

# BERICHT ZUM ERFAHRUNGSAUSTAUSCH ÜBER „MESSUNGEN VON PM10/PM2,5“

IM AUFTRAG DES LAI

## BEARBEITUNG FÜR DEN UNTERAUSSCHUSS „LUFT/ÜBERWACHUNG“:

*Hessische Landesanstalt für Umwelt (HLfU)*

*(seit 01.01.2000: Hessisches Landesamt für Umwelt und Geologie — HLUG)*

*Rheingaustraße 186*

*65203 Wiesbaden*

*Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen (LUA NRW)*

*Wallmeyer Str. 6*

*45133 Essen*

*Gesellschaft für Umweltmessungen und*

*Umwelterhebungen mbH (UMEG)*

*76185 Karlsruhe*

*und weitere Ländermessstellen*

*Karlsruhe, im Februar 2000*

*Dieser Bericht umfasst ohne Anhang 31 Seiten*

# INHALTSVERZEICHNIS

Zusammenfassung	4
1 Auftrag	5
2 Anforderungen der 1. Tochterrichtlinie an Messverfahren zur Messung der Fraktion PM10 im Schwebstaub	6
3 Bewertungskriterien für die Eignung der Messverfahren zur Messung der Fraktion PM10 im Schwebstaub	7
4 Prüfung des Probenwechslers Digital DHA-80 auf Äquivalenz nach EN 12341	9
5 Prüfung der radiometrischen Staubmessgeräte FH 62-IN und FH 62- IR auf die Datenqualitätsziele der 1. Tochterrichtlinie an kontinuierliche Messungen	13
5.1 Staubeinlass	14
5.2 Prüfung des vollständigen Messverfahrens auf Präzision und Richtigkeit	15
5.3 Prüfung der radiometrischen Messungen hinsichtlich der Datenqualitätsziele der 1. Tochterrichtlinie	21
5.3.1 Unsicherheit bei Ermittlung der Kalibrierfunktion durch Vergleichsmessungen mit einer Referenzmethode am Messort	22
5.3.2 Unsicherheit bei Ermittlung der Kalibrierfunktion durch Verwenden einer mittleren Steigung (ohne Vergleichsmessung mit einer Referenzmethode am Messort)	24
6 Ergebnisse weiterer Untersuchungen	25
6.1 Einfluss der Fettung auf das Ergebnis	25
6.2 Untersuchungen zur Messung von PM2,5 — erste Ergebnisse	27
6.3 Einfluss der Robrlänge auf das Ergebnis für PM10 und PM2,5	28
6.4 Impaktormessungen	30
Literatur	31
Anhang A	
1 Auszug aus der 1. Tochterrichtlinie	A 1
2 Ergebnisse straßennaber Vergleichsmessungen zur Robrlänge in Berlin	A 4
Anhang B — Beitrag der UMEG (Baden-Württemberg)	
1 Staubsammelgeräte Digital DHA-80 — Änderung des Probenabmehvolumenstromes bei belegtem und unbelegtem Filter	B 1
2 Test des Andersen PM10-Einlasses	B 2
3 Einfluss von 2- und 4-wöchiger Fettung des PM10-Einlasses auf das Ergebnis	B 3
4 Einzelwerte und grafische Auswertungen aller bei der UMEG durchgeführten Messungen	B 4
5 Standort der Messstation Karlsruhe-Nordwest	B 20

<i>Anhang C — Beitrag des Landesumweltamtes Nordrhein-Westfalen</i>	<i>C 1</i>
1 <i>Ergebnisse des Landesumweltamtes NRW in der Übersicht</i>	<i>C 1</i>
1.1 <i>Einleitung</i>	<i>C 1</i>
1.2 <i>Prüfung von Äquivalenzsammlern mit Probenwechslern nach EN 12341</i>	<i>C 1</i>
1.3 <i>Prüfung der radiometrischen Messungen mit dem Äquivalenzsammler Digital DHA-80 und Kleinfiltergeräten</i>	<i>C 5</i>
1.4 <i>Ergebnisse weiterer Untersuchungen</i>	<i>C 11</i>
2 <i>Anmerkungen zu Handhabung und Kalibrierung</i>	<i>C 14</i>
2.1 <i>Gravimetrische Schwebstaubbestimmung</i>	<i>C 14</i>
2.2 <i>Referenzgerät LVS3</i>	<i>C 14</i>
2.3 <i>Testgerät Digital DHA-80</i>	<i>C 16</i>
2.4 <i>Testgerät Eberline FH62IR</i>	<i>C 18</i>
<i>Anhang D — Beitrag des Hessischen Landesamtes für Umwelt und Geologie (HLUG - bis 31.12.1999 Hessische Landesanstalt für Umwelt - HLfU)</i>	
1. <i>Einleitung</i>	<i>D 1</i>
2. <i>Eingesetzte Probenahmegeräte</i>	<i>D 2</i>
3. <i>Messstelle</i>	<i>D 3</i>
4. <i>Betriebstechnische Verfahrensweise</i>	<i>D 8</i>
5. <i>Ergebnisse der Feldmessungen</i>	<i>D 12</i>
5.1 <i>Einzelwerte</i>	<i>D 12</i>
5.2 <i>Prüfung der Präzision und Richtigkeit</i>	<i>D 27</i>
6. <i>Empfehlung zur Wartung und Kalibrierung der kontinuierlichen Staubmessgeräte des Typs FH 62 I-N</i>	<i>D 35</i>
6.1 <i>Generalwartung</i>	<i>D 36</i>
6.2 <i>Folienüberprüfung / Folienzertifizierung</i>	<i>D 43</i>
7. <i>Empfehlung zur Wägung von Filtern im Rahmen der gravimetrischen Schwebstaubmessung</i>	<i>D 45</i>
8. <i>Sonderuntersuchungen zum Verhalten von Temperatur und Luftfeuchte im Probenabmestrom</i>	<i>D 47</i>

# ZUSAMMENFASSUNG

Die 1. Tochterrichtlinie zur EU-Rahmenrichtlinie weist für Schwebstaub der Fraktion PM10 Grenzwerte und Datenqualitätsziele aus. Die Fraktion PM10 unterscheidet sich von der bisher in der Bundesrepublik Deutschland gemessenen Fraktion nach der Richtlinie VDI 2463 Bl. 8. Dies erfordert eine Anpassung der Messverfahren zur Messung von Schwebstaub, wovon insbesondere die Ländermessnetze betroffen sind. Der LAI hat deshalb im Frühjahr 1998 den UA „Luft/Überwachung“ gebeten, einen Erfahrungsaustausch über Messungen von PM10 / PM2,5 einzuleiten.

In den Ländermessnetzen wird Schwebstaub mit radiometrischen Messmethoden, insbesondere den Geräten FH 62-IN und FH 62-IR gemessen, die von der Firma Eberline vertrieben werden. Bei der Messung nach gravimetrischen Methoden wird hauptsächlich der Probenwechsler Digital DHA-80 eingesetzt. Bei Probeneinlass entsprechend den Anforderungen der EN 12341 und Erreichen der Datenqualitätsziele des vollständigen Messverfahrens ist zur Anpassung der Schwebstaubmessung nur der Probeneinlass auf PM10 bzw. PM2,5 umzustellen. Dies wirkt sich kostengünstig auf die erforderliche Anpassung aus.

Der Erfahrungsaustausch mit ergänzenden experimentellen Untersuchungen in Essen, Karlsruhe und Wiesbaden hatte zum Ergebnis:

1. Der Probenwechsler Digital DHA-80 ist gleichwertig mit den in der EN 12341 beschriebenen Referenzmethoden. Er erfüllt die Datenqualitätsziele für Schwebstaub der Fraktion PM10 der 1. Tochterrichtlinie.

Die Rohrlänge (bis max. 2,5 m) zwischen Probeneinlass und Filter hat keinen Einfluss auf das Messergebnis.

2. Die Fettung der Prallplatte im Einlass, z. B. mit Siliconpaste mittelviskos, hat bei einem Fettungsintervall von zwei bzw. max. vier Wochen bei DHA-80 und GS050/C3 keinen Einfluss auf das Messergebnis.

3. Das für die radiometrischen Messgeräte verwendete Probenahmesystem erfüllt die Anforderungen der EN 12341. Das vollständige Messverfahren, bestehend aus dem PM10-Probenahmesystem und dem Messgerät FH 62-IN bzw. FH 62-IR kann nur unter Beachtung bestimmter Voraussetzungen die Datenqualitätsziele für Schwebstaub der Fraktion PM10 der 1. Tochterrichtlinie erfüllen:

Ž Die Geräte müssen über eine spezielle Heizung des Probenahmerohres verfügen (siehe Anhang D 6).

Ž Die Geräte müssen sorgfältig gewartet, justiert und kalibriert werden. Der dafür notwendige Aufwand geht den vorliegenden Erfahrungen nach weit über das in den Handbüchern geforderte Maß hinaus (siehe Anhang D 6).

Ž Es wird dringend empfohlen, den Zusammenhang zwischen den Messverfahren Gravimetrie und Radiometrie am jeweiligen Standort zu ermitteln. Die Ergebnisse an den drei Standorten zeigen, dass die Steigungen der Kalibrierfunktionen zwischen 0,6 und 0,8, entsprechend einem Kalibrierfaktor zwischen 1,7 und 1,3 schwanken. Die Ausweisung eines mittleren Faktors wurde aus wissenschaftlichen Gründen verworfen.

4. Für die Messung der Fraktion PM2,5 wird zur Zeit eine EN-Norm erstellt. Vergleichsmessungen zwischen dem HVS<sup>1)</sup> Digital DHA-80 und dem LVS<sup>2)</sup> Kleinfiltergerät mit Einlässen PM2,5 zeigen, dass bei Übertragen der Anforderungen an die Messung PM10 auf die von PM2,5 beide Messmethoden diese Anforderungen erfüllen. Bei Einsatz dieser Geräte für die Messung von PM10 erfordert die Umstellung auf PM2,5 lediglich den Wechsel des Probeneinlasses.

---

1) HVS High Volume Sampler

2) LVS Low Volume Sampler

# 1 AUFTRAG

Die sogenannte 1. Tochterrichtlinie der EU [99/30/EG] „Über Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid und Stickstoffoxide, Partikel und Blei in der Luft“ zur EU-Rahmenrichtlinie [96/62/EG] „Über die Beurteilung und die Kontrolle der Luftqualität“ weist für Schwebstaub der Fraktion PM10 Bezugswerte aus, die im Anhang A1 aufgelistet sind. Diese Bezugswerte beziehen sich auf ein anderes Schwebstaubkollektiv als die derzeit gültigen Bezugswerte in der TA Luft und der 22. BImSchV. Dies bedingt, dass die Messung von Schwebstaub insbesondere in den Luftmessnetzen des Bundes und der Länder den neuen Anforderungen angepasst werden muss.

Der LAI hat deshalb auf seiner 94. Sitzung im Frühjahr 1998 den Unterausschuss ‘Luft/Überwachung’ gebeten, „einen Erfahrungsaustausch über Messungen von PM10/PM2,5 einzuleiten“. Die Leitung des Erfahrungsaustausches wurde dem Ministerium für Umwelt und Verkehr Baden-Württemberg übertragen, das die Koordination der Tätigkeiten an die UMEG delegiert hat. Es fanden dazu vier Fachgespräche statt, in denen die Aufgaben formuliert und verteilt bzw. die Ergebnisse zusammengestellt und diskutiert wurden. An den Fachgesprächen nahmen Vertreter fast aller Ländermessnetzbetreiber und des Umweltbundesamtes (UBA) teil. Die zur Meinungsbildung noch notwendigen experimentellen Untersuchungen wurden im wesentlichen von der HLFU in Wiesbaden, dem LUA in Essen und der UMEG in Karlsruhe durchgeführt. Die Federführung lag bei der UMEG.

Das Ziel der Arbeiten war es, den Ländermessstellen

- Handreichungen für die optimale Umrüstung ihrer Messnetze für die Messung von Schwebstaub nach der Konvention PM10 zu geben,
- praktische Vorschläge für die Messung von PM2,5 zu unterbreiten.

Der vorliegende Bericht zur 77. Sitzung des UA Luft/Überwachung im Frühjahr 2000 fasst die wesentlichen Ergebnisse zusammen. Er wird ergänzt durch einen Anhang. In einem Materialienband, der beim UBA hinterlegt ist, sind weitere Beiträge der Ländermessstellen individuell zusammengestellt sind.

## 2 ANFORDERUNGEN DER 1. TOCHTERRICHTLINIE AN MESSVERFAHREN ZUR MESSUNG DER FRAKTION PM10 IM SCHWEBSTAUB

Die Bezugswerte in Anhang III der 1. Tochterrichtlinie beziehen sich auf die Fraktion PM10 im Schwebstaub. Nach Artikel 2 der Richtlinie sind die Fraktion PM10 die Partikel, die einen gröbenselektierenden Lufteinlass passieren, der für einen aerodynamischen Durchmesser von 10 µm eine Abscheidewirksamkeit von 50 % aufweist. Nach Anhang IX in Verbindung mit Artikel 7.4 sind die Referenzmethoden für die PM10-Probenahme in der Europäischen Norm EN 12341 'Ermittlung der PM10-Fraktion von Schwebstaub' (März 1999) beschrieben.

Nach der EN 12341 können nur Messverfahren mit gravimetrischer Staubmassenbestimmung auf Gleichwertigkeit mit einer Referenzmessmethode getestet werden. Nach den Datenqualitätszielen der 1. Tochterrichtlinie sind jedoch auch andere Messprinzipien zulässig, sofern der Nachweis für die in Kapitel 3 aufgeführten Anforderungen erbracht wird.

Im ersten Fachgespräch wurde auf Basis der Vorgaben der 1. Tochterrichtlinie und des Sach- bzw. Wissensstandes nachstehendes Arbeitsprogramm festgelegt:

- 1 Prüfung des Probenwechslers Digital DHA-80 auf Äquivalenz nach EN 12341
- 2 Prüfung, ob radiometrische Messgeräte nach dem Prinzip der  $\beta$ -Absorption die Anforderungen der 1. Tochterrichtlinie zur Messung von Schwebstaub erfüllen
  - a) Auswahl von Vorabscheidern für einen Fluss von 1 m<sup>3</sup>/h durch Vergleich gravimetrischer Ergebnisse mit Referenz- bzw. Äquivalenzsammlern nach EN 12341
  - b) Bestimmung der Präzision (Vergleich der Ergebnisse von baugleichen Geräten nach PM10-Vorabscheidung)
  - c) Bestimmung der Richtigkeit (Vergleich der Ergebnisse von Testgeräten mit Referenz- und Äquivalenzgeräten nach PM10-Vorabscheidung)
- 3 Einfluss der Fettung der Prallplatte im Einlass auf das Ergebnis bei täglicher Probenahme
  - zweiwöchige bzw. vierwöchige Wartung
- 4 Wandeffekte bzw. Einfluss der Rohrlänge zwischen Probeneinlass und Filter auf das Ergebnis
- 5 Voruntersuchungen zu PM2,5
  - mit Kaskadenimpaktoren, mit Kleinfiltergeräten, mit Probenwechslern.

