Das Lebensministerium



Mobiler Aerosolstandard

Schriftenreihe des Landesamtes für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie

Heft 2/2010

Freistaat Sachsen

Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie

Entwicklung eines mobilen Aerosolstandards

Dr. Wolfram Birmili, André Sonntag, Dr. Thomas Tuch, Prof. Alfred Wiedensohler

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung ... 1
2 Problemstellung ... 2
3 Lösungsansatz ... 2
4 Beschreibung des mobilen Aerosolstandards ... 4
4.1 Schematischer Aufbau und Funktionsweise ... 4
4.2 Zerstäuber ... 7
4.3 Diffusionstrockner ... 8
4.4 Verdünnungsstufe ... 8
4.5 Neutralisator ... 9
4.6 Kondensationspartikelzähler (CPC 3772) ... 11
5 Funktionsprüfung des mobilen Aerosolstandards ... 11
5.1 Größenverteilungen von Testpartikeln ... 11
5.2 Test der UFIPOLNET-Messgeräte (UFP 330, TSI 3031) ... 14
6 Anwendungsmodus an der Messstation ... 15
7 Zusammenfassung ... 15
Abstract. Development of a mobile device to convey a standardised number concentration of aerosol particles ... 17
8 Literaturverzeichnis ... 18
Anlage ... 20

1 Einleitung

Die Überwachung der Außenluftqualität wird durch europäische Richtlinien und nationale Gesetze und Verordnungen geregelt. Neben den eigentlichen Immissionsmessungen ist ein hoher Aufwand an Qualitätskontrolle notwendig, um zeitlich und örtlich vergleichbare Daten über Jahre hinweg zu erzeugen. Als Methode der Qualitätskontrolle in den Luftgütemessstationen hat sich z. B. eine vierteljährliche Prüfung der Gas-Analysatoren mit mobilen Prüfgasstandards bewährt.

Die Bestimmung der Anzahl ultrafeiner Partikel in Ergänzung zur Messung von PM_{10} oder $PM_{2.5}$ eröffnet neue Möglichkeiten, die Luftqualität zukünftig besser beurteilen zu können. Die Anzahlkonzentration von ultrafeinen Partikeln wird als zweckmäßiger Indikator z. B. für die positive Wirkung einer Umweltzone in Luftreinhalteplänen oder die allmähliche Verbesserung der straßennahen Luftqualität durch die Modernisierung der Fahrzeugflotte und Verschärfung der Abgasnormen angesehen. Eine gesetzliche Regelung zur Überwachung ultrafeiner Partikel gibt es noch nicht. Ultrafeine Partikel werden beispielhaft in zwei Luftgütemessstationen in Sachsen nach dem Vorsorgeprinzip gemessen. Es ist jedoch noch eine zu etablierende Messaufgabe, deren Erfolg u. a. davon abhängig sein wird, wie die Qualitätskontrolle und Qualitätssicherung der Daten zukünftig gestaltet werden kann. Im sächsischen Luftmessnetz werden die Partikel zählenden Messsysteme i. d. R. einmal pro Jahr in ein Aerosollabor transportiert, dort repariert, kalibriert und wieder in die Messstation eingebaut. Im Zeitraum zwischen diesen so genannten Jahreswartungen ist eine Qualitätskontrolle nur bedingt durch Prüfung der Volumenströme und andere Parameter möglich. Die zeitliche Lücke im Qualitätsmanagement soll geschlossen werden.

Das Sächsische Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie vergab deshalb das Projekt mit dem Ziel, einen mobilen Aerosolstandard für ultrafeine Partikel zur Qualitätskontrolle der Messsysteme in den sächsischen Luftgütemessstationen zu entwickeln.

2 Problemstellung

Aerosolpartikel in der Erdatmosphäre haben zum einen eine hohe Bedeutung im Hinblick auf das Klima – in Form ihrer Wechselwirkungen mit der Sonneneinstrahlung, aber auch ihrer Fähigkeit, Wolken zu bilden (SCHNEIDER et al. 2007). Zum anderen wirken Umweltaerosole auf die menschliche Gesundheit, weil sie nach ihrer Inhalation in der menschlichen Lunge deponiert werden und anschließend zur Entwicklung von Lungen- und Kreislauferkrankungen beitragen können (WHO 2004). Die Immissionen von Feinstaub sind seit 2005 in der EU in Form der Richtlinie für PM_{10} (1999/30/EU) gesetzlich reglementiert. Gleichzeitig ist jedoch bekannt, dass PM_{10} (d. h. die Massenkonzentration aller Partikel in einem Kubikzentimeter Außenluft) nur ein ungenauer Indikator für die wahren Gesundheitsrisiken der entsprechenden Aerosole darstellt (HEI 2002; LANZENDORF et al. 2005). Daher sind in letzter Zeit eine Reihe weiterer Messmethoden, die eine präzisere Charakterisierung der Aerosolpartikel erlauben, in den Brennpunkt des Interesses gerückt.

Eine dieser Messmethoden ist die Zählung der Partikelanzahlkonzentration sowie – in erweiterter Form - die Bestimmung der Partikelgrößenverteilung mit Elektromobilitätsspektrometern. Letztere Methode liefert eine Klassifizierung der Partikelanzahl nach Größe und erfreut sich zunehmender praktischer Anwendung bei der Überwachung von Außenluftaerosolen sowohl auf nationaler als auch internationaler Ebene (BIRMILI et al. 2006, 2007; 2009; EUSAAR 2008, UFIPOLNET 2008). Eine Schwierigkeit bei der Messung der Partikelanzahl und Anzahlgrößenverteilung ist jedoch die Rückführung einer Messung auf Standards. Die Rückführung auf Standards ist stets wesentlicher Teil der Qualitätssicherung experimenteller Messungen und garantiert eine bestimmte Absolutgenauigkeit von Messwerten, innerhalb von Messnetzen auch die Vergleichbarkeit von Messwerten. Im Gegensatz zur Messung der Konzentration von Spurengasen kann eine Anzahlkonzentration luftgetragener Aerosolpartikel nicht in Behälter abgefüllt und transportiert werden. Durch Koagulation, Sedimentation und Wandverluste verringert sich eine gegebene Partikelanzahlkonzentration in der Regel binnen Minuten, sodass ein räumlicher Austausch von Standards der Partikelanzahlkonzentration zwischen Institutionen kaum möglich erscheint. In praktischer Form wurde Qualitätssicherung bisher vor allem durch den Austausch von Messgeräten (Kondensationskernzählern, Partikelgrößenspektrometern) zwischen verschiedenen Labors und Messstationen (HERRMANN et al. 2007) bzw. durch Vergleichsmessungen verschiedener Geräte anhand eines vorgegebenen Test- oder Umweltaerosols in einem Zentrallabor (BIRMILI et al. 2007, EUSAAR 2008) realisiert.

