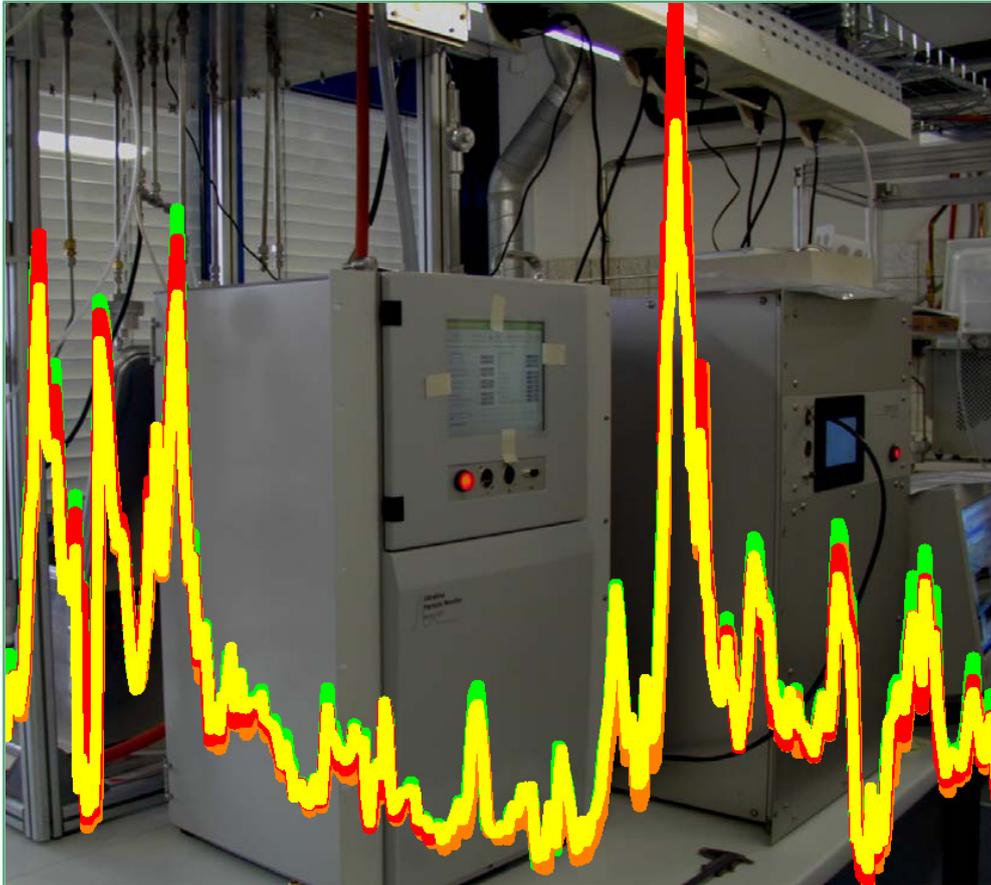




Das Lebensministerium



Ultrafeine Partikel im Prüflabor

5. August 2009

Leibniz-Institut für Troposphärenforschung e.V. in Leipzig im Auftrag des
Sächsischen Landesamtes für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie

Freistaat  Sachsen

Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie

Vorwort

Dr. - Ing. Gunter Löschau

Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Referat 51 „Luftqualität“

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 Qualitätssicherung und Qualitätskontrolle der STIMES¹ hat sich die regelmäßige Teilnahme an Ringversuchen in Referenzlaboratorien und Vergleichsmessungen im Feld bewährt.

Die Bestimmung der Anzahl ultrafeiner Partikel in Ergänzung zur Messung von PM₁₀ 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 ultrafeinen Partikeln 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.

Das Sächsische Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie hatte deshalb ein Pilotprojekt mit dem Ziel vergeben, eine erste Vergleichsmessung für ultrafeine Partikel für die Messsysteme im sächsischen Luftgütemessnetz durchzuführen, um die messtechnischen Rückführung der Partikelanzahlkonzentration und Partikelgrößenverteilung auf ein externes Referenzlabor² zu erproben und zukünftig durch Wiederholungen zu sichern. Die Methodik der Vergleichsmessungen der STIMES soll dabei auf die Messung ultrafeiner Partikel angewendet werden.

¹ STIMES = Staatliche Immissionsmessnetze in Deutschland

² „World Calibration Centre for Aerosol Physics (WCCAP)“ des „Global Atmosphere Watch Programms der UNO/WMO“ am Leibniz-Institut für Troposphärenforschung in Leipzig.

Zusammenfassung

Anzahl ultrafeiner Partikel in der städtischen Außenluft; Vergleichsmessungen im Prüflabor zur messtechnischen Rückführung

Dr. Wolfram Birmili, Kay Weinhold, André Sonntag, Dr. Birgit Wehner, Dr. Andreas Nowak,
Florian Ditas, Prof. Alfred Wiedensohler, Andreas Zschoppe

Zwei Exemplare kostengünstiger Mobilitätsspektrometer (UFP 330 und TSI 3031), drei konventionelle Mobilitätsspektrometer (TDMPS, SMPS) und ein Gesamtpartikelzähler (CPC 3010) wurden unter kontrollierten Laborbedingungen für drei verschiedene Arten an Testaerosolen verglichen. Relativ hohe quantitative und zeitliche Übereinstimmungen wurden zwischen den drei konventionellen Mobilitätsspektrometern untereinander und gegenüber dem Gesamtpartikelzähler festgestellt (Absolutverhältnis zwischen 0.8 und 1.1; relative Schwankungen < 10 %). Aufgrund der hinreichend guten Übereinstimmungen wurden die Konzentrationen des TDMPS-IFT im Folgenden als Bezugsgröße gewählt.

Der Geräteprototyp UFP 330 stimmte mit dem TDMPS-IFT gut bezüglich der zeitlichen Schwankungen und der absoluten Größenordnung der Partikelkonzentration überein. Schwächen waren jedoch beobachtbar bezüglich a) der unmittelbaren Einsatzfähigkeit (zwei besondere Wartungen durch Topas waren nötig), b) der exakten Form der aus den Modalparametern abgeleiteten Partikelgrößenverteilung > 100 nm, bzw. c) der Langzeitstabilität der Konzentration. Leider wurden beim UFP 330 für Außenluftaerosol Drifts in der Anzahlkonzentration beobachtet, die bereits innerhalb einer Woche die relativen Zählraten des Instruments wesentlich veränderten.

Der kommerzialisierte Typ TSI 3031 stimmte exzellent mit den Referenzgeräten bezüglich der zeitlichen Schwankungen und auch der mittelfristigen Stabilität über den 6wöchigen Messzeitraum. Schwächen waren beobachtbar bezüglich der Größenordnung der Partikelkonzentration (leider absolut zu niedrig), sowie der Partikelkonzentration > 200 nm (konsistent zu hoch). Letzterer Fehler stellte sich als Gerätedefekt heraus und konnte mittlerweile behoben werden. Generell zeigten UFP 330 und TSI 3031 ein unterschiedliches Verhalten bezüglich mehrerer der genannten Parameter. Wenn man vom unerwünschten und offenbar unkontrollierbaren Drift des UFP 330 absieht, erfüllten die Instrumente UFP 330 und TSI 3031 für Außenluftaerosol die an sie gestellten Erwartungen weitgehend.

Zusätzliche, mit standardisierten Latexpartikeln und Ammoniumsulfatpartikeln (mobiler Aerosolstandard) durchgeführte Vergleichsexperimente führten jedoch zu stärkeren Abweichungen in den Zählraten nach unten. Hieraus ergeben sich Fragezeichen über einen Einsatz dieser Testpartikel in Verbindung mit den TSI 3031 und UFP 330 bei der Qualitätssicherung im Messnetz.

Beim TDMPS DD-Nord wurde der separate Ausgleichsbehälter charakterisiert. Er sorgt für geringfügige und quantifizierbare Anzahlverluste bei der Probenahme, die sich auf den Partikelgrößenbereich < 20 nm beschränken. TSI 3031 und UFP 330 sollten nur mit Probe-

nahmesystem betrieben werden. Die beiden zugehörigen Probenahmesysteme stimmten exzellent bezüglich ihrer Partikelanzahlverluste (10-15 %) überein.

Für die Zukunft werden der BfUL intervallmäßige Vergleichsmessungen zwischen dem TDMPS sowie den TSI 3031 und UFP 330 unter Feldbedingungen in Dresden empfohlen. Die Experimente werden im Sommer 2009 fortgesetzt werden, um die angedeuteten offenen Fragen, vor allem bezüglich der Reproduzierbarkeit und Stabilität der TSI 3031 und UFP 330, zu klären.

Abstract

Intercomparison measurements for electromobility spectrometers (TDMPS, UFP 330, TSI 3031) under controlled conditions using ambient air

Dr. Wolfram Birmili, Kay Weinhold, André Sonntag, Dr. Birgit Wehner, Dr. Andreas Nowak, Florian Ditas, Prof. Alfred Wiedensohler, Andreas Zschoppe

With an increasing number of instruments deployed in urban and rural observation sites, the corresponding quality assurance of atmospheric particle number and size distribution measurements has received increased attention. An intercomparison workshop was conducted in 2008 in Leipzig for the electromobility spectrometers that are operated in the air quality measurement network of Saxony (Germany). The following instruments were deployed: two custom-built TDMPS (twin differential mobility particle sizer), one custom-built SMPS (scanning mobility particle sizer), one UFP 330 simplified mobility spectrometer (EU project UFIPOLNET prototype), and one TSI 3031 simplified mobility spectrometer (commercial variant of the UFP 330), and – as a reference, a condensation particle counter CPC 3010 (TSI Inc.). All comparisons were performed under controlled laboratory conditions. However, all instruments were equipped with their field-station sampling systems. Ambient air served as a sample aerosol throughout most of the one-month period. A first result was that the conventional mobility spectrometers (TDMPS & SMPS) agreed with the best reference instrument (CPC 3010) within 10 % for total particle number. Also, the conventional instruments agreed very closely in the shape of their size distribution confirming them to be a reliable instrument for laboratory and field deployment. The comparison with the simplified mobility spectrometers (UFP 330 and TSI 3031) revealed, however, limitations in the accuracy of the latter instruments. While the number concentrations measured by the TSI 3031 were rather stable with time, those of the UFP 330 showed a gradual drift with time. The results of the workshop urge to repeat more controlled intercomparison measurements involving the UFP 330 and TSI 3031 instruments, preferably with more individual instruments per model, and over a longer time period. This will be necessary to define the accuracy of both instrument types in the context of long-term particle number concentration monitoring.

