -Konzentration (Bestandesniederschlag) ebenfalls ein signifikanter Rückgang der Eintragswerte festgestellt werden. Die Konzentrationswerte fielen mit einer mittleren jährlichen Reduktionsrate von $0,18 \text{ mg l}^{-1}$ von ca. 3 mg l^{-1} auf etwa $1,5 \text{ mg l}^{-1}$ (Abbildung 85). Da im gleichen Beobachtungszeitraum in dem Buchenbestand weder bei den Niederschlagsmengen noch bei den Interzeptionseigenschaften des Kronenraum signifikante Veränderungen beobachtet wurden, spiegelt dieser Befund mit großer Wahrscheinlichkeit den Rückgang der Sulfateinträge wider. Die auf die Fläche berechneten Eintragswerte lagen somit zwischen $10 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ (1991) und $5 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ (1999) und waren damit auf einem vergleichsweise niedrigen Niveau.

Als wesentliche Quelle der Säurebefruchtung im Ökosystem des Forellenbachs sind ebenfalls die oxidierten Schwefelverbindungen zu nennen. Bei einem Rückgang der Sulfatkonzentration sollte folgerichtig auch eine Veränderung und zwar eine Erhöhung der niederschlagsgewichteten pH-Werte zu beobachten sein. Entsprechende Messungen des pH-Werts im Niederschlagswasser des Buchenbestandes bestätigen diese Vermutung. In den Jahren 1991 bis 1999 wurde ein signifikanter Anstieg um etwa 0,35 pH-Einheiten von pH 4,5 bis auf ca. pH 4,85 in den Niederschlagswässern gemessen. Die abnehmende atmosphärische Sulfatbelastung spiegelt sich auch in den Konzentrationswerten der Bodensickerwässer wider. In den Jahren zwischen 1992 und dem Jahr 2000 gingen die SO_4^{2-} -Konzentrationen im Bodensickerwasser des Buchenbestands von durchschnittlich $4,5 \text{ mg l}^{-1}$ auf $2,5 \text{ mg l}^{-1}$ (40 cm Tiefe) bzw. von 7 mg l^{-1} auf 5 mg l^{-1} (100 cm Tiefe) zurück (Abbildung 85).

Der mittlere Konzentrationsrückgang (Jahresraten) ist in den Sickerwässern beider Tiefen nahezu identisch ($0,24$ bzw. $0,25 \text{ mg l}^{-1}$) und gleicht jenem im Niederschlagswasser. Die gegenüber dem Niederschlagswasser fast doppelt (40 cm Tiefe) bzw. sogar dreifach (100 cm Tiefe) so hohen Absolutwerte der SO_4^{2-} -Konzentration in den Bodenwässern sind wahrscheinlich keine Folge eines niedrigeren Wasservolumens im Buchenbestand (z.B. durch den Wasserverbrauch der Buchen), sondern resultieren vielmehr aus dem Abbau des im Boden gespeicherten Sulfatschwefels. Als Ursprung solcher Sulfatquellen müssen metastabile Mineralphasen diskutiert werden, die z.B. durch entsprechende Einträge in der Vergangenheit zustande gekommen sein könnten.

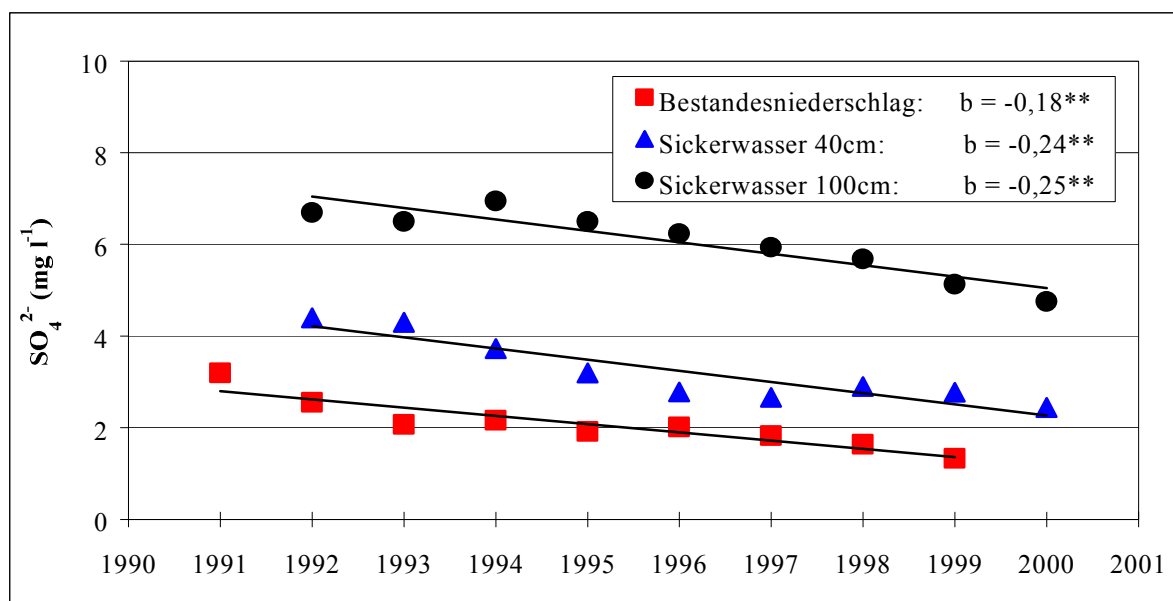


Abbildung 85: Mengengewichtete Jahresmittel und Jahresmediane der SO_4^{2-} -Konzentrationen (mg l^{-1}) im Bestandesniederschlag sowie im Bodensickerwasser in 40 und 100 cm Tiefe im Buchenbestand B1 Schachtenebene.

Parallel zum Rückgang der SO_4^{2-} -Konzentration findet man in den Bodensickerwässern auch eine Abnahme der Al-Konzentration. Der Konzentrationsrückgang, der ebenfalls als signifikant zu bezeichnen ist, bewegt sich hier in einer Größenordnung zwischen $0,7 \text{ mg l}^{-1}$ bis auf $0,5 \text{ mg l}^{-1}$ (40 cm Tiefe) bzw. zwischen $1,1 \text{ mg l}^{-1}$ bis auf $0,9 \text{ mg l}^{-1}$ (100 cm Tiefe). Wie im Niederschlagswasser wird auch im Bodensickerwasser ein signifikanter Anstieg des pH-Werts beobachtet. Die Messwerte des pH-Werts stiegen in den Jahren 1992 bis zum Jahr 2000 von

durchschnittlich pH 4,5 bis auf pH 4,9 (40cm Tiefe) bzw. von pH 4,6 bis auf pH 4,8 (100 cm Tiefe). Ein weiterer Maßstab, mit dem sich diese Trendwende des pH-Wertes ebenfalls belegen lässt, ist die Säureneutralisationskapazität. Auch hier findet man in den Jahren 1990 bis 2000 einen kontinuierlichen Anstieg der Messwerte von -60 bis auf -17 $\mu\text{mol}_e \text{ l}^{-1}$ in 40 cm Tiefe und von -119 bis auf -87 $\mu\text{mol}_e \text{ l}^{-1}$ in 100 cm Tiefe.

Diese Ergebnisse zeigen, wie rasch sich politische Entscheidungen, die hinsichtlich von Emissionsminderungsmaßnahmen getroffen wurden (wie z.B. der Einbau von Entschwefelungsanlagen in Kraftwerken), durch die Integrated Monitoring Messungen in dem Ökosystem des Bayerischen Waldes erkennen und verfolgen lassen. Insbesondere bei der Bodenversauerung konnte eine deutliche Trendwende festgestellt werden und die pH-Werte im Boden stiegen seit Beginn der Messreihen wieder deutlich an. Bemerkenswert ist auch der Rückgang der Belastungswerte bei den Al- und Säureaktivitäten. Als Folge dieses Rückgangs kommt es wahrscheinlich zu deutlich verbesserten physiologischen Bedingungen im Wurzelraum der Buchenbestände, so dass es zulässig ist von einem verminderten Vitalitätsrisiko der Buchen an diesem als nährstoffarm zu bezeichnenden Standort zu sprechen.

13.3.2 Stickstoffverbindungen

Der in den Niederschlägen festzustellende Konzentrationsverlauf von anorganischen Stickstoffkomponenten (hier als NH_4^+ und NO_3^-) war im Beobachtungszeitraum ebenfalls rückläufig. Dabei war der Effekt jedoch weniger stark ausgeprägt als bei den Schwefelverbindungen oder beim Säureeintrag. Die Reduktion der niederschlagsgewichteten Jahresmittelwerte unter Buche (Bestandesniederschlag) beträgt ca. 0,03 mg l^{-1} pro Jahr (siehe Abbildung 86). Als Stickstoffgesamtkonzentration im Niederschlag wurden Werte zwischen 1,1 mg N l^{-1} (1991) und etwa 0,75 mg N l^{-1} (1999) festgestellt. Der stärkste Rückgang wurde allerdings in einem relativ kurzen Zeitraum in den Jahren 1991 bis 1993 gemessen. Eine Differenzierung zwischen Nitrat und Ammoniumionen zeigt, dass die Abnahme des Stickstoffs vor allem der NH_4^+ -Konzentration zuzurechnen ist, während bei der NO_3^- -Konzentration nur unwesentliche Veränderungen zu beobachten waren. Anhand der Jahresverläufe kann man feststellen, dass der Rückgang der NH_4^+ -Konzentration in erster Linie im hydrologischen Sommerhalbjahr (Mai bis Oktober) stattgefunden hat.

Aus den Messungen der Stickstoffkomponenten in den Bodensickerwässern (Buchenbestand B1) kann derselbe Trend festgestellt werden. Zwischen 1992 und 2000 wurden im Jahresmittel abnehmende Werte zwischen 0,20 mg N l^{-1} und 0,07 mg N l^{-1} (40 cm Tiefe) gefunden. In 100 cm Bodentiefe konnte keine gerichtete Entwicklung der NO_3^- -Konzentration festgestellt werden. Es muss darauf hingewiesen werden, dass der Nitratanteil in den Bodensickerwässern mehr als 95% des mineralischen Stickstoffs beträgt.

Die Ergebnisse deuten an, dass vor allem verminderte NH_3 -Emissionen für die Abnahme des Stickstoffeintrags verantwortlich sein könnten. Der Ursprung entsprechend verminderter Immissionsbelastungen könnte beispielsweise in einer Veränderung von Gülleausbringungstechniken liegen und/oder durch niedrigere Emissionsbelastungen aus Tierhaltungsanlagen verursacht werden. Bei der Bewertung des Rückgangs der Stickstoffdeposition muss weiterhin berücksichtigt werden, dass sich die Gesamtdosition zusammensetzt aus flüssigen und gasförmigen Anteilen. Neben den in den Niederschlagswässern direkt gemessenen gelösten Stickstoffverbindungen, die in diesem Fall als brauchbarer Indikator für die Entwicklung der Gesamtstickstoffdeposition interpretiert

werden, gibt es auch noch den gasförmigen Eintrag sowie Depositionsanteile, die beispielsweise durch biochemische Umsetzungs- und Aufnahmeprozesse im Kronenraum dem Niederschlagswasser entzogen werden. Bei obiger Interpretation geht man von der Annahme aus, dass Laubhölzer eine relativ konstante und von der Höhe der Deposition weitgehend unabhängige N-Aufnahmerate über die Blätter haben (JOHNSON und LINDBERG 1992).

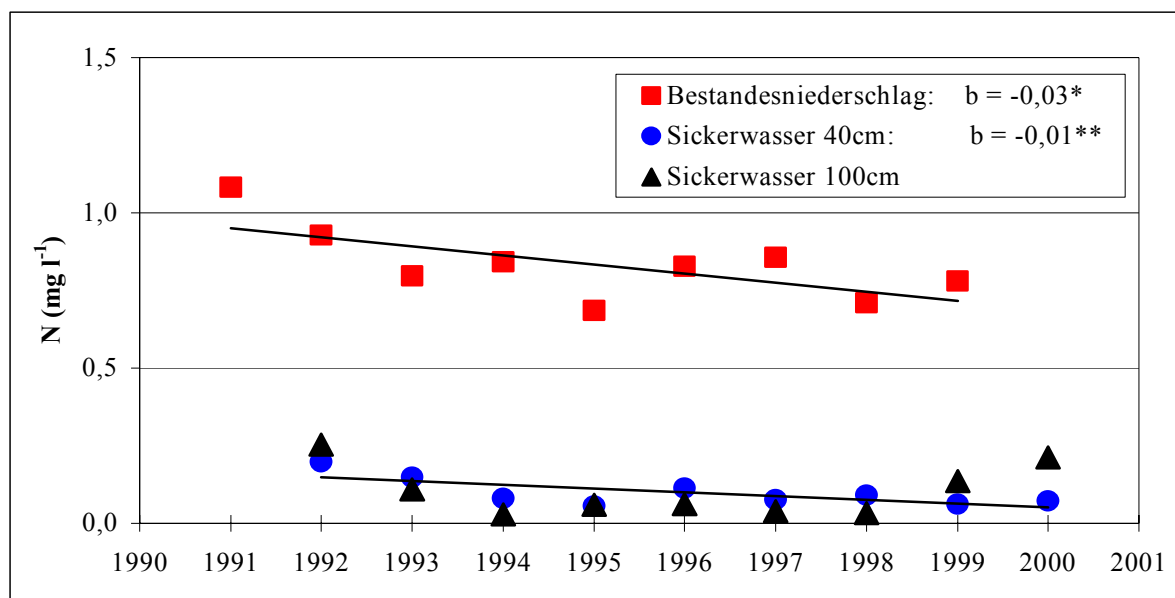


Abbildung 86: Mengengewichtete Jahresmittel und Jahresmediane der NO_3^- - und NH_4^+ -Konzentrationen (mg N l^{-1}) in der Gesamtdeposition sowie im Bodensickerwasser (nur NO_3^- -N) in 40 und 100 cm Tiefe im Buchenbestand B1 Schachtenebene.

Die Ursachen für das in beiden Bodentiefen als sehr niedrig zu bezeichnenden Ausgangsniveau beim nitratgebundenen Stickstoff wie auch für den weiteren Rückgang der NO_3^- -Konzentration im Bodensickerwasser (40 cm Tiefe) sind wahrscheinlich dem Zuwachsgeschehen und damit der N-Aufnahme durch den Bestand zuzuschreiben. Bei dem biologischen Parameter „Mittlerer jährlicher Derbholzzuwachs“ findet man weitere Unterstützung für diese These. Insbesondere in den Jahren 1990 bis 1995 wurde im Buchenbestand ein deutlich höher Zuwachs beobachtet als nach den gültigen Ertragstafeln zu erwarten gewesen wäre. Außerdem zeigen die Bodenwasserkonzentrationen anderer Nährelemente (Nährstoffkationen wie Ca^{2+} , Mg^{2+} und K^+), dass auch bei diesen Elementen eine Abnahme entsprechender Konzentrationen in demselben Zeitraum stattgefunden hat. Die Konzentrationen dieser Substanzen wurden sogar so stark erniedrigt, dass nach GUNDERSEN (1992) davon auszugehen ist, dass das hier erreichte Konzentrationsniveau im Rahmen der wurzelbasierten Nährstoffaufnahme nicht noch weiter vermindert werden kann. Die Stoffhaushaltsbilanzen des Buchenökosystems lassen erkennen, dass die Nährstoffausträge aus dem Wurzelraum kleiner sind als die entsprechenden Einträge aus der Atmosphäre.

Alle Messwerte des Buchenbestandes unterstreichen die Feststellung, dass es sich bei der Buchenfläche insgesamt eher um einen nährstoffarmen Standort handelt. Die standortspezifische Buche verfügt allerdings über eine hohe Anpassungsfähigkeit an diese Bedingungen. Durch insbesondere den Tatbestand eines tiefreichenden Wurzelsystems ist sie in der Lage, das knappe Nährstoffangebot sehr effizient zu nutzen.

Die Messungen der Stickstoffeinträge und hier speziell der Rückgang entsprechender Versorgungswerte in einem Bestand wird auch durch die Vergleichsanalyse der pflanzenphysiologischen Vegetationsinventur bestätigt. Diese Untersuchungen wurden in den Jahren 1990 und 2000 durchgeführt (BARTZ 2001) und in Abbildung 87 wird der Vergleich der wesentlichen Untersuchungsbefunde dargestellt. Auf ausgesuchten Inventurflächen im Bergmischwald der Hanglagen, die von Buchen dominiert werden, und die nicht oder nur unwesentlich durch Borkenkäferbefall beeinflusst sind ($n = 12$), wurden nach ELLENBERG et al. (1992) entsprechend der Artenmächtigkeit gewichtete ökologische ‚Stickstoff Zeigerwerte‘ ermittelt. Bei dieser Methode wird auf den Untersuchungsflächen eine sogenannte **Stickstoffzahl** ermittelt, die ein Maß für die Mineralstickstoffversorgung während der Vegetationszeit darstellt. Bei der Vegetationsinventur im Jahr 2000 wurden die Flächen überwiegend entsprechend **Stickstoffzahl 5** (mäßig stickstoffreicher Standort) bewertet, während 1990 die **Stickstoffzahl 6** (mäßig stickstoffreich bis stickstoffreicher Standort) ermittelt worden war. Dies bedeutet, dass im Jahr 2000 stickstoffanzeigende Pflanzen weniger häufig gefunden wurden. Darüber hinaus konnten im Jahr 2000 die am Rande der Häufigkeitsverteilung liegenden **Stickstoffzahlen 3** (stickstoffarm) und **Stickstoffzahl 7** (stickstoffreich) nicht mehr festgestellt werden. Auch dies deutet an, dass es zu einer Verknappung des Angebots an Mineralstickstoff gekommen ist. Davon betroffen sind insbesondere krautige Pflanzen und Gräser. Der in den 90er Jahren zu beobachtende rückläufige N-Eintrag aus der Atmosphäre sowie ein eindeutig erhöhter Bedarf der Baumbestände (überdurchschnittlicher Holzzuwachs) sind die wahrscheinlichen Ursachen für diesen Effekt. Diese These wird bestätigt durch die Messungen des Stickstoffgehalts in grünen Buchenblättern. In den Blättern des oberen Kronendrittels wurden nahezu unveränderte Stickstoff Gehalte gefunden, sodass davon auszugehen ist, dass hier im gesamten Beobachtungszeitraum eine gleichmäßig gute Versorgung stattgefunden hat.

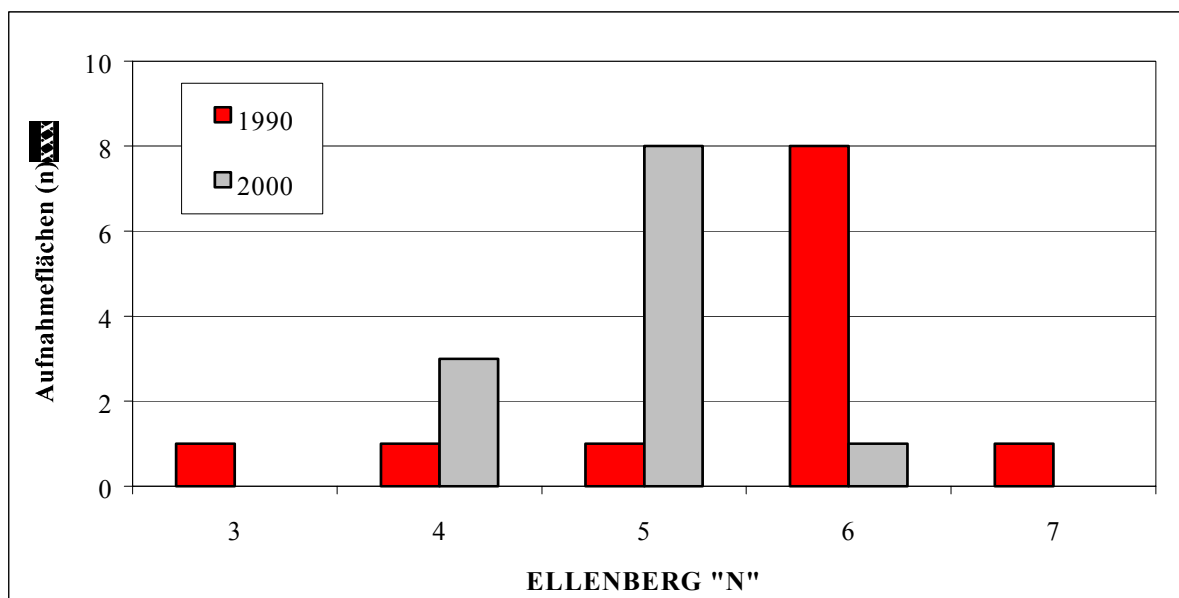


Abbildung 87: Häufigkeitsverteilung identischer Aufnahmeflächen der Vegetationsinventuren 1990 und 2000 bezüglich der **Stickstoffzahl „N“** (ELLENBERG et al. 1992). Dargestellt sind nicht vom Borkenkäferbefall betroffene Flächen des Bergmischwaldes (BARTZ 2001)

13.4 Auswirkungen des Borkenkäferbefalls auf die Sickerwasserqualität und den Stoffhaushalt im (abgestorbenen) Fichtenbestand

Im Juni 1996 wurde der zu diesem Zeitpunkt etwa 110 Jahre alte Fichtenbestand F1 von einem Fichtenborkenkäfer (Buchdrucker, *Ips typographus*) befallen. In Folge dieses Ereignisses kam es noch in demselben bzw. im darauffolgenden Jahr zu einem massenhaften Baumsterben der Fichten im gesamten Bestand. Hiervon besonders stark betroffen waren auch die vorhandenen Messflächen des Integrated Monitoring Programms, in denen der Fichtebestand bis auf nahezu Null schrumpfte. Das heißt, sowohl die Bestandesstruktur als auch die damit in Zusammenhang stehenden physikalischen, chemischen oder biochemischen Eigenschaften (z.B. Umsetzungsraten, Nährstoffaufnahme, Wasserhaushalt etc.) wurden grundlegend verändert.