3 Lösungsansatz

Als neue Möglichkeit zur Qualitätssicherung von Umweltmessungen der Partikelanzahl sowie Partikelgrößenverteilungen wurde ein mobiler Aerosolstandard entwickelt. Konkretes Anwendungsziel war die Qualitätssicherung der Partikelgrößenverteilungsmessungen im Luftüberwachungsnetz des Landes Sachsen (betrieben durch die Staatliche Betriebsgesellschaft für Umwelt und Landwirtschaft [BfUL]), wobei eine spätere vielfältige Anwendung bewusst nicht ausgeschlossen werden sollte. Die qualitätszusichernden Messungen in Sachsen umfassten zum Zeitpunkt der Projektkonzeption ein Doppel-Partikelgrößenspektrometer (Twin Differential Mobility Particle Sizer,

TDMPS) sowie einen vereinfachten Prototyp zur Messung der Partikelanzahlkonzentration in sechs Größenfraktionen, das UFP 330 (UFIPOLNET 2008). Inzwischen ist ein drittes Messgerät hinzugekommen, der Partikelanzahlmonitor Typ 3031 (TSI GmbH Aachen), welcher die kommerzialisierte Variante des UFP 330 darstellt. Der zu entwickelnde mobile Aerosolstandard soll zum einen eine Anbindung der BfUL-Instrumente an einen externen Standard gewährleisten und zum anderen eine Vergleichbarkeit der Messungen zwischen den sächsischen Messstationen gewährleisten.

Als Anforderungen an den zu entwickelnden mobilen Aerosolstandard wurden definiert:

- hinreichende Genauigkeit bezüglich eines gegebenen Konzentrationsstandards
- Langzeitstabilität
- unmittelbare Einsatzfähigkeit an den Containermessstationen der BfUL
- einfache Bedienbarkeit
- Tragbarkeit durch eine Person

Als Lösung wurde ein integriertes System konzipiert, welches aus folgenden Komponenten besteht:

- Partikelgenerator nach dem Prinzip der Zerstäubung einer Salzlösung
- Diffusionstrockner zur Entfernung des Wassers aus den erzeugten Partikeln
- Verdünnungsstufe zur manuellen Einstellung beliebiger Anzahlkonzentrationen
- Neutralisator zum Abbau der während der Zerstäubung aufgebauten elektrischen Ladungen auf dem Aerosol
- Kondensationspartikelzähler zur präzisen Erfassung der Gesamtpartikelanzahl

Die Erzeugung von Partikeln nach dem Zerstäubungsprinzip soll die Einheitlichkeit der Partikel bei der Übertragung des Standards gewährleisten (ein Umgebungsaerosol kann bekanntlich hinsichtlich seiner Partikelzusammensetzung stark von Ort zu Ort und als Funktion der Zeit variieren). Diffusionstrockner, Verdünnungsstufe und Neutralisator dienen der optimalen Aufbereitung der Testpartikel. Kondensationspartikelzähler bestimmter Bauarten haben sich als robuste Instrumente zur langzeitstabilen Zählung von Aerosolpartikeln erwiesen. Gleichzeitig sind sie gut transportabel und leicht zu bedienen. Zur Unterbringung aller Komponenten des mobilen Aerosolstandards wurde der Einbau in einen Schalenkoffer angestrebt.



Abbildung 1: Gesamtansicht des mobilen Aerosolstandards mit Aerosolerzeugungseinheit, Kondensationskernzähler (CPC) und CPC-Zubehörkoffer

4 Beschreibung des mobilen Aerosolstandards

4.1 Schematischer Aufbau und Funktionsweise

Eine Frontalansicht des mobilen Aerosolstandards zeigt Abb. 1, Abb. 2 vermittelt die Einzelheiten seiner Funktionsweise. Äußerlich setzt sich das Gerät aus folgenden Modulen zusammen (siehe Abb. 1):

- Aerosolerzeugungseinheit, in einer Zarges-Kiste untergebracht
- Kondensationskernzähler (CPC) vom Typ TSI 3772
- CPC-Zubehörkoffer (mit Handbüchern, Einlesesoftware, Verbindungskabeln, einer Speicherkarte, einem Kartenlesegerät und Ersatzteilen)

Zum Aufbau eines transportablen und einfach zu bedienenden mobilen Aerosolstandards wurden alle Einzelkomponenten der Aerosolerzeigungseinheit innerhalb einer Zarges-Kiste untergebracht. Das erzeugte Testaerosol wird seitlich herausgeleitet und gleichzeitig dem Kondensationspartikelzähler (CPC 3772) und dem jeweils zu prüfenden Größenspektrometer zugeführt.

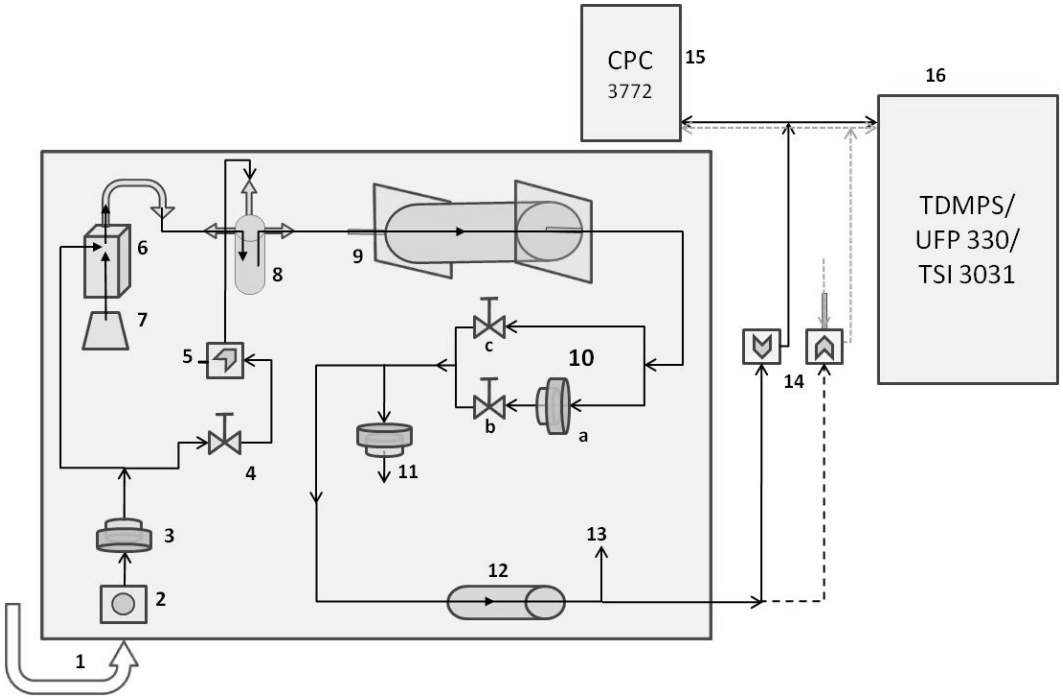


Abbildung 2: **Schematische Skizze von Aufbau und Funktionsweise des mobilen Aerosolstandards**