Anzahl ultrafeiner Partikel in der städtischen Außenluft; Vergleichsmessungen im Prüflabor zur messtechnischen Rückführung

Dr. Wolfram Birmili, Kay Weinhold, André Sonntag, Dr. Birgit Wehner, Dr. Andreas Nowak, Florian Ditas, Prof. Alfred Wiedensohler, Leibniz-Institut für Troposphärenforschung e.V., Permoserstr. 15, 04318 Leipzig
Andreas Zschoppe, Topas GmbH, Oskar-Röder-Str. 12, 01237 Dresden

1	Einleitung.....	5
2	Messaufbau.....	5
2.1	Messinstrumente	5
2.2	Ablauf der Vergleichsmessung	5
2.3	Versuchsaufbau.....	6
3	Überblick über die Experimente.....	8
4	Quantitativer Vergleich	12
4.1	Vergleich der Referenzgeräte.....	12
4.2	Vergleichsmessung der BfUL-Messtechnik ohne Probenahmesystem	14
4.3	Vergleichsmessungen mit Probenahmesystem für Außenluft	23
4.4	Vergleichsmessungen für Außenluft: Zeitliche Trends	33
4.5	Vergleichsmessungen mit Probenahmesystem für Ammoniumsulfat	41
4.6	Vergleichsmessungen mit Probenahmesystem für Latexpartikel	44
5	Charakterisierung der Probenahmesysteme	45
6	Zusammenfassung	47
7	Literaturverzeichnis	48

1 Einleitung

Zur besseren Charakterisierung von Partikeln in der Außenluft sind in den vergangenen Jahren Messmethoden bezüglich der Partikelanzahl, Größenverteilung detaillierten chemischen Zusammensetzung in den Brennpunkt gerückt. Eine inzwischen routinemäßig eingesetzte Methode ist die Bestimmung der Partikelgrößenverteilung durch Elektromobilitätsspektrometer (BIRMILI ET AL., 2006; BIRMILI ET AL., 2007, EUSAAR, 2008). Im Rahmen des EU-Projekts UFIPOLNET wurden in Zusammenarbeit mit den Industriefirmen Topas GmbH und TSI GmbH ein neues Elektromobilitätsspektrometer,- das sogenannte UFP 330, entwickelt, welches sich vor allem durch niedrige Baukosten auszeichnet (UFIPOLNET, 2008). Dieses Gerät wurde inzwischen als TSI 3031 kommerzialisiert (TSI, 2008a). Die Hauptaufgabe dieses Projektes war es, die Vergleichbarkeit der Messungen der UFP 330 und TSI 3031 mit klassischen Mobilitätsspektrometern unter kontrollierten Laborbedingungen zu überprüfen. Durch die Vergleichsmessungen sollten die beteiligten UFP 330 und TSI 3031 auf den kommenden Routineeinsatz im Messnetz des LFULG vorbereitet werden. Die durchgeführten Testmessungen stehen in einer Reihe mit früher durchgeführten Vergleichsmessungen verschiedener Elektromobilitätsspektrometer (DAHMAN ET AL., 2001; BIRMILI ET AL., 2007; EUSAAR, 2008; HELSPER ET AL., 2008). Für das sächsische Luftmessnetz stellt dieses Projekt eine Pilotarbeit dar.

2 Messaufbau

2.1 Messinstrumente

Folgende Messeinrichtungen der BfUL (Betriebsgesellschaft für Umwelt und Landwirtschaft Sachsen) würden überprüft:

- TDMPs (DD-Nord); Elektromobilitätsspektrometer - Messbereich 3-800 nm
- UFP 330; vereinfachtes Elektromobilitätsspektrometer - Messbereich 20-600 nm
- TSI 3031; kommerzialisierte Variante des UFP 330

Folgende Referenzgeräte wurden zur Vergleichsmessung eingesetzt:

- TDMPs (IfT); Elektromobilitätsspektrometer mit Messbereich 3-800 nm; optimiert für maximale Sammeleffizienzen im Bereich kleinster Partikel (< 20 nm).
- SMPS (IfT) Elektromobilitätsspektrometer mit Messbereich 10-800 nm; entspricht den in EUSAAR (2008) empfohlenen Spezifikationen für Partikelgrößenspektrometer.
- Ein Gesamtpartikelzähler (CPC 3010), zählt Partikel mit Durchmesser > 10 nm.

2.2 Ablauf der Vergleichsmessung

Bei der Vergleichsmessung wurde folgende Chronologie beachtet:

1. Komplettierung und Inbetriebnahme der BfUL-Messeinrichtungen
2. Eingangsprüfung
 - a. Vergleich der reduzierten BfUL-Messeinrichtungen (d.h. ohne ihr jeweiliges Probenahmesystem) gegenüber den Referenzgeräten.
 - b. Vergleich der kompletten BfUL-Messeinrichtungen (d.h. mit ihrem jeweiligen Probenahmesystem) gegenüber den Referenzgeräten.

3. Zwischenauswertung der Messdaten; ggf. Veränderungen an den Messsystemen (TSI 3031 und UFP 330)
4. Abschlussprüfung. Vergleich der kompletten BfUL-Messeinrichtungen (d.h. mit ihrem jeweiligen Probenahmesystem) gegenüber den Referenzgeräten.

2.3 Versuchsaufbau

Der Versuchsaufbau ist in Abb. 2.3.1 dargestellt. Die BfUL-Messeinrichtungen wurden unter Verwendung dreier alternativer Prüfaerosole (Außenluft, 200 nm-Latexpartikel, Ammoniumsulfat) gegenüber den Referenzgeräten verglichen. Zur Dämpfung von Schwankungen im Prüfaerosol wurden eine Mischkammer mit einem Volumen von 1 m³ als Puffer angeschlossen. In einem ersten Schritt wurden die BfUL-Messeinrichtungen ohne ihr jeweiliges Probenahmesystem gegenüber den Referenzgeräten verglichen. Im Falle des TDMPS Dresden-Nord handelte es sich beim Probenahmesystem lediglich um einen an der Station verwendeten Ausgleichsbehälter, im Falle der UFP 330 und TSI 3031 jedoch um das komplette Probenahmesystem PNS 3031200 (TSI, 2008b), welches einen PM₁-Zyklon und eine Trocknungseinheit umfasst. Der zusätzlich vorhandene Ausgleichsbehälter wurde beim UFP 330 stets mit angeschlossen – beim TSI 3031 ist er gar fest eingebaut.

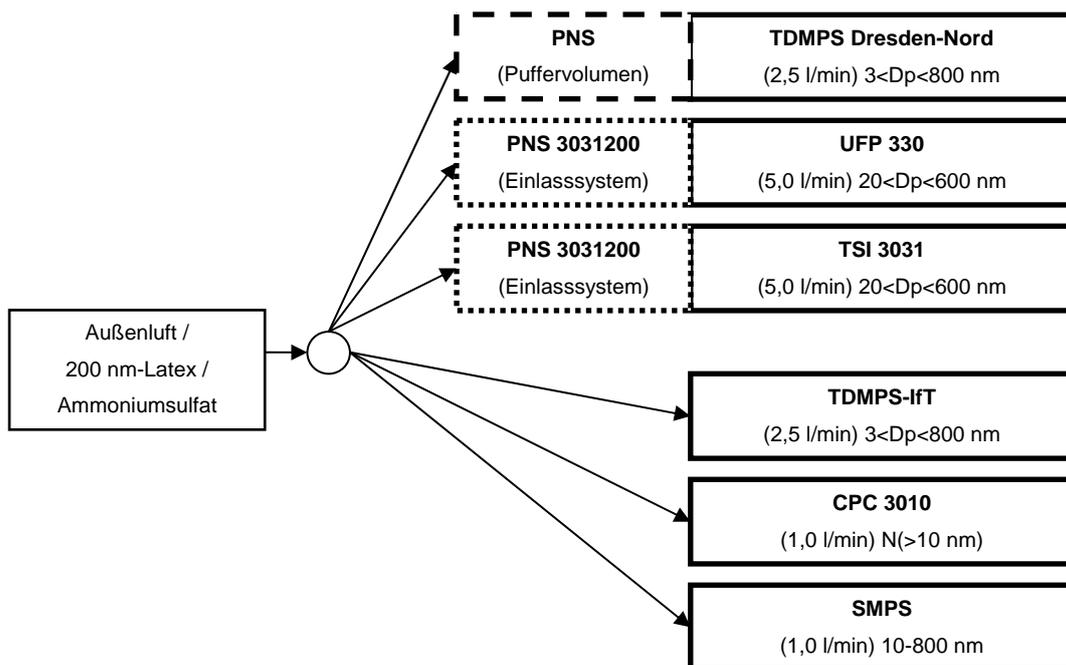


Abb. 2.3.1: Vergleich der BfUL-Messeinrichtungen (oben rechts) gegenüber den drei Referenzgeräten (unten rechts) unter Verwendung verschiedener Prüfaerosole. Der Kreis stellt die Mischkammer mit einem Volumen von 1 m³ dar. Durchflussraten (in l/min) und Partikelmessbereiche (in nm) sind angegeben.

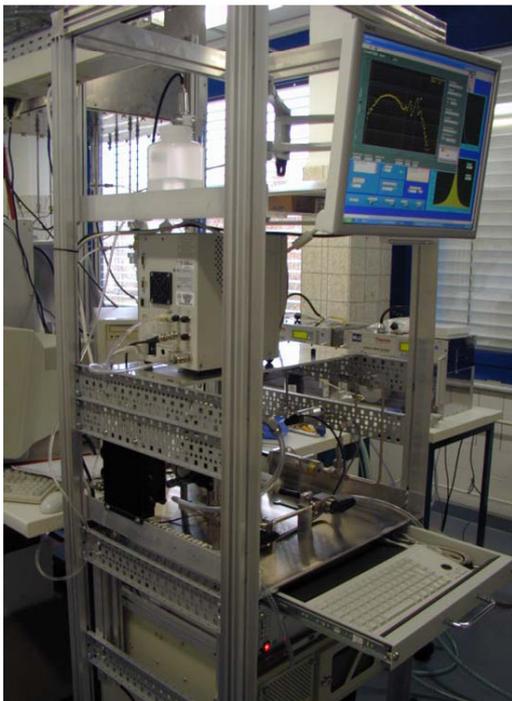


Abb. 2.3.2: Messaufbau im IfT-Labor: TDMP5-IfT und TDMP5-DD-Nord (oben links), TSI 3031 und UFP 330 (oben rechts), SMPS-IfT (unten links), Aerosolerzeugungseinheit (unten rechts).

3 Überblick über die Experimente

Die untenstehende Tabelle 3.1. vermittelt einen Überblick über die im Oktober und November 2008 durchgeführten Teilerperimente, bei denen Außenluft-, Ammoniumsulfat bzw. Latexpartikel verwendet wurden. Die anschließenden Abbildungen 3.1-3.6 geben Aufschluss über die zeitlichen Schwankungen der Partikelanzahlkonzentration und auch einen ersten Eindruck von der Vergleichbarkeit der Partikelmobilitätsspektrometer.

Teilerperiment	Aerosoltyp	Beginn_Datum	Ende_Datum	TDMPS & SMPS IfT	TDMPS DD-Nord	UFP330 & TSI 3031	CPC 3010
E1	Außenluft	23.10.08 15:30	27.10.08 14:00	ohne PNS	ohne PNS	ohne PNS	-
E2	Außenluft	27.10.08 16:00	29.10.08 13:00	ohne PNS	ohne PNS	mit PNS	-
E3	Außenluft	30.10.08 18:00	3.11.08 9:00	ohne PNS	mit PNS	mit PNS	-
E4	200 nm-Latex	5.11.08 10:30	5.11.08 13:30	ohne PNS	mit PNS	mit PNS	-
E5	Außenluft	5.11.08 18:00	12.11.08 9:00	ohne PNS	mit PNS	mit PNS	ohne PNS
E6	A (NH ₄) ₂ SO ₄	12.11.08 10:30	12.11.08 12:30	ohne PNS	mit PNS	mit PNS	ohne PNS
E6	B (NH ₄) ₂ SO ₄	12.11.08 13:00	12.11.08 15:00	ohne PNS	mit PNS	mit PNS	ohne PNS
E6	C (NH ₄) ₂ SO ₄	12.11.08 16:30	12.11.08 18:30	ohne PNS	mit PNS	mit PNS	ohne PNS
E7	Außenluft	12.11.08 19:30	13.11.08 14:30	ohne PNS	mit PNS	mit PNS	ohne PNS
E8	200 nm-Latex	13.11.08 15:45	13.11.08 17:15	ohne PNS	mit PNS	mit PNS	ohne PNS
E9	A Außenluft	13.11.08 18:00	16.11.08 0:44	ohne PNS	mit PNS	mit PNS	ohne PNS
E9	B Außenluft	17.11.08 15:44	24.11.08 7:45	ohne PNS	mit PNS	mit PNS	ohne PNS
E9	I Außenluft-hoch	17.11.08 16:00	17.11.08 20:00	ohne PNS	mit PNS	mit PNS	ohne PNS
E9	II Außenluft-niedrig	22.11.08 0:00	22.11.08 3:00	ohne PNS	mit PNS	mit PNS	ohne PNS

Tabelle 3.1: Übersicht über die durchgeführten Teilerperimente. PNS = Probenahmesystem.