Die Tatsache, dass ein Schwerpunkt der Untersuchungen auf den radiometrischen Messgeräten FH 62-IN und FH 62-IR bzw. den Probenwechslern Digital DHA-80 liegt, beruht darauf, dass diese Geräte in den Ländermessnetzen hauptsächlich eingesetzt sind und bei deren Eignung nur der Probeneinlass gewechselt werden muss. Dies wirkt sich kostengünstig auf die erforderliche Anpassung aus.

### 3 BEWERTUNGSKRITERIEN FÜR DIE EIGNUNG DER MESSVERFAHREN ZUR MESSUNG DER FRAKTION PM10 IM SCHWEBSTAUB

Für die Beschreibung des vollständigen Messverfahrens zur Bestimmung der Fraktion PM10 im Schwebstaub ist es zweckmäßig, das Messverfahren zu unterteilen in den Probeneinlass bzw. die dort stattfindende Vorabscheidung und die Konzentrationsbestimmung. Die Staubvorabscheidung ist bestimmt durch die Strömungsverhältnisse, die im Wesentlichen durch die Geometrie des Vorabscheiders bzw. den Volumenstrom und dessen Konstanz über die Messung beeinflusst werden. Bei Testgeräten mit gravimetrischer Staubmassenbestimmung nach Staubabscheidung an einem Filter kann das vollständige Messverfahren auf Gleichwertigkeit mit einem Referenzgerät entsprechend der EN 12341 getestet werden. Bei Testgeräten, die auf einem anderen Messprinzip beruhen (z. B. Massenbestimmung über Abschwächung einer radioaktiven Strahlung oder über Frequenzänderung eines Schwingquarzes) kann nur der Einlass auf Äquivalenz mit den in der EN 12341 beschriebenen Referenzsammlern getestet werden.

Die EN 12341 fordert im Wesentlichen Vergleichbarkeit der Testgeräte untereinander (Präzision) sowie Vergleichbarkeit der Ergebnisse mit denen eines Referenzsammlers (Richtigkeit). Die Testprozedur ist in der Tabelle 3-1 auf der Folgeseite zusammengefasst. Bei den Feldversuchen soll sich der Anteil der Fraktion PM10 am Gesamtstaub über einen Bereich von sehr hohen Werten (deutlich über 90 %) bis hinab zu etwa 50 % erstrecken. Weiter soll der Konzentrationsbereich für die PM10-Fraktion 150 % des einschlägigen Grenzwertes gemäß der 1. Tochterrichtlinie umfassen.

Die Datenqualitätsziele der 1. Tochterrichtlinie fordern einen Probeneinlass, der den Anforderungen der EN 12341 entspricht. Nach Anhang VIII der 1. Tochterrichtlinie ist für Konzentrationen, die oberhalb der oberen Beurteilungsschwelle liegen und für die eine Probenahme mit vollständiger Zeitabdeckung über die Mittelungszeit notwendig ist, bei der Messung im Bereich des Grenzwertes eine Genauigkeit von 25 % gefordert. Bei Konzentrationen unterhalb der oberen Beurteilungsschwelle genügt auch die orientierende Stichprobenmessung, wobei eine Genauigkeit von 50 % mit Bezug auf den Grenzwert anzustreben ist (siehe Anhang A 1).

**Tabelle 3-1:** Vorgehensweise bei der Ermittlung der nach EN 12341 zu überprüfenden Kriterien

Untersuchung der Vergleichbarkeit von Testgeräten Präzision		Untersuchung der Vergleichbarkeit des Testgerätes mit dem Referenzgerät Richtigkeit
Berechnen des Konzentrationsmittelwertes $Y_i$ aus der i-ten Parallelmessung		Berechnen der Referenz-Äquivalenz-Funktion $y = f(x)$ und des Bestimmtheitsmaßes
Auswahl aller Konzentrationswerte $Y_i \leq 100 \mu\text{g}/\text{m}^3$	Auswahl aller Konzentrationswerte $Y_i > 100 \mu\text{g}/\text{m}^3$	aus den Konzentrationswerten des Testgerätes (y) und des Referenzgerätes (x) durch lineare Regressionsanalyse
Gesamtzahl aller Wertepaare für $Y_i \leq 100 \mu\text{g}/\text{m}^3 = n_<$	Gesamtzahl aller Wertepaare für $Y_i > 100 \mu\text{g}/\text{m}^3 = n_>$	
absolute Standardabweichung $s_a$ : $s_a = \sqrt{(\sum D_i^2 / 2n_<)}$	relative Standardabweichung $s_r$ : $s_r = \sqrt{\{(\sum (D_i / Y_i)^2 / 2n_>)\}}$	Berechnen des beidseitig begrenzten Akzeptanzbereiches $y = (x \pm 10) \mu\text{g}/\text{m}^3$ und $y = 0,9 x (\mu\text{g}/\text{m}^3)$ bzw. $y = 1,1 x (\mu\text{g}/\text{m}^3)$ für Konzentrationswerte $\leq 100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für Konzentrationswerte $> 100 \mu\text{g}/\text{m}^3$
Student-Faktor, definiert als das 0,975-Quantil des zweiseitigen 95%-Vertrauensbereiches der t-Verteilung: $t_{f_<,0,975}$ mit $f_< = n_< - 2$	Student-Faktor, definiert als das 0,975-Quantil des zweiseitigen 95%-Vertrauensbereiches der t-Verteilung: $t_{f_>,0,975}$ mit $f_> = n_> - 2$	gemeinsame grafische Darstellung : <ul style="list-style-type: none"> <li>• der idealen Referenz-Äquivalenz-Funktion <math>y = x</math></li> <li>• des beidseitig begrenzten Akzeptanzbereiches</li> <li>• aller Wertepaare</li> <li>• der berechneten Referenz-Äquivalenz-Funktion</li> </ul>
Zweiseitiger Vertrauensbereich $CI_{95}$ für $Y_i \leq 100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ : $CI_{95} = s_a \cdot t_{f_<,0,975}$	Zweiseitiger Vertrauensbereich $CI_{95}$ für $Y_i > 100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ : $CI_{95} = s_r \cdot t_{f_>,0,975}$	
Testgerät erfüllt die Bedingungen für die Präzision wenn gilt: <b><math>CI_{95} \leq 5 \mu\text{g}/\text{m}^3</math></b>	Testgerät erfüllt die Bedingungen für die Präzision <sup>20</sup> wenn gilt: <b><math>CI_{95} \leq 0,05</math></b>	Testgerät erfüllt die Bedingungen für die Richtigkeit wenn gilt: <b><math>R^2 \geq 0,95</math></b> und wenn <b>die berechnete Referenz-Äquivalenz-Funktion in den Grenzen des Akzeptanzbereiches liegt</b>

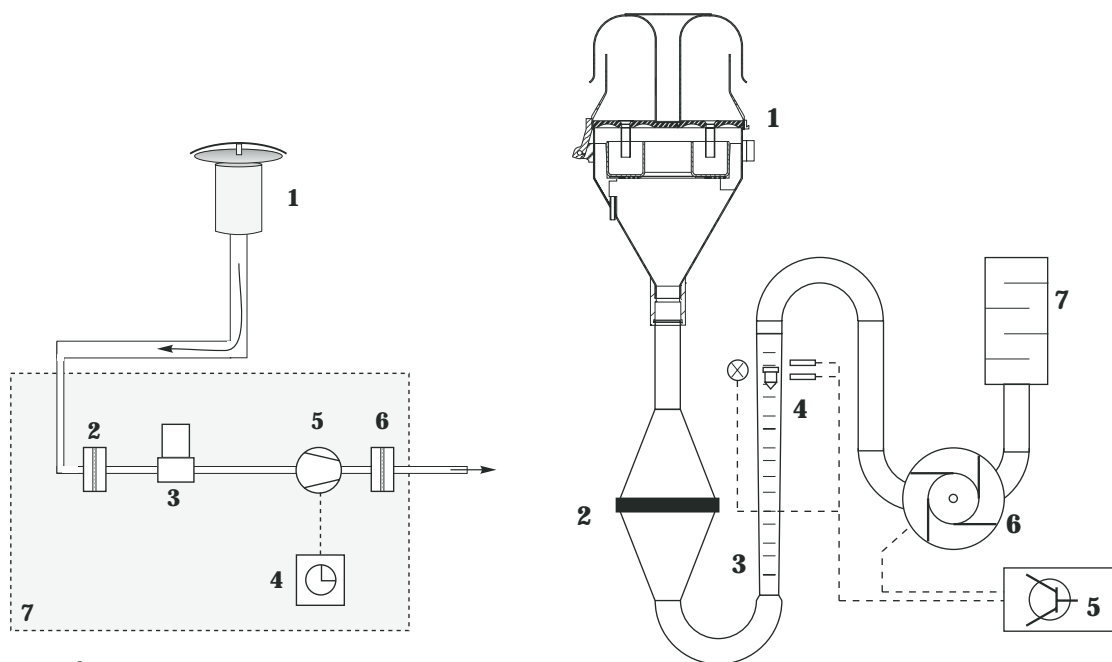
Nomenklatur:

n	Gesamtzahl der gültigen Wertepaare	$Y_i = (X_{i1} + X_{i2})/2$
$X_i$	i-ter Konzentrations-Messwert des Referenzgerätes	$D_i = Y_{i1} - Y_{i2}$
$X_{i1}$	i-ter Konzentrations-Messwert des Testgerätes 1	t
$X_{i2}$	i-ter Konzentrations-Messwert des Testgerätes 2	$CI_{95}$

Konzentrationsmittelwert aus der i-ten Parallelmessung mit den Testgeräten 1 und 2  
 Differenz der i-ten Messwerte für die Testgeräte 1 und 2  
 Statistische Prüfgröße entsprechend der t-Verteilung nach Student  
 zweiseitiger 95%-Vertrauensbereich

# 4 PRÜFUNG DES PROBENWECHSLERS DIGITEL DHA-80 AUF ÄQUIVALENZ NACH EN 12341

In Wiesbaden, Essen und Karlsruhe wurden Versuche mit dem Testgerät Digital DHA-80 durchgeführt. Als LVS-PM10-Referenzgerät wurde ein Probeneinlass verwendet, wie er in der EN 12341 für einen Low Volume Sampler ausgewiesen ist und beim Kleinfiltergerät (z. B. der Fa. Purucker, Derenda oder Leckel) vorgeschaltet wird. Abbildung 4-1 zeigt den schematischen Aufbau der beiden Messgeräte. Die Ergebnisse für die Präzision und Richtigkeit an den drei Messorten sind in der Tabelle 4-1 zusammengefasst. Die zugehörigen Ortsbeschreibungen sind im Anhang ausgewiesen. Dort finden sich auch die Angaben zur Durchführung der Gravimetrie.



- 1 PM10-Einlass mit Probenahmefilter
- 2 Schutz-Filter
- 3 Durchflussregler
- 4 Zeitschaltuhr
- 5 Drehschieberpumpe
- 6 Ausgangsfilter

- 1. PM10-Einlass
- 2. Filterhalter
- 3. Durchflussmesser
- 4. Lichtschranke zum Einstellen der Durchflussmenge
- 5. Regelelektronik
- 6. Saugaggregat
- 7. Schalldämpfung

Volumenstrom	2,3 m <sup>3</sup> /h
Probenahmedauer	23,5 h
Einlass	PM10
Filterdurchmesser	47 mm

Volumenstrom	30 m <sup>3</sup> /h
Probenahmedauer	23,5 h
Einlass	PM10
Filterdurchmesser	150 mm

**Abbildung 4-1:** Schematischer Aufbau eines GS050/3-C LVS-Kleinfiltergerätes (links) und eines Digital DHA-80 (rechts), beide mit PM10-Einlass

**Tabelle 4-1:** Ergebnisse der Vergleichsmessungen Digital DHA-80 mit LVS-Kleinfiltergerät — Vorabscheidung mit PM10-Einlass (Datenbasis: 24-Stunden-Mittelwerte)

Referenz- gerät	Testgerät	Steigung	Achsen- abschnitt	R <sup>2</sup>	CI95 <sub>≤100</sub> [µg/m <sup>3</sup> ]	CI95 <sub>&gt;100</sub> [%]	n <sub>ges.</sub>	n <sub>Ausr.</sub>	Zeitraum	Messort	Abbildung
DHA-80 (1)	DHA-80 (2)	0,99	0,19	1,00	<b>1,7</b>	—	87	5	10.10.95-27.02.96	KA-Nordwest	4-4
GS050/3-C (1)	GS050/3-C (2)	1,00	0,34	0,99	<b>3,1</b>	<b>0,1</b>	80	3	26.10.95-27-02-96	KA-Nordwest	
GS050/3-C (1)	DHA-80 (1)	1,03	-3,03	<b>0,98</b>	—	—	75	2	26.10.95-27.02.96	KA-Nordwest	
GS050/3-C (2)	DHA-80 (1)	1,04	-3,35	<b>0,98</b>	—	—	75	1	25.10.95-27.02.96	KA-Nordwest	
GS050/3-C (1)	DHA-80 (2)	0,99	-1,51	<b>0,97</b>	—	—	73	4	26.10.95-27.02.96	KA-Nordwest	
GS050/3-C (2)	DHA-80 (2)	1,00	-2,16	<b>0,97</b>	—	—	73	1	25.10.95-27.02.96	KA-Nordwest	
GS050/3-C (1)	GS050/3-C (2)	1,00	-0,20	0,99	<b>1,9</b>	—	103	1	06.10.98-31.05.99	Wiesbaden	4-3
GS050/3-C (1)	DHA-80	1,00	-0,70	<b>0,98</b>	—	—	102	1	06.10.98-31.05.99	Wiesbaden	
GS050/3-C (2)	DHA-80	1,00	-0,39	<b>0,98</b>	—	—	98	2	06.10.98-31.05.99	Wiesbaden	
LVS3 (1)	LVS3 (2)	0,99	0,09	1,00	<b>1,5</b>	—	224	5	20.01.98-05.03.99	Essen-Schuir	4-2
LVS3 (1)	DHA-80	1,00	-0,02	<b>0,99</b>	—	—	192	1	20.01.98-15.01.99	Essen-Schuir	4-5
LVS3 (2)	DHA-80	1,01	-0,07	<b>0,99</b>	—	—	185	1	20.01.98-15.01.99	Essen-Schuir	

Bei allen Vergleichsmessungen liegt die Referenz-Äquivalenz-Funktion innerhalb des Akzeptanzbereiches