(1) Druckluftzufuhr, (2) Druckregler, (3) Partikelfilter, (4) Kleines Nadelventil, (5) 3-Wege-Hahn, (6) Partikelgenerator (Zerstäuber), (7) Behälter mit Zerstäuberlösung, (8) Mischkammer, (9) Silikagel-Trockner, (10) Verdünnungsstufe, bestehend aus Partikelfilter (a) und großem Nadelventil (b) sowie einem einzelnen großes Nadelventil (c), (11) Druckausgleich mit vorgeschaltetem Filter, (12) Neutralisator, (13) Aerosolentnahmemöglichkeit innerhalb der Box, (14) 3-Wege-Hahn, (15) Kondensationspartikelzähler, CPC 3772, (16) zu prüfendes Messgerät (SMPS, TDMPS, UFP 330)

Zum Betrieb des mobilen Aerosolstandards wird Druckluft mit einem konstanten Eingangsdruck von mindestens 3 bar benötigt (Abb. 2, Markierung 1). Diese wird an einen Druckregler (Markierung 2) außerhalb der Gerätebox angeschlossen und in den Systemaufbau geführt. Über einen dem Druckluftanschluss nachgelagerten Partikelgesamtfilter (Markierung 3) gelangt partikelfreie Druckluft in den Zerstäuber (Markierung 6). Durch den entstehenden Unterdruck beim Durchströmen des Zerstäubers wird Testaerosollösung aus dem unterhalb angebrachten Vorratsbehälter (Markierung 7) angesaugt und durch die Düse zerstäubt.

Der so erzeugte Tropfenstrom gelangt in eine Mischkammer (Markierung 8), in welcher trockene Druckluft zugemischt wird. Die daraus resultierende Abnahme in der relativen Feuchte führt zu einer unmittelbaren Abnahme der Tropfengrößen. Die Druckluftzufuhr wird über ein vorgelagertes

Nadelventil (Markierung 4) eingestellt, wobei der entsprechende Durchfluss über den normalerweise unbenutzten Ausgang des nachfolgenden Dreiwegehahns (5) gemessen werden kann. Nach Durchquerung der Mischkammer wird das Testaerosol in einem Silikagel-Trockner (Markierung 9) in den endgültigen Trockenzustand überführt, der durch relative Feuchten unterhalb von 30 % charakterisiert ist.

In einer zweigleisigen Verdünnungsstrecke (Markierung 10), bestehend aus einem Gesamtpartikelfilter (a) und zwei Nadelventilen (b,c) kann die Aerosolkonzentration beliebig reduziert werden: Über Strecke 1 mit Filter und Ventil wird ein partikelfreier Fluss erzeugt, welcher bei der Zusammenführung den Aerosolstrom aus Strecke 2 verdünnt. Somit ist über Ventil 10c die Aerosolkonzentration beliebig regelbar.

Anschließend wird ein Strömungsgleichgewicht zwischen Aerosolstandard und den außerhalb angeschlossenen Geräten hergestellt, indem ein offener Stutzen an der Verbindungsleitung geöffnet wird. Der Aerosolzerstäuber drückt stets Probenaerosol in die Verbindungsleitung, während die Aerosol-Messinstrumente Probenaerosol heraussaugen. Überschüssiger Aerosolstrom kann daher über den offenen Stutzen und eine Gesamtpartikelfilter (Markierung 11) entweichen. Dieser kann mit einem Blasenflussmesser (Gilibrator) überwacht werden.

Bevor der Aerosolstrom die Aerosolerzeugungseinheit verlässt, wird ein Neutralisator (Markierung 12) passiert, in welchem die während der Zerstäubung aufgebauten elektrischen Ladungen auf dem Aerosol abgebaut/neutralisiert werden.

Nach dem Durchgang durch den Neutralisator besteht schon innerhalb der Zarges-Kiste die Möglichkeit, über ein T-Stück (Markierung 13) den Aerosolstrom abzugreifen. Ansonsten wird das Aerosol aber generell nach außen geleitet, wo es über eine Installation mit Zweiwegehahn (Markierung 14) dem Kondensationspartikelzähler, CPC 3772 (Markierung 15) sowie dem zu prüfenden Messgerät (Markierung 16) zugeführt wird. Durch Umlegen des 2-Wege-Hahns ist es bei entsprechender Installation zudem möglich, auf Außenluft-, Innenraum- oder Nullmessung umzustellen.



Abbildung 3: Draufsicht Aerosolerzeugungseinheit

4.2 Zerstäuber

Der Partikelgenerator (Abb. 4) besteht aus dem eigentlichen Zerstäuber und einem Vorratsbehälter mit der jeweiligen angemischten Testaerosollösung. Innerhalb des Zerstäubers befindet sich eine Düse mit 0,2 mm Durchmesser. Dieser wird Druckluft von 3 Bar zugeführt, was für die Zerstäubung der angesaugten Lösung sorgt.

Für monodisperse Partikelgrößenverteilungen empfiehlt sich eine Messung mit einer Lösung aus Latexpartikeln und destilliertem Wasser. Dabei wird der Vorratsbehälter zu drei Vierteln mit destilliertem Wasser gefüllt und drei bis vier Tropfen der Latexpartikel zugegeben.

Für polydisperse Partikelgrößenverteilungen kann man in einfacher Weise Ammoniumsulfatpartikel nutzen. Hierbei empfiehlt es sich, im Voraus eine größere Menge Lösung vorzubereiten, mit einem Mischungsverhältnis von 1 Gramm $(NH_4)_2SO_4$ auf einen Liter destillierten Wassers. Hiermit ist der Behälter zu drei Vierteln zu befüllen. Vor jeder neuen Messung sollte der Lösungsbehälter ausgebaut, mit destilliertem Wasser gereinigt und mit neuer Lösung befüllt werden (siehe auch Bedienungsanleitung).