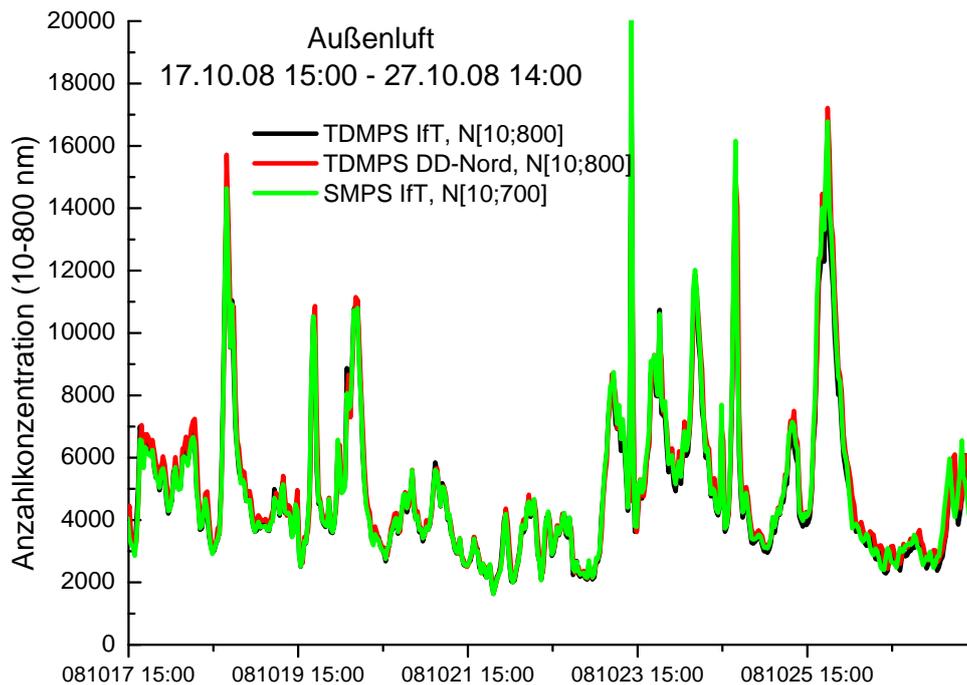


Abb. 3.1: Zeitreihe der Partikelanzahlkonzentration (Größenbereich 10-800 nm, Zeitauflösung 30 min) unter Verwendung von Außenluftaerosol. Der dargestellte Zeitraum umfasst das Teilerperiment E1 plus sechs Messtage davor.

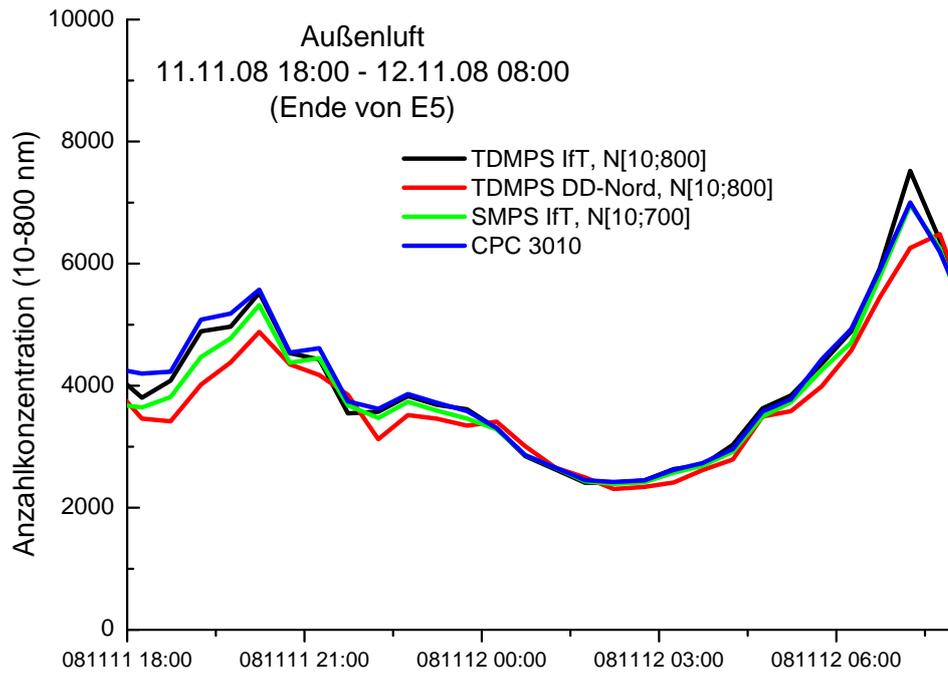


Abb. 3.2: Zeitreihe der Partikelanzahlkonzentration (Größenbereich 10-800 nm) für das Ende des Teilexperimentes E5 unter Verwendung von Außenluftaerosol.

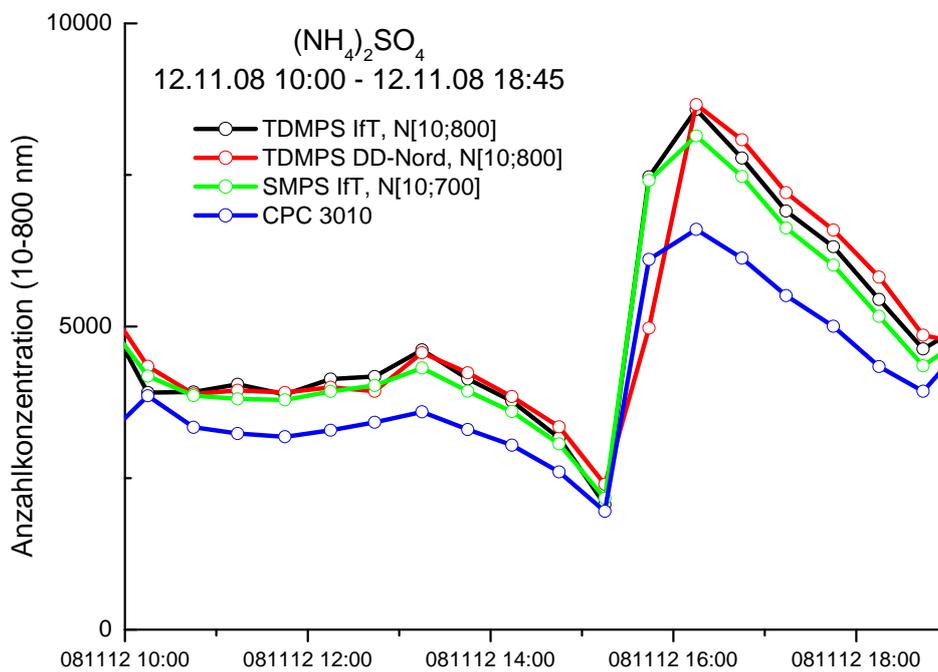


Abb. 3.3: Zeitreihe der Partikelanzahlkonzentration (Größenbereich 10-800 nm) für das Teilexperiment E6 unter Verwendung von Ammoniumsulfatpartikeln.

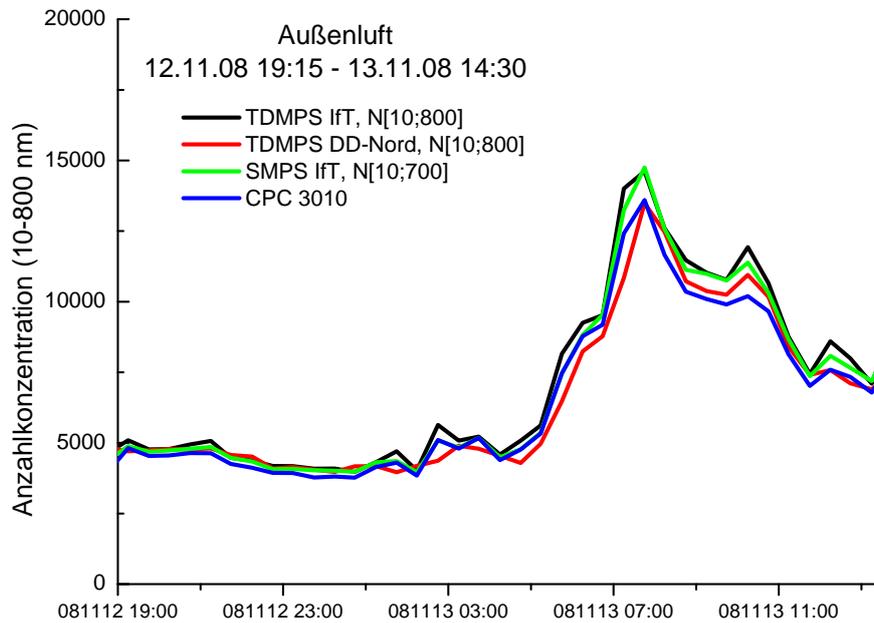


Abb. 3.4: Zeitreihe der Partikelanzahlkonzentration (Größenbereich 10-800 nm) für das Teil-experiment E7 unter Verwendung von Außenluftaerosol.

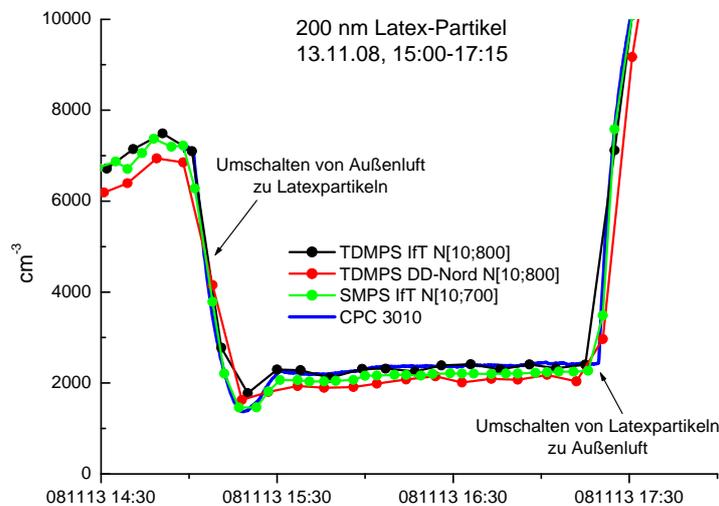


Abb. 3.5: Zeitreihe der Partikelanzahlkonzentration (Größenbereich 10-800 nm) für das Teil-experiment E8 (Latexpartikel). Die Werte sind hier ausnahmsweise für jedes Gerät mit maximaler Zeitauflösung dargestellt (TDMPS 10 min, SMPS 5 min, CPC 20 sec).

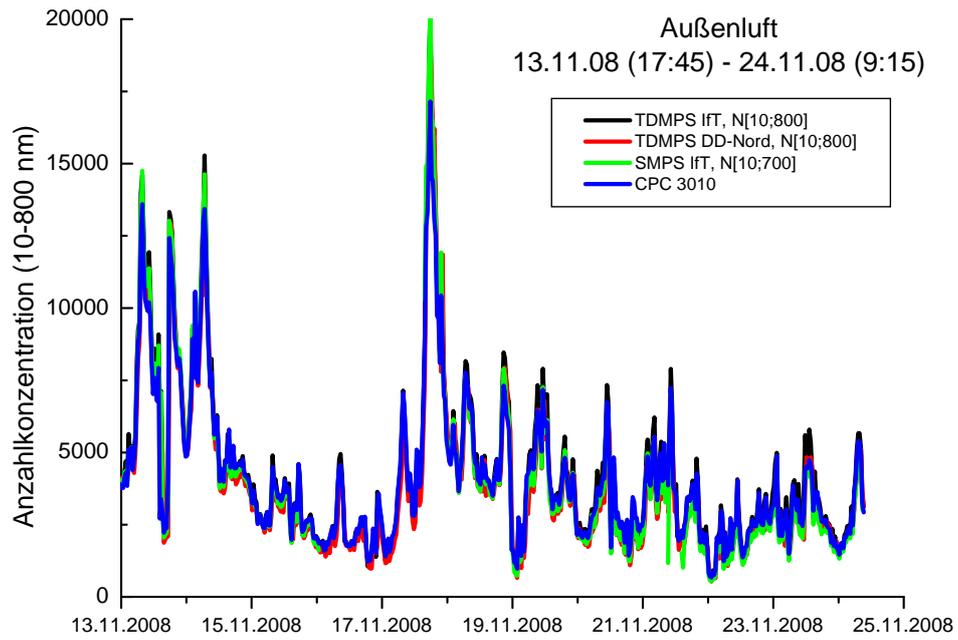


Abb. 3.5: Zeitreihe der Partikelanzahlkonzentration (Größenbereich 10-800 nm; Halbstundenmittel) für das Teilerperiment E9 unter Verwendung von Außenluftaerosol.