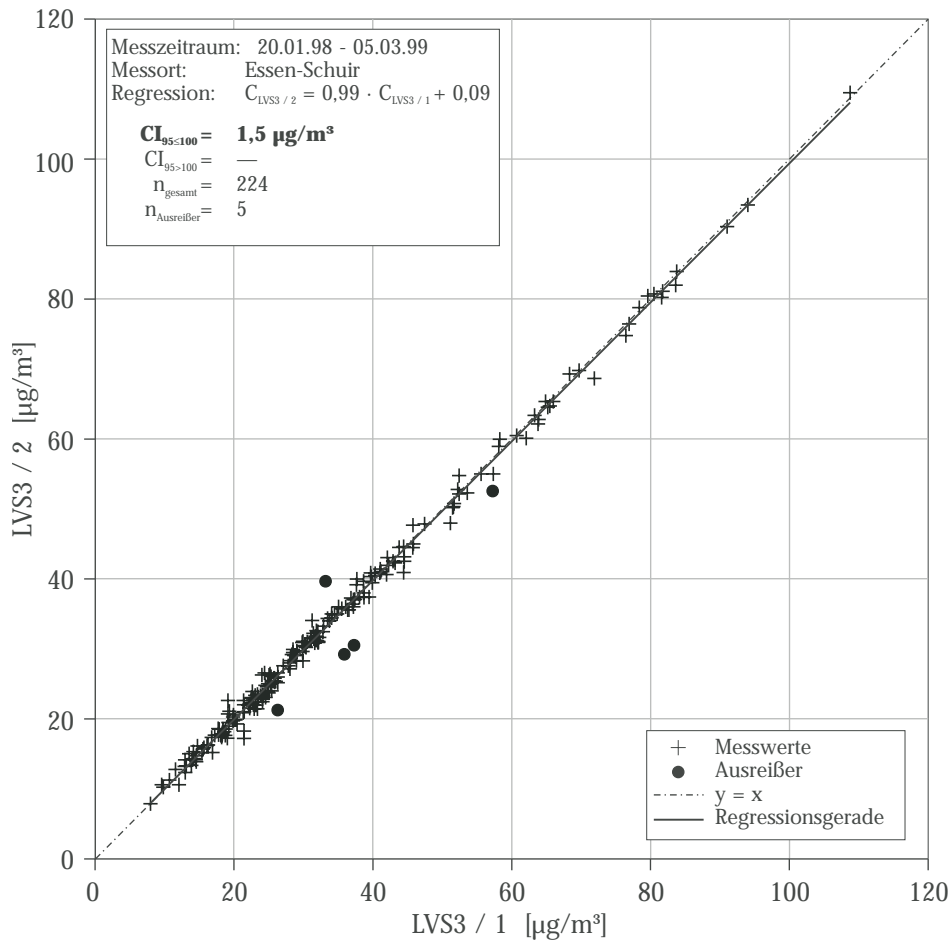
Die Abbildungen 4-2 bis 4-4 zeigen eine Auswahl der entsprechenden Ergebnisse. Ausreißer nach Grubbs [Hartung, 1995] wurden bei der Ergebnisberechnung nicht berücksichtigt, sind aber in den Abbildungen der Vollständigkeit halber mit aufgenommen.

Die Ergebnisse zeigen, dass der Probenwechsler Digital DHA-80 die Anforderungen der EN 12341 an Präzision und Richtigkeit erfüllt. Dieses Ergebnis wird auch bei Vergleich des Digital DHA-80 mit einem HV-Referenzsammler bestätigt [UMEG, 33-4/97].

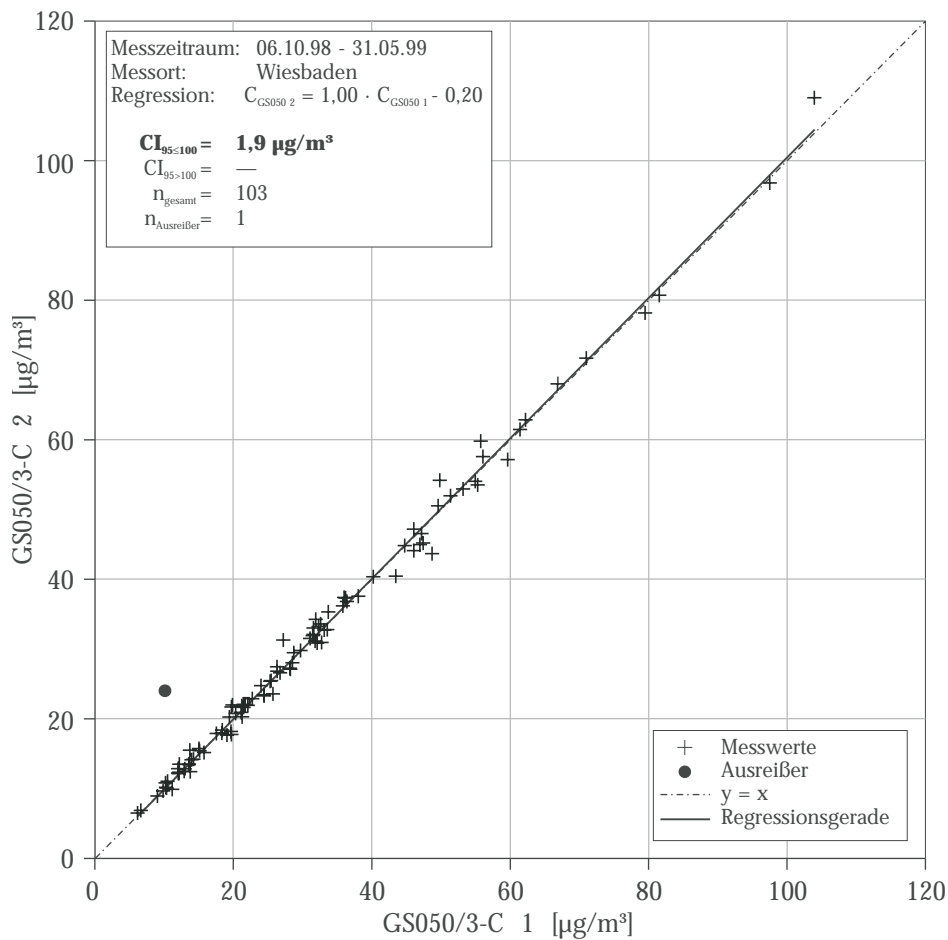
Die höchste gemessene Konzentration betrug 123 µg/m<sup>3</sup> (Karlsruhe-Nordwest), so dass auch der Forderung der EN 12341, dass die Konzentration bis zu 150 % des 24-Stundengrenzwertes abdecken muss, erfüllt wird. Der Anteil der PM10-Fraktion am Schwebstaub lag bei Versuchsreihen, die in etwa dem selben Zeitraum in Karlsruhe-Nordwest durchgeführt wurden, zwischen 47 % und 88 % [Daten in UMEG, 33-4/97]. Bei Vergleichsmessungen von TSP und PM10 in Essen-Schuir lag der Anteil der PM10-Fraktion am Schwebstaub zwischen 39 % und 96 %. Die Forderung, dass der Anteil an PM10-Fraktion am Schwebstaub sich im Bereich von 50 % bis hinauf zu etwa 90 % erstrecken soll, wird damit erfüllt.

Die Durchflussabweichung beträgt zwischen Betrieb ohne Filter und bestaubten Filtern weniger als 2 % (siehe Anhang B 1). Die Abweichung liegt somit unterhalb der geforderten 5 %.

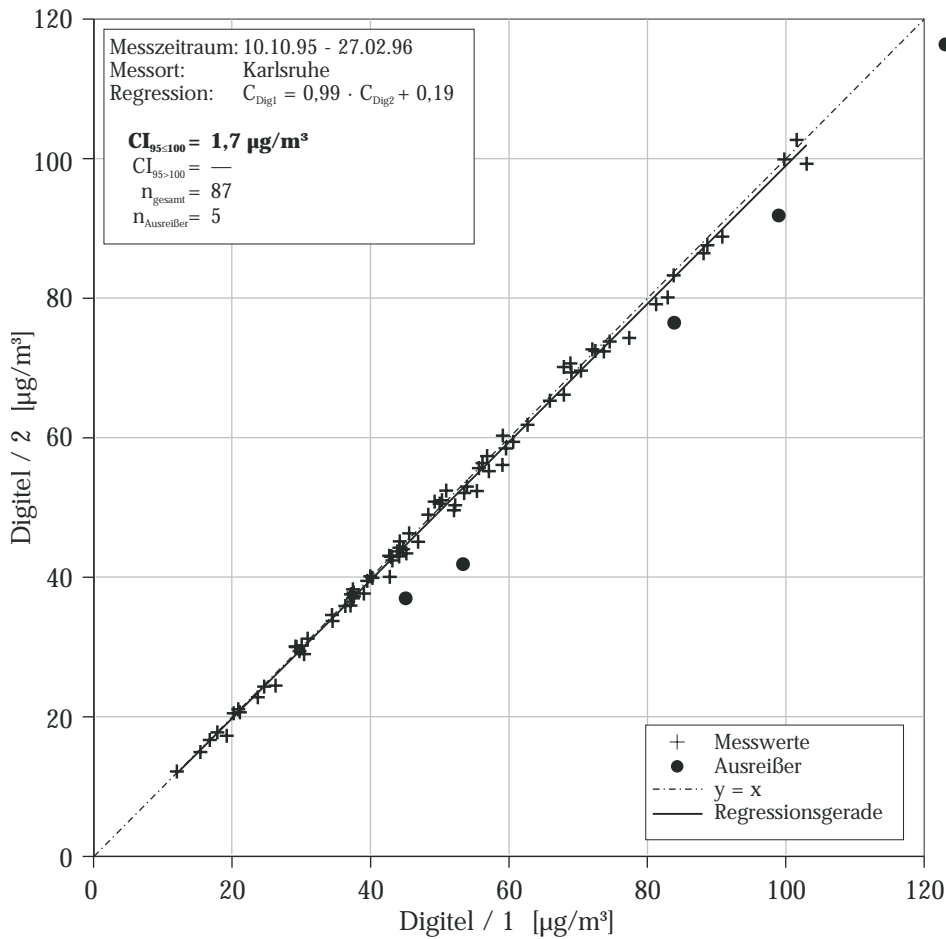
Der Probenwechsler Digital DHA-80 erfüllt die Anforderungen der EN 12341 an die Gleichwertigkeit mit einem Referenzgerät und somit auch die Datenqualitätsziele der 1. Tochterrichtlinie an kontinuierliche Messungen.



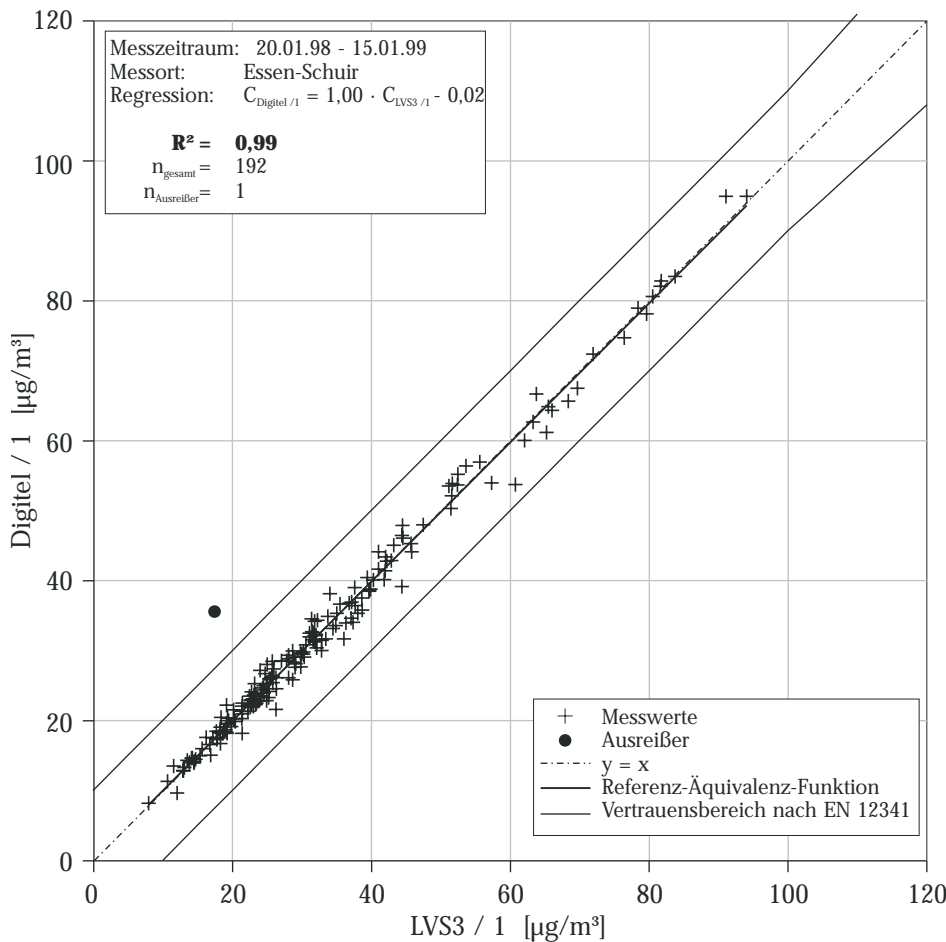
**Abbildung 4-2:**  
 Vergleich zweier Kleinfiltergeräte  
 LVS3 / 1 und LVS3 / 2  
 (Ergebnisse des LUA)



**Abbildung 4-3:**  
 Vergleich zweier Kleinfiltergeräte  
 GS050/3-C  
 (Ergebnisse der HLfU)



**Abbildung 4-4:**  
 Vergleich zweier Digital DHA-80  
 (Ergebnisse der UMEG)



**Abbildung 4-5:**  
 Vergleich zwischen einem Kleinfilter-  
 gerät LVS3 und einem Digital  
 DHA-80  
 (Ergebnisse des LUA)

# 5 PRÜFUNG DER RADIOMETRISCHEN STAUBMESSGERÄTE FH 62-IN UND FH 62-IR AUF DIE DATENQUALITÄTSZIELE DER 1. TOCHTERRICHTLINIE AN KONTINUIERLICHE MESSUNGEN

Den schematischen Aufbau eines radiometrischen Messgerätes zeigt die Abbildung 5-1.