Der mobile Aerosolstandard verbraucht 6 + 3 = 9 l/min partikelfreie Luft. In drei Stunden sind dies etwas mehr als 1 000 l. Die Druckluft kann durch einen Kompressor oder alternativ durch eine Druckgasflasche bereitgestellt werden.

An den Zerstäuber schließt sich eine Mischkammer (8) an, in der dem Aerosolstrom partikelfreie trockene Druckluft beigemischt wird. Der Verdünnungsfluss sollte mittels Nadelventil (5) so eingestellt werden, dass am Ausgang der Mischkammer genügend Durchfluss anliegt. Im Falle der Prü-

fung eines Mobilitätsspektrometers (1-3 l/min) sollten 6 l/min aus der Mischkammer kommen, für die Prüfung des UFP (5 l/min) dann entsprechend mehr, ca. 9 l/min, um auf der sicheren Seite zu sein. Geprüft werden kann der Durchfluss aus der Mischkammer wiederum mit einem Blasenfluss-messer (Gilibrator).

4.3 Diffusionstrockner

Der Diffusionstrockner (Abb. 5) dient zum nahezu vollständigen Abtrocknen des Aerosols. Er ist mit Silikagel befüllt. Wenn die Aufnahmekapazität des Diffusionstrockners erschöpft ist, zeigt sich dies durch einen Farbumschlag des Silikagels von braun nach weiß an. Zum Wechsel des Silikagels kann der Diffusionstrockner ausgebaut werden.

4.4 Verdünnungsstufe

Die Verdünnungsstufe (Abb. 5) schließt sich an den Diffusionstrockner an. Hierbei wird der Aerosol-fluss über ein T-Stück in zwei Arme aufgespalten. Der erste Arm besteht aus einem Partikelge-samtfilter („a“ in Abb. 2) und einem nachgelagerten Nadelventil („b“ in Abb. 2). Durch den Filter wird aus dem Aerosol- ein partikelfreier Strom. Das anschließende Ventil bestimmt über die Größe der Verdünnung, welche am Ende der Verdünnungsstrecke dem Aerosolstrom aus dem zweiten Arm zugeführt wird.



Abbildung 4: Detailansicht des Partikelgenerators (Zerstäubers)

Beim praktischen Messbetrieb ist darauf zu achten, dass beim Beginn jeder neuen Messung das Ventil im zweiten Arm (Nadelventil „c“ in Abb. 2) geschlossen und das im ersten Arm (Nadelventil „b“ in Abb. 2) weit geöffnet sein sollte. So wird gewährleistet, dass die Partikelkonzentrationen von niedrigen zu moderaten Werten hin regelbar sind und keine plötzliche Überlastung des CPCs mit Partikeln auftritt.

Über den angeschlossenen CPC als Gesamtpartikelzähler und unter Benutzung des Ventils des Aerosolflusses im zweiten Arm ist die Einstellung einer gewünschten Partikelkonzentration möglich.

4.5 Neutralisator

Der Aerosolneutralisator (Abb. 6) ist eine radioaktive *β*-Quelle vom Typ 3077 A (TSI GmbH; Stärke 370 Bq m^{-3}). Die hohe Stärke wurde gewählt, um eine sichere Neutralisierung der bei nach der Zerstäubung hoch aufgeladenen Partikel zu gewährleisten. Der Aerosolneutralisator befindet sich in einer abgesicherten Bleiummantelung.



Abbildung 5: Detailansicht des Diffusionstrockners und der Verdünnungsstufe



Abbildung 6: Detailansicht des Neutralisators



Abbildung 7: Anschluss des Kondensationskernzählers an die Aerosolerzeugungseinheit

4.6 Kondensationspartikelzähler (CPC 3772)

Der Butanol-Kondensationskernzähler (Typ 3772 von TSI) zählt die Anzahlkonzentration und stellt somit die Anbindung an den Konzentrationsstandard dar. Der CPC besitzt eine untere Nachweisschwelle von 10 nm. Wesentlich kleinere Partikel werden nicht gezählt.

Während der Aerosolerzeugung überwacht der CPC die Gesamtanzahlkonzentration. Zur Vermeidung einer Überlastung des CPC sollte man mittels der Verdünnungseinheit von niedrigen Konzentrationen zu moderaten Konzentrationen (Idealwert ca. 3 000 cm^{-3}) hinregeln.

Während der Messungen sollte die erzeugte Gesamtpartikelkonzentration beobachtet werden. Ggf. kann die Konzentration auch während der Messung über die Ventile der Verdünnungsstrecke in Richtung des Idealpunktes nachgestellt werden. Um die Nadelventile im Aerosolgenerator bedienen zu können, bleibt die Zarges-Kiste während der Vergleichsmessung notwendigerweise offen.

5 Funktionsprüfung des mobilen Aerosolstandards

5.1 Größenverteilungen von Testpartikeln

Abb. 8 und 9 stellen beispielhafte Ergebnisse zu den Größenverteilungen und Anzahlkonzentrationen der mit dem mobilen Aerosolstandard erzeugten Testpartikel dar. Abb. 8 zeigt Partikelgrößenverteilungen der Aerosolerzeugungseinheit sowohl für Ammoniumsulfatpartikel als auch monodisperse Latex-(Polystyren-)Partikel. Größenverteilungen von Ammoniumsulfatpartikeln (schwarz) zeigen ein Maximum bei 40 nm, aber auch eine breite, gaußartige Verteilung der Partikelgrößen. Die Latexpartikelmessung (rot) zeigt eine markante Konzentrationsspitze bei 200 nm. Diese dient beim Feldeinsatz des Aerosolstandards in erster Linie der Überprüfung der Größenklassifizierung der Mobilitätsspektrometer (TDMPS, SMPS). Neben den 200 nm-Partikeln finden sich im Latex-Zerstäubungsaerosol aber auch kleinere Partikel mit einem Maximum bei 30 nm, die aus Salzrückständen im destillierten Wasser stammen. Die Anzahlkonzentrationen (Bereich 10 - 800 nm) beliefen sich im konkreten Fall von Abb. 8 auf 3 900 cm^{-3} (Ammoniumsulfat), 2 280 cm^{-3} (Latex) und 780 cm^{-3} (Außenluftaerosol).