Der fast vollständige Verlust der Nadelbiomasse sowie das Abbrechen der Kronen und der Stämme in den Folgejahren und die damit veränderten Interzeptionseigenschaften üben einen starken Einfluss auf den lokalen Wasserhaushalt aus. Diesbezüglich wichtige Eigenschaften sind z.B. das Auffangen und die vorübergehende Speicherung von Niederschlägen an der Oberfläche von Bäumen (insb. an Blättern, Zweigen und Ästen), die hier stattfindende Verdunstung (Evaporation) und die Abgabe von Feuchtigkeit aus den Pflanzen (Transpiration). Während die jährliche Menge des Bestandesniederschlags zwischen 1991 und 1998 etwa $76 \pm 1\%$ der Niederschlagsmenge im Freiland betrug, fand nach dem Befallsereignis bis zum Jahr 2000 ein signifikanter Anstieg dieses Wertes bis auf etwa 94% statt. Dadurch bedingt kam es auch zu einer deutlichen Zunahme der Sickerwassermenge im Boden. Dies wiederum könnte die Ursache dafür sein, dass anders als im benachbarten Buchenbestand B1, in dem nach 1993 nur noch schwach rückläufige Stoffeinträge (insbesondere bei Stickstoff aber auch bei Schwefel) aus der Atmosphäre zu beobachten waren, die hier bis zum Befallsereignis erkennbare Tendenz des Rückgangs insbesondere der Sulfatschwefeleinträge in unverminderter Stärke fortgesetzt wurde. Die gewichteten Jahresmittelwerte der SO_4^{2-} -Konzentrationen im Bestandesniederschlag (Abbildung 88) fielen seit 1991 von 6 mg l^{-1} bis auf $1,5 \text{ mg/l}$ im Jahr 1999. Die mittlere Jahresreduktionsrate von $0,46 \text{ mg l}^{-1}$ ist dabei hoch signifikant.

Bei den Stickstoffverbindungen ist ähnlich wie im Buchenbestand der Effekt weniger stark ausgeprägt. Die mittleren Konzentrationen anorganischer Stickstoffverbindungen (NO_3^- und NH_4^+) im Niederschlag sanken im Beobachtungszeitraum ebenfalls signifikant von $1,4 \text{ mg l}^{-1}$ auf $0,6 \text{ mg l}^{-1}$. Nach dem Borkenkäferbefall (Messwerte der Jahre 1997–1999) ist die Eintragsmenge in ihrer Tendenz zur Zeit noch nicht eindeutig interpretierbar. Die vorher klar zu erkennende rückläufige Tendenz eines Eintrags von Stickstoff scheint sich auf einem relativ niedrigen Pegel einzupendeln.

Das Absterben der Fichten übt ebenfalls einen großen Einfluss auf das stoffliche Fließgleichgewicht innerhalb des Ökosystems aus. Von entscheidender Bedeutung diesbezüglich ist beispielsweise der Humusvorrat im Boden. Dieser ist u.a. abhängig von den klimatischen Bedingungen, die das Ab- und Aufbauverhalten der Humusaufgabe beeinflussen. Das Absterben des Fichtenbestandes bedeutet zunächst einen Zuwachs für die Humusaufgabe des Bodens, dem gut mineralisierbare Feinwurzel- und Nadelbiomasse und andere absterbende Baumbestandteile zugeführt werden. Allein die zugeführte Nadelstreu betrug zwischen Juni 1996 und Oktober 1998 mehr als $20000 \text{ kg TS ha}^{-1}$. Dies hat zur Folge, dass eine große Düngewirkung eintritt. Beim organisch gebundenen Stickstoffanteil betrug die Eintragsrate mit ca. 250 kg N ha^{-1} das etwa 10-fache des Mittelwerts der vorangegangenen Jahre.

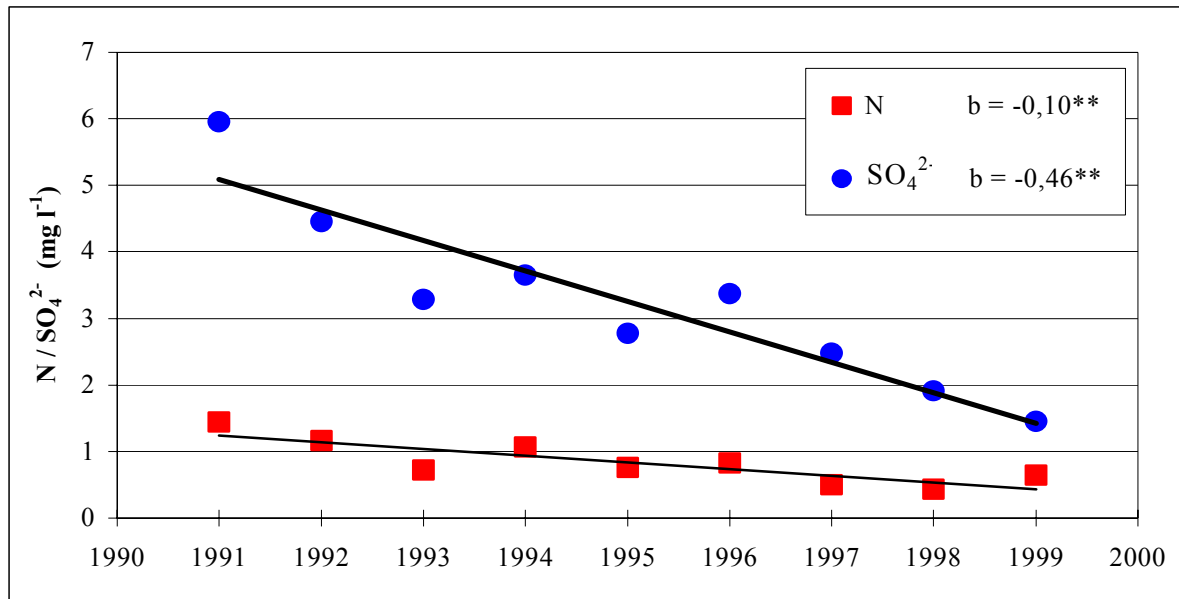


Abbildung 88: Mengengewichtete Jahresmittel der SO_4^{2-} - und N-Konzentrationen ($\Sigma\text{NO}_3^- + \text{NH}_4^+$) im Bestandesniederschlag des (ehemaligen) Fichtenbestands F1 Schachtenau (mg l^{-1}).

Die durch die Bewuchszerstörung bewirkte Freistellung von Bodenflächen führt aufgrund der höheren Einstrahlungsleistung auch zu veränderten Temperaturbedingungen in und auf dem Boden. Eine verstärkte Wärmezufuhr vor allem im Sommer beschleunigt bei ausreichender Feuchtigkeit die Geschwindigkeit biochemischer Umsetzungsprozesse und führt zu erhöhten Umsetzungsraten im Boden (KIRSCHBAUM 1995). Die erhöhte mikrobielle Freisetzung von Nährstoffen im Boden führt dann zu einem Anstieg entsprechender Einträge in tiefere Bodenschichten bzw. in das Grundwasser. Dieser Effekt wird dadurch verstärkt, dass keine geeigneten Nährstoffverwerter auf der Fläche vorhanden sind.

Die Folgen solcher und ähnlicher Prozesse waren bereits im Jahr 1996, also im Befallsjahr durch den Borkenkäfer deutlich zu registrieren. So kam es beispielsweise zu einem unmittelbaren und sehr starken Wiederanstieg der NO_3^- -Konzentrationen im Bodensickerwasser. Bis zum Borkenkäferbefall der Fichten waren ähnlich wie im Buchenbestand B1 auch auf der Fichtenfläche abnehmende Nitratkonzentrationen im Sickerwasser zu beobachten. Sie bewegten sich in einer Größenordnung zwischen 10 mg l^{-1} bis auf deutlich unter $5 \text{ mg NO}_3^- \text{ l}^{-1}$ (Abbildung 89). In den Jahren nach dem Absterben des Bestandes wurden dann sehr schnell ansteigende Werte registriert und die Maximalwerte betrugen bis zu $200 \text{ mg NO}_3^- \text{ l}^{-1}$ (40 cm Tiefe im Oktober 1998) festgestellt. Auch beim Sickerwasser in 1 m Bodentiefe wurden sehr hohe Werte (bis $127 \text{ mg NO}_3^- \text{ l}^{-1}$) gefunden. Der Anstieg war hier jedoch etwas weniger stark ausgeprägt und trat erst zu einem späteren Zeitpunkt (1999) auf. Die zeitliche Verschiebung dürfte auf den verzögerten Transport mit dem Sickerwasserstrom zurückzuführen sein. Die maximalen Raten der mikrobiellen Nitrifikation (biologische Oxidation des aus organischen Stickstoffverbindungen frei gesetzten Ammoniums über Nitrit zu Nitrat) werden auch nach diesen Ergebnissen im humosen mineralischen Oberboden erreicht.

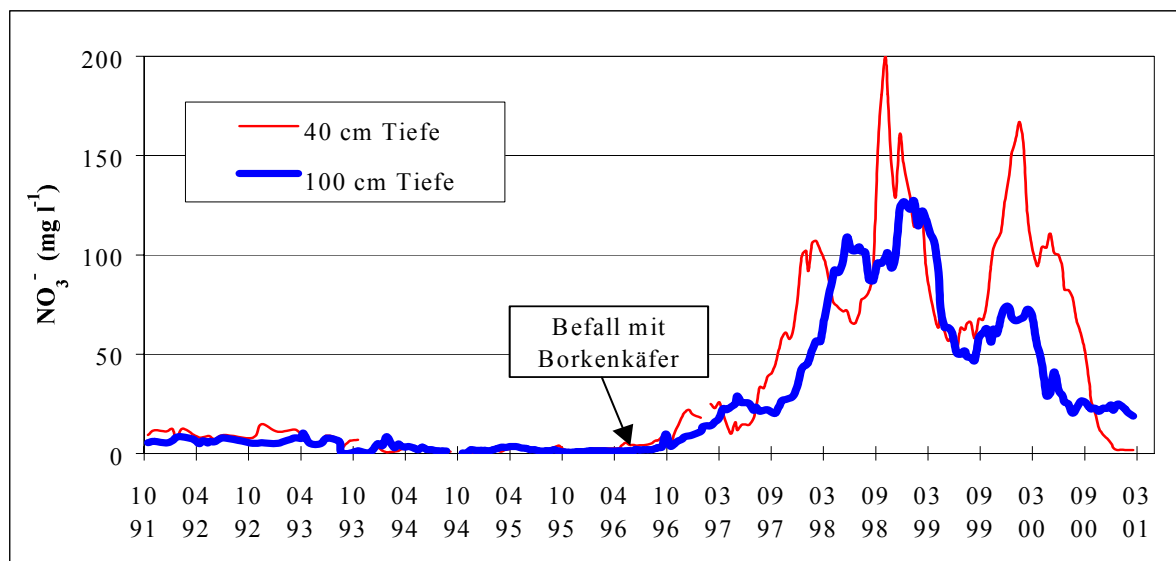


Abbildung 89: NO_3^- - Konzentrationen (mg l^{-1}) in den Bodensickerwässern (40 und 100 cm Tiefe) des (ehemaligen) Fichtenbestands F1 Schachtenau

Die zeitliche Entwicklung der Nitratkonzentration im Sickerwasser nach 1996 verläuft peakförmig und weist steile Maxima und Minima auf. Besonders bei der Bodentiefe von 40 cm beobachtet man 2 sehr stark ausgeprägte Maxima in den Jahren 1998 und 2000. Das zwischenzeitliche Absinken der NO_3^- - Konzentration wird als Folge der biologischen Ruhe in dieser Phase interpretiert und ist außerdem den hohen Sickerwassermengen im Winterhalbjahr zuzuschreiben. Der im Winter 2000/2001 zu beobachtende Rückgang bis auf Werte unter $1 \text{ mg NO}_3^- \text{ l}^{-1}$ wird so interpretiert, dass die bis zu diesem Zeitpunkt leicht verwertbaren Ammoniumquellen wahrscheinlich weitgehend aufgebraucht wurden. Diese Deutung wird gestützt durch die Messungen der NO_3^- Konzentrationen in 100 cm Bodentiefe, wo die Messwerte ebenfalls deutlich vermindert sind, was zum Rückgang der Stickstoffausträge mit dem Sickerwasserstrom führt.

Mit Hilfe von zwei einfachen Modellen (siehe hierzu auch die Legende in Abbildung 90) wurde eine Abschätzung der vom Borkenkäferbefall induzierten Stickstoffverluste des Ökosystems vorgenommen. Die in Abbildung 90 dargestellten jährlichen Stickstoffaustragsraten (**M**) und (**RS**) wurden wie folgt abgeschätzt:

- Die minimale Austragsrate (**M**) wurde durch Multiplikation der Sickerwassermenge ($\text{l} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{Jahr}^{-1}$) mit der jeweils kleinsten Nitratkonzentration, die im Sickerwasser (100 cm Bodentiefe) in einem Jahr festgestellt wurde (2 wöchentliche Probennahme), gebildet.
- Die Verlustraten (**RS**) wurden aus der Summe von Monatswerten bestimmt und die Berechnung erfolgte durch Multiplikation der relativen Sickerwassermenge nach Renger und Strebel (1980) in: [PRÖBSTLE u. KREUTZER 1991] mit der in einem Monat jeweils festgestellten Nitratmenge im Sickerwasser (100 cm Tiefe).

Auf diese Art wurden minimale jährliche Austragsraten von zwischen 13 (1997) und 104 kg ha^{-1} (1999) ermittelt. In der Summe der Werte von 1997 bis 2000 betrug der minimale Gesamtaustrag 236 kg ha^{-1} . Aus den jeweils monatlichen Sickerwassermengen und Nitratwerten wurden jährliche Austragsraten zwischen 38 (1997) und 201 kg ha^{-1} (1999) bestimmt. In diesem Fall wurde in der Zeit 1997 bis 2000 ein Summenwert von 540 kg ha^{-1} ermittelt.

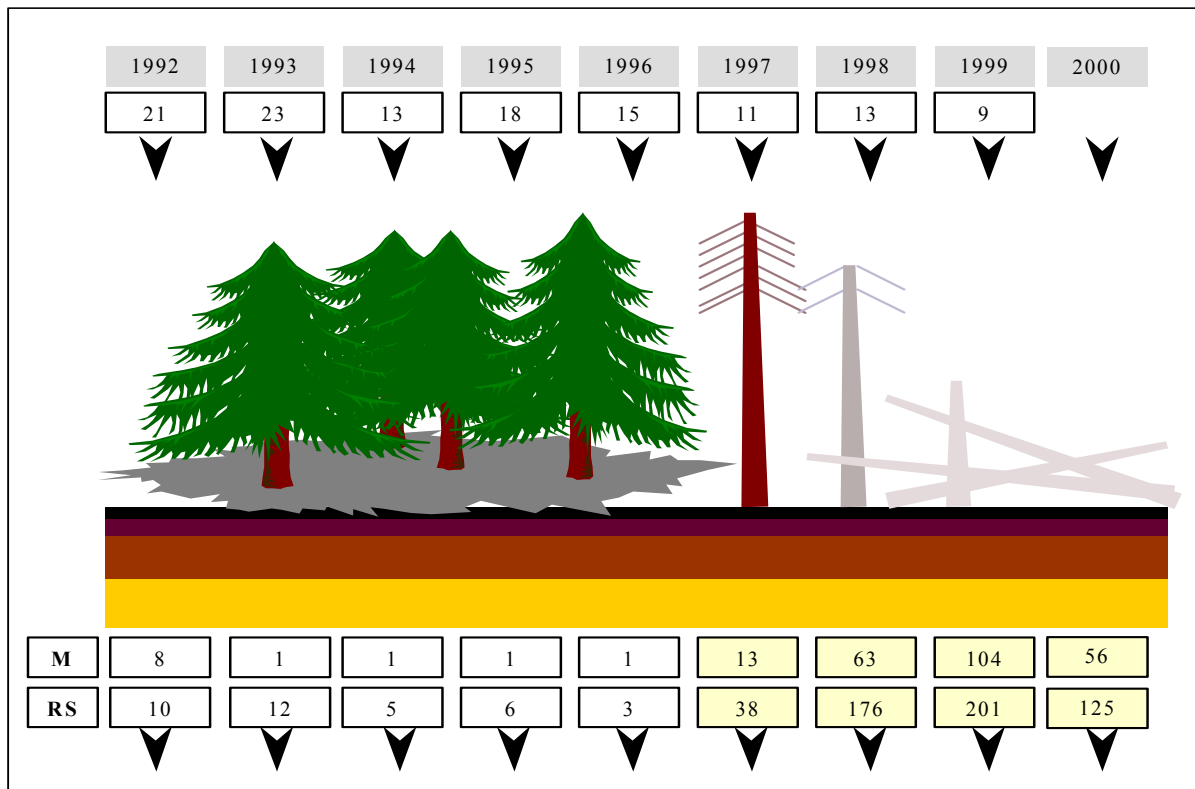


Abbildung 90: Jährliche Eintragsraten von Stickstoff (Gesamtdeposition), sowie die Austragsmengen im Sickerwasser (100 cm Bodentiefe) im Fichtenbestand F1, Schachtenau (kg ha⁻¹). Gesamtdeposition nach ULRICH (1983): Die jährliche Sickerwassermenge ist die Differenz zwischen der Niederschlagsmenge (1 m⁻²) im Freiland und der Verdunstungsmenge (berechnet nach PENMAN in: [SCHRÖDTER 1985]). Nach 1997 wurde infolge des Baumsterbens die jährliche Verdunstungsmenge um 150 l m⁻² reduziert. (M) = Minimale Austragsmenge über das Sickerwasser (100 cm Bodentiefe). (RS) = jährliche Verlustraten auf der Basis relativer Monatswerte.

Das bei der mikrobiellen Nitrifikation entstehende Nitrat führt auch zur Bildung entsprechender Säureäquivalente (Salpetersäurebildung). Dies bedeutet, dass der Anstieg der Nitratwerte in den Bodenwässern verbunden sein sollte mit einer wieder zunehmenden Bodenversauerung. Dieser Verdacht wird durch die Messungen des pH-Werts in den Sickerwässern bestätigt. Bei den Messungen nach dem Borkenkäferbefallsereignis wird ein erneutes Absinken der pH-Werte beobachtet (Absinken der pH-Werte von zuvor > pH 4,6 bis auf pH 4,0). Der höhere Säuregehalt im Boden führt wie erwartet auch zu einer verstärkten Mobilisation von Aluminiumionen. Bei den jährlichen Al-Austragsraten ist dementsprechend ein sehr starker Anstieg zu beobachten (von durchschnittlich 12 kg ha⁻¹ in den Jahren 1992 bis 1995 bis zu 119 kg ha⁻¹ im Jahr 1999). Von besonderer ökologischer Bedeutung sind auch die Verluste an Ca²⁺, Mg²⁺ und K⁺-Ionen, bei denen nach dem Borkenkäferbefall zwischen 2- bis 5-fach erhöhte Austragsraten beobachtet werden. Auf Grund des wieder zu beobachtenden Abklingens der sehr hohen Nitrifikationsraten und des daraus resultierenden verminderten Säuredrucks sollte auch der Trend einer erhöhten Freisetzung und Auswaschung von Kationen wieder umgekehrt werden.

Nach dem Borkenkäferbefall wurden im geschädigten Fichtenbestand N-Verlustraten in einer ähnlichen Größenordnung gemessen, wie sie auch von anderen Störungseinflüssen berichtet werden. So kam es beispielsweise bei Sturmwürfen in bayerischen Fichtenbeständen im Jahr 1990 zu erhöhten Austragsraten, die bis zu 328 kg ha⁻¹ innerhalb der ersten drei Jahre betrugen

(KÖLLING 1993). Als weitere Parallelität zum Fichtenbestand F1 wurde auch hier berichtet, dass die maximalen Verlustraten zu einem Zeitpunkt etwa zwei bis drei Jahre nach dem Schadensereignis auftraten. Bei Kahlschlägen in oberpfälzischen Kiefernbeständen wurden Stickstoffverlusten von etwa 440 kg ha^{-1} , bei zusätzlicher Bodenbearbeitung von 660 kg ha^{-1} in den ersten 10 Jahren publiziert (BURSCHEL et al. 1977). Aus den Literaturberichten geht ebenfalls hervor, dass es sich bei dem Anstieg der Nitratwerte im Boden um vorübergehende Effekte handelt. Eine sich wieder verstärkende Stickstoffverwertung (durch neue Vegetationsformen) einerseits und der zunehmende Verbrauch von leicht verwertbaren Stickstoffsubstraten aus der frisch zugeführten Biomasse andererseits, bewirken, dass sich der Gleichgewichtszustand des Stickstoffkreislaufs dann wieder in Richtung niedrigerer Nitrataustragsraten bewegt.