Der nach PM10-Probenahme auf dem Filter gesammelte Staub wird über die Strahlungsabsorption der  $\beta$ -Strahlung am Staub bestimmt. Die Kalibrierung erfolgt mit Hilfe einer Glimmerfolie. Voraussetzung für eine fehlerfreie Messung ist eine optimale Justierung von Strahler, Filterband und Empfänger. Weiter hat die Temperatur des Probengases Einfluss auf die am Filter abgeschiedene Staubmasse sowie bei zu niedriger Temperatur die Luftfeuchte wegen Kondensatbildung am Filter. Es wurde deshalb vereinbart, die Rohrheizung so auszulegen, dass im Luftstrom unmittelbar nach Filter eine Temperatur von 35 °C erreicht wird. Die bei den Messungen eingesetzten Ausführungen zeigen die Abbildungen 5-1 a und b. Messverfahren mit radiometrischer Staubmassenbestimmung können nicht auf Gleichwertigkeit mit Referenzmethoden

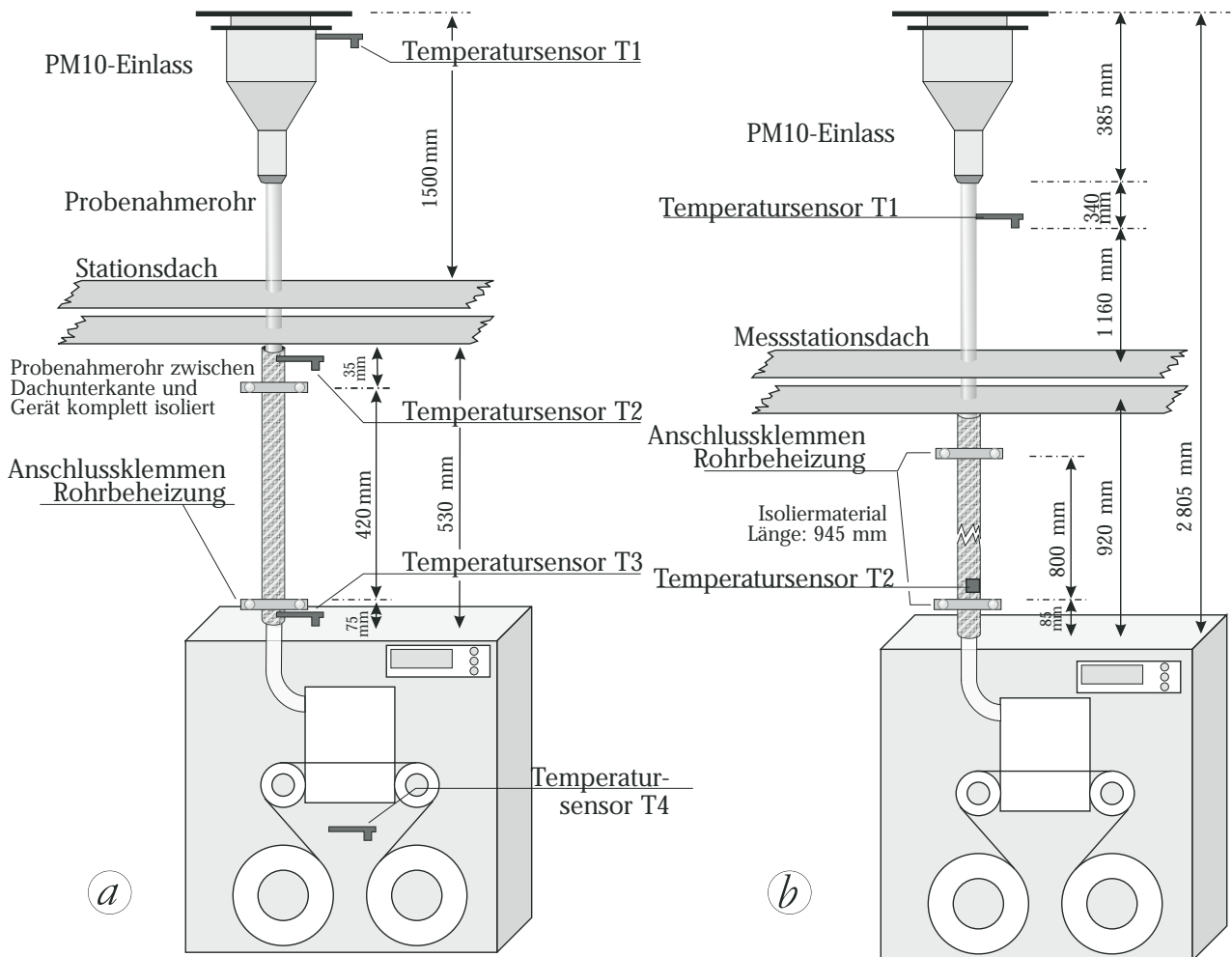


Abbildung 5-1: Skizze der Probenabmeineinrichtung für die radiometrischen Staubmessungen (FH 62-IR / FH 62-IN)

- a) Probenabmeineinrichtung der HLfU und der UMEG
- b) Probenabmeineinrichtung des LUA

der EN 12341 getestet werden. Nach dem Anwendungsbereich der EN 12341 gilt „... die Anerkennung der Gleichwertigkeit von Test- und Referenzgerät nach den in dieser Norm angegebenen Verfahren (...) nur für die Probenahme von Schwebstaub in der Außenluft. Sie beinhaltet nicht die Gleichwertigkeit üblicherweise eingesetzter automatisierter Messverfahren (wie z. B. Massenbestimmung durch  $\beta$ -Absorption oder durch Schwingungsmessung), mit denen der auf einem Sammelmedium abgeschiedene Schwebstaub bestimmt wird.“ Es ist deshalb für diese Messverfahren zweckmäßig, zunächst den Probeneinlass auf Gleichwertigkeit mit den Vorgaben der EN 12341 zu testen und dann das vollständige Messverfahren auf die Datenqualitätsziele der 1. Tochterrichtlinie.

## 5.1 Staubeinlass

Die FH 62-IN und FH 62-IR-Geräte werden mit einem PM10-Einlass der Firma Andersen ausgeliefert. Der Volumenstrom beträgt 1 m<sup>3</sup>/h (Betriebsvolumen). Der Einlass wurde im Rahmen der Untersuchungen der CEN/TC264/WG6 getestet und gleichwertig mit einem Referenzsammler eingestuft [CEN, 1998-2].

Untersuchungen der UMEG zur Präzision und Richtigkeit (siehe Anhang B 2) zeigen vergleichsweise große Abweichungen, die vermutlich auf die Wägung zurückzuführen sind. Versuche zur Präzision von Messungen mit vorgeschaltetem PM10-Einlass von Andersen und nachgeschaltetem anderen Messprinzip (vgl. Abb. 5-2 bis 5-5) zeigen wesentlich bessere Ergebnisse für die Präzision.

## 5.2 Prüfung des vollständigen Messverfahrens auf Präzision und Richtigkeit

### Vorbemerkung

Die von der Firma Eberline ausgelieferten und in den Messnetzen betriebenen  $\beta$ -Absorptionsgeräte vom Typ FH 62-IR und FH 62-IN erreichen im allgemeinen nicht die Ergebnisse, die nachstehend gezeigt sind. Wie Erfahrungen beispielsweise aus Schleswig-Holstein, Baden-Württemberg, Nordrhein-Westfalen und Berlin zeigen, treten trotz häufiger Kontrolle der Geräteparameter, der Kalibrierung mit Foliensätzen und der Überwachung des Volumenstromes nicht plausible Werte auf, deren Erkennen und Aussondern neben Erfahrung auch erheblichen personellen Aufwand erfordert. Bei der UMEG z. B. konnten die nachstehend wiedergegebenen Ergebnisse erst dann erzielt werden, als von der HLFU justierte Messeinrichtungen zur Verfügung gestellt wurden. Mit mehreren vom Vertreiber gelieferten und justierten Messeinrichtungen konnte über einen Zeitraum von fast einem Jahr kein zufriedenstellendes Ergebnis erreicht werden.

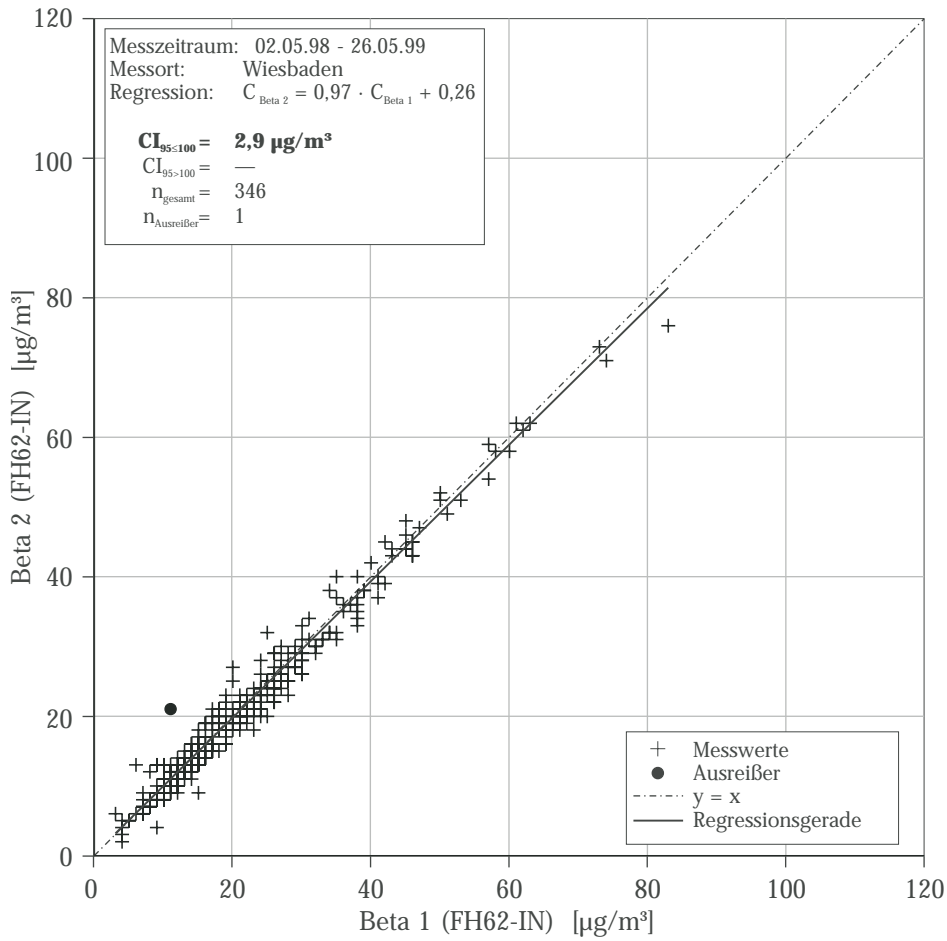
Nach Aussagen der HLFU reicht der in den Bedienungsanleitungen beschriebene und geforderte Aufwand für Wartung, Justierung und Folienkalibrierung in vielen Fällen bei weitem nicht aus. Für diese Arbeiten ist im Durchschnitt eine Gesamtzeit (Zeit zwischen Ein- und Ausgang des Gerätes) von etwa 3 bis 4 Tagen zu veranschlagen. In günstigen Fällen (bei reiner Routineüberprüfung) ist von 1 bis 2 Tagen, in schwierigen Fällen (verbunden mit größeren mechanischen und/oder elektronischen Eingriffen am Gerät) jedoch auch mit über einer Woche zu rechnen. Eine Empfehlung zur technischen Ausstattung sowie zur Wartung und zum Betrieb wird im Anhang D 6 gegeben.

### Vergleichbarkeit von Testgeräten

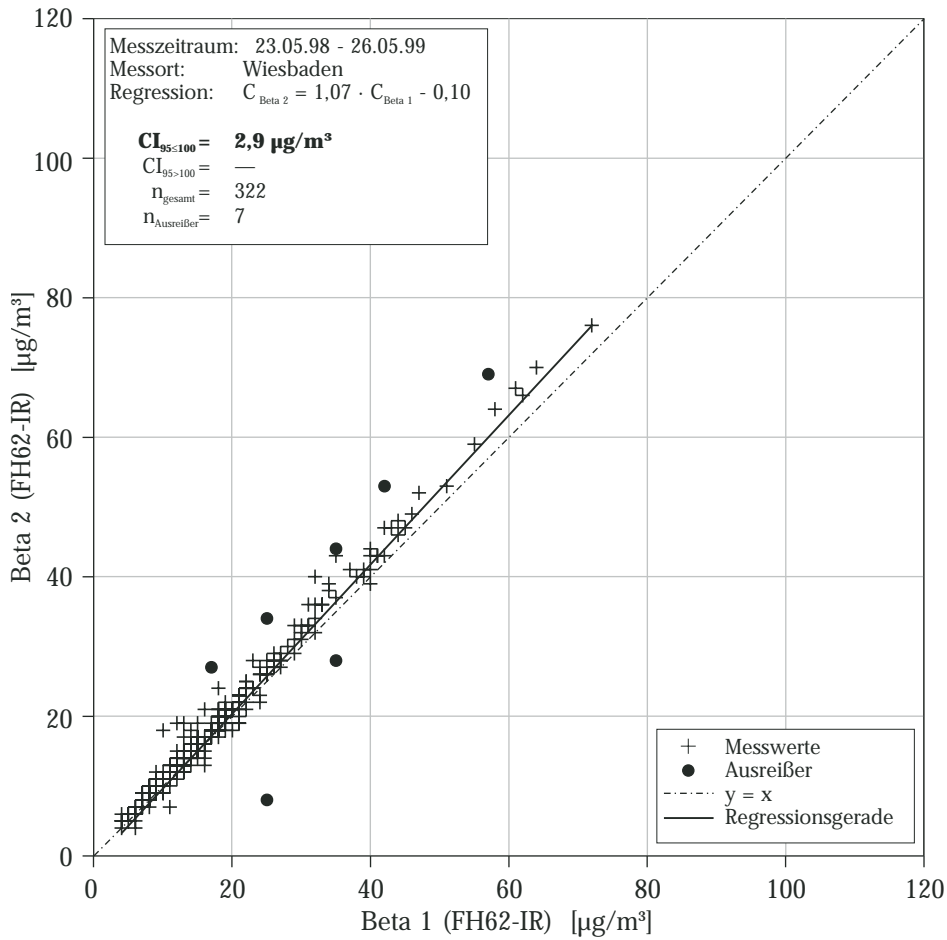
In der Tabelle 5-1 sind die Ergebnisse zur Präzision von jeweils zwei typgleichen Messgeräten aufgelistet, die in Essen, Karlsruhe und Wiesbaden eingesetzt waren. Die Ergebnisse zeigen, dass bei fachgerechter Justierung der 95%-Vertrauensbereich (CI95) für den Vergleich von Ergebnissen zweier baugleicher Geräte im Bereich bis  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$  kleiner als  $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$  ist. Grafisch sind die Ergebnisse in den Abbildungen 5-2 bis 5-5 dargestellt.