Abb. 9 hingegen zeigt Zeitreihen der Partikelanzahlkonzentration von Ammoniumsulfatpartikeln (links) und auch Außenluftpartikeln (rechts). Die Partikelanzahl des CPC wurde direkt gemessen, wogegen die Partikelanzahlen der Mobilitätsspektrometer durch numerische Aufintegration der Größenverteilungen entstanden. Derartige Zeitreihen sollen dazu verwendet werden, die Genauigkeit der Mobilitätsspektrometer gegenüber einem Anzahlstandard (in diesem Falle der CPC) zu beurteilen. Der CPC Typ 3772 hat eine untere Nachweisschwelle von ca. 11 nm. (Kleinere Partikel werden mit geringerer Wahrscheinlichkeit detektiert, größere mit höherer Wahrscheinlichkeit – bei 11 nm ist die Sammeleffizienz gleich 50 %).

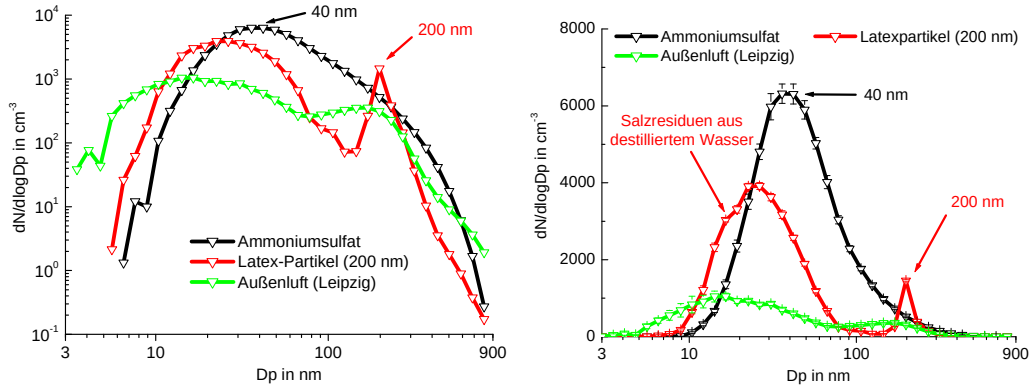


Abbildung 8: **Partikelgrößenverteilungen, erzeugt mit dem mobilen Aerosolstandard und gemessen mit einem Mobilitätsspektrometer (TDMPS): Ammoniumsulfatpartikel, monodisperse Latexpartikel (200 nm), zum Vergleich Außenluftaerosol. Beide Bilder zeigen verschiedene Ordinatendarstellungen.**

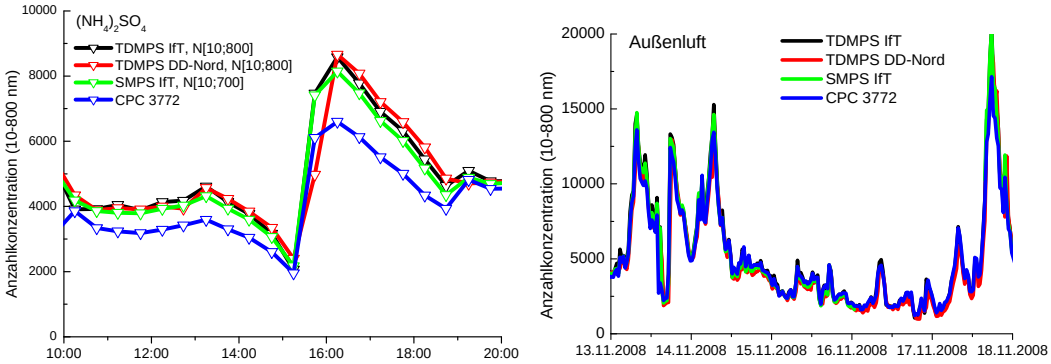


Abbildung 9: **Vergleich der Gesamtpartikelanzahlkonzentration: Mehrere Mobilitätsspektrometer und der CPC 3772 des mobilen Aerosolstandards. Links: Ammoniumsulfatpartikel. Rechts: Außenluftaerosol in Leipzig.**

Ein Vergleich zwischen Mobilitätsspektrometer und CPC ist nur statthaft, wenn das Testaerosol keine Partikel kleiner 11 nm beinhaltet oder wenn die Partikelanzahlen <11 nm bei der Aufintegration weggelassen wurden. Für die gezeigte Abb. 9 wurde die Integration der Mobilitätsspektrometer stets auf den Bereich 10 - 800 nm begrenzt.

In Abb. 9 (rechts, Außenluft) erkennt man eine sehr gute Übereinstimmung in der Gesamtpartikelanzahl zwischen den Mobilitätsspektrometern und dem CPC über mehrere Größenordnungen in der Konzentration. Die Abweichungen liegen nur innerhalb weniger Prozent und definieren die mit Mobilitätsspektrometern erreichbare Messgenauigkeit. Eine ausführlichere Darstellung dieses Instrumentenvergleichs mit Außenluftpartikeln wird in einem weiteren Fachbericht des LfULG gegeben (BIRMILI et al. 2009).

In Abb. 9 (links) sieht man zwar eine relative gute Übereinstimmung zwischen den drei verwendeten Mobilitätsspektrometern (TDMPS; SMPS), aber eine Abweichung des CPC 3772 um 20 % nach unten. Dieser unerwünschte Effekt ist zum Zeitpunkt dieser Niederschrift noch nicht erklärt worden. Es besteht eine Vermutung, dass die Ammoniumsulfatpartikel, welche den Zerstäuber immer in einem hochgeladen Zustand verlassen und anschließend neutralisiert werden müssen, sich bei der Messung im Mobilitätsspektrometer möglicherweise noch nicht im erforderlichen Ladungsgleichgewicht befinden. Abweichungen des Ladungsgleichgewichts von der idealen Boltzmannverteilung würden sich in einer Fehleinschätzung der endgültigen Partikelgrößenverteilung und damit der aus den Mobilitätsspektrometern bestimmten Partikelanzahl äußern.

Abb. 10 zeigt einen Wiederholungsversuch, bei dem das Zerstäubungsaerosol statt mit einem auch mit zwei Neutralisatoren neutralisiert wurde. Dieser Versuch erlaubt eine Einschätzung, ob das Testaerosol möglicherweise extrem aufgeladen ist. In beiden in Abb. 10 gezeigten Experimenten ist kein Unterschied festzustellen. Daraus folgt, dass der Ladungszustand offenbar keine entscheidende Rolle für die beobachtbare Diskrepanz zwischen Gesamtpartikelzähler und Mobilitätsspektrometer spielt und somit eine andere Ursache vorliegt.