13.5 Veränderungen der Gewässerqualität (Grund- und Bachwasser) und ihre Auswirkungen auf die Bachforellenpopulation

Bei dem Untersuchungsgebiet des Forellenbachs handelt es sich um ein abgeschlossenes Wassereinzugsgebiet. Hinsichtlich einer vollständigen Wasser- und Stoffbilanz werden deshalb die Abflussmengen des Forellenbachs kontinuierlich erfasst und es erfolgt eine regelmäßige chemische und physikalische Analyse aller für das Integrated Monitoring relevanten Messparameter sowohl im Bachwasser als auch in den Depositions- und Bodenwässern (Grundwasser und Sickerwasser). Auf der Basis dieser Messungen kann man sagen, dass der Forellenbach zu 50 bis 80% aus dem Grundwasservorrat gespeist wird. Da man ganz grundsätzlich davon ausgehen muss, dass die Qualität des Bach- und des Grundwassers ein guter Anzeiger für die ökologische Gesamtsituation des Forellenbachgebiets darstellt, sollten alle bisher dargestellten Untersuchungsbefunde auch in diesem Bereich erkennbar sein. Von großer Bedeutung diesbezüglich sind insbesondere qualitative Aussagen zur Zusammensetzung der Wässer.

In den Jahren von 1990 bis 1998 wurde bei den Mittelwerten der N – Konzentration im Grundwasser (Buchenbestand B1) ebenso wie bereits bei den Niederschlags- und bei den Sickerwässern ein Rückgang festgestellt. Mit Werten zwischen $0,66 \text{ mg l}^{-1}$ im Jahr 1992 und $0,34 \text{ mg l}^{-1}$ im Jahr 1998 im Grundwasser (Abbildung 91) war die Tendenz etwas weniger stark ausgeprägt als bei den Werten im Niederschlagswasser. Absolut gesehen liegt die Größenordnung der Messwerte unterhalb des Stickstoffgehalts bei den Niederschlagswässern und etwas oberhalb der Werte in Sickerwässern. Der reine Nitratanteil im Grundwasser beträgt etwa 80% bis 95%. Im Bachwasser (Nitratanteil 80% – 98%) ist bei den abflussgewichteten Werten zwischen $0,79 \text{ mg l}^{-1}$ (1992) und $0,68 \text{ mg l}^{-1}$ (1998) die abnehmende Tendenz des Stickstoffgehalts nur wenig ausgeprägt. Der zeitliche Konzentrationsverlauf ähnelt den Ergebnissen im Grundwasser von zwei Messstellen im benachbarten Markungsgrabengebiet (1000 m ü. NN) (BITTERSOHL et al. 1999). Bei einer Interpretation dieser Daten müssen die Faktoren eines überdurchschnittlichen Holzzuwachses in den warmen Sommern von 1990 - 1995 und der Rückgang der N-Deposition im gleichen Zeitraum berücksichtigt werden.

Auch bei der Qualität des Grund- und Bachwassers ist der Borkenkäferbefall und der daraus resultierende Einfluss auf den Gehalt von Stickstoffverbindungen offensichtlich. Ab dem Jahr 1998, also zu einem Zeitpunkt, an dem etwa 23% des Baumbestandes der gesamten Gebietsfläche abgestorben war, stieg der Nitratgehalt im Grundwasser bis auf $3,2 \text{ mg N l}^{-1}$ und im Bachwasser bis auf $1,7 \text{ mg N l}^{-1}$ (Januar 2000).

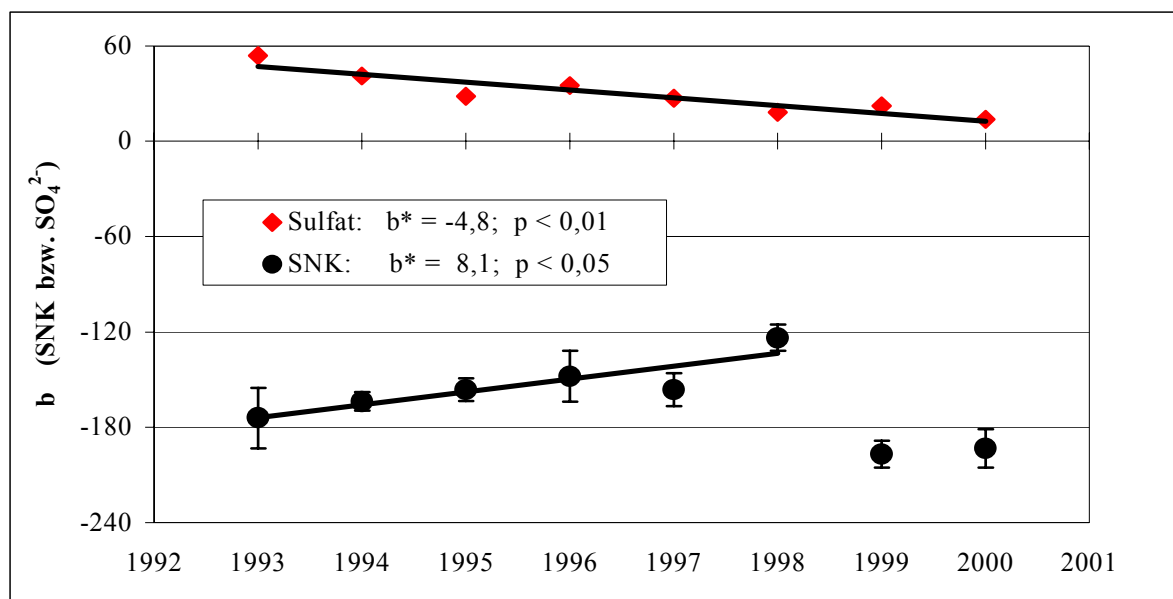


Abbildung 92: Trend (b^*) der Regressionskoeffizienten ($b \pm s$) der für Einzeljahre berechneten linearen Ausgleichsfunktionen der Sulfatkonzentration und der Säureneutralisationskapazität SNK ($\mu\text{mol}_c \text{l}^{-1}$) auf den logarithmierten Abfluss Q (l s^{-1}) im Forellenbach.

Dementsprechend stiegen die Regressionskoeffizienten der SNK-Abflussbeziehung zwischen 1992 und 1998 an. Eine Verzehnfachung des Abflusses ging 1992 mit einer Erniedrigung der SNK um $174 \mu\text{mol}_c \text{l}^{-1}$, im Jahr 1998 hingegen nur noch um $124 \mu\text{mol}_c \text{l}^{-1}$ einher. Damit hatte sich insbesondere das Ausmaß der episodischen Versauerung bei Hochwasserabflüssen reduziert.

Im Jahr 1999 endete diese Entwicklung infolge des starken Anstiegs der NO_3^- -Konzentrationen. Die Steigungsfaktoren der SNK-Abflussbeziehungen fielen auf die tiefsten Werte des Beobachtungszeitraums. Dies bedeutet wahrscheinlich eine Zunahme der Vitalitätsrisiken für die aquatische Fauna. Nitrat ist seit 1999 das dominierende Anion im Bachwasser und hat Sulfat als Hauptkomponente der Gewässerversauerung abgelöst.

Fische sind als Endglied der Nahrungskette gute Bioindikatoren der Gewässerqualität, da sie auf stoffliche Beeinträchtigungen entweder durch Rückzug (sofern dies räumlich möglich ist) oder mit Schädigungssymptomen reagieren (FISCHER-SCHERL et al. 1988). Anhand der Ergebnisse der jährlich im Sommer durchgeführten Elektroabfischungen wurde daher geprüft, ob der Anstieg der Säureneutralisationskapazität bis 1998 sowie die seit 1999 durch den Borkenkäferbefall induzierte Versauerung des Bachwassers Auswirkungen auf die Population der Bachforellen (*Salmo trutta fario* L.) hatte. Als kritisch für die gesamte aquatische Fauna gelten allgemein Säureneutralisationskapazitäten von kleiner als $50 \mu\text{mol}_c \text{l}^{-1}$ (NIVA 2000). Solche Werte werden im Forellenbach nur episodisch wie z.B. bei Hochwasserabflüssen gefunden. Die dabei auftretenden niedrigen pH-Werte ($\text{pH} < 5,5$) und erhöhten Al-Konzentrationen (bis $0,7 \text{ mg l}^{-1}$) können toxische Wirkungen bei der hier als einzige Fischart vorkommenden Bachforelle haben (FISCHER-SCHERL et al. 1988). Außerdem verändern sie das Vorkommen und die Abundanz von Eintags-, Köcher- und Steinfliegenlarven, die als Nahrungsquellen der Bachforellen dienen (SCHADT 1993).

Die Anzahl der in den Monaten Juni/Juli abgefischten Bachforellen schwankte zwischen 43 im Jahr 1994 und 108 im Jahr 1997. Diese geringen Zahlen und die Körperlängen (< 17 cm) bei der Sommerbefischung deuten darauf hin, dass das Futterangebot sowie auch die räumliche Ausdehnung des Quellbachs auf das Vorkommen der Fische stark limitierend wirken. Größere Individuen wandern in die Vorfluter ab. Aus diesem Grund ist die Größe des Sommerbestands vor dem herbstlichen Laichzug vom Fortpflanzungserfolg der Vorjahre abhängig. Die Anzahl der Brütlinge (Körperlänge < 5 cm) variierte mit $n = 4$ (2000) bis $n = 39$ (1996) stärker als die Zahlen des Gesamtbestands (Abbildung 93).

Um den möglichen Einfluß der episodischen Versauerung auf diese Ergebnisse zu prüfen, wurden für die Jahre 1994 bis 1999 die Brütlingszahlen einer SPEARMAN-Rangkorrelationsanalyse (LOZAN 1992) mit monatlichen Kenngrößen der Gewässerazidität und der Abflußhöhe unterzogen.

Ein signifikant positiver Zusammenhang mit der Anzahl der Brütlinge ($p < 0,01$) ergab sich für die minimalen pH-Werte, ein hoch signifikant negativer Zusammenhang ($p < 0,001$) für die maximalen Al-Konzentrationen des Bachwassers im Monat Januar. Die Ergebnisse des Jahres 2000 veränderten das Signifikanzniveau dieser Beziehungen nicht. Die Gegenüberstellung von Brütlingszahlen und der maximalen Al-Konzentrationen des Monats Januar läßt erkennen (Abbildung 93), dass Al-Konzentrationen von über $200 \mu\text{g l}^{-1}$ (1994, 1995, 2000) mit besonders niedrigen Brütlingszahlen ($N = 4 - 6$) korreliert sind.

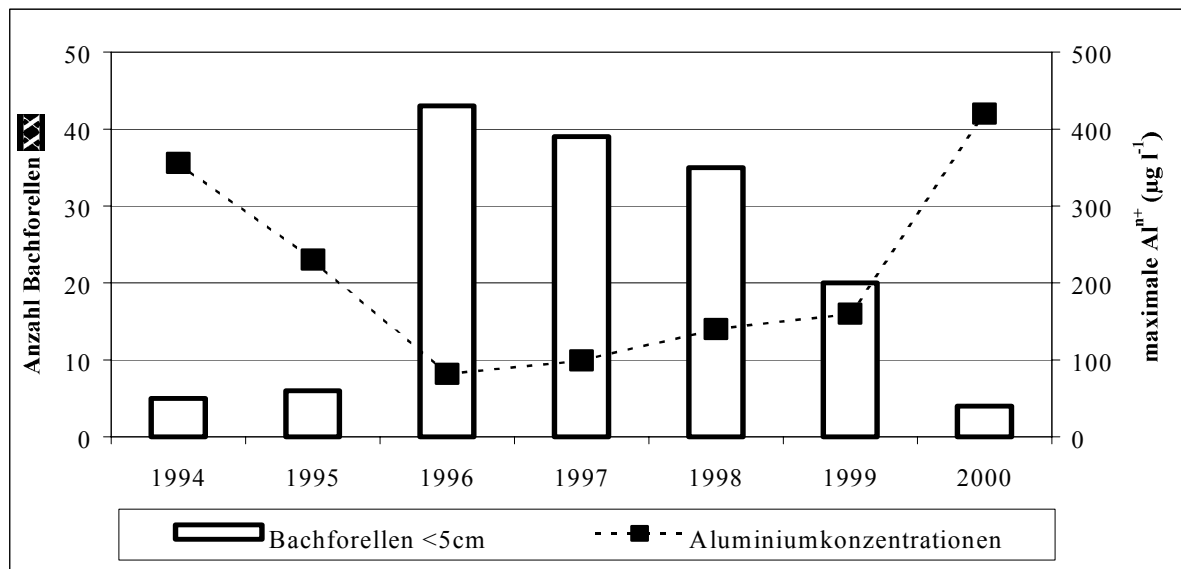


Abbildung 93: Anzahl der Bachforellen mit einer Körperlänge < 5 cm (Brütlinge) im Forellenbach in den Monaten Juni/Juli der Jahre 1994 bis 2000. Die Quadrate stellen die maximalen Al-Konzentrationen des Monats Januar derselben Jahre dar.

Dies bestätigen auch die Befunde von MUNIZ u. LEIVESTAD (1980), nach denen Al-Konzentrationen über $150 \mu\text{g l}^{-1}$ das Wachstum und die Überlebenszeit bei Larven und Jungfischen stark reduzieren. Die in diesen Jahren in Tagesmischproben gemessenen pH-Minima (pH 5,5 - pH 5,7) liegen nahe am pH-Bereich von pH 5,1 bis pH 5,5, in dem Al-Ionen die stärkste Giftwirkung aufweisen (BAKER u. SCHOFIELD 1980).

Erstaunlich ist zunächst, dass die Brütlingszahlen mit den Azidititätskennwerten des Bachwassers im Monat Januar korreliert sind, da dieser Monat die höchsten pH-Minima und

niedrigsten Al-Maxima aller Wintermonate aufweist. Allerdings dürfte bei den niedrigen winterlichen Wassertemperaturen ($< 2,5^{\circ}\text{C}$) die Embryonalentwicklung der Bachforellen nur sehr langsam verlaufen, sodass die Fischembryonen im Januar noch in den besonders sensitiven Phasen des ersten Drittels ihrer Entwicklung stehen (HOFFMANN 1990).

13.6 Zusammenfassung

Seit Beginn der Integrated Monitoring Messungen im Forellenbachgebiet des Nationalparks Bayerischer Wald im Jahr 1990 wurde bei den Depositionsmessungen von Stickstoff- und Schwefelverbindungen eine stetig rückläufige Tendenz festgestellt. Dieser Effekt wird bestätigt durch einen Rückgang der Sulfat- und der Nitratkonzentration in den Depositionswässern und in den Bodensickerwässern der Buchenbestände sowie in einem Anstieg der entsprechenden pH-Werte. Bei pflanzenphysiologischen Untersuchungen mit vegetationsanalytischen Methoden auf für Bergmischwald typischen Flächen (durch Buchenbewuchs dominiert und nicht beeinträchtigt durch Schadensereignisse des Borkenkäferbefalls) wurde deutlich, dass im Jahr 2000 stickstoffanzeigende Pflanzenarten weniger häufig gefunden wurden als im Jahr 1990. Dieser Effekt kann ebenfalls als ein Rückgang des Stickstoffeintrags gedeutet werden. Aus all diesen Messungen kann der Schluss gezogen werden, dass in den 90ziger Jahren der weitreichende Schadstoffeinfluss durch oxidierte Schwefelverbindungen und durch Stickoxide deutlich zurückgegangen ist.

Mit dem Borkenkäferbefall der Fichtenbestände im Beobachtungsgebiet fand im Jahr 1996 ein Schadensereignis statt, das eine nachhaltige Störung des im Nationalpark bestehenden ökologischen Gleichgewichts bedeutete. Die Messungen auf der vorwiegend von Fichtenbewuchs geprägten Dauerbeobachtungsfläche zeigen deutlich an, wie stark dieses Geschehen auch die Messergebnisse beeinflusst, und dass den seit dem Ereignis gewonnenen Messwerten nur noch eine eingeschränkte Tauglichkeit hinsichtlich der Erkennung von durch gasförmigen Schadstoffeintrag bewirkten Ökosystemveränderungen zukommt. Als dominierende Folgewirkungen des Absterbens von Fichten muss insbesondere der veränderte Stickstoffhaushalt genannt werden, aber auch die Verfügbarkeit von anderen Nährsubstraten wie z.B. von wichtigen Kationen spielt eine wichtige Rolle. Auch das Mobilitätsverhalten von oxidierten Schwefelverbindungen unterlag infolge des Ereignisses massiven Veränderungen. Ursächlich für diese Veränderungen sind insbesondere die säuregetragenen Reaktionsmechanismen. Das nach dem Borkenkäferbefall bewirkte Absterben der Fichten und in Folge zunächst einen Zuwachs an mikrobiell verwertbarer Biomasse im Boden und die sofort einsetzende Nitrifikation (Salpetersäurebildung) aus der frischen Biomasse sind einige der Wirkungsmechanismen, die dafür von elementarer Bedeutung sind.

Nachdem die Fichtenbestände auf mehr als 20% der Gebietsfläche abgestorben waren, reagierten auch Grund- und Bachwasser mit ansteigenden NO_3^- -Konzentrationen. Ab 1999 sank die bis dahin signifikant ansteigende Säureneutralisationskapazität des Bachwassers auf die niedrigsten Werte des Beobachtungszeitraums. Das damit verbundene Risiko erhöhter, für die aquatische Fauna toxisch wirkender Al-Konzentrationen über $0,2 \text{ mg l}^{-1}$ wurde am sehr geringen Reproduktionserfolg der Bachforellen im Jahr 2000 deutlich.

Bereits vier Jahre nach dem Absterben des untersuchten Fichtenbestands F1 Schachtenebene deutet sich eine Normalisierung der mikrobiellen Abbauraten an, die sich in wieder stark sinkenden Nitrat- und Al-Konzentrationen im Bodensickerwasser bemerkbar machen. Dies könnte bedeuten, dass sich der durch die Emissionsminderungsmaßnahmen eingeleitete

Erholungsprozess des versauerten Ökosystems nach Abklingen der Borkenkäfermassenentwicklung fortsetzen wird.