**Tabelle 5-1:** Ergebnisse der Vergleichsmessungen von jeweils typgleichen  $\beta$ -Absorptionsgeräten  
(Datenbasis: 24-Stunden-Mittelwerte)

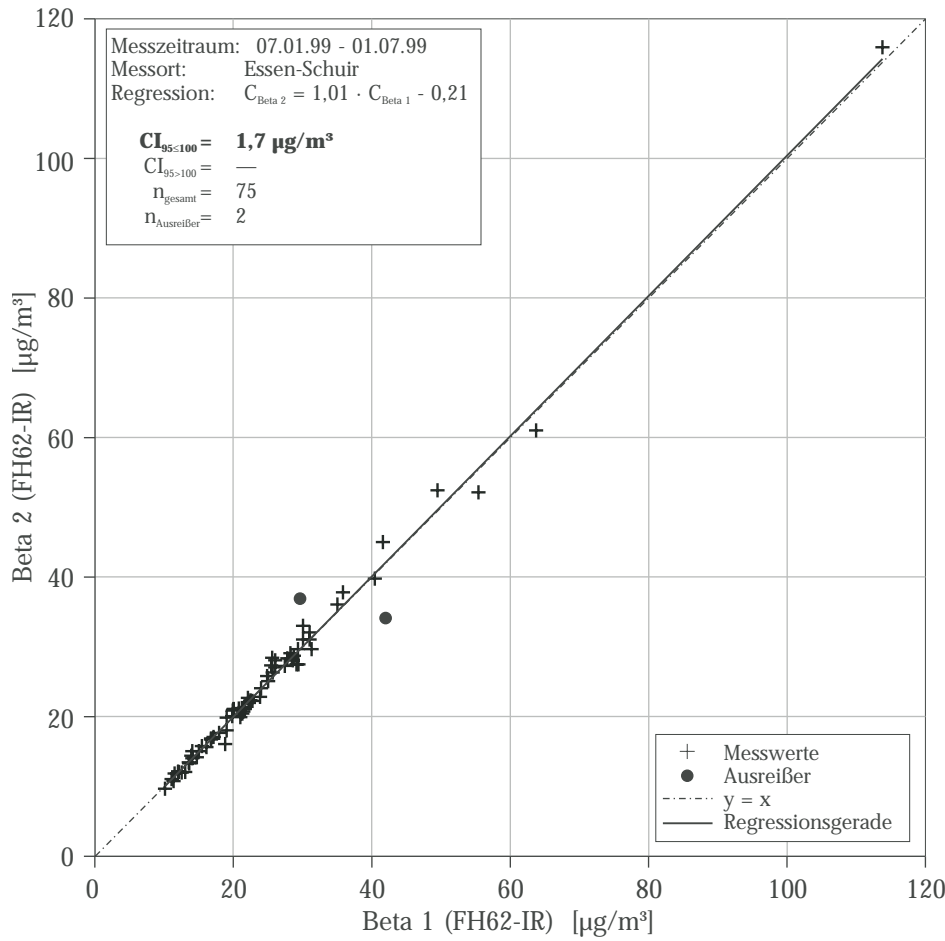
Test 1	Test 2	Steigung	Achsenabschnitt	CI95 <sub>≤100</sub> [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]	CI95 <sub>&gt;100</sub> [%]	n <sub>ges.</sub>	n <sub>Ausr.</sub>	Zeitraum	Messort	Abbildung
FH 62-IN (1)	FH 62-IN (2)	0,95	2,49	<b>3,0</b>	—	177	3	04.11.98-30.04.99	KA-Nordwest	5-5
FH 62-IR (1)	FH 62-IR (2)	1,01	-0,21	<b>1,7</b>	—	75	2	07.01.99-01.07.99	Essen-Schuir	5-4
FH 62-IR (1)	FH 62-IR (2)	1,07	-0,10	<b>2,9</b>	—	322	7	23.05.98-26.05.99	Wiesbaden	5-3
FH 62-IN (1)	FH 62-IN (2)	0,97	0,26	<b>2,9</b>	—	346	1	02.05.98-26.05.99	Wiesbaden	5-2



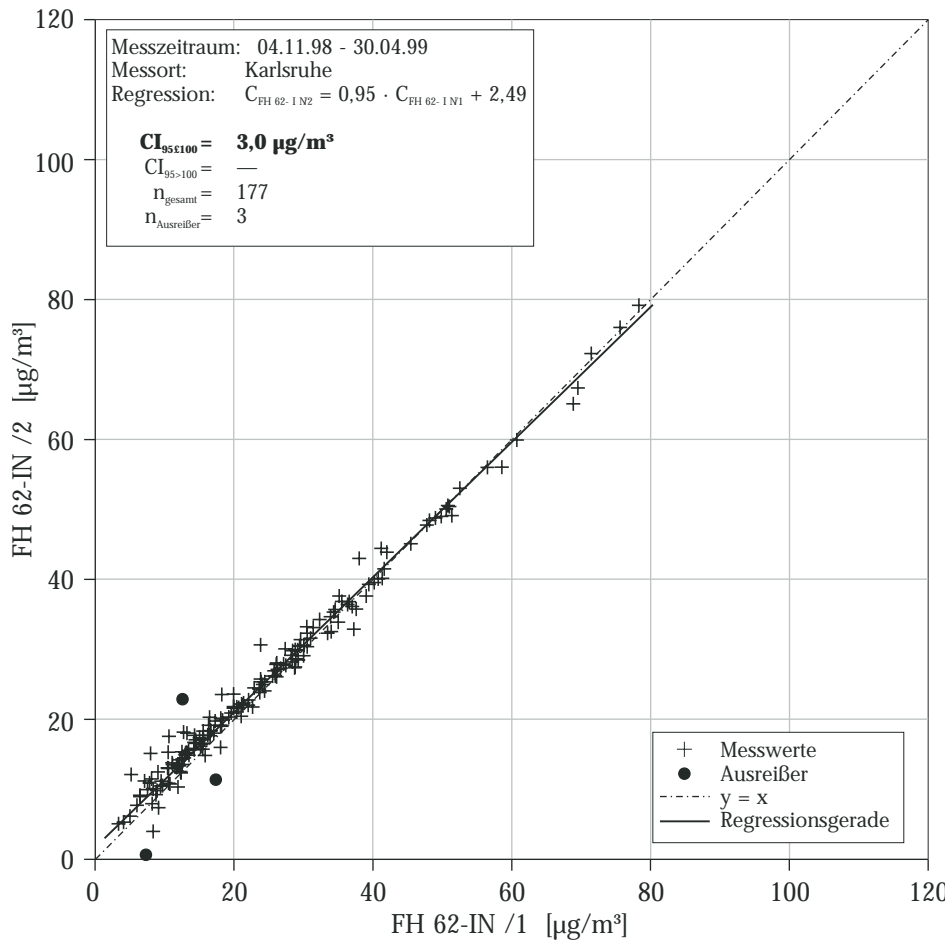
**Abbildung 5-2:**  
 Vergleich zweier FH 62 IN-Staubmessgeräte  
 (Ergebnisse der HLfU)



**Abbildung 5-3:**  
 Vergleich zweier FH 62 IR-Staubmessgeräte  
 (Ergebnisse der HLfU)



**Abbildung 5-4:**  
 Vergleich zweier FH 62-IR-Staubmessgeräte  
 (Ergebnisse des LUA)



**Abbildung 5-5:**  
 Vergleich zweier FH 62-IN-Staubmessgeräte  
 (Ergebnisse der UMEG)

### Vergleichbarkeit der Ergebnisse von Testgerät und Referenzmethode

Zur Prüfung der Richtigkeit radiometrischer FH 62-IN und FH 62-IR Geräte wurden in Essen, Karlsruhe und Wiesbaden Vergleichsmessungen mit Referenzsammlern und Äquivalenzsammlern durchgeführt. Den Versuchsumfang zeigt die Tabelle 5-2. Die Ergebnisse sind in der Tabelle 5-3 aufgelistet und auszugsweise in den folgenden Abbildungen 5-6 bis 5-9 dargestellt.

Die Bestimmtheitsmaße  $R^2$  der berechneten Referenz-Test-Funktionen erreichen nur teilweise den Wert von 0,95.

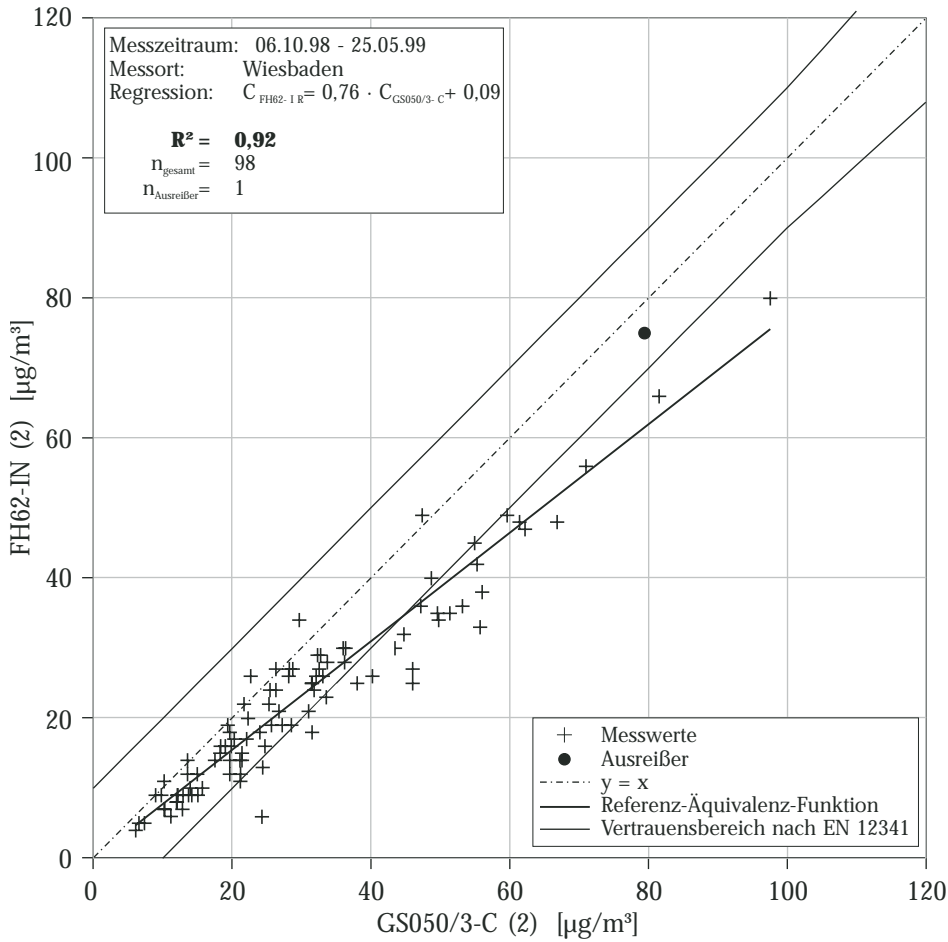
**Tabelle 5-2:** Umfang der Versuche zur Richtigkeit der  $\beta$ -Adsorption

	Hessen (HLfU) Wiesbaden	Nordrhein-Westfalen (LUA) Essen-Schuir	Baden-Württemberg (UMEG) Karlsruhe-Nordwest
Referenz-/Äquivalenz-Gerät	2 GS050/3-C	2 LVS3	1 DHA-80
Testgeräte	2 FH 62-IR 2 FH 62-IN	2 FH 62-IR	2 FH 62-IN

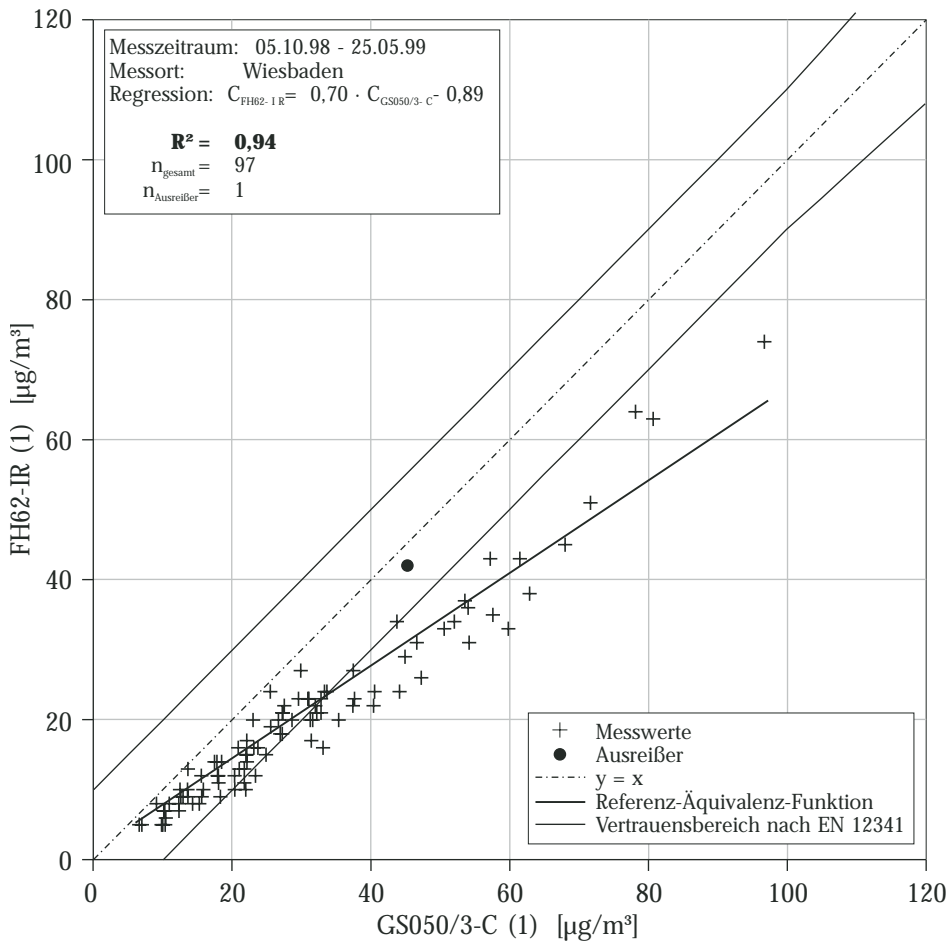
**Tabelle 5-3:** Ergebnisse der Vergleichsmessungen von  $\beta$ -Messgeräten und gravimetrischen Messgeräten

Referenz- gerät	Testgerät	Steigung	Achsen- abschnitt	$R^2$	$n_{\text{ges.}}$	$n_{\text{Ausr.}}$	Zeitraum	Messort	Abbildung
DHA-80 (1)	FH-62 IN (1)	0,72	0,08	<b>0,98</b>	174	2	04.11.98 - 30.04.99	KA-Nordwest	5-9
DHA-80 (1)	FH-62 IN (2)	0,68	2,57	<b>0,95</b>	174	1	04.11.98 - 30.04.99	KA-Nordwest	
LVS3 (2)	FH-62 IR (1)	0,63	2,72	<b>0,81</b>	56	1	07.01.99 - 01.07.99	Essen-Schuir	5-8
LVS3 (1)	FH-62 IR (2)	0,59	3,73	<b>0,77</b>	53	1	07.01.99 - 01.07.99	Essen-Schuir	
GS050/3-C (1)	FH-62 IR (1)	0,70	-0,89	<b>0,94</b>	97	1	05.10.98 - 25.05.99	Wiesbaden	5-7
GS050/3-C (1)	FH-62 IR (2)	0,78	-1,33	<b>0,92</b>	100	1	05.10.98 - 25.05.99	Wiesbaden	
GS050/3-C (1)	FH-62 IN (1)	0,80	-0,63	<b>0,91</b>	97	1	05.10.98 - 25.05.99	Wiesbaden	
GS050/3-C (1)	FH-62 IN (2)	0,76	0,22	<b>0,91</b>	101	1	05.10.98 - 25.05.99	Wiesbaden	
GS050/3-C (2)	FH-62 IR (1)	0,71	-0,85	<b>0,95</b>	94	0	06.10.98 - 25.05.99	Wiesbaden	
GS050/3-C (2)	FH-62 IR (2)	0,78	-1,35	<b>0,93</b>	97	0	06.10.98 - 25.05.99	Wiesbaden	
GS050/3-C (2)	FH-62 IN (1)	0,80	-0,23	<b>0,93</b>	94	1	06.10.98 - 25.05.99	Wiesbaden	
GS050/3-C (2)	FH-62 IN (2)	0,76	0,09	<b>0,92</b>	98	1	06.10.98 - 25.05.99	Wiesbaden	5-6