4 Quantitativer Vergleich

Dieser Abschnitt stellt die quantitativen Ergebnisse der Vergleichsmessung für Partikelgrößen-spektrometer vor.

4.1 Vergleich der Referenzgeräte

Zunächst wird der Vergleich der Referenzgeräte untereinander vorgestellt und somit die Qualität dieser Referenzgeräte definiert.

Abb. 4.1.1 zeigt Partikelgrößenverteilungen für drei prinzipiell baugleiche Partikelmobilitätsspektrometer. Zwischen den beiden Referenzgeräten (TDMPS-IfT, SMPS-IfT) ist eine ausgezeichnete Übereinstimmung der Größenverteilungen erkennbar. Oberhalb 20 nm stimmt auch das TDMPS-Dresden-Nord hervorragend mit beiden anderen Geräten überein.

Die Abb. 4.1.2 und 4.1.3 zeigen die Korrelation der Referenzgeräte TDMPS-IfT und SMPS-IfT gegenüber dem Sekundärstandard für die Partikelanzahlkonzentration, dem CPC 3010. Auch hier sieht man eine quantitativ hochwertige Übereinstimmung. Wegen der Koinkidenz im CPC ist es angebracht, den Vergleich auf Konzentrationen unterhalb 8000 cm^{-3} zu begrenzen (Abb. 4.1.3).

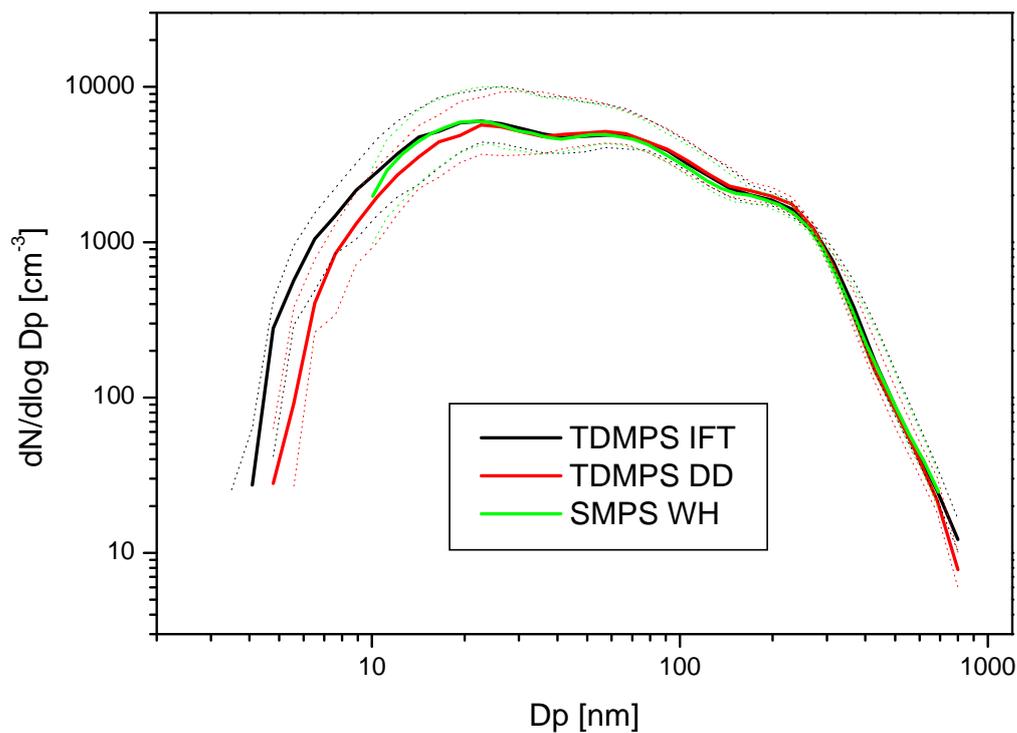


Abb. 4.1.1: Vergleich der Größenverteilungen von drei Partikelmobilitätsspektrometern (durchgezogen: Median, gestrichelt: Quartilbereich) für Außenluft (Teilexperiment E7): TDMPS-IfT (Referenzgerät I), SMPS-IfT (Referenzgerät II), TDMPS-Dresden-Nord (Prüfling, mit Ausgleichsbehälter).

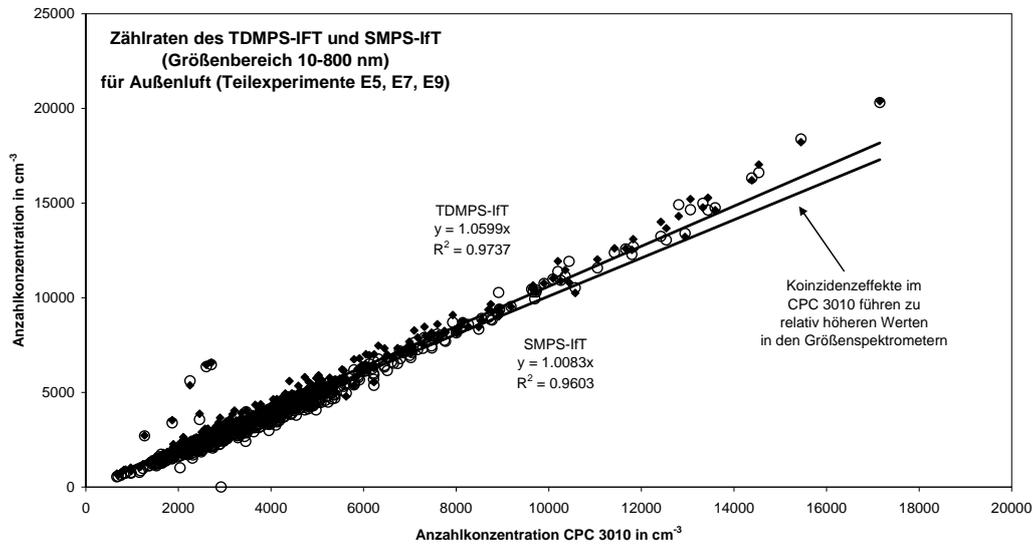


Abb. 4.1.2: Vergleich der Zählraten des TDMPS-IFT und SMPS-IFT gegenüber dem CPC 3010 (bestes Referenzgerät für die Absolutkonzentration) für Außenluft. Die Darstellung bezieht sich auf den Partikelgrößenbereich 10-800 nm.

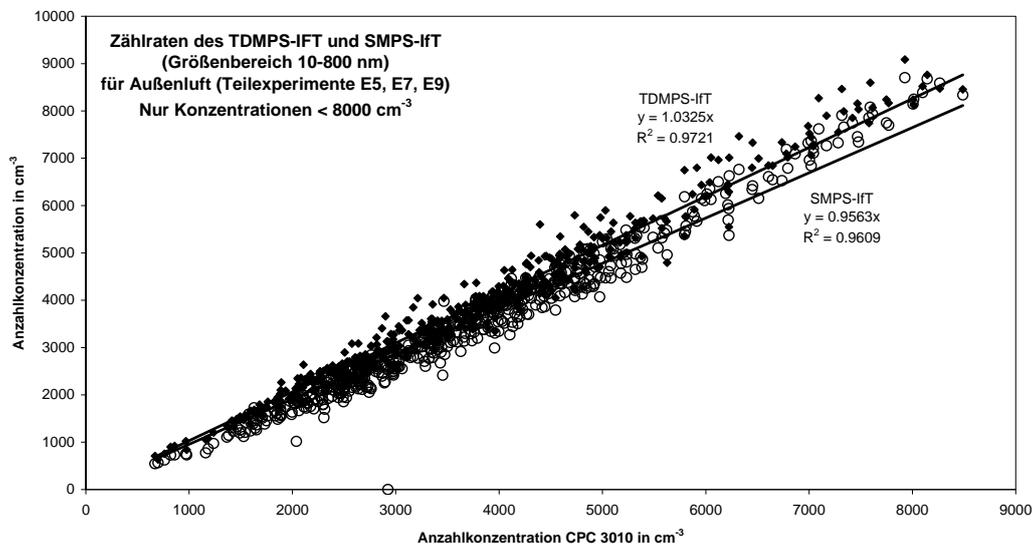


Abb. 4.1.3: Vergleich der Zählraten des TDMPS-IFT und SMPS-IFT gegenüber dem CPC 3010 (bestes Referenzgerät für die Absolutkonzentration) für Außenluft. Die Darstellung bezieht sich auf den Partikelgrößenbereich 10-800 nm und ist auf Konzentrationen unterhalb 8000 cm^{-3} beschränkt.

4.2 Vergleichsmessung der BfUL-Messtechnik ohne Probenahmesystem

Dieser Abschnitt stellt die Vergleichsmessung zwischen der BfUL-Messtechnik ohne jeweiliges Probenahmesystem und den Referenzgeräten dar.

Abb. 4.2.1 stellt den Vergleich der Größenverteilungen während des Teilexperiments E1 (Außenluft) dar. Während beide TDMPS-Geräte hervorragend übereinstimmen, sieht man bedeutende Abweichungen bei den Geräten UFP 330 und TSI 3031. Die geringen Abweichungen zwischen den TDMPS-Geräten reproduzieren sich in Abb. 4.2.2 bis 4.2.11, wo die lineare Korrelation zwischen den Messwerten beider Geräte für festgelegte Partikelgrößenintervalle dargestellt ist. Hingegen sieht man in Abb. 4.2.12 bis 4.2.17 die deutlichen Abweichungen der UFP 330 und TSI 3031. Eine erste Schlussfolgerung an dieser Stelle ist, dass die beiden Mobilitätsspektrometer UFP 330 und TSI 3031 ohne ihr dezidiertes Probenahmesystem Messwerte vermindelter Qualität liefern.