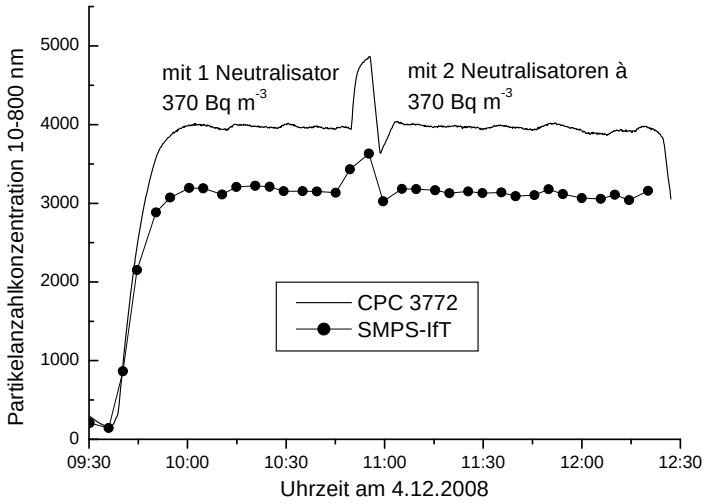


Abbildung 10: Vergleich der Gesamtpartikelanzahlkonzentration zwischen einem Mobilitätsspektrometer sowie dem CPC 3772 des mobilen Aerosolstandards für Ammoniumsulfatpartikel. Teilweise wurden ein, teilweise zwei Neutralisatoren zur Herstellung eines definierten Ladungsgleichgewichts verwendet.

Für die Qualitätssicherung bedeutet diese Beobachtung jedoch eine Unwägbarkeit. Zur Klärung des Sachverhalts werden daher 2009 weitere detaillierte Laborversuche vorgenommen werden.

5.2 Test der UFIPOLNET-Messgeräte (UFP 330, TSI 3031)

Neben den Mobilitätsspektrometern soll der mobile Aerosolstandard auch dazu benutzt werden, die bei der BfUL vorhandenen UFIPOLNET-Messgeräte (UFP 330, TSI 3031) qualitätszusichern. Um die Machbarkeit einer der den Mobilitätsspektrometern vergleichbaren Prozedur zu überprüfen, wurden Testaerosole aus dem mobilen Aerosolstandard mit Mobilitätsspektrometern und den UFIPOLNET-Messgeräten parallel gemessen und verglichen. Ausführlich sind diese Messungen vom Oktober und November 2008 wiederum in dem weiteren LfULG-Bericht dokumentiert (BIRMILI et al. 2008) - hier sollen nur einige Hauptaspekte der erzielten Ergebnisse referiert werden.

Für polydisperse Ammoniumsulfatpartikel konnte die Anwendbarkeit des mobilen Aerosolstandards zum direkten Vergleich beider Geräteklassen weitgehend bestätigt werden. Schwierigkeiten traten jedoch bei der Klassifizierung von monodispersen Latexpartikeln auf (siehe Abb. 11): Während die Mobilitätsspektrometer die erzeugten 200 nm-Testpartikel scharf abbilden, hatten der UFP-Prototyp und das TSI-Gerät 3031 Schwierigkeiten sowohl mit der genauen Größenauflösung als auch mit der Konzentrationsdarstellung der Partikel > 100 nm. Die Abweichungen sind aller Voraussicht nach den konstruktiven Kompromissen geschuldet, die bei den UFIPOLNET-Messgeräten eingegangen wurden (geringe Größenauflösung; geringe Empfindlichkeit bei größeren Partikeln).

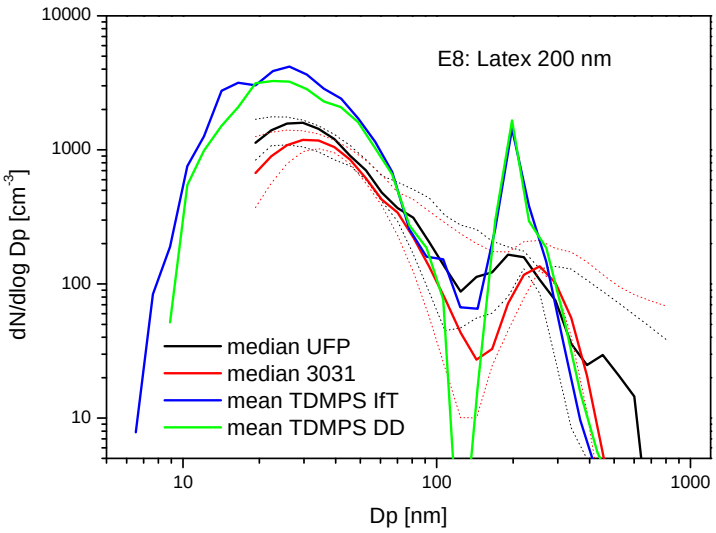


Abbildung 11: Vergleich der Partikelgrößenverteilungen verschiedener Geräteklassen (TDMPS, UFP 330, TSI 3031) an monodispersen 200 nm-Latexpartikeln.

Eine Schlussfolgerung ist daher allerdings, dass die UFIPOLNET-Geräte nicht befriedigend bezüglich ihrer Größenklassifizierung mit monodispersen Partikeln kalibriert werden können.

6 Anwendungsmodus an der Messstation

Die Arbeitszeit mit dem mobilen Aerosolstandard in der Messstation wird auf etwa zwei bis drei Stunden veranschlagt. Für eine Dauer von zwei Stunden kann ein zeitlich stabiles Partikelspektrum erzeugt werden (vgl. Abschnitt 4). Während dieser Zeit sind Messungen der Größenverteilung mit dem zu prüfenden Mobilitätsspektrometer sowie eine parallele Erfassung der Partikelanzahlkonzentration mit dem CPC 3772 vorzusehen (vgl. Abb. 7a bzw. 8a). Die Messwerte des Partikelzählers des mobilen Standards sollten vom Servicepersonal per Laptop ausgelesen werden.

Während der Prüfung wird am zu prüfenden Mobilitätsspektrometer ein Wartungsschalter gesetzt. Somit bleiben die Messwerte erhalten, werden aber mit einer Kennung „ungültig“ versehen. Ein Nullfilter direkt am Probenahmekopf auf dem Messcontainerdach kann ebenfalls zur Prüfung des gesamten Probenahmesystems verwendet werden. Hier wäre denkbar, für die begrenzte Zeit der Kontrollmessung den PM_{10}-Probenahmekopf durch ein Nullfilter auszutauschen. Die beschriebene Prozedur wäre eine einfache zukünftige Möglichkeit der Qualitätskontrolle durch die BfUL.