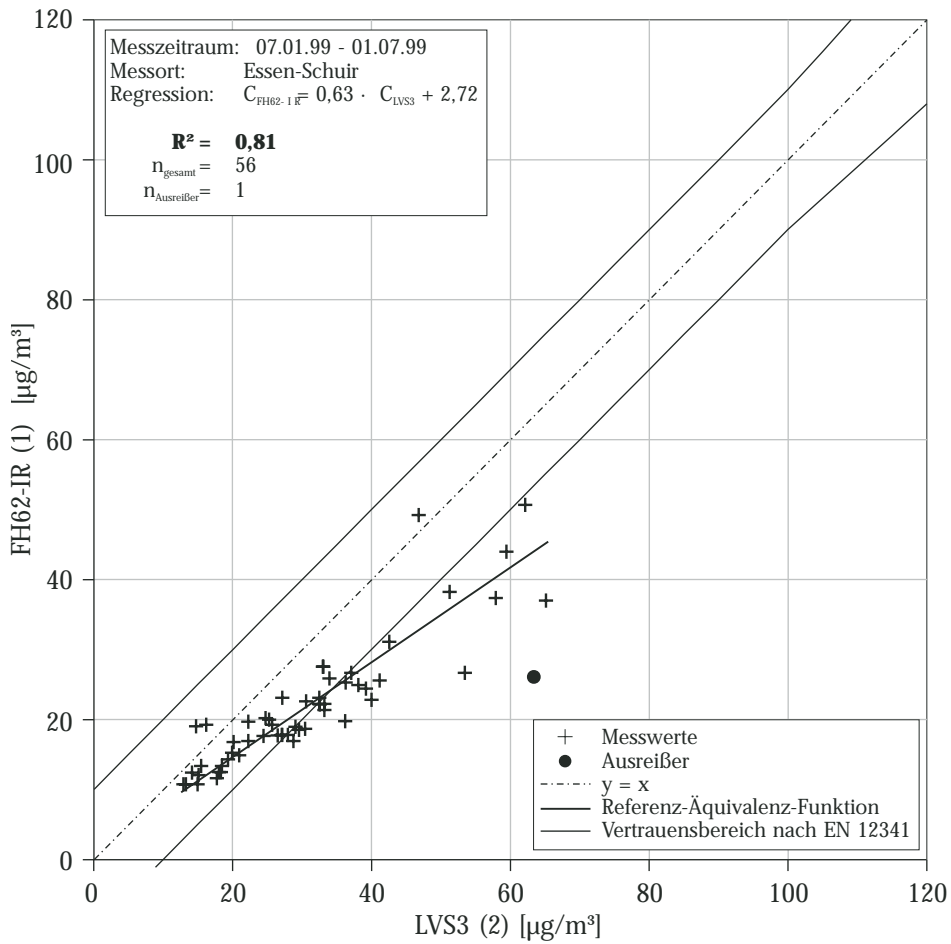
Die Steigungen der Referenz-Äquivalenzfunktion liegen zwischen 0,6 und 0,8. Da die Achsenabschnitte in der Regel klein sind, werden sie bei der Umkehrfunktion vernachlässigt. Die Standardabweichung der Steigungen beträgt  $\pm 0,02$ . Es kann aus den Ergebnissen nicht geschlossen werden, ob die Steigungsstreuung geräte- oder standortspezifisch ist. **Dabei ist zu beachten, dass zur Kalibrierung bei allen Geräten der selbe Foliensatz verwendet wurde.**



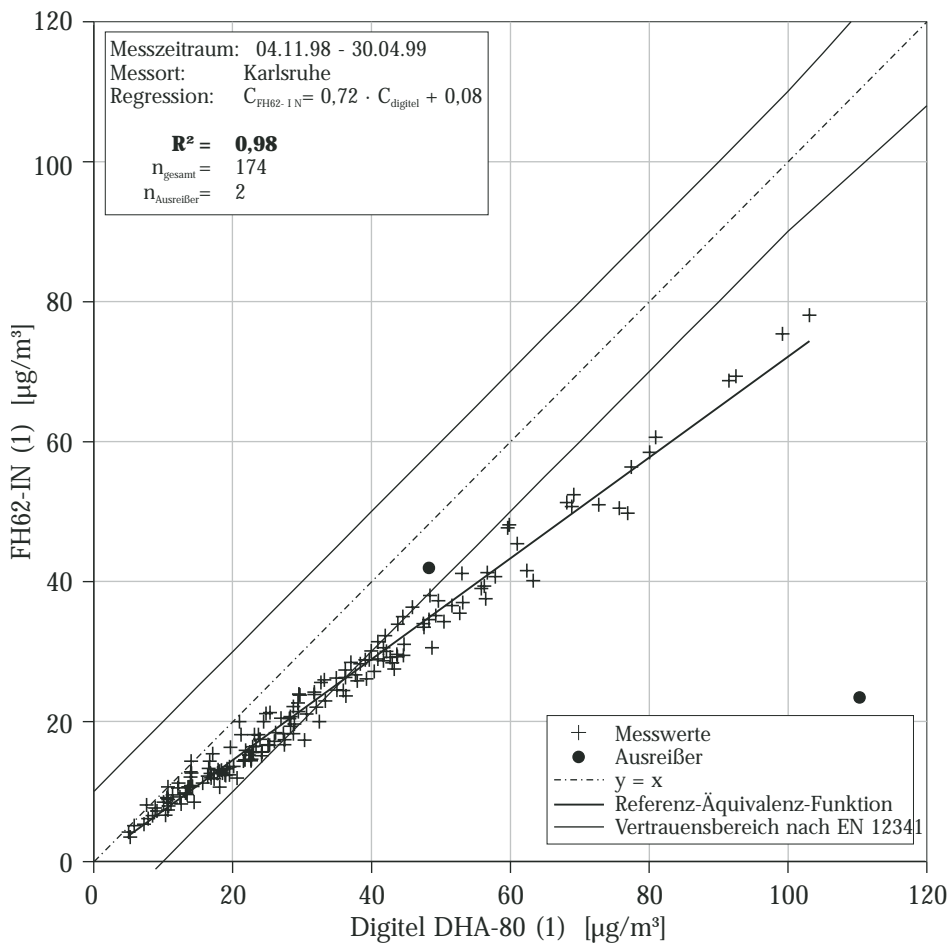
**Abbildung 5-6:**  
 Vergleich zwischen FH 62-IN und GS050/3-C  
 (Ergebnisse der HLfU)



**Abbildung 5-7:**  
 Vergleich zwischen FH 62-IR und GS050/3-C  
 (Ergebnisse der HLfU)



**Abbildung 5-8:**  
 Vergleich zwischen FH 62-IR und LVS3  
 (Ergebnisse des LUA)



**Abbildung 5-9:**  
 Vergleich zwischen FH 62-IN und Digital DHA-80  
 (Ergebnisse der UMEG)

### 5.3 Prüfung der radiometrischen Messungen hinsichtlich der Datenqualitätsziele der 1. Tochterrichtlinie

Bei Schwebstaub-Konzentrationen oberhalb der oberen Beurteilungsschwelle wird in der EU-Richtlinie 1999/30/EG bei einer Aussagesicherheit von 95 % eine „Genauigkeit“ (siehe unten) von 25 % im Bereich der Grenzwertkonzentration gefordert. Für die Fraktion PM10 des Schwebstaubes sind in der 1. Tochterrichtlinie zwei Grenzwerte festgelegt. Derzeit sind einschließlich der Toleranzmargen 48 µg/m<sup>3</sup> bzw. 75 µg/m<sup>3</sup> die Bezugswerte, mit einer linearen Reduzierung auf 40 µg/m<sup>3</sup> bzw. 50 µg/m<sup>3</sup> im Jahr 2005.

Damit ist für den heute geltenden Wert für den Jahresmittelwert von 48 µg/m<sup>3</sup> (40 µg/m<sup>3</sup> + 20 % Toleranzmarge) eine absolute „Genauigkeit“ von ±12 µg/m<sup>3</sup> (25 % von 48 µg/m<sup>3</sup>) einzuhalten. Ab 1. Januar 2005 gilt dann die „Genauigkeit“ von ±10 µg/m<sup>3</sup> (25 % von 40 µg/m<sup>3</sup>). Für den 24-Stundenmittelwert ist heute eine absolute „Genauigkeit“ von ±19 µg/m<sup>3</sup>, ab 1. Januar 2005 von ±13 µg/m<sup>3</sup> einzuhalten.

In Anhang VIII der 1. Tochterrichtlinie wird unter Punkt I ‘Datenqualitätsziele’ hinsichtlich der „Genauigkeit“ ausgeführt: *„Die Prozentangaben in der Tabelle (Anm.: 25 %) gelten für Einzelmessungen, gemittelt über den betreffenden Zeitraum in Bezug auf den Grenzwert bei einem Vertrauensbereich von 95 % (systematische Abweichung + zweimalige Standardabweichung).“*

Daraus ist zu schließen, dass als Maß für die „Genauigkeit“ die erweiterte Unsicherheit (p=0,95) gemeint ist. In zukünftigen Tochterrichtlinien sollte der Begriff „Genauigkeit“ durch das Wort „Unsicherheit“ ersetzt werden.

Auf der Grundlage des vorliegenden Datenmaterials kann zunächst nur die Messunsicherheit für 24-Stundenmittelwerte abgeschätzt werden. Diese setzt sich zusammen aus der Standardunsicherheit ( $V_R$ ) für einen erwarteten 24-Stunden-Mittelwert, wie er sich aus der Regressionsbeziehung zwischen Referenzgeräten und Testgeräten ergibt, und aus der Standardunsicherheit des Korrekturfaktors K ( $V_K$ ). Da beide Unsicherheiten unabhängig und zufälliger Natur sind, ergibt sich die erweiterte Unsicherheit (p=0,95) nach dem Fehlerfortpflanzungsgesetz zu:

$$V_{GE} = t_{(0,95;n-2)} \cdot \sqrt{(V_R)^2 + (V_K)^2}$$

### 5.3.1 Unsicherheit bei Ermittlung der Kalibrierfunktion durch Vergleichsmessungen mit einer Referenzmethode am Messort

Bei Ermittlung der Kalibrierfunktion durch Vergleichsmessungen mit einer Referenzmethode am Messort kann die Standardabweichung für die systematische Abweichung ( $V_K$ ) nur mit großem Aufwand festgestellt werden (z. B. durch Ermittlung der Kalibrierfunktion). Durch die Messwertestreuung im Bezug auf das Referenzverfahren ist die kombinierte Messunsicherheit jedoch direkt zugänglich, da das Referenzverfahren per Konvention keinen systematischen Fehler enthalten kann. Die Messunsicherheit lässt sich durch folgende Methoden ermitteln:

- a) Kenngröße für die Streuung der Einzelwerte um den durch die Referenz-Test-Funktion ausgedrückten Idealwert ist die **Standardabweichung für einen weiteren Beobachtungswert  $s_y$**  (nach VDI 2449 Blatt 1). Die erweiterte Messunsicherheit ( $p=0,95$ ) ergibt sich als  $V_y = t_{n-2;0,95} \cdot S_y$ .
- b) Fasst man die Vergleichsmessung mit der Referenzmethode als Doppelbestimmung auf, kann alternativ die **Standardabweichung der Doppelbestimmung  $s_D$**  als Kenngröße der Einzelwertstreuung herangezogen werden. In diesem Fall ist der 95%-Vertrauensbereich  $V_D = u_{0,975} \cdot s_D$  mit  $u_{0,975} = 1,96$

Die Messgröße des Testgerätes wird zur Berechnung des Messwertes mit der jeweiligen gerätetypischen Steigung korrigiert.

In Tabelle 5-4 sind für die hier eingesetzten Testgeräte die 95%-Vertrauensbereiche im Bereich der Konzentrationen von  $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,  $48 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  und  $75 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , die nach den beiden oben beschriebenen Verfahren a) bzw. b) ermittelt wurden, eingetragen. Die Ergebnisse zeigen, dass bei der Ermittlung der Referenz-Äquivalenz-Funktion am Messort die radio-metrischen Messgeräte die Datenqualitätsziele der 1. Tochterrichtlinie bei der Ermittlung von 24-Stunden-Mittelwerten, bei einem Grenzwert von  $75 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , alle erfüllen. Bei dem ab 1. Januar 2005 geltenden 24-Stunden-Grenzwert von  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  erfüllen zwei der acht Geräte die Datenqualitätsziele der 1. Tochterrichtlinie nicht.

Dabei wird darauf verwiesen, dass diese beiden Geräte die Anforderungen an die Präzision erst nach Modifikation erfüllten, sich dabei aber die Richtigkeit verschlechtert hat. Dies zeigt, dass die Betriebsbedingungen z. B. Temperatur der Heizung, Länge der Rohrheizung und u.U. auch die Zusammensetzung des Aerosols einen Einfluss auf das  $\beta$ -Messergebnis haben (siehe Anhang D 6).

**Tabella 5-4:** Kenngrößen der Vergleichsmessungen Radiometrie gegen Gravimetrie (Einzelwerte der Radiometrie wurden mit der für das jeweilige Gerät ermittelten Steigung korrigiert)

Testgerät	Referenz/- Äquivalen- gerät	Steigung	Achsen- abschnitt	Anzahl der Wertepaare	mittlere Konz. Referenzgerät [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]	$s_y$	Vertrauensbereich $V_y$ für den zukünftigen Beobachtungswert				$S_D$ aus Doppelbest.	$V_D$	Abbildung
							40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	48 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	75 $\mu\text{g}/\text{m}^3$			
FH 62-IN (2)	Digital DHA-80 (1)	0,72	0,08	172	32,60	2,81	5,56	5,57	5,57	5,63	1,98	3,88	5-9
FH 62-IN (1)	Digital DHA-80 (1)	0,68	2,57	172	32,80	4,41	8,73	8,74	8,75	8,84	4,09	8,02	
FH 62-IR (1)	LVS3 (1)	0,63	2,72	55	30,30	6,38	12,97	13,12	13,17	14,23	5,34	10,47	5-8
FH 62-IR (2)	LVS3 (1)	0,59	3,73	52	29,70	6,79	13,86	14,06	14,13	15,50	6,55	12,84	
FH 62-IR (1)	GS050/3-C (1)	0,70	-0,89	96	29,85	4,55	9,10	9,13	9,14	9,37	3,28	6,43	5-7
FH 62-IR (2)	GS050/3-C (1)	0,78	-1,33	100	30,30	5,25	10,49	10,52	10,53	10,79	3,89	7,62	
FH 62-IN (1)	GS050/3-C (1)	0,80	-0,63	97	30,30	5,65	11,29	11,33	11,34	11,62	3,98	7,80	
FH 62-IN (2)	GS050/3-C (1)	0,76	0,22	100	29,65	5,41	10,81	10,85	10,86	11,15	3,76	7,37	
FH 62-IR (1)	GS050/3-C (2)	0,71	-0,85	93	30,40	4,46	8,92	8,95	8,96	9,18	3,25	6,37	
FH 62-IR (2)	GS050/3-C (2)	0,78	-1,35	96	30,70	4,88	9,75	9,79	9,80	10,03	3,63	7,11	
FH 62-IN (1)	GS050/3-C (2)	0,80	-0,23	92	30,80	5,12	10,24	10,27	10,28	10,54	3,59	7,04	
FH 62-IN (2)	GS050/3-C (2)	0,76	0,09	96	30,00	5,07	10,13	10,17	10,18	10,45	3,56	6,98	5-6
geforderte Genauigkeit (Unsicherheit) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ nach der 1. TRL						<b>10,0</b>	<b>12,0</b>	<b>12,5</b>	<b>18,8</b>				
							10	12	13	19			

### 5.3.2 Unsicherheit bei Ermittlung der Kalibrierfunktion durch Verwenden einer mittleren Steigung (ohne Vergleichsmessung mit einer Referenzmethode am Messort)

#### Ermitteln des Korrekturfaktors $K$ und dessen Vertrauensbereiches $V_K$

An den Vergleichsmessungen waren insgesamt acht verschiedene radiometrische Geräte eingesetzt (4 in Wiesbaden, je 2 in Karlsruhe und Essen). Da in Wiesbaden 2 Referenzgeräte (GS050/3-C) zur Verfügung standen, ergeben sich insgesamt 12 voneinander unabhängige Vergleichsmessungen. Für jedes Gerätepaar (Test-/Referenzgerät) wurde die Steigung der Referenz-Test-Funktion ermittelt. Die Parameter der Geraden sind in Tabelle 5-4 aufgelistet.