13.7 Literatur

- BAKER, J.P. u. SCHOFIELD, C.L.: Aluminium toxicity to fish as related to acid precipitation and Adirondack surface water quality. In: DRABLOS, D. and TOLLAN, A.: Ecological impacts of acid precipitation. S.292-293. Sandefjord, Norwegen (1980).
- BARTZ, L.: Vegetationsökologische Dauerbeobachtung im ECE-Monitoring-Projekt im Nationalpark Bayerischer Wald. Vegetationsentwicklung seit 1990, Bewertung des Dauerflächenkonzeptes und Erweiterung der methodischen Ansätze. Unveröff. Diplomarbeit. Marburg (2001)
- BAUMGARTEN, M.: Charakterisierung des physiologischen Zustands von Altbuchen in zwei Höhenlagen des Bayerischen Waldes unter Berücksichtigung der Standortfaktoren und der Ozonbelastung. Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München (1998)
- BITTERSOHL, J., MORITZ, K. u. SCHILLER, H.: Schriftliche Mitteilungen. Bayerisches Landesamt für Wasserwirtschaft, München (1999).
- BURSCHEL, P., EDER, R., KANTARCI, D. und REHFUESS, K.E.: Wirkungen verschiedener Bodenbearbeitungsverfahren auf Wachstum, Phytomasseakkumulation und Nährstoffvorräte junger Kiefernwaldökosysteme. Forstwissenschaftliches Centralblatt 96, S. 321-338 (1977)
- ELLENBERG, H., WEBER, H.E., DÜLL, R., WIRTH, V., WERNER, W., PAULIßEN, D.: Zeigerwerte von Pflanzen in Mitteleuropa. Scripta Geobotanica, 18 (18): 258 S. (1992)
- FISCHER-SCHERL, TH., HOFFMANN, R., KÜGEL, B., MERK, G. u. MILLER, H.: Einfluß der Gewässerversauerung auf die Fischfauna. In BAYERISCHE LANDESANSTALT F. WASSERFORSCHUNG (Hrsg.): Gewässerversauerung im nord- und nordostbayerischen Grundgebirge. S.281-395. München (1988).
- GUNDERSEN, P.: Mass balance approaches for establishing critical loads for nitrogen in terrestrial ecosystems. In: GRENNFELT, P. and THÖRNELÖF, E.: Critical loads for nitrogen. NORD 1992, 41, S. 55-110 (1992)
- HOFFMANN, R.: Auswirkungen der Gewässerversauerung auf die Fischfauna. In: Bayerische Akademie für Naturschutz und Landschaftspflege (ANL). Laufener Seminarbeiträge 4/90, S.80-84 (1990).
- JOHNSON, D.W. u. LINDBERG, S.E.: Synthesis and modelling of the results of the Integrated Forest Study. In: JOHNSON, D.W. u. LINDBERG, S.E. (eds): Atmospheric deposition and forest nutrient cycling. Ecological Studies 91. Springer Verlag, S. 571-609 (1990).
- KIRSCHBAUM, M.U.F.: The temperature dependence of soil organic matter decomposition and the effect of global warming on soil organic C storage. Soil Biol. Biochem. Vol. 27 (6), S. 753-760 (1995).
- KÖLLING, C.: Die Zusammensetzung der Bodenlösung in sturmgeworfenen Fichtenforst-Ökosystemen. Schriftenreihe der Forstwissenschaftlichen Fakultät der Universität München und der Bayerischen Forstlichen Versuchs- und Forschungsanstalt, Nr. 133, 134 S. (1993)
- LOZAN, J.L.: Angewandte Statistik für Naturwissenschaftler. Pareys Studentexte 74. Parey Berlin, Hamburg (1992)
- MUNIZ, I.P. u. LEIVESTAD, H.: Toxic effects of aluminum on the brown trout, *Salmo trutta*, L. In: DRABLOS, D. and TOLLAN, A. (eds.): Ecological impacts of acid precipitation. S.320-321. Sandefjord, Norwegen (1980).
- NORWEGIAN INSTITUTE FOR WATER RESEARCH (NIVA): The 12-year report: Acidification of surface water in Europe and North America; trends, biological recovery and heavy metals. ICP-Waters Report 52/2000 (2000)
- PRÖBSTLE, P. u. KREUTZER, K.: Näherungsweise Erfassung der Wasserbilanzen am Standort Höglwald. In: KEUTZER, K. u. GÖTTLEIN, A.: Ökosystemforschung Höglwald. Beiträge zur

Auswirkung von saurer Beregnung und Kalkung in einem Fichtenbestand. Verlag Paul Parey Hamburg - Berlin (1991)

- *SCHADT, J.: Fische, Neunaugen, Krebse und Muscheln in Oberfranken. Fachberatung f. Fischerei, Oberfranken (1993)*
- *SCHRÖDTER, H.: Verdunstung; Anwendungsorientierte Messverfahren mit Bestimmungsmethoden. 146 S., Springer Berlin (1985)*
- *SIGG, L. und STUMM, W.: Aquatische Chemie: eine Einführung in die Chemie wässriger Lösungen und natürlicher Gewässer. Verlag der Fachvereine, Zürich; Teubner, Stuttgart; 3. Auflage (1994)*
- *SKÄRBI, L. u. KARLSSON, P.E.: Critical levels for ozone to protect forest trees - best available knowledge from the Nordic Countries and the rest of Europe. In: KÄRENLAMPI, L. u. SKÄRBI, L. (eds.): Critical Levels for Ozone in Europe: Testing and Finalizing the Concepts. UN-ECE Workshop Report. University of Kuopio, Finnland; S.72-85 (1996)*
- *STODDARD, J.L.: Long-term changes in watershed retention of nitrogen. Its causes and aquatic consequences. In: Environmental chemistry of lakes and reservoirs. Advances in Chemistry, Series Nr. 237. S. 223-284. American Chemical Society (1994).*
- *UBA (UMWELTBUNDESAMT): Jahresbericht 1999 aus dem Meßnetz des Umweltbundesamtes. Texte 58/00, Berlin (2000).*
- *ULRICH, B.: Interaction of forest canopies with atmospheric constituents: SO₂, alkali and earth alkali cations and chloride. In: ULRICH, B. u. PANKRATH, J. [Hrsg.]: Effects of accumulation of air pollutants in forest ecosystems. Reidel Publishing Company. Dordrecht-Boston-London (1983)*
- *ULRICH, B.: Ökologische Gruppierung von Böden nach ihrem chemischen Bodenzustand. Z. Pflanzenernähr. Bodenk. 144, S. 289-305 (1981)*

Bisherige Berichte zum „Integrated Monitoring Programm an der Meßstelle Forellenbach im Nationalpark Bayerischer Wald“

- *BEUDERT, B., BREIT, W., DIEPHOLDER, U. u. KAISER, M.: Errichtung und Betrieb einer Meßstelle für das ECE-Projekt Integrated Monitoring im Rahmen der ECE-Luftreinhaltekonvention. Zwischenbericht zum F+E-Vorhaben 104 02 643 des Umweltbundesamtes. Bayerische Landesanstalt für Wald und Forstwirtschaft, Freising (1992).*
- *BEUDERT, B., BREIT, W., DIEPHOLDER, U. u. KAISER, M.: Errichtung und Betrieb einer Meßstelle für das ECE-Projekt Integrated Monitoring im Rahmen der ECE-Luftreinhaltekonvention. Abschlußbericht zum F+E-Vorhaben 104 02 643 des Umweltbundesamtes. Bayerische Landesanstalt für Wald und Forstwirtschaft, Freising (1994).*
- *BEUDERT, B., BREIT, W., DIEPHOLDER, U. und KAISER, M.: Integrated Monitoring im Nationalpark Bayerischer Wald. Abschlußbericht zum F+E-Vorhaben 104 02 700 des Umweltbundesamtes. Bayerische Landesanstalt für Wald und Forstwirtschaft, Freising (1997).*
- *IBK (INSTITUT FÜR BIOKLIMATOLOGIE): Methodenhandbuch zum „Integrated Monitoring“ an der Meßstelle Forellenbach im Bayerischen Wald (FKZ 351 01 006/01). Göttingen (1998)*
- *IBK (INSTITUT FÜR BIOKLIMATOLOGIE): Sicherstellung des Integrated Mon. –Prog. an der Meßstelle Forellenbach im Bayerischen Wald (FKZ 351 01 006/01). Abschlußbericht 1997. Göttingen (1998b).*
- *IBK (INSTITUT FÜR BIOKLIMATOLOGIE): Sicherstellung des Integrated Mon. –Prog. an der Meßstelle Forellenbach im Bayerischen Wald (FKZ 351 01 006/02). Abschlußbericht 1998. Göttingen (1999).*
- *IBK (INSTITUT FÜR BIOKLIMATOLOGIE): Sicherstellung des Integrated Mon. –Prog. an der Meßstelle Forellenbach im Bayerischen Wald (FKZ 351 01 006/03). Abschlußbericht 1999. Göttingen (2000).*
- *BEUDERT, B. und BREIT, W.: Integrated Monitoring Programm an der Meßstelle Forellenbach im Nationalpark Bayerischer Wald (FKZ 351 01 012). Abschlußbericht 2000. Nationalparkverwaltung Bayerischer Wald, Grafenau (2001)*

14. VON DER LOCHKARTE ZUM INTERNET

Karin Uhse

14.1 Einleitung

Jedes Jahr werden im Messnetz des Umweltbundesamt Millionen von Messwerten erzeugt – und das seit 1968. Waren es zu Beginn nur einige tausend Werte von wenigen Hauptschadstoffen gemessen in 5 Messstellen, so sind es heute mehrere Millionen Werte pro Jahr von über 20 Stationen und über 60 verschiedenen Komponenten mit unterschiedlichen Messintervallen. Die Vielzahl der Messergebnisse von Luftverunreinigungen in Gasen, Niederschlag und Staub sowie den dazugehörigen Wetterverhältnissen müssen nach den teilweise sehr aufwendigen Analysen selbstverständlich ebenso sorgfältig notiert, gespeichert, ausgewertet, dargestellt und weitergeleitet werden. Denn diese Messergebnisse stellen das „Kapital“ eines Messnetzes dar. Nur mit Hilfe dieser Werte können Trendanalysen erstellt, luftchemische Zusammenhänge erkannt, Erfolgskontrollen umweltpolitischer Maßnahmen durchgeführt, Interessierte informiert, Zukunftsprognosen erstellt und Antworten auf umweltpolitische Fragestellungen gefunden werden. Dies ist von Anbeginn des Messnetzes des Umweltbundesamtes bis heute der Fall. Für Trenduntersuchungen sind gerade die ältesten Messergebnisse von größter Bedeutung, da sie als Vergleich zu den heutigen Verhältnissen bewertet werden können.

Ähnlich wie die Messmethoden hat sich auch die Technik der Messwertspeicherung und –verarbeitung ständig gewandelt und modernisiert – in der EDV-Branche vielleicht sogar noch schneller als in der Analysetechnik. Ein Messwert, der 1968 auf eine Lochkarte gestanzt wurde, ist heute im Internet zu finden. Doch dazu waren mannigfaltige und komplizierte Transferleistungen zwischen den unterschiedlichsten Computer-Systemen zu erbringen.

14.2 Lochstreifen und Lochkarten

Als das DFG-Messnetz 1974 vom UBA übernommen wurde, bestand es aus nur 5 Messstellen, an denen nur wenige – im Vergleich zu heute – Schadstoffe wie SO₂, NO₂, CO₂, Gesamtstaub und meteorologische Parameter wie Temperatur, Windrichtung und –geschwindigkeit sowie die relative Luftfeuchte gemessen wurden und dies zum Teil auch nur als Tageswert. Doch der Aufwand der Datenspeicherung war erheblich größer als heute. Von 1968 bis 1979 wurden die Werte von Papierlisten, auf die die Messergebnisse notiert worden waren, oder von endlosen „Schrieben“ abgelesen und einzeln mit einer Handlochstanze auf Lochkarten (siehe Abbildung 94) übertragen. Diese Arbeit wurde gleich doppelt durchgeführt, um die Karten nach dem Stanzen per Sichtprüfung auf Korrektheit zu kontrollieren – und dies bei ca. 4500 Stundenmesswerten pro Station! Die „Haupt-Datenspeicherzentrale“ befand sich zu dieser Zeit noch auf einem Computer der Universität in Worms.

Im Dezember 1978 wurde an der Messstelle Waldhof eine „Pilot-MEBA“ (Pilot-Messwert-Erfassungs und –Bearbeitungs-Anlage) eingerichtet. In einer sogenannten „Hentschel-Kiste“ als Datenlogger wurden die Messwerte erfasst und danach mit einem PC-Vor-Vorläufer, einem HP 9825 mit 16 KB Arbeitsspeicher, auf kleinen Magnetband-Cassetten als ASCII-Zeichen

gespeichert. Auf diesen, für den damaligen Stand der Technik relativ komfortabel zu programmierenden Computern, wurde die gesamte benötigte Software in Eigenregie erstellt. Die Werte mussten somit nicht mehr per Hand von Papierlisten übertragen werden, was einen riesigen Fortschritt und eine große Arbeitserleichterung bedeutete. Mit einer Übertragungsrate von 150 BAUD wurden die dort gespeicherten Werte von den Magnetbändchen mit einer Siemens Teletype auf Lochstreifen übertragen. Mit diesen Lochstreifen konnten dann wiederum auf einem Großrechner des Deutschen Wetterdienstes in Offenbach Lochkarten erzeugt werden. Im Dezember 1979 wurde diese Art der Messwertspeicherung auch an den Messstellen Westerland, Deuselbach, Brotjackriegel und Schauinsland übernommen. Die Umsetzung auf Lochstreifen erfolgte für alle 5 Messstellen in Waldhof mit einem FAZIT-Lochstreifenstanzer.

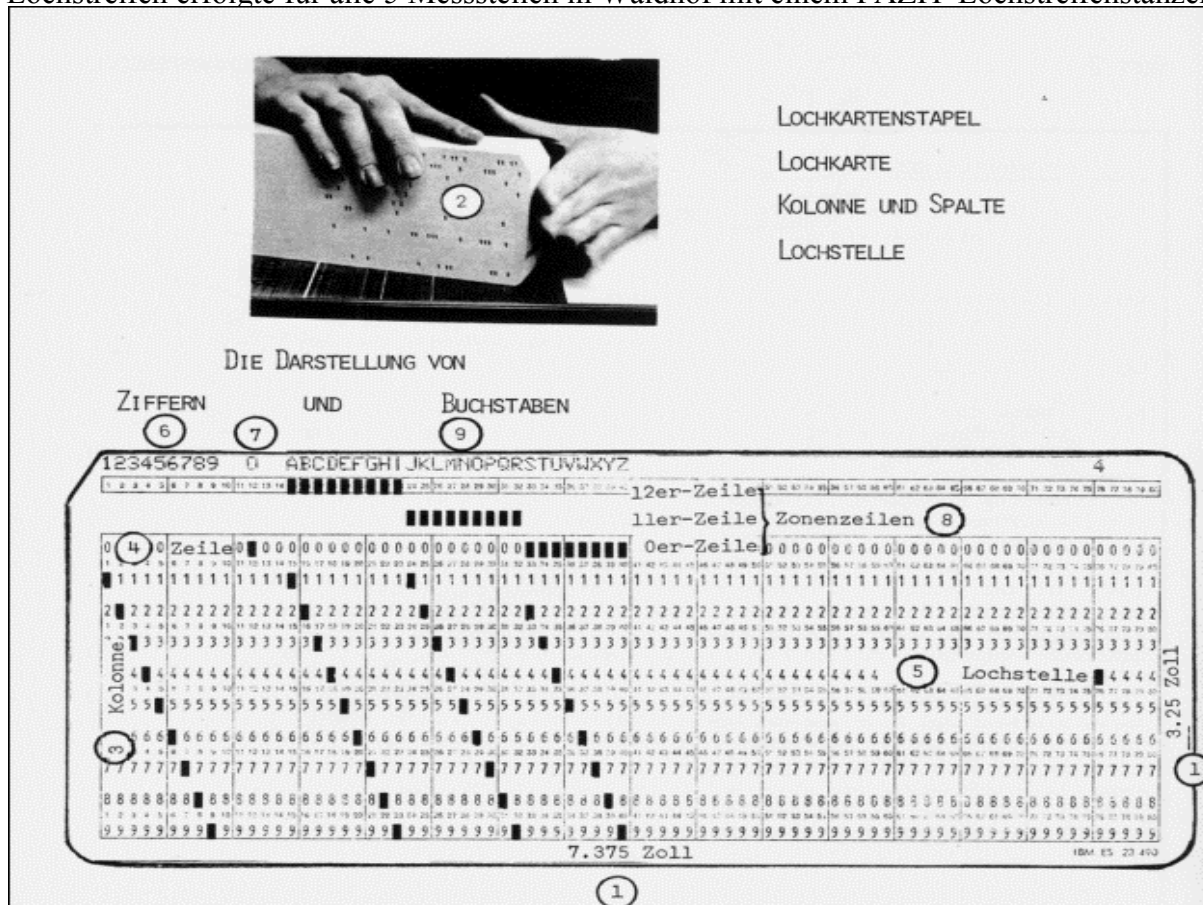


Abbildung 94: Lochkarte

Parallel dazu wurde das Frankfurter Pilotmessnetz, das zu seiner Blütezeit 1970/1971 aus 6 Außenstellen im Frankfurter Raum bestand, mit einem AEG 60/10 Prozessrechner betrieben. Dieser hatte anfänglich einen Arbeitsspeicher von 8 KB und Lochstreifen als Speichermedium. Später wurde er auf 16 KB mit Speicherung auf großen Magnetbändern aufgerüstet und konnte damit sogar die Messergebnisse der 6 Stationen per Datenfernübertragung abrufen. Wie auch im Messnetz wurden diese Lochstreifen bzw. Magnetbänder im Deutschen Wetterdienst auf Lochkarten transferiert und weiter verarbeitet.

Die Speicherkapazitäten waren stark begrenzt und teuer, ebenso wie die wertvolle „Rechenzeit“, die man im EDV-Zentrum zugewiesen bekam. Die Werte wurden daher so platzsparend wie möglich verschlüsselt, auch Kommas wurden eingespart. Daher musste man genau wissen, welche Komponente mit 1000 zu multiplizieren oder durch 10 oder 100 zu dividieren war, wie beispielsweise der pH-Wert: Ein pH-Wert von 4.65 wurde als 465

gespeichert. Für Auswertungen oder Statistiken mussten die Werte jedes Mal zuvor umständlich entschlüsselt und umgerechnet werden.

14.3 Erste Messwert-Fernübertragung im Messnetz

1980 wurden die 5 Messstellen mit Rechnern vom Typ HP 9845 B ausgerüstet, die als Speichermedium für Daten und Software kleine Magnetband-Cassetten besaßen und mit Grafikkarte, einem internen Thermodrucker und einen Arbeitsspeicher von 56 KB ausgestattet waren (siehe Abbildung 95). Diese Computer, die auch lange bei der NASA im Einsatz waren, liefen extrem störungs- und fehlerfrei und waren bis 1992 im täglichen Einsatz. Rechnerabstürze, wie sie heute an der Tagesordnung sind, waren so gut wie unbekannt. Dafür hatten sie auch ca. 85.000,- DM pro Stück gekostet. Diese „Tisch-Rechner“, wie sie genannt wurden, ließen sich bereits fast so komfortabel wie ein heutiger PC programmieren, aber natürlich noch ohne Maus-Bedienung. Somit wurden grafische Darstellungen der Messwerte sowie umfangreiche Auswertungen möglich. Die gesamte Software war speziell für das Messnetz - zum großen Teil auch von UBA-MitarbeiterInnen selbst - programmiert worden. Der weitere Datentransfer zur zentralen Speicherung beim Wetterdienst erfolgte aber nach wie vor per Lochstreifen. Dieser Großrechner war noch notwendig, da der HP 9845 B noch keine Festplatte, so wie heutige Computer, besaß. Die Messwerte waren auf unzähligen HP-Magnetbändern verteilt, die natürlich auch nur sequentiell lesbar waren. Daher konnten Auswertungen und Statistiken über mehrere Jahre und Stationen nur auf dem Großrechner beim DWD erstellt werden. Erst eine zusätzliche externe Festplatte, die mehr als doppelt so groß wie ein heutiger Tower-PC war und eine Speicherkapazität von ca. 1.5 MB besaß, ermöglichte solche Berechnungen auch auf einem UBA-Rechner.

Einen weiteren riesigen Schritt voran ging man 1987. Zur Ermittlung des grenzüberschreitenden Transportes von Luftverunreinigungen wurde ein flächendeckendes deutschlandweites Messnetz mit 10 zusätzlichen automatisch messenden Containern aufgebaut. An den Messstellen und den Containern wurden die Werte in Ring-Steckspeichern, den sogenannten „Hentschel-Kisten“, als Datenlogger für 36 Tage gespeichert. Über Modem und Telefonleitung konnten daraus – ähnlich wie heute – die Messwerte von den Stationen abgerufen und in der Messnetz-Zentrale, die sich nun in Offenbach befand, ebenfalls auf HP 9845 B-Rechnern weiter verarbeitet werden. Dieser tägliche, anfänglich noch manuell betätigte Messwert-Abruf, wurde bald automatisiert und mittels Zeitschaltuhr auf die frühen Morgenstunden gelegt, da die Übertragungszeiten bei einer BAUD-Rate von 300 bis 1200 noch sehr lang waren. Die Messwerte wurden in ASCII-Files gespeichert, deren Aufbau und Struktur bis heute beibehalten wurde, da sich dieses Format immer wieder durch seine Flexibilität und die Lesbarkeit unter den verschiedensten Betriebssystemen wie RSX 11M+, VMS, DOS, WINDOWS NT etc. von 1980 bis heute bewährt hat und zugleich sehr wenig Speicherplatz benötigt.

An Overview of the 9845B

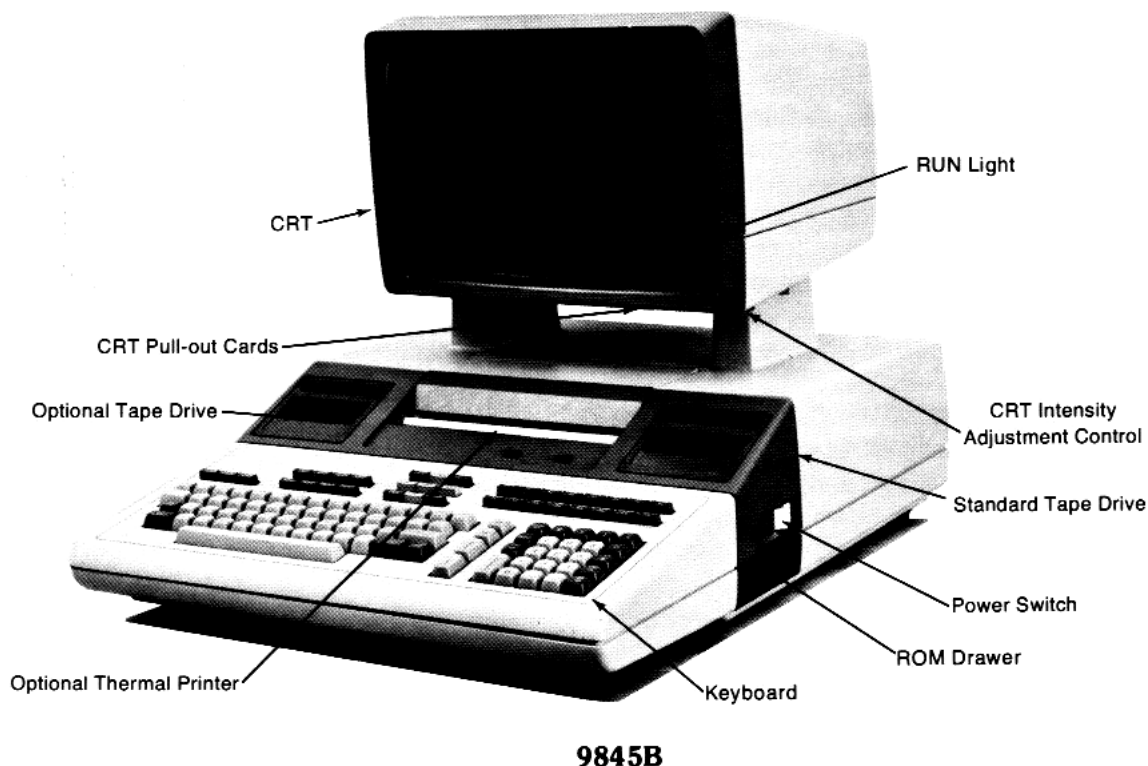


Abbildung 95: HP 9845 B Tischrechner

Zeitgleich wurde in der Pilotstation eine PDP 11/73, ein Prozessrechner mit Festplattenspeichern und Magnetbändern sowie 3 Bildschirmterminals beschafft. Dieser Computer war für den Datenabruf der 3 Frankfurter Außenstellen sowie für die Datenspeicherung und -verarbeitung des Frankfurter Pilotmessnetzes und des Messnetzes zuständig. Über Monate wurde speziell für diesen Rechner die Datenerfassungs- und Übertragungssoftware programmiert. Alle übrigen Auswerte- und Statistikprogramme wurden von UBA-MitarbeiterInnen selbst erstellt. Ein HP 9845 B war über Datenleitung an diesen Computer angeschlossen, so dass die Messnetzdaten mit einer eigens programmierten Software Wert für Wert auf die PDP transferiert werden konnten. Somit wanderte die zentrale Datenspeicherung und -auswertung vom Großrechner des DWD auf die eigene PDP 11/73.