Zu den routinemäßigen Überprüfungen des Aerosolstandards gehören:

- Leerung und Reinigung des Flüssigkeitsbehälters (Zerstäubungsflüssigkeit)
- Anmischung neuer Zerstäubungsflüssigkeit
- Austauschen des Silikagels (wenn Umschlag auf weiße Farbe)
- Überprüfung des Durchflusses des CPC 3772 (Sollwert 1,0 l/min). Nach längerem Betrieb ist eine Verstopfung des freien Durchstroms denkbar.

Die vorgeschlagenen Wartungsarbeiten und -intervalle sind anschaulich in der dem Gerät beigefügten Bedienungsanleitung beschrieben.

Als routinemäßige Zusatzprüfung wird eine Überprüfung der Nullzählrate über ein Nullfilter vorgeschlagen. (Dies sollte Bestandteil der Funktionsprüfung des Mobilitätsspektrometers sein.) Generell ist darauf zu achten, die Probenahme des Mobilitätsspektrometers nach der Prüfung mit dem Aerosolstandard auf „Außenluftmessung“ zurückzustellen, um nicht versehentlich Innenraumluft zu messen.

7 Zusammenfassung

Ein mobiler Aerosolstandard wurde als Methode zur Qualitätssicherung von atmosphärischen Messungen der Partikelanzahl und der Partikelgrößenverteilung entworfen und konstruiert. Das System besteht aus einem Zerstäubungsgenerator zur Herstellung von Ammoniumsulfat- bzw. Latexpartikeln, einem Diffusionstrockner zur Entfernung des restlichen Wassers, einer Verdünnungsstufe zur beliebigen Einstellung der Anzahlkonzentration, einem Neutralisator zur Herstellung eines definierten Ladungsgleichgewichts im Testaerosol und schließlich aus einem Kondensationspartikelzähler (CPC, Typ TSI 3772) zur Erfassung der Gesamtpartikelanzahl. Die mit dem CPC erfasste Gesamt-

partikelkonzentration wird hierbei als Referenzpunkt definiert. Erste Laborversuche mit Testpartikeln und auch Außenluftaerosol bestätigten die Eignung des mobilen Aerosolstandards für die geplanten Zwecke.

Jedoch sind auch einige Fragen zur letztendlichen Eignung der Ammoniumsulfatpartikel (systematische Diskrepanz zwischen den Zählraten des CPC und der Mobilitätsspektrometer) sowie der Einbindung der UFP-330 und TSI-3031-Geräte in die Qualitätssicherung offen geblieben.

Derzeit ist der mobile Aerosolstandard im ausgedehnten Feldeinsatz zur Qualitätssicherung von Mobilitätsspektrometern. Hieraus werden praktische Hinweise zum Einsatz des Aerosolstandards unter den Bedingungen im Messnetz abgeleitet werden.

Zusätzliche Labormessungen werden in naher Zukunft durchgeführt, um die verbleibenden Fragen zum Testaerosol zu beantworten. Seit Mitte 2009 wird der mobile Aerosolstandard systematisch zur Qualitätssicherung der Anzahl messenden Messinstrumente im Luftqualitätsnetz von Sachsen eingesetzt.

Abstract. Development of a mobile device to convey a standardised number concentration of aerosol particles

The standardisation of atmospheric aerosol measurements is of high relevance within government air quality networks and atmospheric observation networks. Although mobile standards have been well established, for instance, in the quality control of trace gas analysis, analogous methods have proved difficult to establish for aerosols.

Within this research and development project, a mobile device was developed to convey a standardised aerosol number concentration between different laboratories and/or measurement stations. The portable system consists of an aerosol nebuliser that generates, in a first step, inorganic salt particles or monodisperse latex particles. A dilution unit allows to prescribe a range of particle concentrations. Particles are also dried in an adsorption dryer, and brought to charge equilibrium in a charge neutralizer. This aerosol generation unit makes sure that particles of defined morphology can be tested. A condensation particle counter (CPC 3772, TSI Inc.) is supplied to measure the total number concentration of the test aerosol.

We conducted preliminary tests of the mobile test device using ammonium sulphate and latex particles, and in conjunction with several electromobility spectrometers (differential mobility particle sizers). These tests confirmed the applicability of the test device in the quality assurance of electromobility spectrometer measurements. More extensive tests remain, however, required to ensure practical applicability in the laboratory and field.

8 Literaturverzeichnis

BIRMILI, W., A. WIEDENSOHLER, B. WEHNER, T. TUCH, A. NOWAK, U. FRANCK, M. PITZ, J. HEINRICH, J. CYRYS, W. KREYLING, A. PETERS, AND E. WICHMANN (2006). Räumlich-zeitliche Verteilung, Eigenschaften und Verhalten ultrafeiner Aerosolpartikel (< 100 nm) in der Atmosphäre, sowie die Entwicklung von Empfehlungen zu ihrer systematischen Überwachung in Deutschland. 93 S., UBA-Texte, No. 26/06, www.umweltdaten.de/publikationen/fpdf-l/3114.pdf .

BIRMILI W., D. HINNEBURG, A. SONNTAG, K. KÖNIG, B. ALAVIIPPOLA, B. WEHNER, M. MERKEL, S. KLOSE, A. WIEDENSOHLER, O. KNOTH, T. TUCH, M. SCHILDE, U. FRANCK (2007) Konzentration ultrafeiner luftgetragener Partikel (< 100 nm) in städtischen Atmosphären: Validierung von Messverfahren, experimentelle Bestimmung ihrer raum-zeitlichen Verteilung und mikroskalige Transport- und Transformationsmodellierung. 87 S., Abschlussbericht UFOPLAN-Projekt 20442204/03, Umweltbundesamt, Dessau, 11. April 2007.

BIRMILI, W., WEINHOLD, K., SONNTAG, A. , WEHNER, B., NOWAK, A., DITAS, F., WIEDENSOHLER, A., ZSCHOPPE. A. (2009). Anzahl ultrafeiner Partikel in der städtischen Außenluft; Vergleichsmessungen im Prüflabor zur messtechnischen Rückführung. Abschlussbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben, Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie, Referat 51 (Luftqualität), Dresden.

BIRMILI, W., WEINHOLD, K., NORDMANN, S., WIEDENSOHLER, A., SPINDLER, G., MÜLLER, K., HERRMANN, H., GNAUK, T., PITZ, M., CYRYS, J., FLENTJE, H., NICKEL, C., KUHLBUSCH, T.A.J., LÖSCHAU, G., HAASE, D., MEINHARDT, F., SCHWERIN, A., RIES, L., AND WIRTZ, K. (2009) Atmosphärische Aerosolmessungen im Deutschen Beobachtungsnetz für Ultrafeine Aerosolpartikel (GUAN): Teil 1 - Ruß und Partikelanzahlgrößenverteilungen. Gefahrstoffe Reinhaltung Luft, 69(4): 137-145.