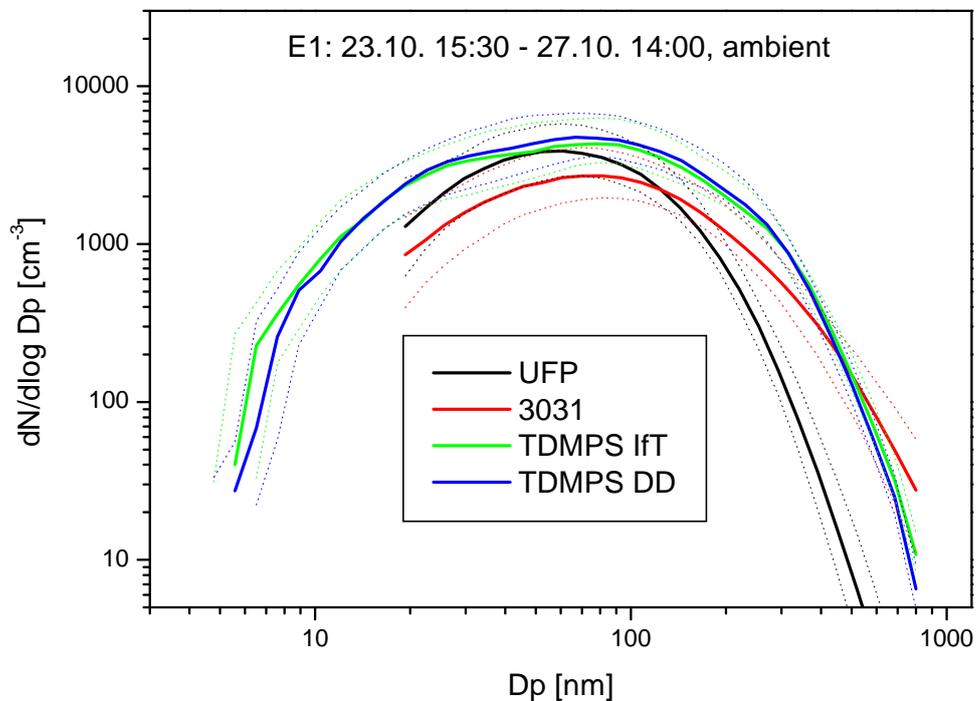


Abb. 4.2.1: Vergleich der Größenverteilungen (durchgezogen: Median, gestrichelt: Quartile) während des Teilexperiments E1. UFP 330 und TSI 3031 wurden hierbei mit Ausgleichsbehälter, aber ohne Probenahmesystem (PM₁-Zyklon und Trockereinheit) betrieben.

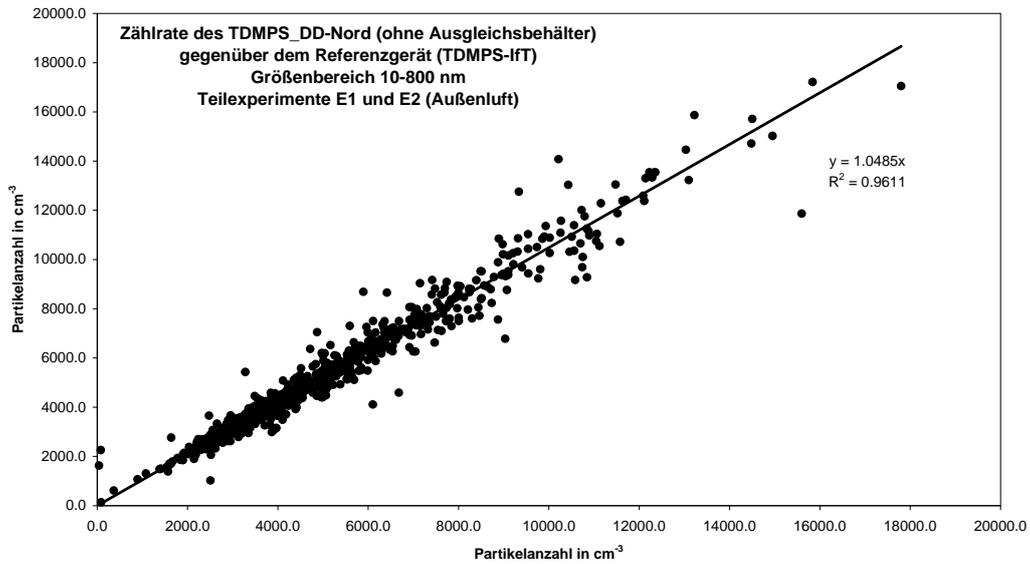


Abb. 4.2.2: Vergleich der Zählraten des TDMPS-DD-Nord (y-Achse) gegenüber dem TDMPS-IFT (x-Achse) für Außenluft: Partikelgrößenbereich 10-800 nm.

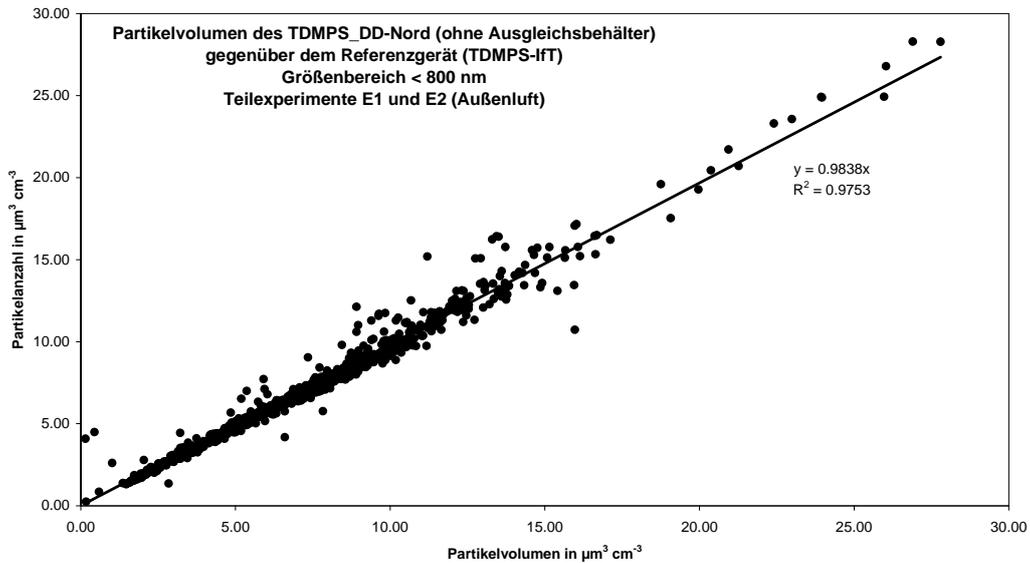


Abb. 4.2.3: Vergleich der Zählraten des TDMPS-DD-Nord (y-Achse) gegenüber dem TDMPS-IFT (x-Achse) für Außenluft: Partikelgrößenbereich < 800 nm.

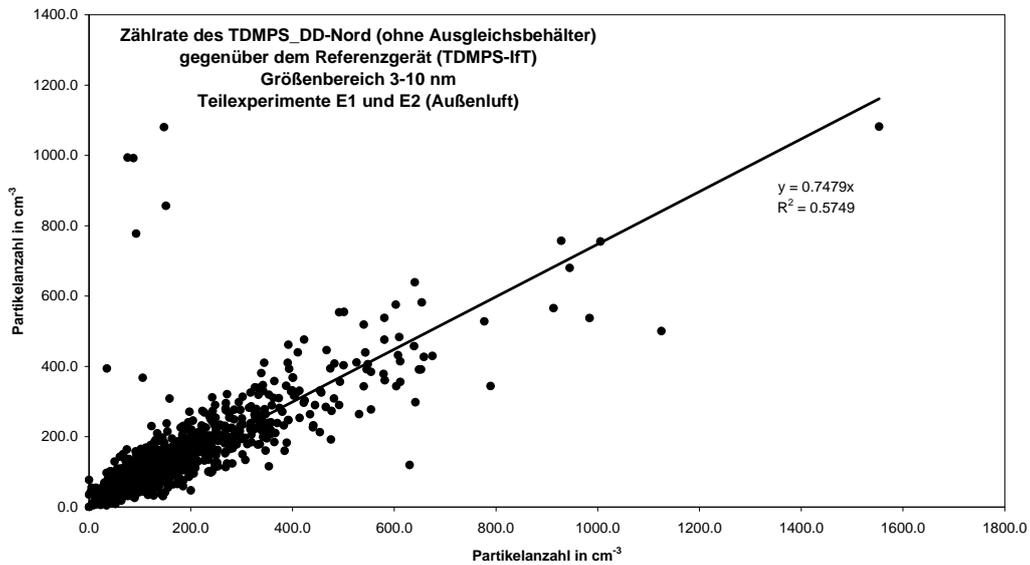


Abb. 4.2.4: Vergleich der Zählraten des TDMPS-DD-Nord (y-Achse) gegenüber dem TDMPS-IFT (x-Achse) für Außenluft: Partikelgrößenbereich 3-10 nm.

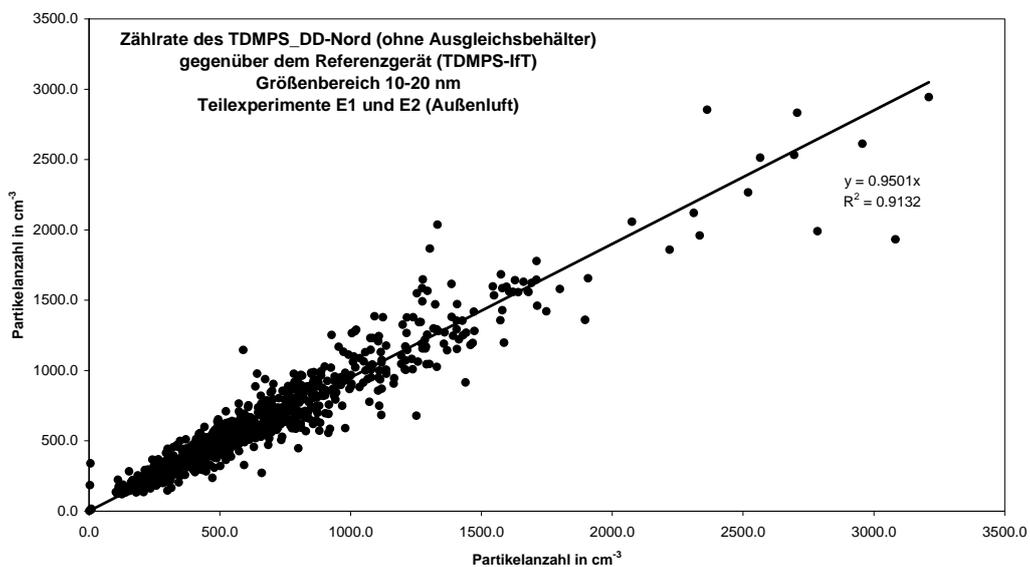


Abb. 4.2.5: Vergleich der Zählraten des TDMPS-DD-Nord (y-Achse) gegenüber dem TDMPS-IFT (x-Achse) für Außenluft: Partikelgrößenbereich 10-20 nm.

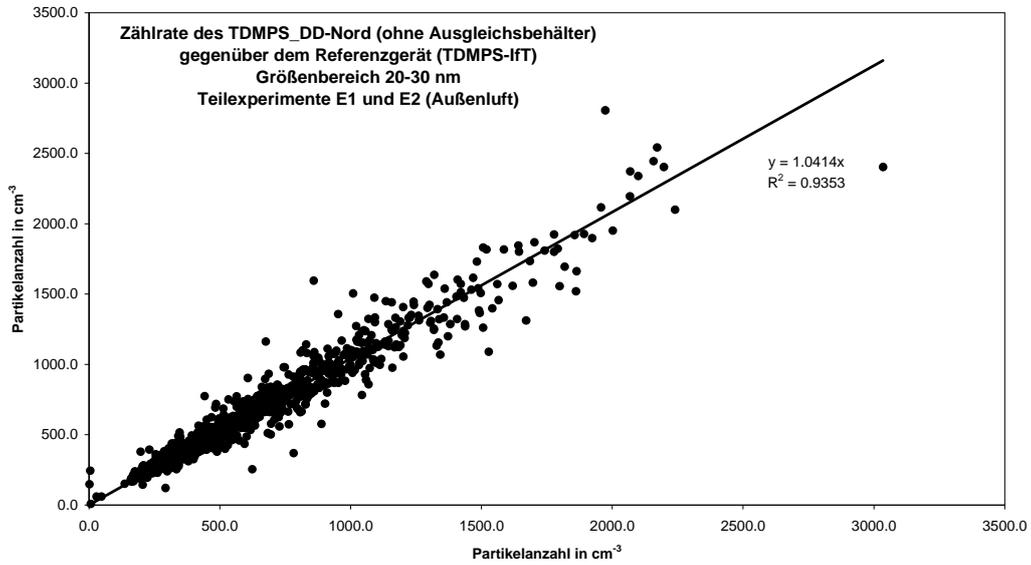


Abb. 4.2.6: Vergleich der Zählraten des TMPS-DD-Nord (y-Achse) gegenüber dem TMPS-IFT (x-Achse) für Außenluft: Partikelgrößenbereich 20-30 nm.