14.4 Smog-Frühwarnsystem

Die sehr hohen Schwefeldioxidkonzentrationen in den 80er Jahren - am 21.1.1985 wurden in Waldhof beispielsweise noch $1218 \mu\text{g}/\text{m}^3$ SO_2 gemessen (siehe Kapitel 2.1.1) - die auch Anlass zum Aufbau des Container-Netzes des UBA gewesen waren, führten zu einem ersten Bundesländer-Datenverbund mit zeitnahe Messwerttransfer. Für dieses erste Smog-Frühwarnsystem, dass im Herbst 1988 in Betrieb ging, wurden in allen Messnetzzentralen der Bundesländer und des UBA VAX GPX II-Workstations, die miteinander via DECNET vernetzt waren, installiert. Diese Workstations waren zusätzlich mit den Zentralrechnern des jeweiligen Messnetzes verbunden, um Zugang zu den Messwerten zu gewährleisten. Beim UBA-Messnetz

bedeutete dies, dass ein HP 9845 B die Messwerte von den Stationen abrief, auf die PDP 11/73 transferierte, die dann wiederum die Daten an die VAX weitergab. Dies lief natürlich nicht automatisch ab. Die Zentrale dieses Bund-Länder-Netzwerkes, in dem die Daten zusammenliefen und u.a. Smogkarten (siehe Abbildung 96) und Prognosen erstellt wurden, war beim UBA in Berlin. Bei Smoglagen konnte dieses System bereits von werktäglichem auf einen 3-Stunden-Aktualisierungs-Rhythmus umgestellt werden.

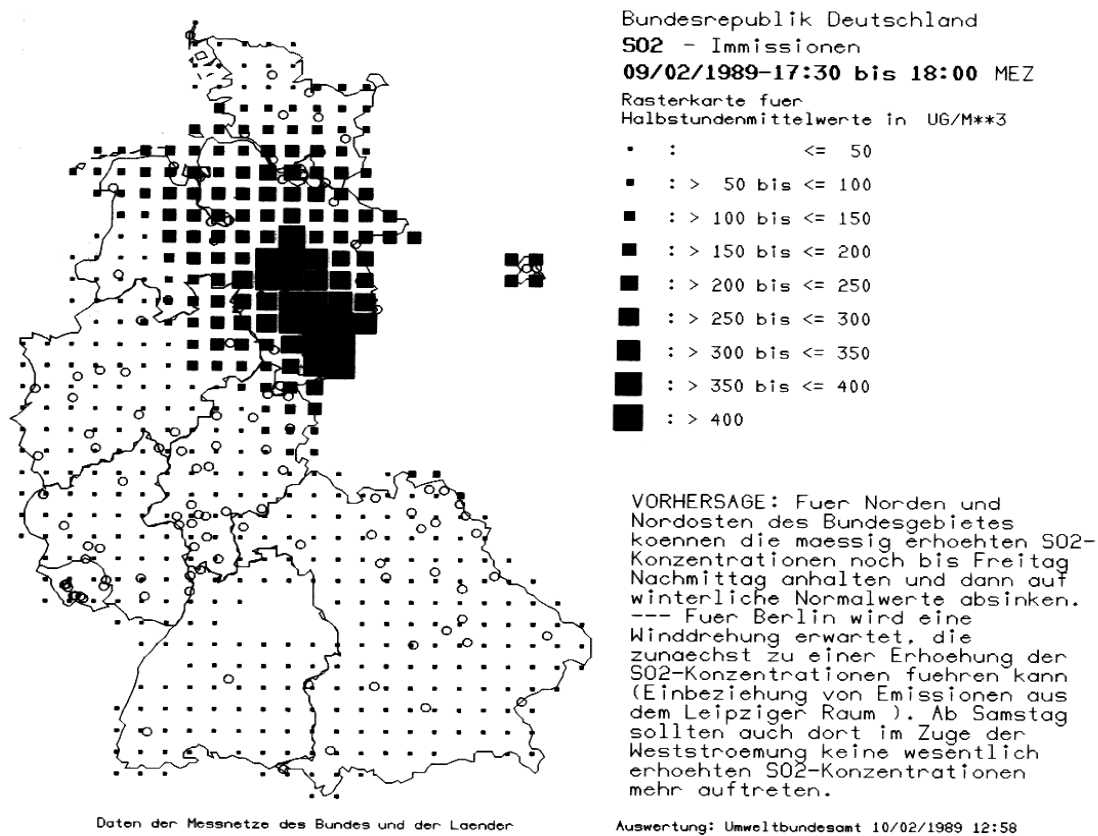


Abbildung 96: Original Darstellung der SO₂-Konzentrationen durch das Smogfrühwarnsystem am 9.2.1989

14.5 Erster Einsatz von PCs und DOS

Nach der politischen Wende wurde das UBA-Messnetz ab 1990 nach und nach um 3 weitere personell besetzte Messstellen und 9 Containerstationen erweitert. Da deren Aufbau bereits zu DDR-Zeiten geplant worden war, waren sie u.a. auch mit einem anderen Messwerterfassungssystem, das mit 286er PC betrieben wurde, ausgerüstet worden. Auch in die Offenbacher Messnetzzentrale und in die Messstellen in den alten Bundesländer hielten DOS-PCs als Steuergeräte für Analysatoren und als Auswerte-Rechner Einzug. In der Zeit von 1990 bis 1992 wurden die Messwerte parallel auf HP 9845 B-Computern, 286er PCs, der PDP 11/73 und der VAX Workstation mit jeweils unterschiedlichem Betriebssystem verarbeitet. Die einzige Gemeinsamkeit war das ASCII-Messnetzstandard-Format. Und gerade zu dieser Zeit hatte das UBA-Messnetz seine größte Stationszahl mit 31 Messstellen (siehe Abbildung 97).

Da das Telefonnetz in der ehemaligen DDR nicht dem westlichen Standard entsprach, ließ sich die Datenübertragung über Telefonleitung nicht sofort realisieren. Daher wurde eine Übertragung der Messwerte von den Stationen zu einem Satelliten und von dort via Satellitenschüssel zur Zentrale eingerichtet. Doch diese Satelliten-Übertragung erwies sich in Offenbach als zu störanfällig. Daher gelangten die Messwerte von den Stationen aus den neuen Bundesländern noch bis November 1996 zusätzlich per Diskettenversand monatlich zur Zentrale nach Offenbach. Bis 1992 wurden diese Files noch umständlich jeden Monat einzeln auf den HP 9845 B transferiert. Danach wurde dieser Messnetz-Zentralrechner durch einen 486er PC ersetzt, der weiterhin die Stationen in den alten Bundesländern per Modem täglich abrief und auf den die Files aus den neuen Bundesländern direkt von den Disketten kopiert werden konnten.

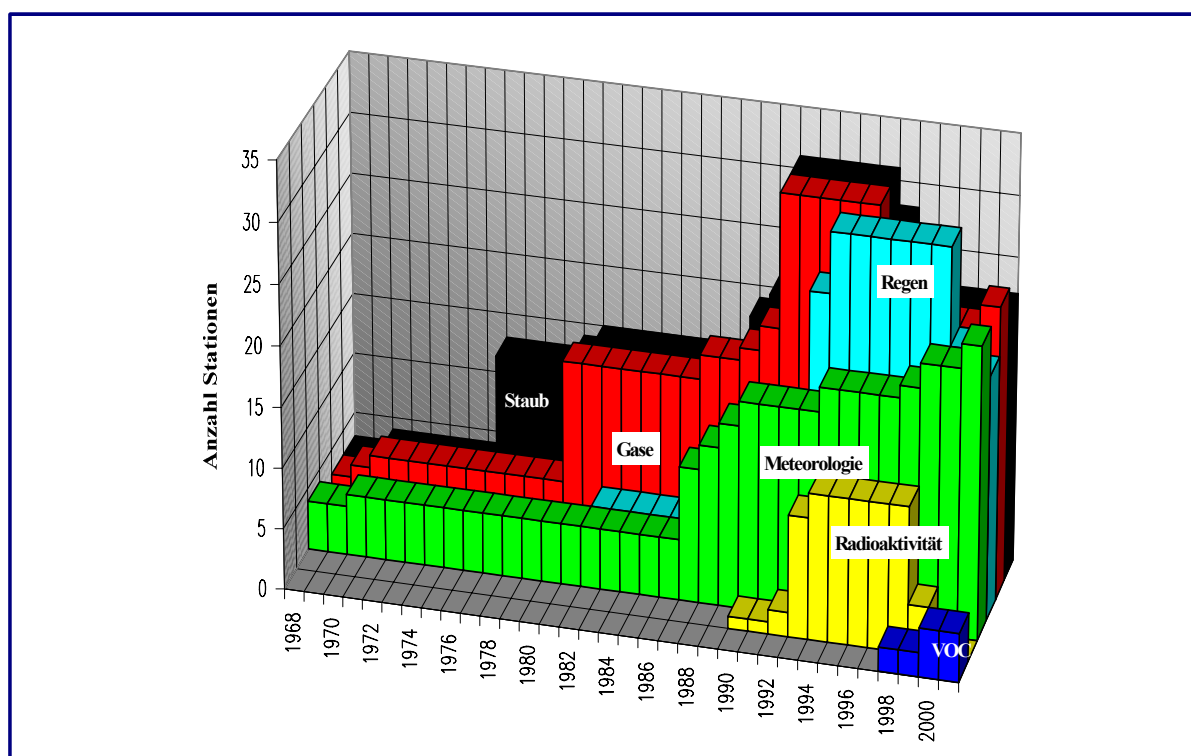


Abbildung 97: Entwicklung des UBA-Messnetzes mit Anzahl der Stationen, an denen die verschiedenen Komponenten gemessen werden.

Doch es gab noch ein zweites Problem. Die alte PDP 11/73 von 1987 war trotz mehrmaligen Aufstockens der Festplatten am Rande ihrer Speicher- und Rechnerkapazität von maximal 4 MB Arbeitsspeicher und insgesamt 120 MB Festplattenspeicher. Auswertungen waren unmöglich geworden, da die Messwerte auf verschiedene Computer verteilt und komprimiert abgespeichert waren und für Auswertungsergebnisse zudem ebenfalls kein Platz mehr vorhanden war. Die wertvollen Messwerte, die über so viele Jahre und Rechner-Systeme weitergegeben worden waren, drohten verloren zu gehen, für neue Messergebnisse war ebenfalls kein Platz mehr. Allein 1992 kamen knapp 7 Millionen Messwerte, die 61 MB Speicherplatz benötigten (nur „Halbstundenwerte“ der kontinuierlich messenden Geräte, die Laborergebnisse sind in diese Zahl noch nicht mit einbezogen), zu dem bereits bestehenden Fundus hinzu (Abbildung 98). Trotz platzsparendster Datenhaltung waren alle Möglichkeiten ausgeschöpft.

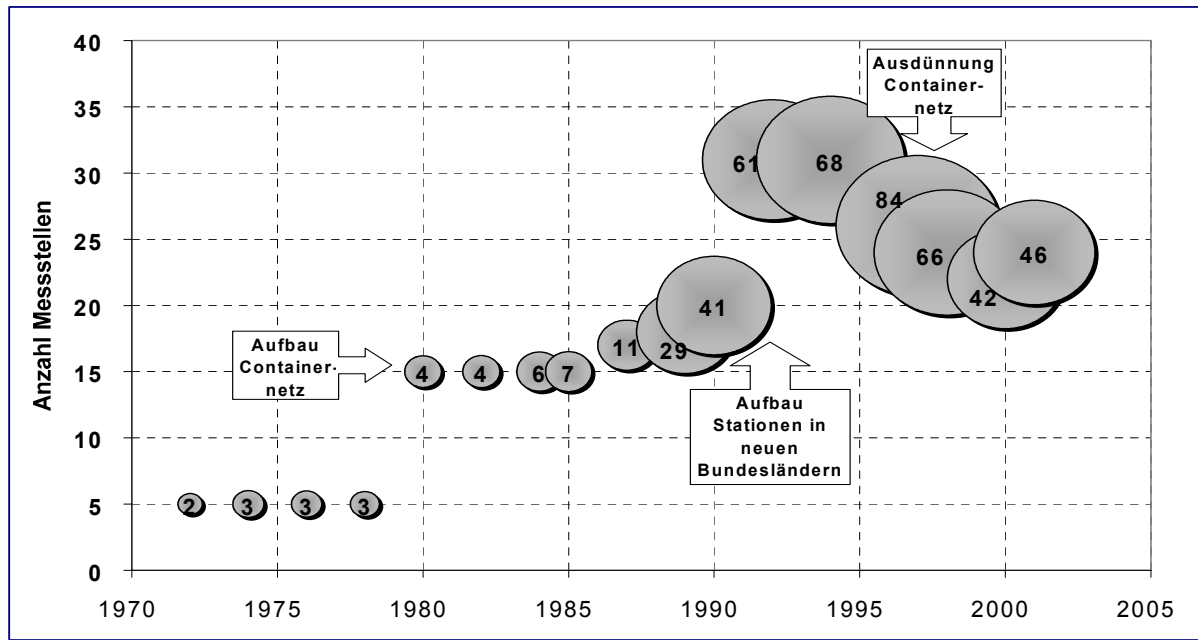


Abbildung 98: Anzahl der Messstationen und Speicherbedarf in MB der kontinuierlich (halbstündlich) ermittelten Messwerte

14.6 Endlich mehr Einheitlichkeit

Nach langem, zähem Ringen wurde 1993 ein PC-Netzwerk unter NOVELL eingerichtet. Endlich liefen alle Computer unter kompatiblen Betriebssystemen. Zudem waren die PCs untereinander vernetzt, so dass man von vielen Arbeitsplätzen aus auf alle Messwerte, die auf dem NOVELL-Server lagen, Zugriff hatte. Die Zeit der umständlichen und langsamen Einbahnstraßen war vorbei. Endlich stand auch genügend Speicherplatz zur Verfügung, so dass die Messnetz-Datenbank auf einem einzigen System – und nicht mehr auf verschiedene Rechner-Systeme verteilt – auf- und ausgebaut werden konnte. So stehen heute die Messwerte von 1968 bis heute einschließlich im gleichen Format jedem Mitarbeiter in Langen, an den Messstellen und in einigen Fachgebieten in Berlin online zur Verfügung - und zwar sowohl als Halbstundenwerte, als auch in verschiedenen aggregierten Formaten wie z.B. als Tagesmittel, –maxima oder –minima, Monatsmittel, –maxima oder –minima, Jahresmittel, Perzentile etc. Diese ASCII-Datenbank wird monatlich aktualisiert, ist ohne Datenbankabfragen bedienbar und nach wie vor unabhängig von Betriebssystemen oder Software-Versionen. ASCII ist nach wie vor das Standardformat bei nationalem und internationalem Datenaustausch. Neben den Ergebnissen der kontinuierlich messenden Geräte fließen auch die Messwerte der unterschiedlichsten Laboranalysen in diese Datenbank und werden in gleiche Formate gebracht, so dass alle Werte problemlos miteinander ausgewertet und verglichen werden können. Durch diese Einheitlichkeit konnte auch ein sehr hoher Automatisierungsgrad erzielt werden, was mehr Möglichkeiten für Auswertungen und Berichte schafft.

Ein großer Teil der Messnetz-Software, vor allem zur Qualitätssicherung, Aggregation, Umformatierung in nationale und internationale Standard-Formate sowie für Auswertungen – mit Ausnahme der Datenerfassung und –übertragung – wird nach wie vor von UBA-MitarbeiterInnen selbst programmiert. Dadurch ist der sehr hohe Automatisierungsgrad und die ebenso große Flexibilität gegenüber neuen Anforderungen, Stationen, Komponenten, Gesetzen, Richtlinien und anderen Änderungen im Messnetzbetrieb zu erreichen. Zur Berichtserstellung

und grafischen Darstellung wird dann jedoch auf Standardsoftware – wie z.B. das Office-Paket - zurückgegriffen.

14.7 Online-Datenaustausch via Internet

Auch vor dem Smog-Frühwarnsystem machte die Technik nicht halt. Die teuren Workstations unter DECNET wurden 1994 ebenfalls von PCs abgelöst. Die Messwertübertragung von den Datenzentralen der Länder und des UBAs zur Smogzentrale in Berlin wurde mittels Modems und TeliX/Mailbox realisiert. Die Smogverordnung für Schwefeldioxid wurde nach einem Emissionsrückgang über 90% in den meisten Bundesländern aufgehoben. Dafür trat der Sommersmog mit Ozon in den Vordergrund. Neue Richtlinien, Grenzwerte und Verordnungen wurden geschaffen und die Bund-Länder-Zusammenarbeit wurde immer besser und reibungsloser. Im November 1996 wurde mit dem Probebetrieb des Ozon-Smog-Frühwarnsystems via Internet und Pentium-PC-Vernetzung unter WINDOWS NT 3.51 begonnen.

Die Messwerterfassung und –übertragung im UBA-Messnetz wurde 1996 endlich vereinheitlicht. Die Stationen der neuen und der alten Bundesländer bekamen vergleichbare Hard- und Software-Ausstattungen. Gleichzeitig wurde die Messwertübertragung zur Beschleunigung auf ISDN umgestellt. Dies wurde erforderlich, um einen schnellen, stündlichen Datenabruf und Weitertransfer ins Sommer-Smog-Frühwarnsystem gewährleisten zu können.

Im Jahr 2000 wurde das Messnetz und die Messnetz-Datenzentrale auf den UBA-Hausstandard WINDOWS NT 4.0 umgestellt. Diesmal war der Transfer der Messwerte auf eine neue Rechnergeneration und ein neues Betriebssystem vergleichsweise einfach. Ein einfaches Kopieren von einem Netz auf das andere genügte.

Seit Juni 1999 erscheinen die Monatsberichte im Internet – die gedruckte Form wurde eingestellt. Anstelle der gedruckten Monatsberichte erscheinen seit 1998 gedruckte Messnetzjahresberichte, die u.a. ausführliche Berichte zu aktuellen Themen beinhalten. Diese sind zusätzlich unter der gleichen Adresse wie die Monatsberichte im Internet zu finden:

<http://www.umweltbundesamt.de/uba-info-daten/daten/mbm.htm>

Seit Juni 2001 werden die Ozon-, SO₂-, NO₂- und PM₁₀-Staubwerte aller Messstellen des Bundes und der Länder zusammen mit Sommersmog-Prognosen aktuell unter folgender Adresse im Internet veröffentlicht:

<http://www.umweltbundesamt.net/immission/admin/Test/>

Ältere Messwerte, wie beispielsweise die CO₂-Werte von 1972 wurden – wie in diesem Kapitel beschrieben – durch mindestens 7 Computersysteme weitergegeben. Sie wurden über abenteuerliche Kabel und speziell konstruierte Software von einem System ins nächste Wert für Wert transferiert und umformatiert. Teilweise wurden sie von Backups nach Festplattencrashes gerettet (eine Festplatte der PDP 1173 verglühte tatsächlich unter erheblichem Gestank) und mehrmals umgerechnet, z.B. von ppb auf µg/m³ oder von 0 ° auf 20 °C-Bezug etc. Doch die Messwerte haben dies alles - hoffentlich schadlos - überstanden.

15. MESSUNGEN AN DER PILOTSTATION IN DEN SIEBZIGER BIS NEUNZIGER JAHREN

15.1 Verteilung von Schwermetallen in einer innerstädtischen Straßenschlucht

Hans-Walter Georgii, Dieter Jost und Jürgen Müller

Die innerstädtischen Immissionskonzentrationen werden von den Quellstärken und in erheblichen Maße auch von Straßenbebauung, Windstärke und Windrichtung beeinflusst. In einer stark befahrenen Straßenschlucht Frankfurts wurden deshalb zu Beginn der siebziger Jahre Messungen durchgeführt, um die Einflussnahme von Windrichtung und Windstärke auf die Schwermetallkonzentrationen zu ermitteln.

In den Abbildungen sind die Ergebnisse für Blei, dessen Konzentration vor Einführung der Benzin-Bleigesetze hoch lag, in Abhängigkeit von Windrichtung und Windgeschwindigkeit dargestellt.