Die Angabe einer mittleren Steigung wurde ausführlich diskutiert. Der Erfahrungsaustausch kam zu dem Schluss, dass aufgrund der Ergebnisse die Ermittlung der Äquivalenz-Referenzfunktion am Messort dringend zu empfehlen ist und ein gemeinsamer Steigungsfaktor unter wissenschaftlichen Gesichtspunkten nicht vertretbar ist.

Dennoch sollte die kontinuierliche Schwebstaubmessung mit vorhandenen radiometrischen Messgeräten nicht eingestellt werden, da die zeitnahen Ergebnisse, z. B. besondere Ereignisse, sofort erkennen lassen und eine Information der Öffentlichkeit ermöglichen. Ob der zum Erreichen eines Messergebnisses, das den Datenqualitätszielen der 1. Tochterrichtlinie entspricht, notwendige Aufwand unter Beachtung der Regelung von Staubinhaltsstoffen in weiteren Tochterrichtlinien zukünftig lohnt, bleibt eine Einzelfallentscheidung.

## 6 ERGEBNISSE WEITERER UNTERSUCHUNGEN

### 6.1 Einfluss der Fettung auf das Ergebnis

Um ein korrektes Abscheideverhalten eines Proben-Einlasses zu erreichen, müssen die Prallplatten der Vorabscheider regelmäßig eingefettet werden. Aufgrund des für die Fettung notwendigen Arbeitsaufwandes und insbesondere des 'Wartungszyklus' ist für den Betrieb von Staub-Probensammlern das Wartungsintervall der notwendigen Fettungen interessant. Über den Zeitraum von etwa 3 Monaten wurden

- a) zwei Digitel High-Volume-Sampler mit Digitel-PM2,5-Vorabscheidern
- b) zwei GS050/3-C Kleinfiltergeräte mit Derenda-PM2,5-Vorabscheidern

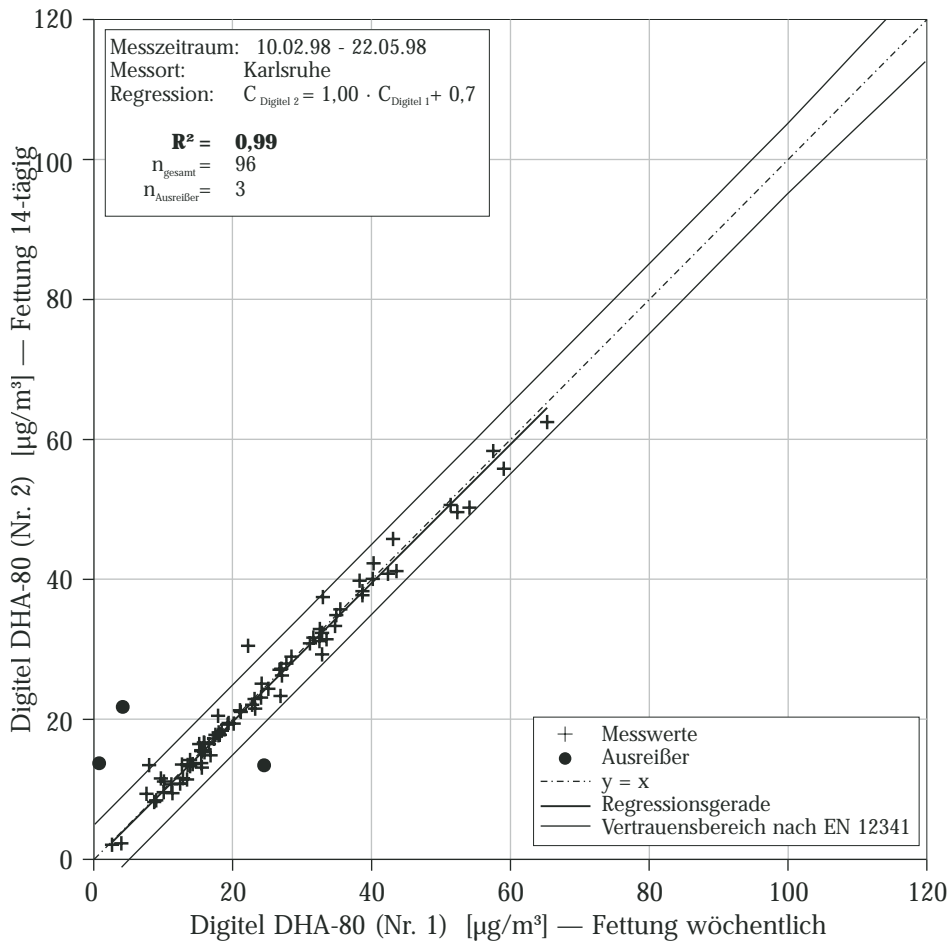
parallel betrieben. Probenahmen wurden täglich außer Samstag und Sonntag durchgeführt.

Jeweils einer der Probenahmeköpfe wurde wöchentlich mit Siliconpaste mittelviskos von Bayer gefettet, der andere nur alle zwei Wochen. Abbildung 6-1 zeigt die Vergleichbarkeit (Genauigkeit) der Messungen mit Digitel High-Volume-Samplern, Abbildung 6-2 die Ergebnisse der Messungen mit Kleinfiltergeräten GS050/3-C. Als Referenz wurde jeweils die einwöchige Fettung angenommen.

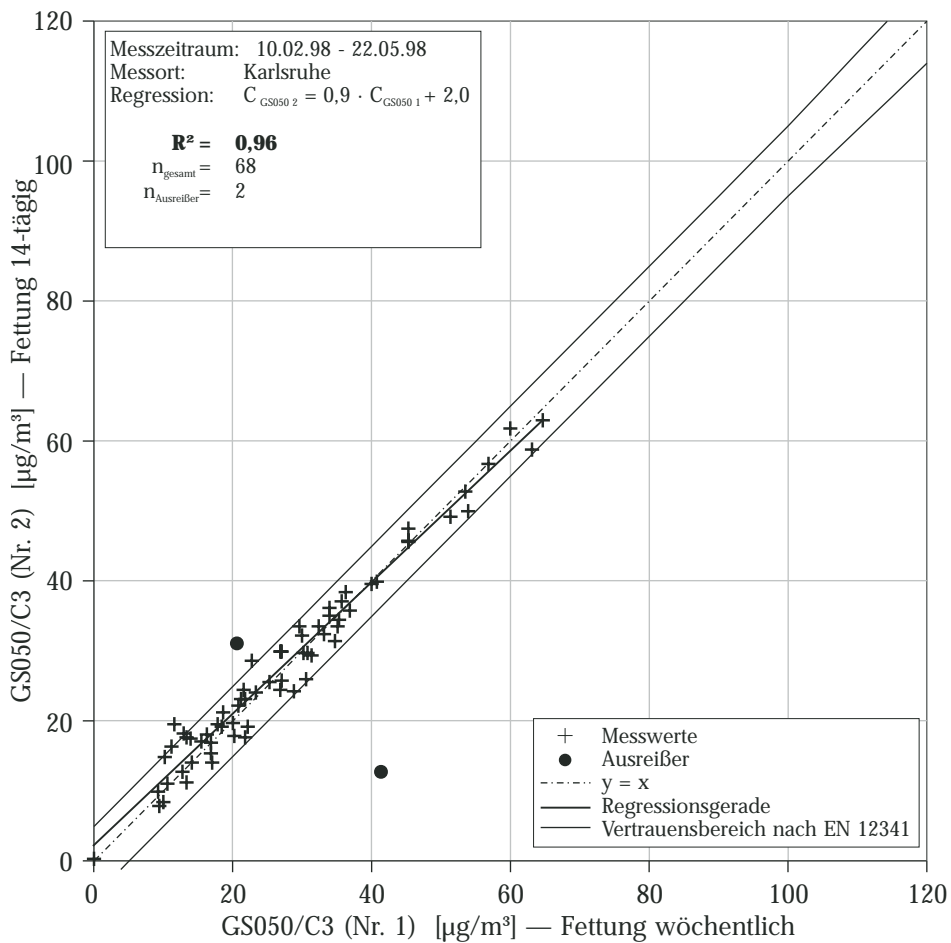
Sowohl bei den Vergleichsmessungen mit Digitel-High-Volume-Samplern als auch bei den Vergleichsmessungen mit GS050/3-C Kleinfiltergeräten liegt die berechnete Regressionsgerade deutlich innerhalb des zweiseitigen Vertrauensbereich (nach EN 12341). Die Bestimmtheitsmaße von  $R^2 = 0,99$  bei Digitel und  $R^2 = 0,96$  bei GS050/3-C liegen außerdem beide über dem in der EN 12341 geforderten Wert von 0,95.

Damit zeigt sich, dass bei beiden Probeneinlässen keine Abhängigkeit der Messergebnisse vom untersuchten Intervall der Fettung der Prallplatten im Probeneinlass festgestellt werden konnte.

Der Staubanfall im Probeneinlass ist bei PM2,5 größer als bei PM10, so dass diese Ergebnisse auf PM10 übertragbar sind. Dies bestätigt die Ergebnisse früherer Versuche. Dabei konnte bei PM10-Probeneinlässen (DHA-80) bei 2- und 4-wöchiger Fettung kein Einfluss auf das Ergebnis festgestellt werden (siehe Anhang B 3).



**Abbildung 6-1:**  
 Vergleich zwischen zwei Digital  
 DHA-80 mit PM<sub>2,5</sub>-Einlass  
 Gerät 1: Fettung wöchentlich  
 Gerät 2: Fettung 14-Tägig  
 (Ergebnisse der UMEG)



**Abbildung 6-2:**  
 Vergleich zwischen zwei GS050/3-  
 C mit PM<sub>2,5</sub>-Einlass  
 Gerät 1: Fettung wöchentlich  
 Gerät 2: Fettung 14-Tägig  
 (Ergebnisse der UMEG)

## 6.2 Untersuchungen zur Messung von PM<sub>2,5</sub> — erste Ergebnisse

In Karlsruhe wurden für die Erprobung von Sammeltechniken zu PM<sub>2,5</sub> Kleinfiltergeräte Typ GS050/3-C mit MFC-Volumenstromregelung und zwei Digital DHA-80 eingesetzt.

In Essen wurden ein Kleinfiltergerät Typ LVS3 und ein Digital DHA-80 mit PM<sub>2,5</sub>-Probenahme parallel betrieben.

Die Untersuchungen erfolgten in Anlehnung an die EN 12341.

Die Kenngrößen der durchgeführten Vergleichsmessungen sind in Tabelle 6-1 zusammengefasst.

**Tabelle 6-1:** Zusammenfassung der Ergebnisse von PM<sub>2,5</sub>-Vergleichsmessungen

Gerät 1	Gerät 2	Steigung	R <sup>2</sup>	CI95 <sub>≤100</sub> [µg/m <sup>3</sup> ]	CI95 <sub>&gt;100</sub> [%]	Regression innerhalb des Vertrauensbereichs	n <sub>ges.</sub>	n <sub>Ausr.</sub>	Zeitraum
<b>Karlsruhe-Nordwest</b>									
GS050/3-C (1)	GS050/3-C (2)	1,00	0,98	<b>3,7</b>	—	ja	75	5	02.02.98 - 22.05.98
Digitel (1)	Digitel (2)	0,99	0,99	<b>2,9</b>	—	ja	88	3	21.01.98 - 04.06.98
GS050/3-C (1)	Digitel (1)	0,99	<b>0,93</b>	6,30	—	<b>ja</b>	73	1	02.02.98 - 22.05.98
GS050/3-C (1)	Digitel (2)	1,01	<b>0,96</b>	4,97	—	<b>ja</b>	72	0	02.02.98 - 22.05.98
GS050/3-C (2)	Digitel (1)	0,99	<b>0,92</b>	6,80	—	<b>ja</b>	73	3	02.02.98 - 22.05.98
GS050/3-C (2)	Digitel (2)	1,01	<b>0,94</b>	6,10	—	<b>ja</b>	72	2	02.02.98 - 22.05.98
<b>Essen-Schuir</b>									
LVS3	Digitel	0,95	<b>0,96</b>	3,64	—	<b>ja</b>	50	1	16.03.99-28.06.99

*Die nach EN 12341 geforderten Kriterien sind fett gedruckt*

Die Ergebnisse zeigen, dass bei Übertragen der Vorgaben der EN 12341 an PM<sub>10</sub>-Sampler auf PM<sub>2,5</sub>-Vorabscheider die beiden GS050/3-C (Low-Volume-Sampler) sowie die beiden Digital (High-Volume-Sampler) die geforderten Kriterien für die Präzision erreichen. Sie liegt beim Digital bei CI95<sub>≤100</sub> = 2,9 µg/m<sup>3</sup> und beim GS050/3-C bei CI95<sub>≤100</sub> = 3,7 µg/m<sup>3</sup> (gefordert nach EN 12341: CI95<sub>≤100</sub> ≤ 5 µg/m<sup>3</sup>).

Alle Einzelergebnisse zur Richtigkeit liegen innerhalb des Vertrauensbereichs von ±10 µg/m<sup>3</sup>. Auch die Bestimmtheitsmaße R<sup>2</sup> werden teilweise erreicht.

### 6.3 Einfluss der Rohrlänge auf das Ergebnis für PM10 und PM2,5

Bisweilen wurde der Einfluss der Rohrlänge bis zum Abscheidemedium auf das Ergebnis der Staubbmessung widersprüchlich diskutiert.