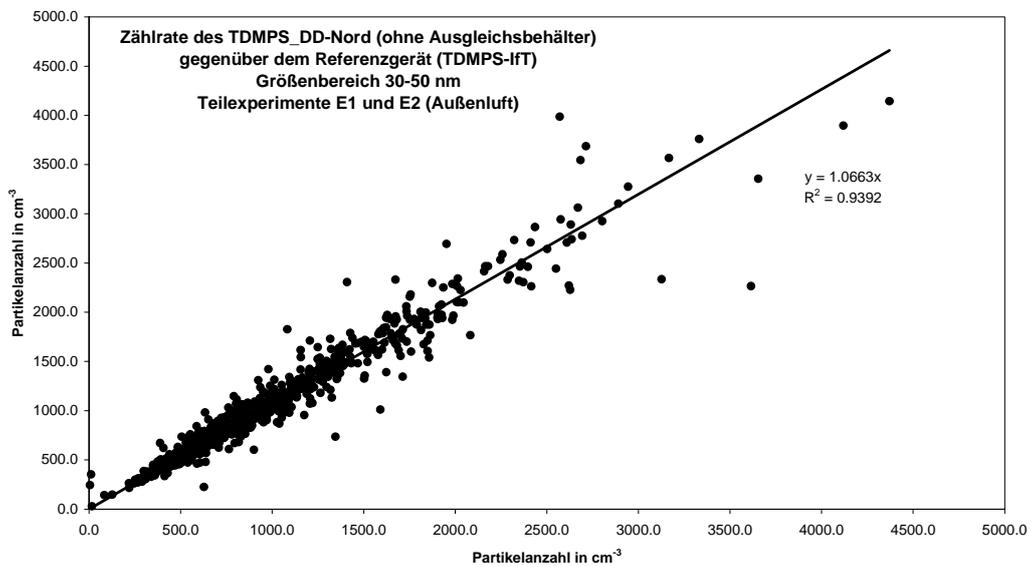


Abb. 4.2.7: Vergleich der Zählraten des TMPS-DD-Nord (y-Achse) gegenüber dem TMPS-IFT (x-Achse) für Außenluft: Partikelgrößenbereich 30-50 nm.

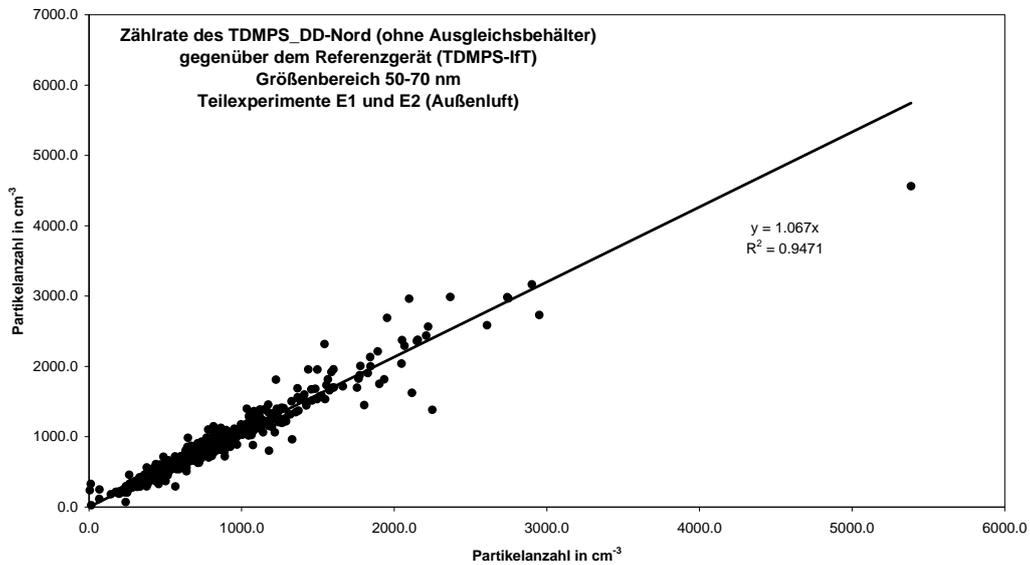


Abb. 4.2.8: Vergleich der Zählraten des TDMPs-DD-Nord (y-Achse) gegenüber dem TDMPs-IFT (x-Achse) für Außenluft: Partikelgrößenbereich 50-70 nm.

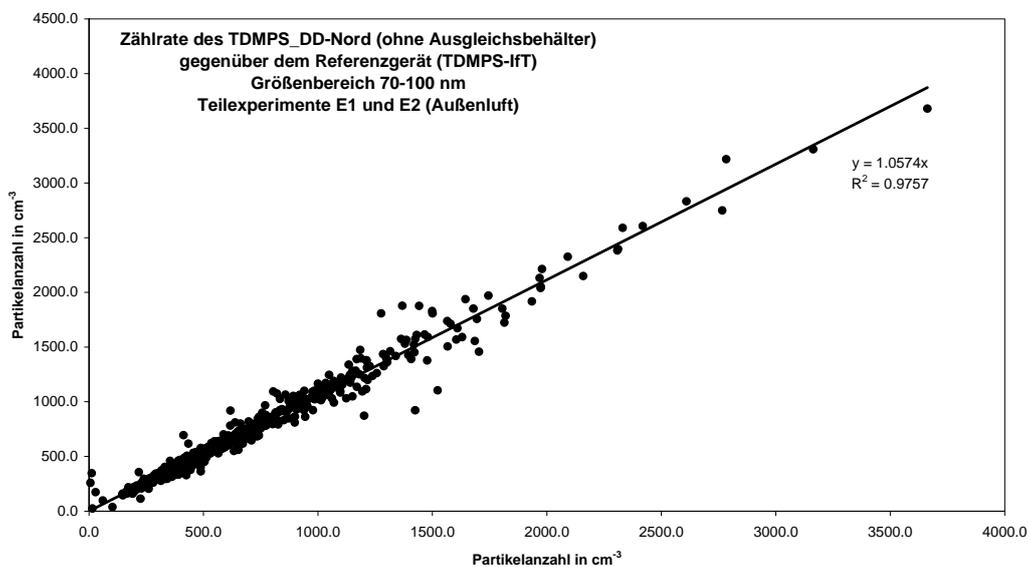


Abb. 4.2.9: Vergleich der Zählraten des TDMPs-DD-Nord (y-Achse) gegenüber dem TDMPs-IFT (x-Achse) für Außenluft: Partikelgrößenbereich 70-100 nm.

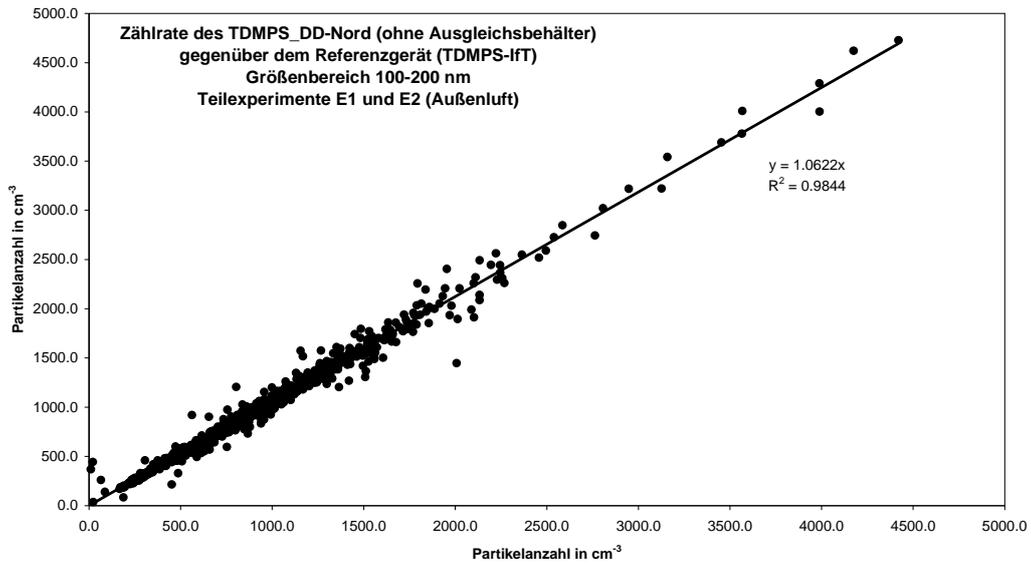


Abb. 4.2.10: Vergleich der Zählraten des TDMP5-DD-Nord (y-Achse) gegenüber dem TDMP5-IFT (x-Achse) für Außenluft: Partikelgrößenbereich 100-200 nm.

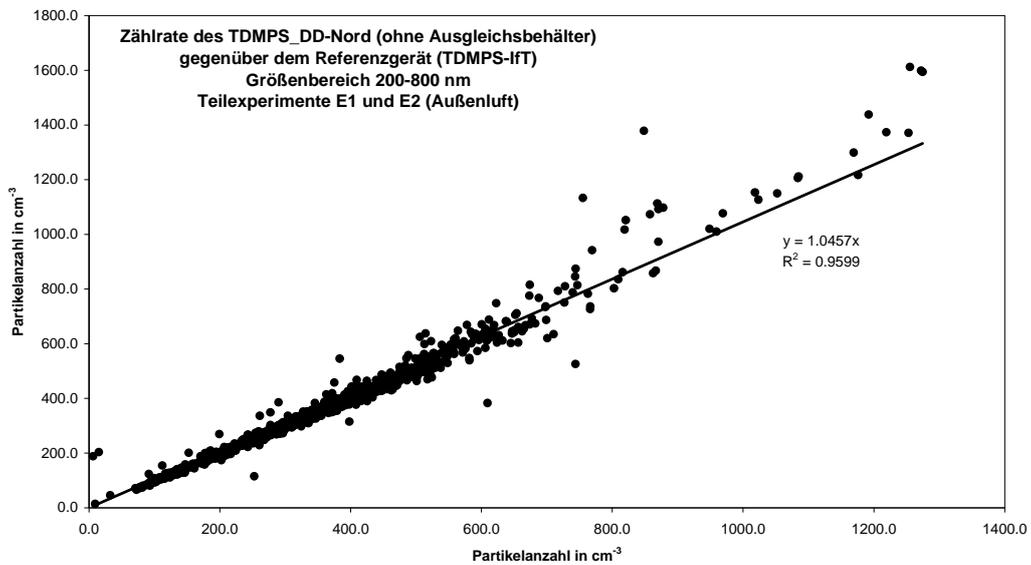


Abb. 4.2.11: Vergleich der Zählraten des TDMP5-DD-Nord (y-Achse) gegenüber dem TDMP5-IFT (x-Achse) für Außenluft: Partikelgrößenbereich 200-800 nm.