Bei quer einfallendem Wind wird in der Straßenschlucht eine Luftzirkulation verursacht, die einen Einfluss auf die örtlichen Immissionskonzentrationen ausübt. Im Windschatten der Straße (Leeseite) findet hierbei eine Anreicherung der Bleikonzentrationen statt. Bei guter Luftzirkulation können sich zwischen den gegenüberliegenden Straßenseiten Konzentrationsunterschiede bis zu 50% ergeben (Abbildung 99). Dieser Effekt wurde nicht nur für schwebstaubgebundene Schwermetalle sondern auch für das Schadgas Kohlenmonoxid (CO) festgestellt.

In Abbildung 100 sind die Bleikonzentrationen in Abhängigkeit von der Windgeschwindigkeit dargestellt. Bei einer Windgeschwindigkeit unterhalb einer gewissen Grenzggeschwindigkeit findet in der Straße eine Anreicherung der Bleikonzentrationen statt, da die Erzeugung durch den Kraftfahrzeugverkehr schneller als der Abtransport erfolgt. Je nach Bauungsart der Straße und der Stärke der Quellen variiert die Grenzggeschwindigkeit zwischen 1,8 und 3 m/s. Im vorliegenden Fall ergab sich eine Grenzggeschwindigkeit von 2 m/s, wobei sich zum Zeitpunkt der Messung eine Konzentration von etwa $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ einstellte.

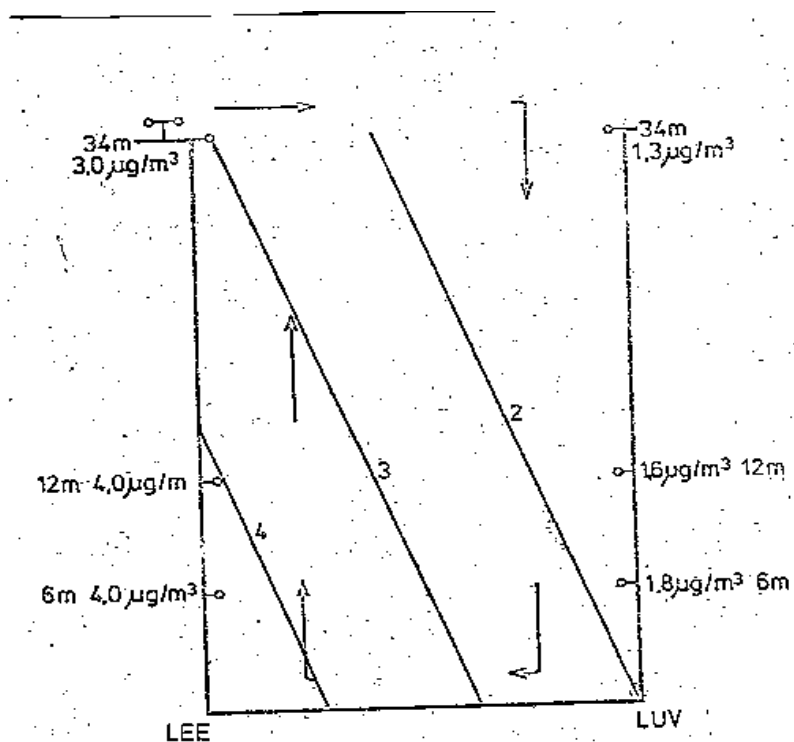


Abbildung 99: Einfluss der Luftzirkulation auf die Verteilung der Bleikonzentrationen in einer Frankfurter Straßenschlucht (gemessen 1973)

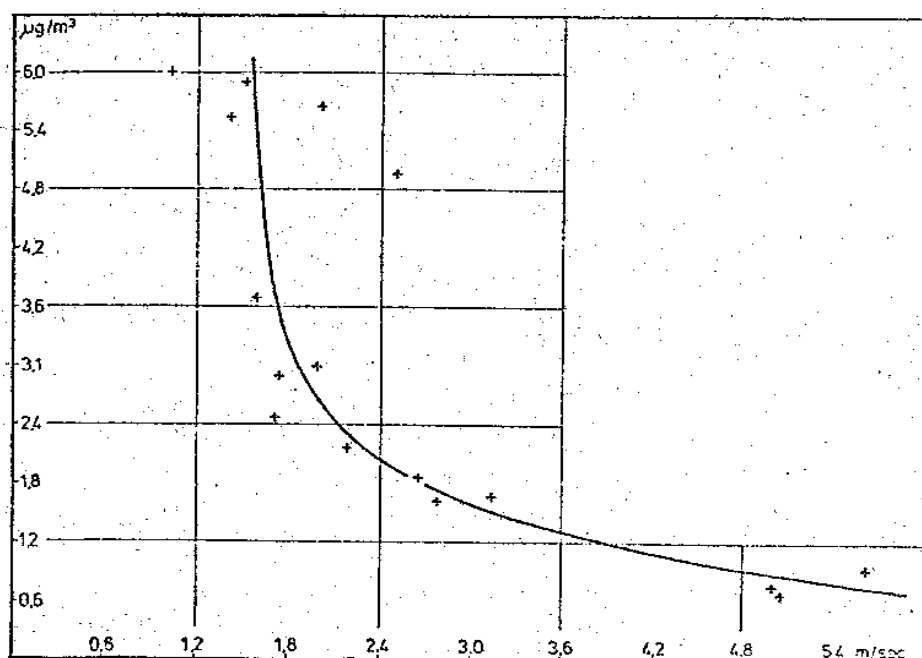


Abbildung 100: Bleikonzentration in Abhängigkeit von der Windgeschwindigkeit in der Frankfurter Innenstadt (gemessen 1973)

15.2 Gasförmige und teilchengebundene Anteile von polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAH)

Jürgen Müller, Helga Reuver und Christine Hoffmann

Viele Verbindungen befinden sich sowohl gasförmig als auch teilchengebunden in der Außenluft. Typische Vertreter dieser sogenannten semivolatilen Stoffe sind die polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffe (PAH).

Die Probenahme der PAH in Luft erfolgte mit einem Filter und dahinter geschaltetem Polyurethan (PU)-Schaumstoff. Auf dem Filter werden die schwebstaubgebundenen PAH und in den Poren des Schaumstoffes die gasförmigen PAH festgehalten. Zur Analyse werden sowohl der Filter als auch der Schaumstoff mit heißem Toluol extrahiert. Nach Anreicherung durch Eindampfen und Vorreinigung wurden 14 PAH-Verbindungen mit dem HPLC (Hochdruckflüssigkeitschromatograph) nachgewiesen.

Zur Messung der Korngrößenverteilung der schwebstaubgebundenen PAH-Verbindungen wurde ein 8-stufiger Andersenimpaktor mit Rückhaltefilter verwendet. Die Sammlung der einzelnen Teilchengrößenfraktionen erfolgte auf aufgerauhten Glasscheiben, von denen der gesammelte Schwebstaub mit Toluol problemlos abgespült werden kann. In Abbildung 101 ist die Korngrößenverteilung der PAH-Gesamtkonzentration für Sommer- und Winterwerte aufgetragen. Im Winter werden aufgrund verstärkter Aktivität der Heizanlagen ca. 5-fach höhere Immissionskonzentrationen erzeugt. Der deutliche Konzentrationsunterschied wird auch bewirkt, weil die winterlich niedrigeren Außenlufttemperaturen für erhöhte PAH-Anteile in der Teilchenphase sorgen. Im Jahresdurchschnitt sind ca. $\frac{3}{4}$ der PAH-Masse gasförmig vorhanden. In Abbildung 102 ist das prozentuale PAH-Profil im Sommer dargestellt. Ca. 65% der PAH-Gasphasenmasse wird durch Phenanthren repräsentiert.

In Tabelle 30 sind die teilchengebundenen Anteile der einzelnen PAH-Verbindungen aufgeführt. Je niedriger der spezifische Dampfdruck einer PAH-Verbindung, desto höher sind die Anteile in der Teilchenphase.

Tabelle 30: Teilchengebundene Anteile von PAH-Verbindungen in Stadtluft bei ca. 20 °C Außenlufttemperatur, ACEN (Acenaphten), FLUOR (Fluoren), PHE (Phenanthren), ANT (Anthracen), FLU (Fluoranthren), PYR (Pyren), BaA (Benzo(a)anthracen), CHR (Chrysen), BbF (Benzo(b)fluoranthren), BeP (Benzo(e)pyren), BghiP (Benzo(ghi)perylen), BkF (Benzo(k)fluoranthren), IP (Indeno(1,2,3-cd)pyren), DahA (Dibenzo(ah)anthracen), COR (Coronen)

Spezifischer Dampfdruck P_s (Pa)	teilchengebunden	PAH-Verbindung
$10^0 - 10^{-1}$	5 – 10 %	ACEN
$10^{-1} - 10^{-3}$	10 – 20 %	FLUOR, PHE
$10^{-3} - 10^{-5}$	20 – 70 %	ANT, FLU, PYR
$10^{-5} - 10^{-7}$	70 – 90 %	BaA, CHR
$10^{-7} - 10^{-9}$	90 – 100 %	BbF, PER, BaP, BeP, BghiP, BkF, IP, DahA
$10^{-9} - 10^{-11}$	100 %	COR

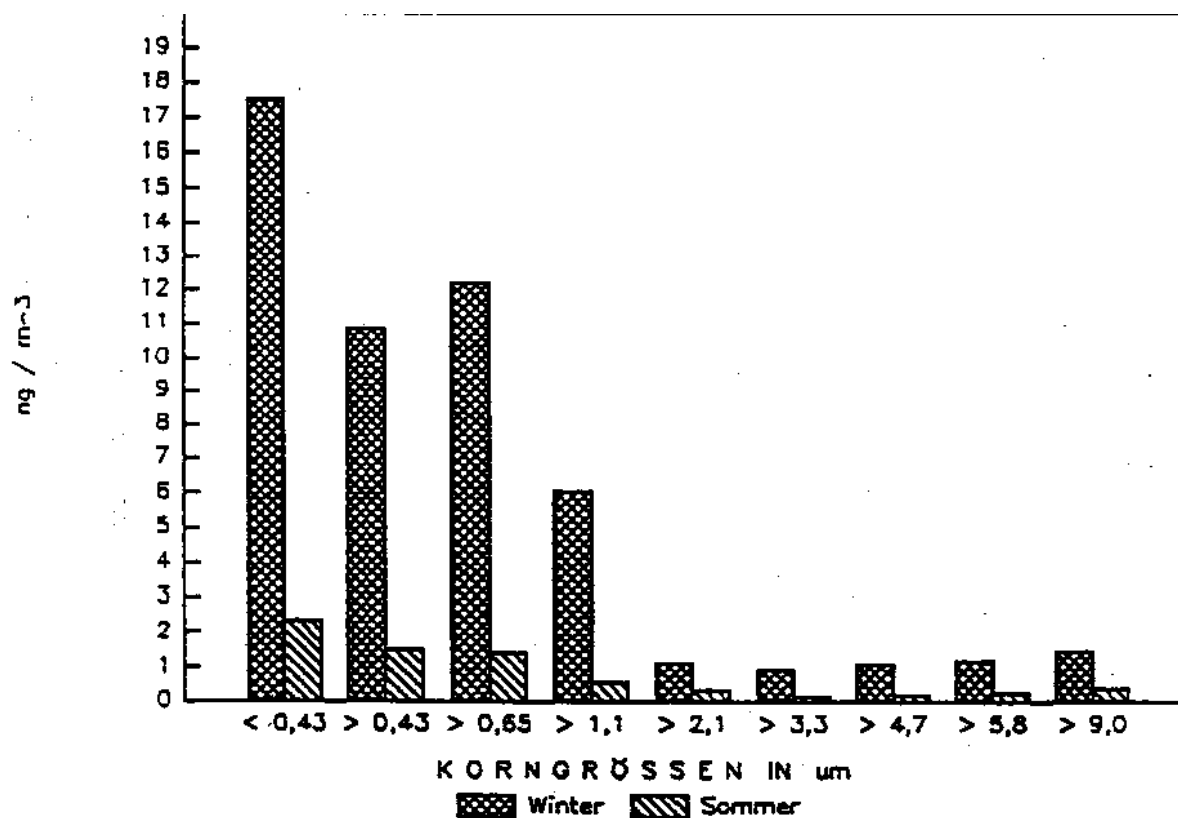


Abbildung 101: Korngrößenverteilung der Gesamt-PAH-Konzentrationen in einem Wohn- und Bürogebiet in Frankfurt/Main (mittlere Werte für Sommer und Winter in 1990)

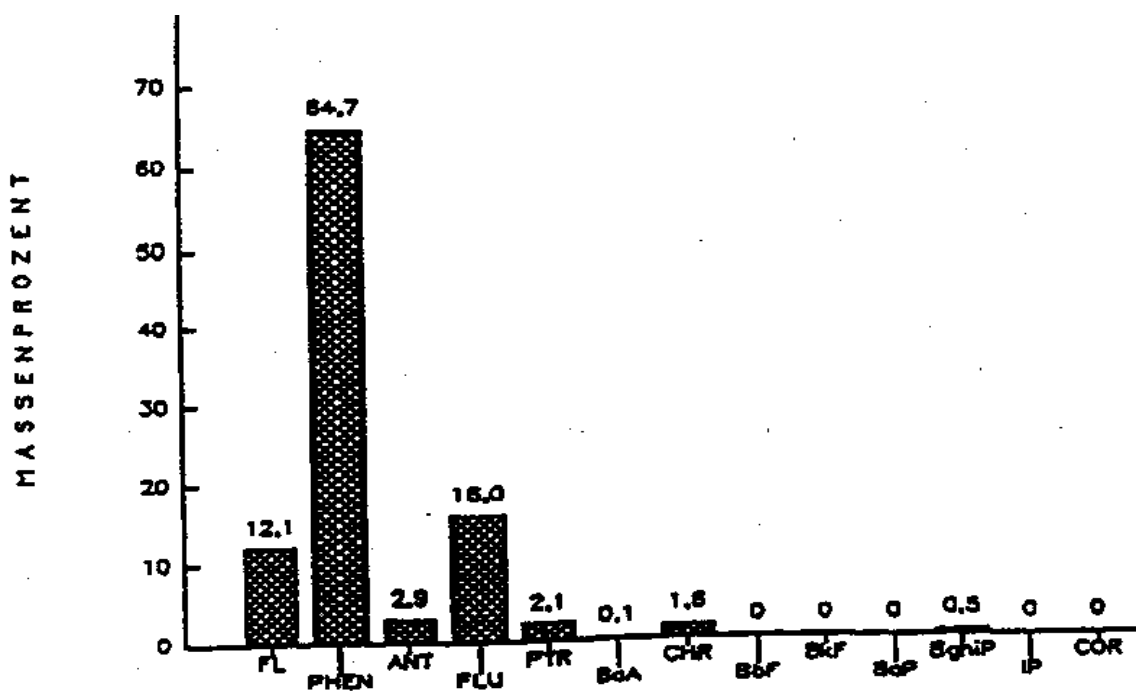


Abbildung 102: Prozentuales Profil der PAH-Verbindungen in der Gasphase, gemessen im Sommer 1990 in einem Wohn- und Bürogebiet in Frankfurt/Main

15.3 Außenluft/Innenluftverhältnisse ausgewählter Luftverunreinigungen an einer innerstädtischen Hauptverkehrsstrasse

Jürgen Müller, Christine Hoffmann, Ralph Hubscher, Helga Reuver und Françoise Riedel

Die Messungen erfolgten an einer innerstädtischen Hauptverkehrsstraße in Frankfurt/Main mit drei Fahrspuren, die im Einbahnverkehr befahren wurden. Werktags betrug die Frequenz etwa 20 000 Fahrzeuge pro Tag, und am Wochenende lag sie unterhalb 10 000. Am Messort herrschte überwiegend Berufsverkehr, der in den Hauptverkehrszeiten morgens und abends aufgrund einer nahen Kreuzung nur schleppend vorankam.

Die Außenluft wurde in 2,5 m Höhe über dem Bürgersteig und in 4 m Abstand vom Fahrbahnrand unmittelbar vor der Häuserfront angesaugt. Gleichzeitig wurde im angrenzenden Innenraum bei geschlossenen Schallschutzfenstern und zugesperrter Zimmertür Raumluft gesammelt. Die Entnahme der Probeluft erfolgte zwischen Freitag früh und Montag Abend.

In Tabelle 31 sind die gemessenen mittleren Konzentrationen aufgeführt. Im Falle der halogenierten Kohlenwasserstoffe (Chloroform, 1,1,1-Trichlorethan, Tetrachlorkohlenstoff, Perchlorethylen und 1,1,2-Trifluorethan) wurden im Innenraum 2 bis 8-fach höhere Konzentrationen festgestellt, was u.a. durch den Gebrauch von Reinigungsmitteln verursacht wurde. Die aromatischen Kohlenwasserstoffe und Aliphaten wurden überwiegend durch Kfz-Abgase erzeugt. Mit Hilfe der Katalysatortechnik und verminderten Aromatenzugaben zum Benzin ist es trotz Zunahme des Kfz-Verkehrs im Verlauf der letzten Dekaden gelungen, die Immissionskonzentrationen dieser Stoffe deutlich zu vermindern.

Da Benzol am Messort ausschließlich Kfz-bedingt auftrat, waren die Außenluftwerte stets höher als die Innenraumwerte. Der Innen/Außenquotient von 0,8 zeigt jedoch, dass dieses leichtflüchtige Gas in die Innenräume diffundiert.

Die anderen aromatischen Kohlenwasserstoffe (Toluol, Ethylbenzol, m+p-Xylol, o-Xylol, Styrol) sind weitläufig auch als Lösemittel für Farben, Lacke und Klebstoffe im Gebrauch. Die Innenwerte fielen deshalb durchweg höher als die Außenluftwerte aus.

Stickstoffmonoxid (NO) wird in der Außenluft im Verlauf der Ausbreitung zu Stickstoffdioxid (NO₂) durch O₃ oxidiert. In Innenräumen ist die NO₂-Bildung aufgrund der sehr niedrigen Ozonkonzentrationen geringer. Die NO₂-Konzentration ist außen viermal höher.

Schwebstaub weist eine Bimodalverteilung auf. Die Summe der Teilchen mit einem Durchmesser kleiner als 2,5 µm werden als Feinstaub und die größeren als Grobstaub bezeichnet. Die inhalierten Grobstaubteilchen bleiben zum größten Teil im Nasen/Rachentrakt haften und wandern von dort in den Verdauungstrakt weiter.

Bei geschlossenen Fenstern können höchstens Feinstaubteilchen über Undichtigkeiten ins Rauminnere eindringen. Die Schwebstaubmasse ist in Innenluft wegen des dort vorliegenden niedrigen Grobstaubanteils deutlich niedriger als in Außenluft. Die Schwermetallinhaltsstoffe des Schwebstaubes Blei, Eisen, Mangan und Cadmium haben in Außenluft deutlich höhere Konzentrationen.

Neben Schwermetallen wurden auch wasserlösliche Ionen im Schwebstaub gemessen. Ihr Innen-/Außenverhältnis bewegte sich zwischen 0,3 und 0,7. Die Messungen zeigten, dass Schallschutzfenster für gasförmige Verunreinigungen der Außenluft keine Barriere darstellen, die Grobanteile des Schwebstaubes jedoch zurückgehalten werden.

Tabelle 31: Gemessene mittlere Innenraum-/Außenluftwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ an einer innerstädtischen Hauptverkehrsstraße in Frankfurt/Main im Oktober 1990

Substanz	Innenraumluft	Außenluft	Innen- Außen- verhältnis
Halogenierte Kohlenwasserstoffe			
Chloroform	0,35	0,15	2,3
1,1,1-Trichlorethan	15,90	1,91	8,3
Tetrachlorkohlenstoff	0,30	0,07	4,3
Trichlorethylen	0,82	0,64	1,3
Perchlorethylen	3,80	1,25	3,0
1,1,2-Trichlorfluorethan	2,54	0,91	2,8
Aromatische Kohlenwasserstoffe			
Benzol	15,0	19,0	0,8
Toluol	87,0	35,8	2,4
Ethylbenzol	10,0	9,0	1,1
mp-Xylol	29,0	24,0	1,2
o-Xylol	5,4	2,3	2,3
Styrol	17,0	13,0	1,3
Aliphaten			
i-entan	26,3	24,5	1,1
n-Pentan	17,9	11,3	1,6
Hexan	6,2	5,2	1,2
Anorganische Gase			
Kohlenmonoxid			0,8
Stickstoffmonoxid	7,5	11,2	0,7
Stickstoffdioxid	4,2	18,9	0,2
Schwebstaub und Inhaltsstoffe			
Schwebstaub insgesamt	12,7	40,9	0,3
Blei	0,06	0,19	0,3
Eisen	0,83	2,10	0,4
Mangan	0,0065	0,0289	0,2
Cadmium	0,00047	0,00164	0,3
Chlorid	3,2	5,0	0,6
Nitrat	4,2	11,7	0,4
Sulfat	6,3	15,5	0,4
Natrium	7,3	10,0	0,7
Ammonium	0,4	1,3	0,3
Kalium	0,8	1,5	0,5

16. DAS RADIOAKTIVITÄTSMESSNETZ DES UMWELTBUNDESAMTES

Manfred Jäschke

Das Umweltbundesamt beteiligte sich von 1989 bis 1999 im Rahmen des Integrierten Mess- und Informationssystems (IMIS) an der Radioaktivitätsüberwachung der Luft. Nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl im April 1986 wurde im Zuge des Ausbaus des Überwachungssystems sowie der Zusammenführung zu einem einheitlichen Mess- und Informationssystem das Umweltbundesamt in die Radioaktivitätsüberwachung der Luft einbezogen.