BRÜGGEMANN, E., GNAUK, T., HERRMANN, H., MÜLLER, K., BIRMILI, W., ENGLER, C., WEINHOLD, K., WIEDENSOHLER, A. (2007) Einfluss des Ferneintrages auf die Feinstaubbelastung im Ballungsraum. Abschlussbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben AKZ 13-0345.42/254, Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Referat 22 (Luftqualität), Dresden.

EUSAAR (2008). European Supersites for Atmospheric Aerosol Research. EU-Infrastrukturprojekt RII3-CT-2006-026140, koordiniert durch A. Flossmann, CNRS-LaMP Clermont-Ferrand. http://-www.eusaar.net.

HEI, HEALTH EFFECTS INSTITUTE (2002): Understanding the health effects of components of the particulate matter mix: progress and next steps. Tech. Rep.4, Health Effects Institute, Boston, MA.

LANZENDORF, M., W. BIRMILI, AND P. FRANKE UND WEITERE BEITRAGENDE AUTOREN (2006). Verkehrsbedingte Feinstäube in der Stadt. 92 S., UBA-Texte, No. 18/06, www.umweltdaten.de/-publikationen/fpdf-l/3067.pdf

SCHNEIDER, S. H., SEMENOV, S., PATWARDHAN, A., ET AL. (2007): Assessing key vulnerabilities and the risk from climate change, in: Climate Change 2007: Impacts, Adaptation and Vulnerability, Contribution of Working Group II to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC), edited by: Parry, M. L., Canziani, O. F., Palutikof, J. P., et al., Cambridge University Press, Cambridge, UK, 779–810.

UFIPOLNET (2008). Ultrafine particle size distributions in air pollution monitoring networks (*Korngrößenverteilung von Nanopartikeln in Messnetzen zur Luftüberwachung*). EU-Projekt LIFE04 ENV/DE/000054, koordiniert durch H. Gerwig, LfULG Dresden. http://www.ufipolnet.eu .

WHO, WORLD HEALTH ORGANISATION (2004): Health Effects of Air Pollution Results from the WHO Project “Systematic Review of Health Aspects of Air Pollution in Europe”, WHO Report E83080, June 2004, Geneva.

Anlage

Entwurf einer SOP zur Überprüfung eines Mobilitätsspektrometers (TDMPS), UFP 330 oder TSI 3031 mit dem mobilen Aerosolstandard an einer Messstation.

1. Befüllung des Vorratsbehälters des Partikelgenerators mit der vorgefertigten Testaerosollösung.
2. Anschluss des zu prüfenden Mobilitätsspektrometers (TDMPS), UFP 330 oder TSI 3031 sowie des parallel messenden Gesamtpartikelzählers TSI 3772 an den mobilen Aerosolstandard. Zwei-Wege-Hähne bleiben noch auf Stellung ‚Außenluftmessung'.
3. Anschluss der externen Druckluftzufuhr an den Druckregler außerhalb der Aerosolstandard-Gerätebox. Druckluftregler einstellen auf etwa 3 bar. Dies erzeugt Partikel.
4. Einstellen des Verdünnungsflusses der Mischkammer über vorgelagertes Nadelventil. Je nach benötigtem Aerosolfluss der angeschlossenen Mobilitätsspektrometer sollte am Ausgang der Mischkammer ein Probenfluss zwischen 6 (TDMPS) und 9 l/min (UFP 330, TSI 3031) anliegen.
5. Umsetzen des Wartungsschalters in der jeweiligen Systemsoftware auf „Wartungsbetrieb".
6. Umlegen der entsprechenden Zwei-Wege-Hähne auf Testaerosolmessung. Außenluftmessung ist abzukoppeln!
7. Überprüfung auf Anliegen eines ständigen Überschussflusses zwischen Aerosolstandard und angeschlossenen Geräten mittels Gilibrator. Der überschüssige Probenfluss wird am nach außen geöffneten Gesamtpartikelfilter hinter der Verdünnungsstrecke gemessen.
8. Einstellung der Gesamtanzahlkonzentration von ca. 3 000 Partikeln/cm^3 über CPC 3772. Die Regelung der Konzentration erfolgt über die Nadelventile der Verdünnungsstrecke des Aerosolstandards.
9. Die Parallelmessung der Partikelspektren und der Partikelanzahlkonzentration des Aerosolstandards ist über eine Dauer von zwei bis drei Stunden durchzuführen.
10. Nach Beendigung der Testaerosolmessungen sind die Zwei-Wege-Hähne wieder auf Außenluftmessung umzulegen und der Schalter „Wartungsbetrieb" im entsprechenden Programm auszuschalten.
11. Auslesen der Messwerte des Partikelzählers des mobilen Standards per Laptop.
12. Nachbereitung: Invertierung der gemessenen Größenverteilungen der Mobilitätsspektrometer und Vergleich der Gesamtpartikelzahl mit der Zählrate des CPC 3772 des mobilen Standards. Ggf. Korrektur der Mobilitätsspektrometerwerte durch einen skalaren Faktor.

Herausgeber: Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie
Pillnitzer Platz 3, 01326 Dresden
Internet: http://www.smul.sachsen.de/lfulg

Autoren: Leibniz-Institut für Troposphärenforschung e.V.
Dr. Wolfram Birmili, André Sonntag, Dr. Thomas Tuch,
Prof. Alfred Wiedensohler
Permoserstr. 15, 04318 Leipzig
Telefon: 0341 235 3437
Telefax: 0341 234 2361
E-Mail: wolfram.birmili@tropos.de
Internet: http://www.tropos.de

Redaktion: Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie
Referat Luftqualität
Dr. Gunter Löschau
Söbrigener Str. 3a, 01326 Dresden
Telefon: 0351 2612-5101
Telefax: 0351 2612-5199
E-Mail: gunter.loeschau@smul.sachsen.de

Endredaktion: Öffentlichkeitsarbeit
Präsidialabteilung

ISSN: 1867-2868

Redaktionsschluss: Januar 2010

Verteilerhinweis

Diese Informationsschrift wird von der Sächsischen Staatsregierung im Rahmen der Öffentlichkeitsarbeit herausgegeben. Sie darf weder von Parteien noch von Wahlhelfern zum Zwecke der Wahlwerbung verwendet werden. Dies gilt für alle Wahlen.