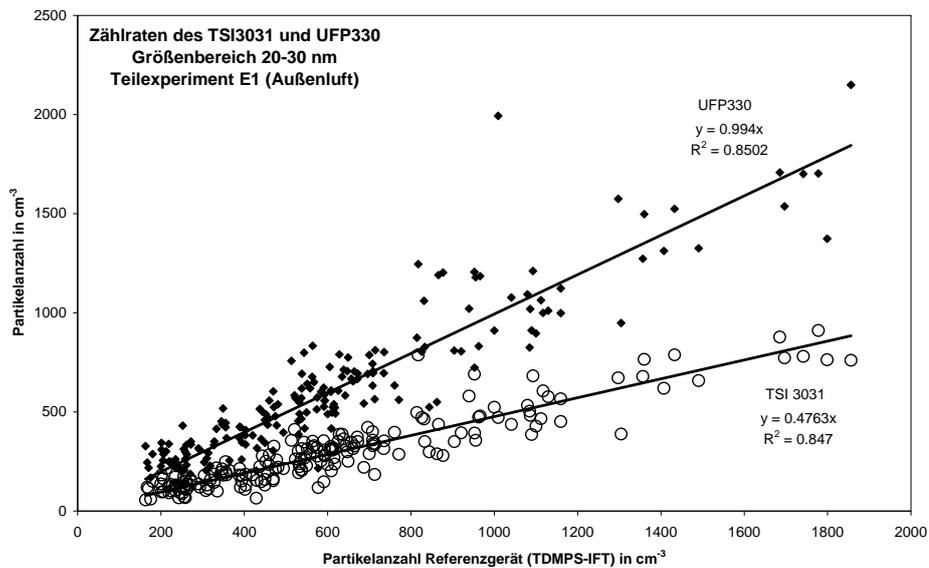


Abb. 4.2.12: Vergleich der Zählraten des TSI 3031 und UFP330 ohne Probenahmesystem gegenüber dem Referenzgerät für Außenluft (Partikelgrößenbereich 20-30 nm)

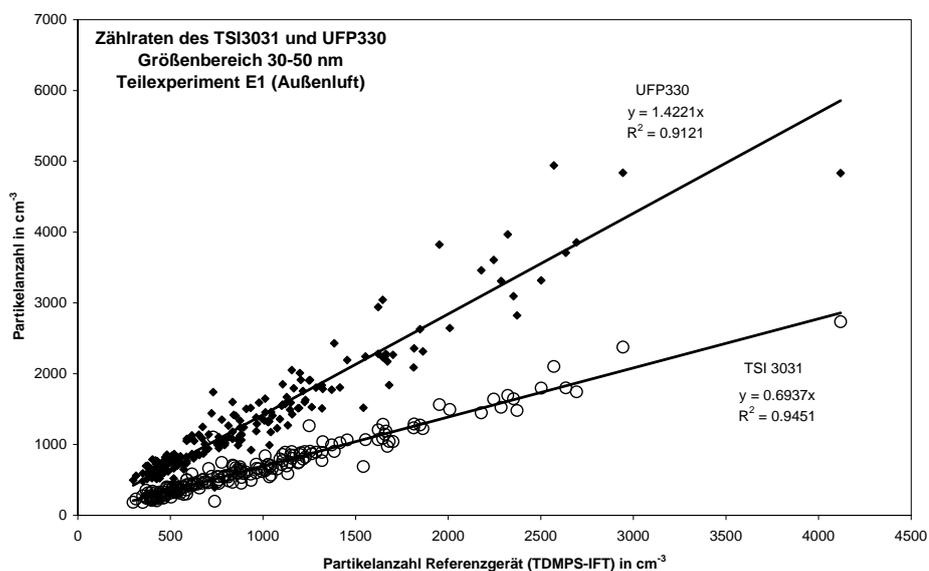


Abb. 4.2.13: Vergleich der Zählraten des TSI 3031 und UFP330 ohne Probenahmesystem gegenüber dem Referenzgerät für Außenluft (Partikelgrößenbereich 30-50 nm)

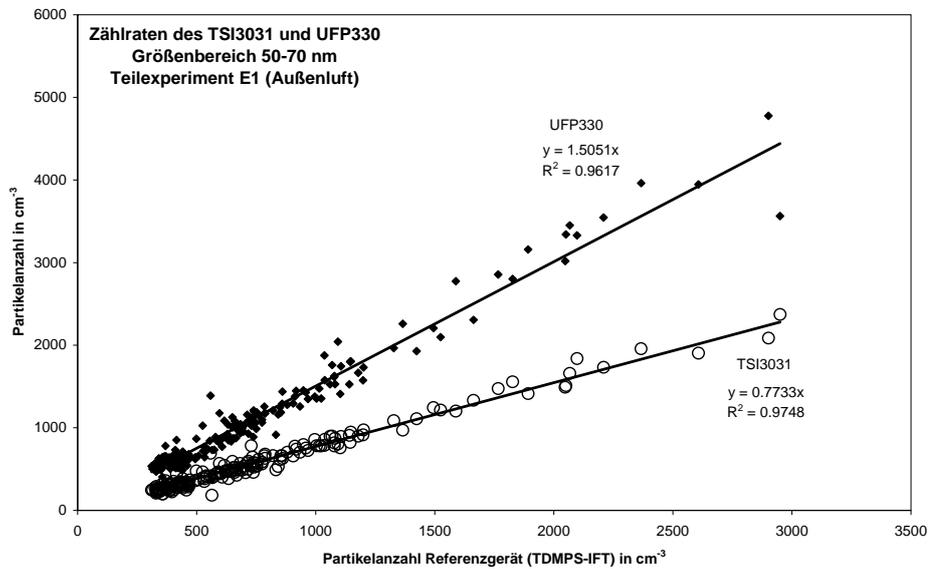


Abb. 4.2.14: Vergleich der Zählraten des TSI 3031 und UFP330 ohne Probenahmesystem gegenüber dem Referenzgerät für Außenluft (Partikelgrößenbereich 50-70 nm)

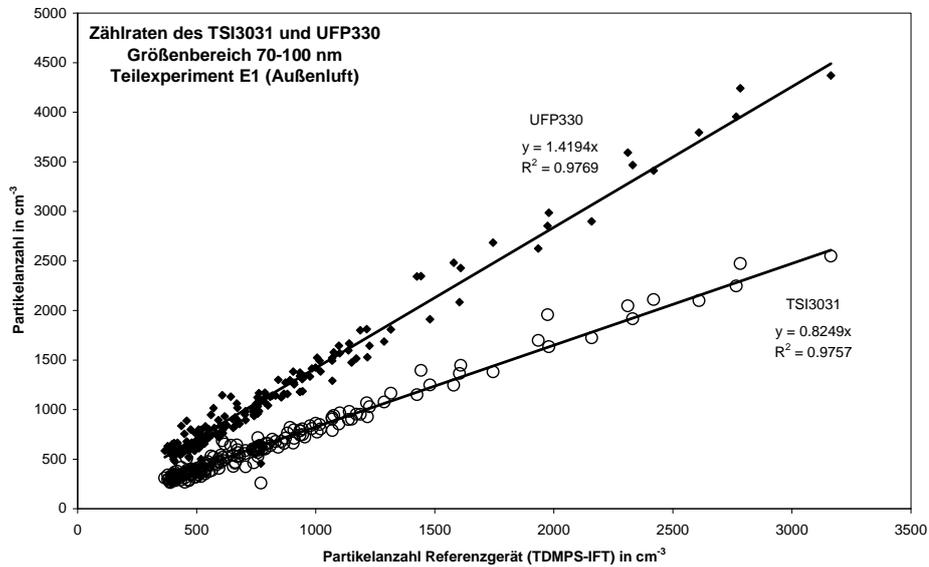


Abb. 4.2.15: Vergleich der Zählraten des TSI 3031 und UFP330 ohne Probenahmesystem gegenüber dem Referenzgerät für Außenluft (Partikelgrößenbereich 70-100 nm)

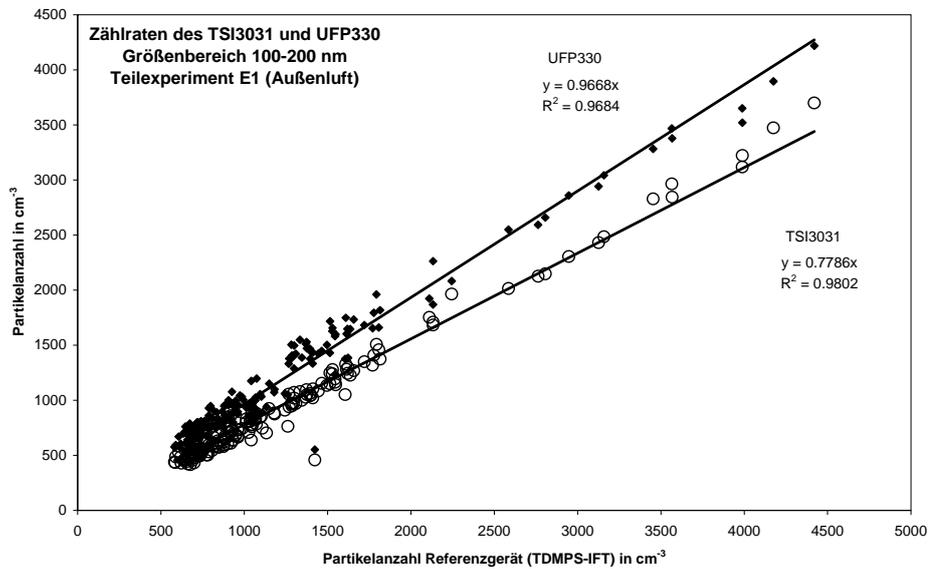


Abb. 4.2.16: Vergleich der Zählraten des TSI 3031 und UFP330 ohne Probenahmesystem gegenüber dem Referenzgerät für Außenluft (Partikelgrößenbereich 100-200 nm)

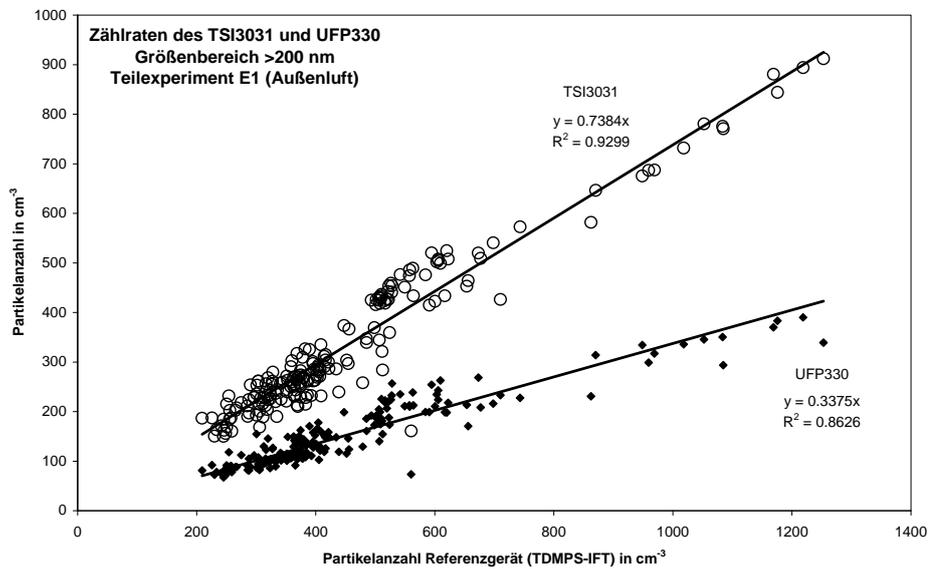


Abb. 4.2.17: Vergleich der Zählraten des TSI 3031 und UFP330 ohne Probenahmesystem gegenüber dem Referenzgerät für Außenluft (Partikelgrößenbereich > 200 nm)

4.3 Vergleichsmessungen mit Probenahmesystem für Außenluft

Dieser Abschnitt stellt die Vergleichsmessung zwischen der BfUL-Messtechnik mit ihrem jeweiligen Probenahmesystem und den Referenzgeräten dar. Das Probenahmesystem ist der wesentliche Unterschied zum vorangegangenen Abschnitt. Im Gegensatz zu den in Abschnitt 4.2. vorgestellten Daten stimmt die Größenverteilung aller Instrumente, inklusive UFP 330 und TSI 3031 im Größenbereich 30-200 nm nun wesentlich besser überein. Dies bestätigt, dass die Geräte UFP 330 und TSI 3031 stets mit ihrem Probenahmesystem - insbesondere inklusive des korrekten PM₁-Zyklons, betrieben werden sollten. Unterhalb 30 nm sieht man größere Minderbefunde zum Referenzsystem. Beim TDMPs DD-Nord sind diese Partikelverluste dem nun installierten Ausgleichsbehälter zuzuordnen, bei den UFP 330 und TSI 3031 möglicherweise auch der geringeren Aufladewahrscheinlichkeit. Die Abbildungen 4.3.2 bis 4.3.11 quantifizieren den Trend für das TDMPs DD-Nord und Abb. 4.3.12 stellt die für das TDMPs-DD-Nord abgeleitete Kurve zur größenabhängigen Korrektur der Partikelverluste des Instruments mit Ausgleichsbehälter dar. Diese Korrektur wird künftig auf alle Außenluftmessungen dieses Geräts angewendet. Des Weiteren sind beim TSI 3031 gravierendere Abweichungen erkennbar am oberen Ende der Größenverteilung. Unseren Schlussfolgerungen nach besaß dieses Gerät zum Zeitpunkt der Vergleichsmessungen einen Defekt, der nach Abschluss der Messungen bei der Herstellerfirma Topas behoben wurde. Die Abbildungen 4.3.13 bis 4.3.18 quantifizieren den Trend für die Geräte UFP 330 und TSI 3031.