Partikel können durch Konvektion und Diffusion an die Rohrwand gelangen und dort abgeschieden werden.

In Stuttgart und Essen wurden Digital DHA-80-Geräte mit verschiedenen Rohrlängen zwischen Vorabscheider PM10 bzw. PM2,5 und Filter eingesetzt. Die Ansaughöhe lag auf gleicher Ebene. Der Rohrdurchmesser betrug 40 mm und der Luftdurchsatz 30 m<sup>3</sup>/h. Die Reynoldszahl ergibt sich zu  $Re = 17530$ .

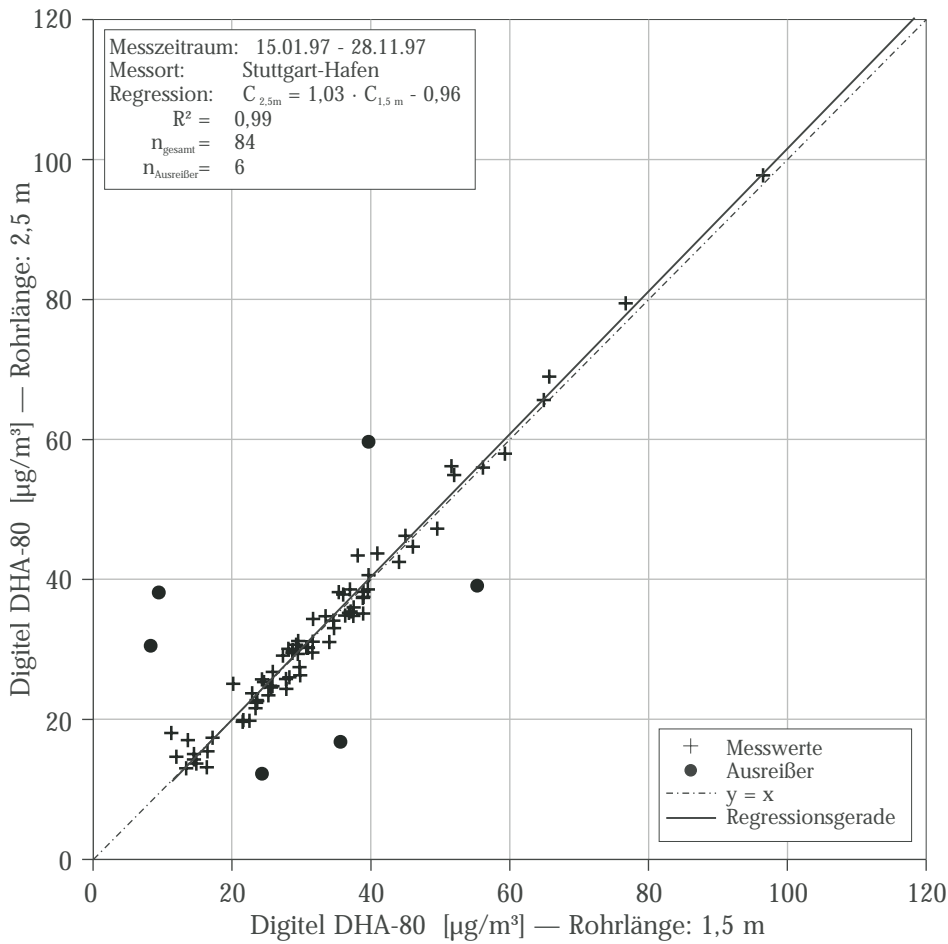
Die Versuchsdaten und Ergebnisse sind in der Tabelle 6-2 zusammengefasst und beispielhaft für Stuttgart und Essen in den Abbildungen 6-3 und 6-4 gezeigt.

Ein Einfluss der Rohrlänge auf das Ergebnis konnte nicht festgestellt werden.

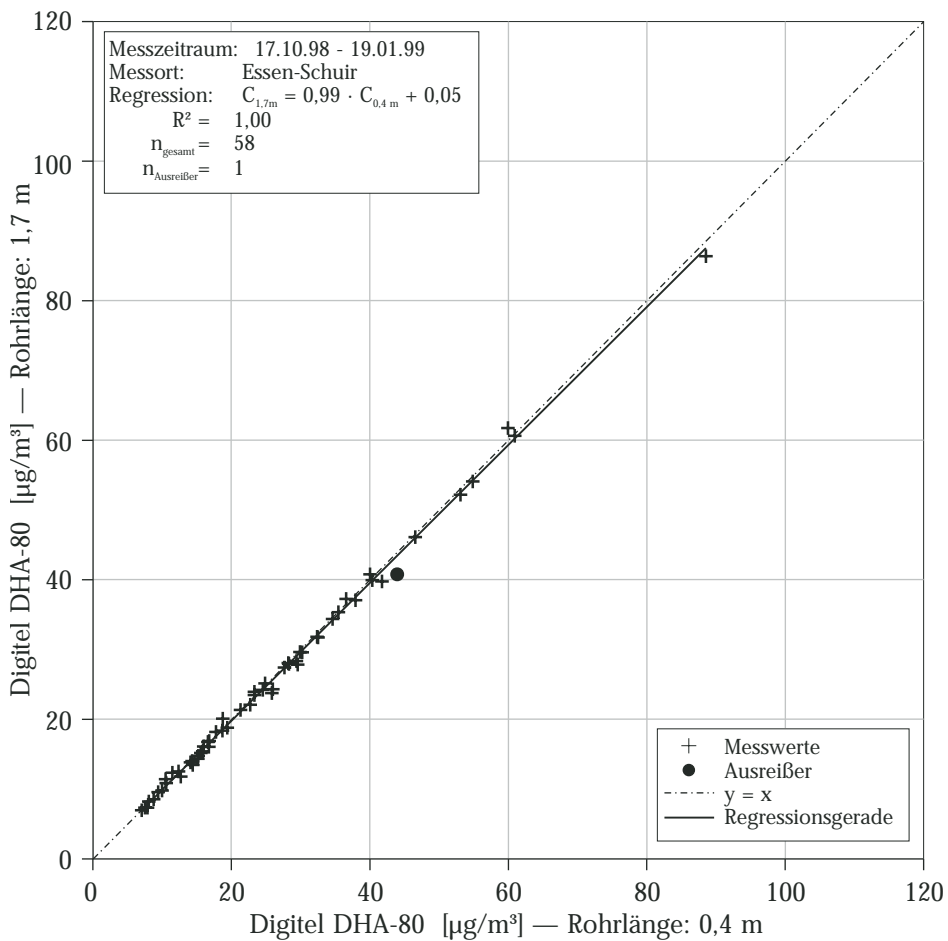
**Tabelle 6-2:** Zusammenfassung der Ergebnisse von Vergleichsmessungen im Digital DHA-80 mit verschieden langen Probenabmerohren

Gerät 1	Gerät 2	Einlass	Steigung	Achsenabschnitt	R <sup>2</sup>	CI95 <sub>≤100</sub> [µg/m <sup>3</sup> ]	CI95 <sub>&gt;100</sub> [%]	n <sub>ges.</sub>	n <sub>Ausr.</sub>	Zeitraum	Messort
DHA80 -1,5m	DHA80 -2,5m	PM10	1,03	-0,96	0,99	3,06	-	84	6	15.01.97 -28.11.97	Stgt-Hafen
DHA80 -1,5m	DHA80 -0,1m	PM10	1,05	-0,64	0,99	3,28	-	73	5	30.08.97 -27.01.98	Stgt-Hafen
DHA80 -0,1m	DHA80 -2,5m	PM10	1,03	-1,95	1,00	2,09	-	31	6	30.08.97 -18.11.97	Stgt-Hafen
DHA80 -0,4m	DHA80 -1,7m	PM10	0,97	0,10	0,99	1,80	-	73	1	23.07.98 -15.10.98	Essen-Schuir
DHA80 -0,4m	DHA80 -1,7m	PM2,5	0,99	0,05	1,00	1,15	-	58	1	17.10.98 -19.01.99	Essen-Schuir

An der Berliner Stadtautobahn wurden zwei Kleinfiltergeräte mit (identischen) Gesamtstaub-Probenahmeköpfen für die Versuche eingesetzt (Anhang A 2). Bei einem Gerät wurde das Filter direkt hinter dem Einlass angeordnet, beim anderen Gerät wurde ein Rohr der Länge 2,9 m zwischen Einlass und Filter geschaltet. Der Rohrdurchmesser betrug 12 mm. Die beiden Geräte wurden mit Luftdurchsätzen von 1 m<sup>3</sup>/h und 3 m<sup>3</sup>/h betrieben. Dies ergibt  $Re = 1965$  bzw.  $Re = 5894$ . Bei einem Luftdurchsatz von 1 m<sup>3</sup>/h ergab sich beim langen Rohr im Mittel eine Beladung von 79 % und bei einem Luftdurchsatz von 3 m<sup>3</sup>/h eine Beladung von 77 % gegenüber der Beladung bei Filteranordnung ohne Rohr.



**Abbildung 6-3:**  
 Vergleich zwischen zwei Digital DHA-80 mit verschiedenen Längen der Ansaugrohre — Einlass: PM10 (Ergebnisse der UMEG)



**Abbildung 6-4:**  
 Vergleich zwischen zwei Digital DHA-80 mit verschiedenen Längen der Ansaugrohre — Einlass: PM2,5 (Ergebnisse des LUA)

## 6.4 Impaktormessungen

Ergebnisse von Impaktormessungen (Andersen Mark II) zeigt Abbildung 6-5. Die Hauptfraktion liegt unabhängig von der Jahreszeit im Bereich  $< 3 \mu\text{m}$ .

Ergebnisse von Messungen mit Einlässen Ringspalt, PM10 und PM2,5 an vier Messorten in Baden-Württemberg zeigt Tabelle 6-3. Mit Ausnahme der Station Stuttgart-Verkehr trägt der Anteil PM2,5 zu fast zwei Drittel zur Schwebstaubbela- stung bei.

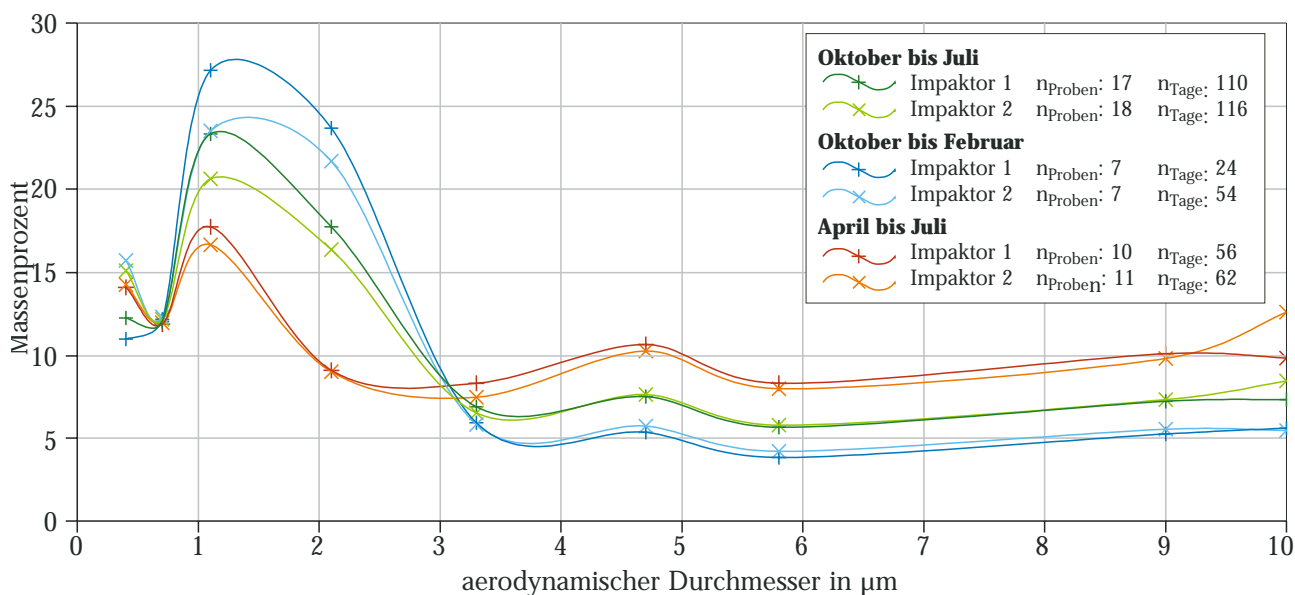


Abbildung 6-5: Ergebnisse von Messungen mit zwei Impaktoren in Karlsruhe-Nordwest

Tabelle 6-3: Schwebstaub nach Fraktionen und Messorten sortiert; Zeitraum 25.07.1996 bis 30.11.1996 [UMEG 33-4/97]

Schwebstaub	[ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]			Anteile von Ringspalt [%]		
	Ringspalt	PM10	PM2,5	PM10	PM2,5	Anzahl der Tagesmittelwerte
Karlsruhe-Nordwest	37,9	29,5	22,6	78	60	47
Stuttgart-Verkehr	89,7	58,8	42,5	65	47	49
Stuttgart-Hafen	36,1	29,8	23,7	83	66	53
Schwäbische Alb	23,5	18,7	15,3	79	65	28

# LITERATUR

- 96/62/EG** Richtlinie 96/62/EG des Rates vom 27. September 1996 über die Beurteilung und die Kontrolle der Luftqualität. ABL. L 296, S. 55
- 99/30/EG** Richtlinie 1999/30/EG des Rates vom 22. April 1999 über Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid und Stickstoffoxide, Partikel und Blei in der Luft. Amtsblatt der EU vom 29.06.1999. ABL. L 163, S. 41
- CEN, 1998-1** CEN Europäisches Komitee für Normung. Deutsche Norm DIN EN 12341: Ermittlung der PM10-Fraktion von Schwebstaub. Referenzmethode und Feldprüfverfahren zum Nachweis der Gleichwertigkeit von Messverfahren und Referenzmessmethode.
- CEN, 1998-2** CEN/TC 264/WG 6 Suspended particulate matter below 10 µm  
Evaluation of CEN field test procedure to demonstrate equivalence of sampling methods for the PM10 fraction of Suspended Particulate Matter with a reference sampling method for MP10
- Hartung, 1995** Ausreißertest nach Grubbs aus:  
Hartung, Joachim: Statistik: Lehr- und Handbuch der angewandten Statistik (S. 345 ff) von Dr. Joachim Hartung, Dr. Bärbel Elpelt, Dr. Karl-Heinz Kössner, Fachbereich Statistik der Universität Dortmund  
10. durchges. Auflage - München; Wien: Oldenbourg, 1995  
ISBN 3-486-23387-4
- UMEG 33-4/97** Feinstaub im Schwebstaub - Abschlussbericht (Messzeitraum 10.10.1995 bis 30.11.1996)  
Auftraggeber: Ministerium für Umwelt und Verkehr Baden-Württemberg vertreten durch die Landesanstalt für Umweltschutz Baden-Württemberg. Auftragnehmer: UMEG Gesellschaft für Umweltmessungen und Umwelterhebungen mbH. Karlsruhe, Juni 1997