1987 wurde mit der Errichtung des Radioaktivitätsmessnetzes begonnen. 1989 nahm die erste Station den Messbetrieb auf. In den Folgejahren wurde das Radioaktivitätsmessnetz schrittweise bis auf 11 Messstationen ausgebaut (siehe Abbildung 103).

Das UBA-Radioaktivitätsmessnetz wurde bundesweit betrieben und war zusammen mit dem Messnetz des Deutschen Wetterdienstes (DWD) und dem ODL-Messnetz des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) Bestandteil des flächendeckenden Überwachungssystems zur Erfassung der Radioaktivität in der Luft. Das Radioaktivitätsmessnetz des UBA bestand aus automatisch arbeitenden Anlagen. Es war mit dem Aerosol-Monitor (Typ FHT 59S) und dem Jod-Monitor (Typ FHT 1700) ausgerüstet.

Der Aerosol-Monitor arbeitete nach dem SchrittfILTERprinzip. Sein Detektor war ein ZnS-beschichteter alpha- und betaempfindlicher Plastiksintillationszähler. Gemessen wurden die Gesamt-Alpha- und -Beta-Aktivitätskonzentrationen aerosolgebundener Radionuklide. Aus dem Verhältnis der an jedem Ort unterschiedlichen, aber ständig natürlich vorkommenden Alpha- und Betastrahlung wurde Beta künstlich berechnet. Solange kein radiologischer Störfall vorliegt und damit außer der natürlichen keine zusätzliche Quelle von Betastrahlung auftritt, ist Beta künstlich gleich Null.

Der Jod-Monitor erfasst die Aktivitätskonzentrationen von anorganischem als auch organischem gasförmigem Jod-131. Ein NaJ-Detektor misst kontinuierlich die in einer mit Jod-Sorptionsmittel gefüllten Filterpatrone akkumulierte Aktivität. Neben den radiologischen wurden auch meteorologische Parameter (Wind, Temperatur, Luftfeuchte, Luftdruck) gemessen.

Die Radioaktivitätsüberwachung erfolgte kontinuierlich im Normal- oder Intensivbetrieb auf der Grundlage von Halbstundenwerten. Im Normalbetrieb rief der Rechner (bei Ausfall ein Ersatzrechner) automatisch 1x täglich alle Stationen ab und speicherte die Daten, um sie dem Institut für Atmosphärische Radioaktivität (IAR) des Bundesamtes für Strahlenschutz abrufbereit zur Verfügung stellen zu können.

Der Intensivbetrieb (2-Stunden-Takt-Abfrage) wurde nur auf Anweisung des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) durchgeführt.

Wurden an den Messstationen vorgegebene Schwellenwerte überschritten, erfolgte automatisch sofort Alarm. Für Alarmfälle außerhalb der normalen Dienstzeit waren Regelungen zwischen

dem UBA und IAR getroffen worden. Neben den Alarmmeldungen wurden auch Betriebsstörungen an den Messanlagen automatisch und sofort gemeldet. 1999 wurde das Radioaktivitätsmessnetz dem Bundesamt für Strahlenschutz übergeben. Während des gesamten Überwachungszeitraum war an keiner der UBA-Stationen ein Alarmfall registriert worden.

Radioaktivitätsmessnetz des Umweltbundesamtes

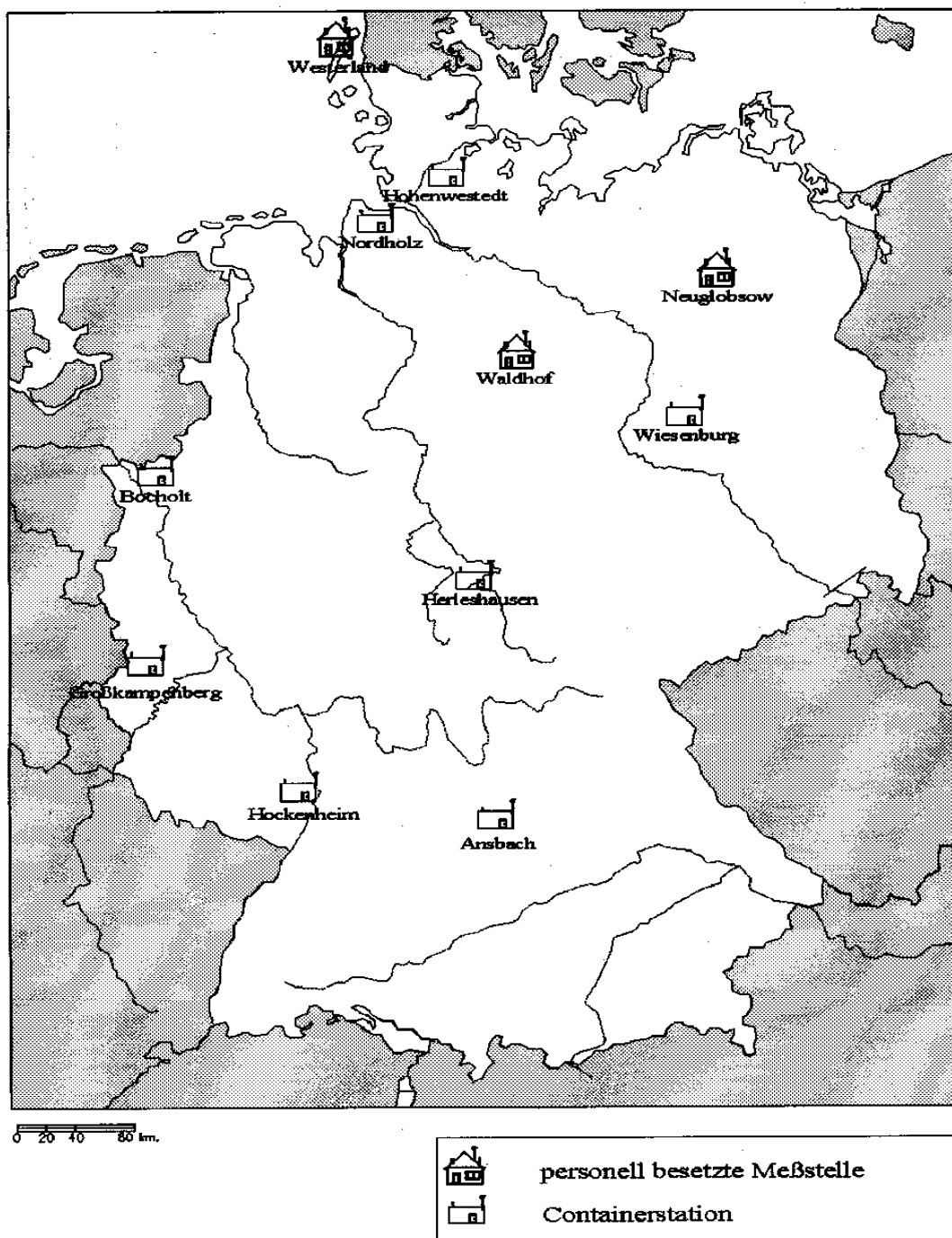


Abbildung 103: Lage der Radioaktivitätsmessstellen des Umweltbundesamtes

17. BENZOLIMMISSIONEN AN TANKSTELLEN

Anneliese Medem

17.1 Einleitung

In Deutschland wurden im Jahr 2000 an den Tankstellen ca. 30 Millionen Tonnen Ottokraftstoff verkauft. Die Treibstoffe müssen zu den gesundheitsschädlichen Arbeits- und Umweltstoffen gezählt werden, da nicht auszuschließen ist, dass beim Umgang und beim Verbrauch Belastungen unserer Atemluft auftreten.

Ein stark gesundheitsgefährdender, u.a. wegen kanzerogener Wirkung, Benzininhaltsstoff ist die organische Komponente Benzol.

Insbesondere im Tankstellenbereich müssen, neben den Autoabgasen, hohe Benzolkonzentrationen durch sogenannte Betankungsverluste erwartet werden. Beim Einfüllen von Kraftstoffen in den Fahrzeugtank wird der im Tank befindliche Kraftstoffdampf verdrängt und gelangt in die Außenluft. Weitere Verluste entstehen durch Verschütten oder Verdampfung außerhalb des Kraftstofftanks.

Zum Schutz vor diesen schädlichen Umwelteinwirkungen wurden gesetzliche Regelungen erlassen, die vorschreiben, dass die verdrängten Kraftstoffdämpfe nicht in die Atmosphäre abgegeben werden dürfen, sondern abgesaugt und rückgeführt werden müssen.

Die Pilotstation hat mit orientierenden Messungen an einer Tankstelle in Frankfurt am Main vor und nach der vorgeschriebenen Einführung der Gasrückführsysteme die Belastungen von Tankkunden untersucht.

17.2 Benzol

Infolge seines hohen Energiegehaltes und seiner „klopffreien“ Verbrennungseigenschaften wird Benzol als Zusatz zu Motorkraftstoffen für Ottomotoren verwendet. Benzol wird überwiegend durch die Atemwege aufgenommen, verteilt sich rasch im Körper und kann sich im Fettgewebe anreichern. In höheren Konzentrationen kann es zu akuten Störungen des Nervensystems und zu irreversiblen Schädigungen der blutbildenden Organe mit Verminderung der roten und weißen Blutkörperchen und der Blutplättchen, Chromosomenschäden aber auch zu Blutkrebs führen.

Die farblose, charakteristisch aromatisch riechende Flüssigkeit wirkt bei längerem Einatmen als starkes Gift, das zu Schwindel, Erbrechen und Bewusstlosigkeit führt. 20 000 ppm für 5-10 Minuten wirken tödlich.

Auch bei niedrigen Konzentrationen können chronische Vergiftungen auftreten und Schädigungen des Zentralnervensystems, des Knochenmarks, der Leber und der Nieren, sowie Leukämie hervorgerufen werden [3].

17.3 Erhebung 1989

Nach der Einführung von bleifreiem Benzin wurde Benzol wegen seiner „Klopffestigkeit“ nicht mehr aus der Benzinfraktion entfernt, jedoch nach Angaben der Mineralölindustrie niemals extra zugesetzt. In der Regel enthielt Benzin zu dieser Zeit 2-3% Benzol, bis zu 5 % war zulässig. Der Umschlag von Ottokraftstoff hat die Immissionssituation für Benzol in der Umgebung von Tankstellen sehr stark negativ beeinflusst.

Zu dieser Zeit „verdufteten“ pro Jahr ca. 52.000 Tonnen Benzin an den Tankstellen. In der Bundesrepublik gelangten jährlich ca. 60.000 Tonnen Benzol in die Umwelt, wovon ca. 50.000 vom Kfz-Verkehr direkt oder indirekt verursacht wurden.

Die Pilotstation hat im Jahr 1989 die Messung von Benzol in der Umgebungsluft mittels eines quasi-kontinuierlich messenden Gaschromatographen (Air-Instruments GC 755 mit Photoionisationsdetektor) automatisiert und damit die Voraussetzungen für in situ Messungen mit einer hohen zeitlichen Auflösung geschaffen. Die Messungen wurden an einer Tankstelle in Frankfurt am Main (Friedberger Landstraße) durchgeführt. Die Proben wurden an zwei Vormittagen im Acht-Minutenrhythmus im Bereich der Zapfsäulen gezogen und online mit dem Gaschromatographen, der im Messwagen installiert war, analysiert. Um die Belastungen während des Tankvorganges zu ermitteln, wurde die Probenansaugleitung in „Nasenhöhe“ des jeweiligen Kunden gehalten, womit die Probe der Atemluft entsprach.

Die ermittelten Benzolkonzentrationen auf der Tankstellenfläche ohne Tankvorgang lagen bei 26 bis 860 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, mit einem Mittelwert von ca. 440 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Diese Konzentration entspricht etwa dem 20-fachen des Jahresmittelwertes, der an der UBA-Verkehrsmessstelle City1 (Frankfurt am Main, Große Eschenheimer Straße) zu dieser Zeit gemessen wurde.

Die Belastung der Atemluft beim unmittelbaren Tankvorgang betrug ca. 2000-3300 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ und entspricht somit dem TRK-Wert für Benzol (TRK = Arbeitsschutzrichtwert, bei dem gesundheitliche Schäden jedoch nicht ausgeschlossen werden können). In anderen Untersuchungen wurden Belastungen bis zu 30.000 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ als Kurzzeitwert festgestellt [4].

17.4 Maßnahmen zur Luftreinhaltung

Um diese Gesundheitsgefährdungen durch Benzolemissionen für Autofahrer und insbesondere auch für Tankstellenpersonal zu reduzieren, wurden Regelungen für die zwei Hauptbeiträge getroffen:

- A. **Die Reduzierung der Emissionen beim Lagern und Verteilen der Kraftstoffe.** Die rechtlichen Regelungen zur Begrenzung der Kohlenwasserstoffemission bei der Verteilung von Ottokraftstoffen sind in Deutschland Ende 1992 mit dem Erlass der 20. und 21. Bundesimmissionsschutzverordnung in Kraft getreten. Bis Ende 1996 mussten alle Tankstellen mit einem sogenannten Saugrüsselsystem zur Abgasrückführung ausgestattet werden. Weitere technische Maßnahmen zur Verbesserung des Wirkungsgrades der Gasrückführung und die Verringerung von Schütt- und Tropfverlusten werden unter Berücksichtigung der Vielfalt der Tankstutzen an den verschiedenen Fahrzeugtypen aktuell erarbeitet [2].
- B. **Der Einfluss der Kraftstoffqualität auf die Schadstoffemissionen.** Im Vermittlungsverfahren zwischen EU-Parlament und EU-Umweltministerrat wurden

neue Kraftstoffanforderungen ab 2000 und 2005 beschlossen. Beim Ottokraftstoff wurde der Benzolanteil auf maximal 1% limitiert. Gleichzeitig wurde der Dampfdruck erniedrigt, was vor allem im Sommer geringere Verdunstungsemissionen bewirkt [2].

17.5 Messungen 1996

Die Messungen wurden im Jahr 1996 wiederholt, nachdem die Tankstelle im Rahmen von Modernisierungsmaßnahmen mit einem Abgasrückführungssystem ausgestattet wurde (siehe Abbildung 104).

Von Februar bis September wurden 42 Luftproben untersucht, die während des Betankens ebenfalls wieder in „Nasenhöhe“ der Kunden genommen wurden. Parallel dazu wurden die Monatsmittelwerte im Zapfsäulenbereich und im Verkaufsraum mittels ausgebrachter Passivsammler erhoben.

Insbesondere der Verkaufsraum, in dem sich das Personal überwiegend aufhält und auch Lebensmittel für den Verkauf gelagert werden, sollte in die Untersuchung mit einbezogen werden.

Während des Tankens wurden Messwerte von ca. 20 bis 1500 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ festgestellt. Wobei 3 von 42 Proben eine Konzentration von $>1000 \mu\text{g}/\text{m}^3$ aufwiesen. Im Außenbereich der Zapfsäulen betrugen die Monatsmittelwerte 48 bis 83 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ und im Verkaufs- und Kassenraum 51 bis 72 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. In der Abbildung sind die Mittelwerte der Messungen dargestellt.

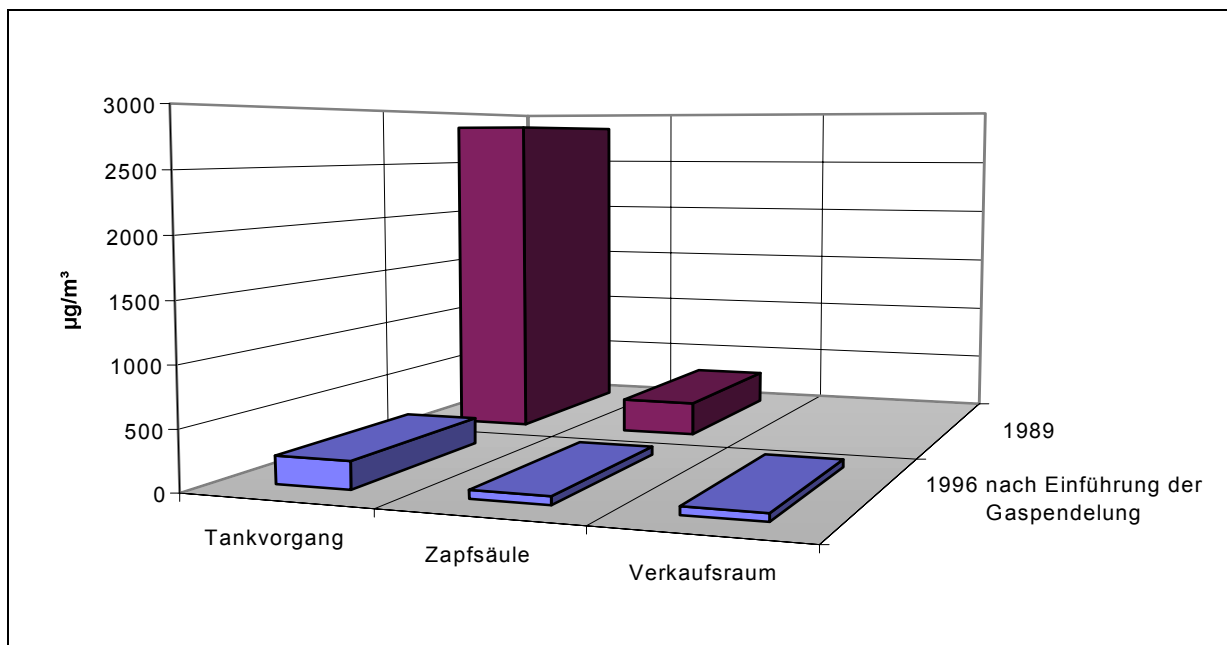


Abbildung 104: Benzolemissionen an einer Tankstelle in Frankfurt am Main

17.6 Ergebnis

Insgesamt konnte ein erheblicher Rückgang der Benzolimmissionen an dieser Tankstelle festgestellt werden, was sehr stark auf die Wirksamkeit der zur Luftreinhaltung ergriffenen Maßnahmen hinweist.

Parallel zum Rückgang der Benzolemissionen beim Betanken von Kraftfahrzeugen hat auch die Einführung der Abgasreinigung beim Ottomotor zu einer Verbesserung der Immissionssituation für Benzol im Bereich von Tankstellen geführt. Der Beitrag aus den Abgasen der laufenden Motoren wurde auf 50% geschätzt [4].

Durch die Umsetzung der Verordnungen wird die Umwelt in erheblichem Maß von Kohlenwasserstoffimmissionen, die zur direkten Belastung der Menschen durch krebserregende Verbindungen führen, und zudem als Vorläufersubstanzen zusammen mit Stickoxiden und Sonnenlicht Ozon ("Sommersmog") bilden, entlastet.

17.7 Literatur

[1] *Jahresbericht Umweltbundesamt 1996*

[2] *Jahresbericht Umweltbundesamt 1998*

[3] *Römpp, Chemielexikon 9. Auflage*

[4] *H. Römmelt, R. Kessel, A. Pfaller, H. Sigl, G. Fruhmann: Arbeitsplatz und Umweltbelastung durch Treibstoffemissionen an Großtankstellen*

18. DIE PILOTSTATION UND DAS MESSNETZ DES UMWELTBUNDESAMTES - EIN AUSBLICK AUF DIE NÄCHSTEN 30 JAHRE

Ruprecht Schleyer, Siegfried Beilke, Markus Wallasch, Wolfgang Grosch, Dieter Jost, Karin Uhse und Horst Werner

In den 30 Jahren seit Bestehen von Pilotstation und Messnetz des Umweltbundesamtes wurden zahlreiche Erkenntnisse über Luftverunreinigungen gewonnen; über die relevanten Stoffe ebenso, wie über ihre Menge, ihre Herkunft, ihre Ausbreitung und ihren Verbleib sowie über die dazu notwendige Messtechnik. Dieser Band gibt einen Überblick. Die gewonnenen Erkenntnisse spiegeln sich in gesetzlichen Regelwerken und anderen Maßnahmen wider, deren Umsetzung bei einer Reihe von Stoffen zu bemerkenswerten Konzentrationsabnahmen geführt hat und somit - insbesondere nach 1990 - zu einer erheblichen Verbesserung der Luftqualität. So wurden beispielsweise im Jahr 2000 die niedrigsten SO₂- und Schwebstaubkonzentrationen im Messnetz des Umweltbundesamtes seit Beginn der Messungen Ende der 60er und Anfang der 70er Jahre gemessen. Erfreulich ist auch die deutliche Abnahme des Säuregehaltes im Regen zwischen 1982 und 2000 sowie der Rückgang der Ozon-Spitzenkonzentrationen während der letzten 10 Jahre.

Sind die ursprünglichen Aufgaben der Pilotstation und des UBA-Messnetzes damit erledigt? Können wir uns beruhigt zurücklehnen, Messnetz und Pilotstation schließen und zufrieden auf die vergangenen 30 Jahre zurückschauen? Wie sinnvoll ist es, die bestehenden Aufgaben weiter zu bearbeiten und bestimmte Langzeitmessreihen fortzuführen? Oder sollten einzelne Messreihen eingestellt, Schwerpunkte verlagert werden und sich die Aufgaben veränderten Randbedingungen anpassen? Gibt es andere, weiterführende Fragestellungen oder neue Aufgaben, die sinnvollerweise von Messnetz und Pilotstation bearbeitet werden unter Nutzung von vorhandenem Know-How und bestehender Infrastruktur? Wie also könnten die nächsten 30 Jahre von Pilotstation und Messnetz aussehen?

In Tabelle 32 sind einige wesentliche Luftschadstoffe und klimarelevante Gase aufgelistet, ergriffene Maßnahmen zu ihrer Minderung ebenso wie die daraus resultierenden Tendenzen beim Rückgang der Emissionen und der Immissionskonzentrationen (Hintergrund). Es wird deutlich, dass die nationalen Minderungsmaßnahmen nur in wenigen Fällen (SO₂, Blei, Cadmium) einen entsprechenden Rückgang der Hintergrund-Konzentrationen zur Folge haben. Meist ist der Rückgang flacher; zum Teil steigen die Immissionskonzentrationen von Schadstoffen sogar an, obwohl Maßnahmen zu ihrer Emissionsminderung ergriffen wurden. In keinem Fall ist der Rückgang steiler.

Dies ist nicht überraschend, da Deutschland weltweit mit die drastischsten Emissionsreduzierungen für eine Vielzahl von Luftschadstoffen und deren Vorläufern durchgeführt hat. Da Luft und die mit ihr transportierten Schadstoffe keine politischen Grenzen kennen, werden die Hintergrund-Immissionskonzentrationen in Deutschland in Abhängigkeit von den Emissionsunterschieden zu den Nachbarstaaten und zu anderen Kontinenten, von den Stoffeigenschaften und den meteorologischen Gegebenheiten zunehmend vom Ferntransport aus benachbarten Staaten und der globalen, insbesondere der hemisphärischen Emissions-Situation bestimmt.

Für einzelne Luftschadstoffe erscheint das Minderungspotential in Deutschland bereits heute weitgehend ausgeschöpft (z.B. SO_2). Beim Schwefeldioxid haben auch in den Nachbarstaaten die enormen Anstrengungen zur Emissionsminderung gefruchtet. Nationale und nachbarstaatliche Emissionsminderungen machen sich in einem drastischen Rückgang der SO_2 -Konzentrationen in der Luft bemerkbar. Eine mittelfristige Reduzierung der Langzeitbeobachtung, langfristig eventuell sogar eine Einstellung erscheint in diesem Fall gerechtfertigt.

Dass die Konzentrationen einer Reihe von Luftschadstoffen in Deutschland nicht entsprechend den Emissionsminderungen zurückgehen (z.B. NO_x , Feinstaub), ja sogar noch weiter ansteigen. (z.B. CO_2 , CH_4 , N_2O), liegt nicht zuletzt in den sehr unterschiedlichen Beiträgen, die der Ferntransport aus den europäischen und außereuropäischen Ländern der Nord- und Südhalbkugel zu den Schadstoffkonzentrationen in Deutschland liefert. Der Ferntransport einer Reihe von Luftschadstoffen muss bereits heute bei der nationalen und internationalen Umweltgesetzgebung berücksichtigt werden, insbesondere bei den z.T. sehr niedrigen Zielwerten für den Schutz von menschlicher Gesundheit und Vegetation. Vor diesem Hintergrund bleibt die Überwachung der großräumigen Verteilung einer Reihe von Luftverunreinigungen eine bedeutende Aufgabe für das UBA-Messnetz, da hierdurch wesentliche Rückschlüsse auf die Beiträge aus dem Ferntransport gezogen werden können. Von besonderer Bedeutung ist dabei die Bestimmung des nordhemisphärischen Hintergrundes für eine Vielzahl von Luftverunreinigungen (z.B. Ozon, NO_x , CO_2 , CH_4 , N_2O , POPs). Die Kenntnis dieses Hintergrundes und dessen langzeitiger Änderung ist für die Beurteilung der Wirksamkeit von deutschen und europäischen Minderungsmaßnahmen wichtig, denn dieser Hintergrund markiert eine Grenze, die durch emissionsmindernde Maßnahmen in Deutschland und Europa kaum unterschritten werden kann.

Für die Notwendigkeit, vor allem das NO_x in Zukunft weiter im UBA-Messnetz zu überwachen, spricht noch ein anderer Gesichtspunkt, nämlich dessen kritische Rolle bei der Bildung von Ozon. Eine großräumige und andauernde Unterschreitung der sehr niedrigen EU-Ozon-Schwellenwerte für den Gesundheitsschutz ($120 \mu\text{g}/\text{m}^3$; 8 h-Mittel) und vor allem für den Schutz der Vegetation von 3000 ppb h ($6000 \mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$) ist unabhängig von der VOC-Konzentration erst dann zu erwarten, wenn die NO_x -Konzentrationen in der Mischungsschicht europaweit unter $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ liegen. Dagegen liegen die heutigen NO_x -Konzentrationen mit sommerlichen Werten über $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ großräumig noch deutlich über den zur Ozonsenkung erforderlichen NO_x -Konzentrationen. Eine NO_x -Minderung wird damit zunehmend wirkungsvoller bei der Bekämpfung des hohen Ozonsockels als eine Minderung der VOC-Emissionen (vgl. Beilke, Kapitel 3).

Das nationale Minderungspotential wird für bestimmte Stoffe (z.B. NO_x , VOC) frühestens 2010 ausgeschöpft sein, für wieder andere erst in einigen Jahrzehnten oder noch später (z.B. CH_4 , CO_2). Eine Einstellung der Langzeitbeobachtung erscheint erst dann sinnvoll, wenn - wie beim SO_2 - die nationalen und internationalen Anstrengungen zur Emissionsminderung zu einem Rückgang der Immissionskonzentrationen in den Bereich der natürlichen Hintergrundkonzentration führen. Eine langfristige Weiterbeobachtung der Entwicklung der Immissionskonzentrationen von Luftschadstoffen ist also für die folgenden Jahrzehnte geboten. Eine Anpassung der Messnetzstruktur, wie sie für das Wet-Only-Messnetz vorgeschlagen wurde (vgl. Wallasch, Kapitel 12), muss dabei regelmäßig in Abhängigkeit von der Entwicklung der Emissionen bzw. der gemessenen Konzentrationen geprüft und entsprechend umgesetzt werden.

Eine vorrangige Aufgabe für die Pilotstation ist die Weiterentwicklung der hierfür notwendigen Messverfahren. Grund für die hohe Priorität dieser Aufgabe ist, dass

- Maßnahmen zur Reinhaltung der Luft immer kostspieliger werden,
- aktive Luftreinhaltepolitik zunehmend auf über- und internationaler Ebene stattfindet,
- weitere Maßnahmen mit der schädigenden Wirkung und der tatsächlich herrschenden Belastung der Luft begründet werden,
- international sehr viel stärker als bisher Transparenz und Vergleichbarkeit aller Befunde, insbesondere der Immissionsbewertungen, gefordert wird.

Die EU hat in ihren Richtlinien zur Luftqualität (bisher zwei Tochterrichtlinien zur Luftqualitätsrahmenrichtlinie und zwei weitere Entwürfe) strenge Grenzwerte festgelegt, die die nationalen Werte unterschreiten. Mit herkömmlicher Messtechnik sind diese Werte kaum zu überwachen, da zu viele Messwerte unterhalb der Nachweisgrenze der alten, herkömmlichen Geräte liegen. Es müssen daher empfindlichere Messgeräte entwickelt und eignungsgeprüft werden, die danach in allen Messnetzen zum Einsatz kommen können. Hier sind sogenannte Trace Level-Geräte erforderlich.

Aus dem gleichen Grund sind die Verfahren zu überprüfen und fortzuentwickeln, mit denen heute primäre Standards hergestellt werden. Ziel hierbei ist es, Prüfgase niedrigerer Konzentration herzustellen und die Normale entsprechend anzupassen. Bei den klimawirksamen Verunreinigungen, die durch die Global Atmosphere Watch (GAW)-Stationen überwacht werden, gibt es diese primären Standards bislang nur für CO₂, CH₄ und N₂O. Für die anderen Komponenten sind solche Standards noch zu entwickeln.

Luftschadstoffe hatten und haben auch Einfluss auf andere Umweltmedien (vgl. Schleyer & Raffius, Kapitel 4) und Materialien. Die Erfolgskontrolle von Emissionsminderungsmaßnahmen darf sich daher nicht auf die Luft beschränken, sondern muss auch auf andere Umweltmedien, Ökosysteme und Materialien ausgedehnt werden. Derartige Untersuchungen müssen auf lange Dauer angelegt sein, da sich Erfolge bei der Emissionsminderung zwar vergleichsweise kurzfristig in einer Verbesserung der Luftqualität widerspiegeln können, jedoch erst Jahrzehnte später in einer Verbesserung von beispielsweise Boden- oder Grundwasserqualität ("Boden und Grundwasser haben ein langes Gedächtnis"). Bedeutende Beispiele sind die Versauerung von Böden und Grundwasser oder die Akkumulation von POPs in Böden, Schäden von Luftschadstoffen, die in ihrer Folge auch schädliche Auswirkungen auf Vegetation und Nahrungsketten haben und die unter Umständen noch in Jahrzehnten oder sogar Jahrhunderten relevant sein können. Die Erarbeitung von rezeptorspezifischen Schwellenwerten (Mensch, Pflanzen, Ökosysteme oder Materialien) für den direkten Wirkungspfad (Critical Levels) und für den indirekten Wirkungspfad (Critical Loads), deren Überschreitung nach bisherigem Wissen unmittelbare schädliche Auswirkungen zur Folge hat, ist daher eine wichtige Aufgabe.

In Zukunft an Bedeutung gewinnen wird daher sicherlich die integrierte Umweltbeobachtung, d.h. im Kontext von Pilotstation und Messnetz, die Untersuchung der Auswirkungen von Luftschadstoffen, insbesondere der weiträumig transportierten, auf andere Umweltmedien und auf Ökosysteme. Unerlässliche Voraussetzungen hierfür sind die Untersuchung des Verbleibs von Luftschadstoffen in den verschiedenen Umweltmedien, d.h. eine Bilanzierung der Stoffströme und die Erkennung von Senken, sowie die Erkennung von Wirkungen. Die Messung von Depositionsraten, d.h. der Stoffströme aus der Atmosphäre auf

Akzeptoroberflächen wie Vegetation und Boden, ist hierbei ein erster wichtiger Schritt. (vgl. Beilke, Uhse, Bieber, Kapitel 3.4 und Knoth, Kapitel 11). Bei der integrierten Umweltbeobachtung steht nicht mehr das Medium Luft allein im Vordergrund der Beobachtung, sondern auch Boden, Oberflächen- und Grundwasser, Pflanzen und Tiere. Ein Anfang wurde vor 10 Jahren gemacht mit dem UN-ECE-Programm Integrated Monitoring im Bayerischen Wald (vgl. Beudert & Hofmann, Kapitel 13). Während bisher die Auswirkungen anorganischer Luftverunreinigungen, wie versauerungsrelevante Gase (SO_2 , NO_x) und Schwermetalle einen Schwerpunkt dieser Untersuchungen bildeten, werden zukünftig organische Luftverunreinigungen, insbesondere POPs, an Bedeutung gewinnen.

Da die lokalen und regionalen Probleme immer mehr in den Hintergrund treten und gleichzeitig großräumige, internationale bis globale Herausforderungen, wie z.B. Klimaveränderung und stratosphärischer Ozonabbau, in den Vordergrund rücken, nimmt auch die Bedeutung des nationalen und internationalen Datenaustausches zu. Die Messwerte des Umweltbundesamtes fließen daher in vielfältige internationale Programme wie beispielsweise GAW (Japan und USA), EMEP (Environmental Monitoring and Evaluation Programme, Norwegen), HelCom (Helsinki Commission zum Schutze der Ostsee), OsParCom (Oslo und Paris Commission zum Schutze der Nordsee) sowie Programme der UN und EU und dienen somit der Erfolgskontrolle von internationalen Verpflichtungen und Abkommen zur Reinhaltung der Luft und der Meere. Gleichzeitig werden die Daten im Umweltbundesamt selbst für die tägliche Politikberatung und andere langfristige Aufgaben (z.B. Mapping-Entwicklung, ökologische Umweltbeobachtung) benötigt. Auch im Internet sind die Ergebnisse des Messnetzes u.a. mit Monats- und Jahresberichten präsent (vgl. Uhse, Kapitel 14). Zusätzlich werden Konzentrationskarten-Darstellungen von Ozon, SO_2 , NO_2 und Staub im Internet, die zusammen mit den Messwerten der Bundesländer erstellt werden, alle 3 Stunden aktualisiert. Darüber hinaus werden individuelle Datenanfragen für wissenschaftliche Zwecke und aus der Bevölkerung mit Hilfe der Messnetz-Datenbank beantwortet.

Schließlich werden auf Pilotstation und Messnetz - wie auch in der Vergangenheit - zukünftig immer wieder Fragestellungen zukommen, die nicht durch langfristige Messreihen, sondern durch zeitlich befristete Forschungsvorhaben zu beantworten sind. Der entsprechende Forschungsbedarf hängt von den aktuellen Entwicklungen ab und kann für die nächsten 30 Jahre nicht prognostiziert werden. Aktueller Forschungsbedarf besteht beispielsweise bei der Speziesanalyse von Feinstaubinhaltsstoffen, bei der Messung von Bioaerosolen (vgl. Hofmann, Kapitel 5) oder bei der Entwicklung von Messverfahren für Nanopartikel.

Um daher die eingangs gestellten Fragen zu beantworten: Wir können zwar sehr zufrieden auf die vergangenen 30 Jahre und das Erreichte zurückschauen, zum Zurücklehnen oder gar Feierabend machen ist es jedoch viel zu früh. Es sind weitere nationale und internationale Anstrengungen notwendig, um das Minderungspotential bei einer Reihe von Luftschadstoffen weiter auszuschöpfen. Im Gegensatz zur Überwachung der Luftqualität in Ballungsräumen, was eine der typischen Aufgaben der Ländermessnetze ist, sind die langfristige Beobachtung der Minderungserfolge und der grenzüberschreitenden Anteile sowie die Entwicklung und Bereitstellung der hierfür geeigneten Messtechnik Aufgaben des Bundes, d.h. von Messnetz und Pilotstation des Umweltbundesamtes. Dies geschieht nicht allein zur Erfüllung internationaler Abkommen, sondern im ureigenen nationalen Interesse der Bundesrepublik. Der Anteil grenzüberschreitender Luftverunreinigungen und klimarelevanter Gase wird zunehmen, deren Beobachtung also an Bedeutung gewinnen. Ebenfalls an Bedeutung gewinnen wird die Messung organischer Substanzen sowie die integrierte Umweltbeobachtung.

Der Standort Langen hat sich seit dem Umzug von Messnetzzentrale und Pilotstation von Offenbach nach Langen im Jahr 1998 als nahezu ideal für diese Aufgaben herausgestellt. Das moderne Laborgebäude, sein Zuschnitt und seine zentrale Lage bieten die besten Voraussetzungen zur langfristigen Erfüllung dieser Aufgaben. Es bleibt zu hoffen, dass auf Dauer auch die personellen und materiellen Grundlagen hierfür erhalten bleiben.

Tabelle 32: Auflistung relevanter Luftschadstoffe und klimarelevanter Gase, ergriffene Maßnahmen zu ihrer Minderung und die daraus resultierenden Tendenzen beim Rückgang der Emissionen und der Immissionskonzentrationen.

Stoff / Stoffgruppe	wesentliche Maßnahme(n) in Deutschland	Emissionsänderung in Deutschland (D) und den Nachbarstaaten (NS)	Änderung der Immissionskonzentrationen in Deutschland	derzeitiger Beitrag des grenzüberschr. Ferntransports zur Konzentration in Deutschland ⁷⁾
SO ₂	Groß-/Kleinf Feuerungsanlagenverordnung	drastische Abnahme in D (-84% ¹⁾) und erhebliche Abnahme in NS	drastische Abnahme (- 84 % ⁴⁾)	moderat (aus Nachbarstaaten)
NO _x	Katalysator	deutliche Abnahme in D (-40% ¹⁾), geringe Abnahme in NS	moderate Abnahme (- 19 % ⁴⁾)	erheblich (aus Nachbarstaaten)
VOC (ohne Methan)	Verordnungen zum BImSchG, Chemikalienverbotsverordnung, Emissionsgrenzwerte	deutliche Abnahme in D (-49% ¹⁾), geringere Abnahme in NS	keine Angabe möglich (Messreihe zu kurz)	
O ₃	Reduzierung der Vorläufer-substanzen NO _x und VOC	entfällt, weil Reaktionsprodukt	spürbare Abnahme bei Spitzenwerten, aber geringe Zunahme der Mittelwerte	erheblich (aus Nachbarstaaten sowie aus globalen Quellen: Asien, Nordamerika)
CO ₂	Reduzierung des Verbrauchs fossiler Energieträger, Erhöhung des Anteils erneuerbarer Energieträger	geringe Abnahme in D (-16% ¹⁾), sehr geringe Abnahme in NS	geringe Zunahme (+4% ⁵⁾)	dominant (aus globalen Quellen)
CH ₄	Gasfassungen bei Deponien	deutliche Abnahme in D (-41% ¹⁾), geringe Abnahme in NS	geringe Zunahme (ca. +2% ⁶⁾)	dominant (aus globalen Quellen)
N ₂ O	Minderung aus Adipinsäureproduktion	spürbare Abnahme in D (-34% ¹⁾), geringe Änderung in NS	geringe Zunahme (+2,5% ⁶⁾)	dominant (aus globalen Quellen)
SF ₆		erhebliche Zunahme in D (+40% ³⁾), wahrscheinlich auch in NS	Erhebliche Zunahme (+50-60% ⁶⁾)	dominant (aus globalen Quellen)

aliphatische KW	Katalysator, Reduzierung von Verdampfungsverlusten	deutliche Abnahme in D (> -50% ³⁾), wahrscheinlich geringere in NS	deutliche Abnahme (ca. -50%)	insgesamt moderat
LCKW	Chemikalienverbotsverordnung, geschlossene Kreisläufe, Emissionsgrenzwerte	drastische Abnahme in D (> -90% ³⁾) und auch in NS	unterschiedlich: CCl ₄ : kaum Abnahme, andere: deutliche Abnahme	unterschiedlich: CCl ₄ : dominant
vollh. FCKW + Halone	FCKW-Halon-Verbotsverordnung	drastische Abnahme in D und auch in NS	geringe Zunahme	dominant (aus globalen Quellen)
teilh. HFCKW		erhebliche Zunahme in D (+83% ³⁾) und in NS	erhebliche Zunahme	erheblich (aus globalen Quellen)
Benzol	Reduzierung im Treibstoff, Katalysator	deutliche Abnahme (> -50%)	deutliche Abnahme	moderat
Toluol und Xylole	Katalysator	moderate Abnahme	moderate Abnahme	moderat
PAK	Kleinf Feuerungsanlagenverordnung, Reduzierung von Hausfeuerung mit Braunkohle, Katalysator	deutliche Abnahme in D	moderate Abnahme	erheblich (aus Nachbarstaaten)
POPs	Chemikalienverbotsverordnung, Rauchgas-/Abgasreinigung	drastische Abnahme in D (> -90% ³⁾)	spürbare Abnahme	dominant (aus globalen Quellen)
andere Organika (z.B. PSM, Phthalate)	bislang kaum Maßnahmen	unterschiedlich: einige stagnierend, andere sogar steigend	unterschiedlich, kaum Messwerte oder gar Messreihen	
Feinstaub	Rauchgasreinigung	drastische Abnahme in D (-86% ¹⁾) und erhebliche Abnahme in NS	starke Abnahme (-50% ⁴⁾)	erheblich (aus Nachbarstaaten)
Pb	Benzinbleigesetz	drastische Abnahme in D (-88% ²⁾) und erhebliche Abnahme in NS	drastische Abnahme (-84%)	erheblich
Cd	Maßnahmen bei Abfallverbrennung	sehr starke Abnahme in D (-75 % ²⁾) und wahrsch. erhebliche Abnahme in NS	sehr starke Abnahme (-78%)	erheblich
Hg	Maßnahmen bei Abfallverbrennung	sehr starke Abnahme in D (-77 % ²⁾)	keine Angabe möglich (Messreihe zu kurz)	

¹⁾ Emissionsänderung 1999 gegenüber 1990

²⁾ Emissionsänderung 1995 gegenüber 1985

³⁾ Emissionsänderung 1999 gegenüber 1990 (geschätzt oder extrapoliert)

⁴⁾ Konzentrationsänderung 1999 gegenüber 1990 (Mittel aus den 8 personell besetzten UBA-Messstellen)

⁵⁾ Konzentrationsänderung 1999 gegenüber 1990 (Mittel aus 5 personell besetzten UBA-Messstellen)

⁶⁾ Konzentrationsänderung 1999 gegenüber 1990 (geschätzt oder aus kürzeren Messreihen extrapoliert)

⁷⁾ moderat: <50%, erheblich: 50-90%, dominant: >90%