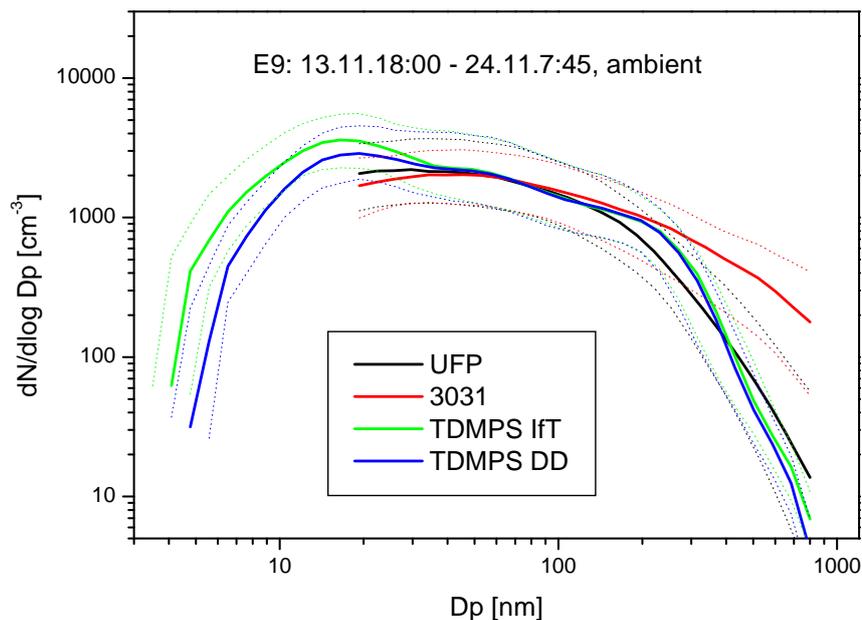


Abb. 4.3.1: Vergleich der Größenverteilungen (durchgezogen: Median, gestrichelt: Quartile) während des Telexperiments E9, dabei wurden UFP 330 und TSI 3031 mit ihrem kompletten Probenahmesystem betrieben. Die sichtliche Abweichung des TSI 3031 > 200 nm rührte von einem Defekt an der Hochspannungsversorgung her, der mittlerweile behoben werden konnte.

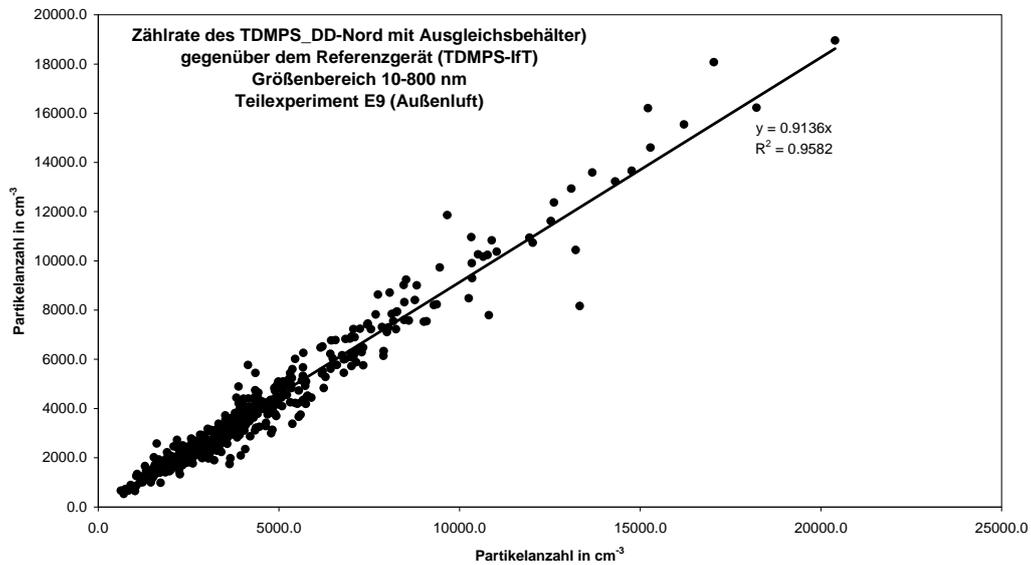


Abb. 4.3.2: Vergleich der Zählraten des TDMP5-DD-Nord mit Ausgleichsbehälter gegenüber dem TDMP5-IFT (Bezugspunkt) für Außenluft. Die Darstellung bezieht sich auf den Partikelgrößenbereich 10-800 nm.

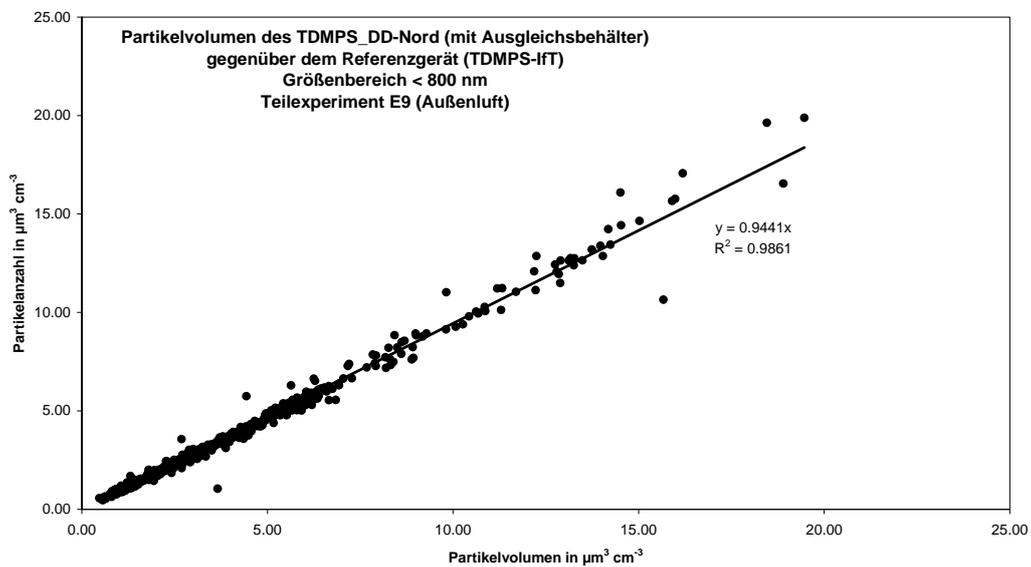


Abb. 4.3.3: Vergleich des Partikelvolumens des TDMP5-DD-Nord mit Ausgleichsbehälter gegenüber dem TDMP5-IFT (Bezugspunkt) für Außenluft.

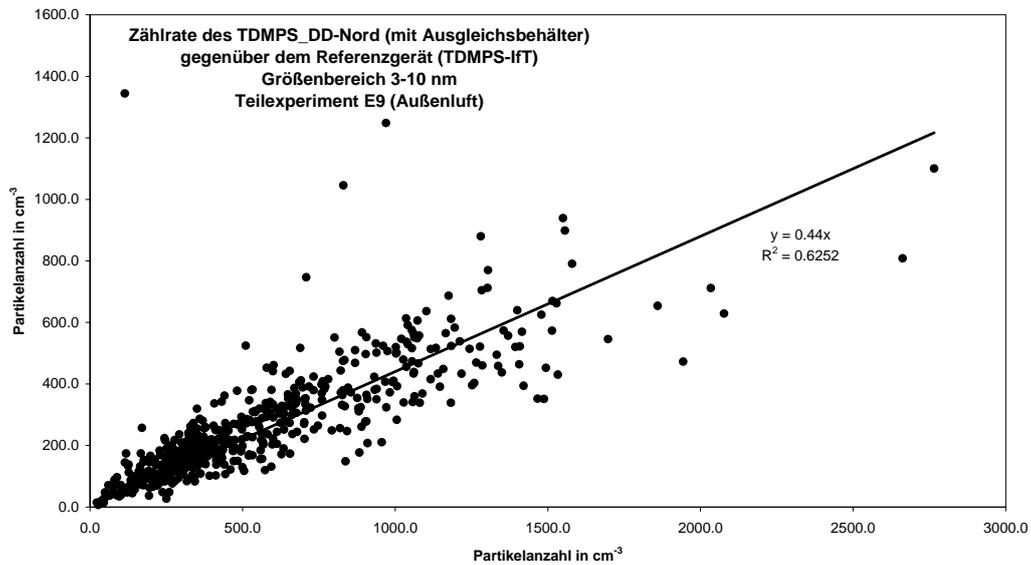


Abb. 4.3.4: Vergleich der Zählraten des TDMPS-DD-Nord mit Ausgleichsbehälter gegenüber dem TDMPS-IFT (Bezugspunkt) für Außenluft. Die Darstellung bezieht sich auf den Partikelgrößenbereich 3-10 nm.

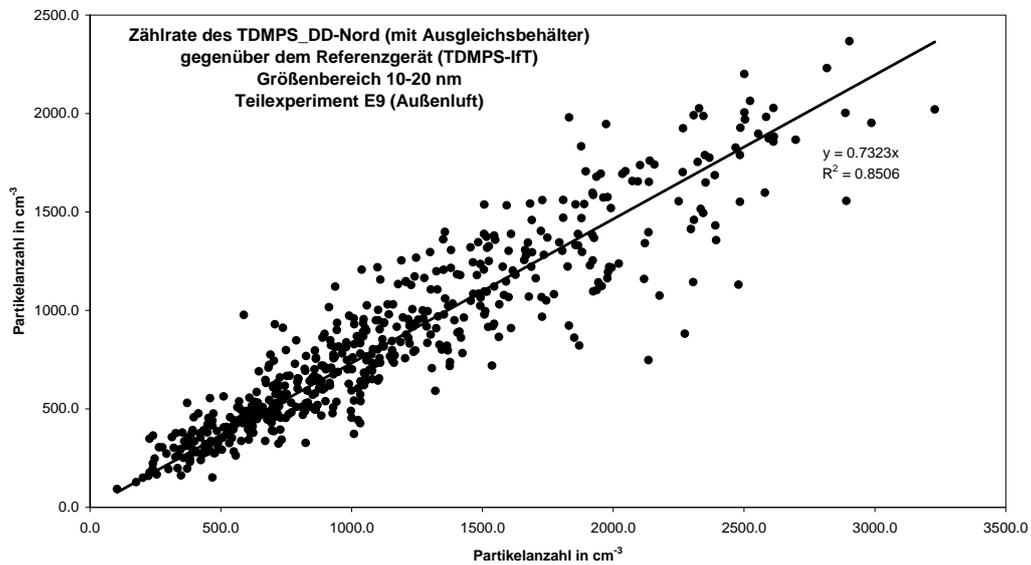


Abb. 4.3.5: Vergleich der Zählraten des TDMPS-DD-Nord mit Ausgleichsbehälter gegenüber dem TDMPS-IFT (Bezugspunkt) für Außenluft. Die Darstellung bezieht sich auf den Partikelgrößenbereich 10-20 nm.

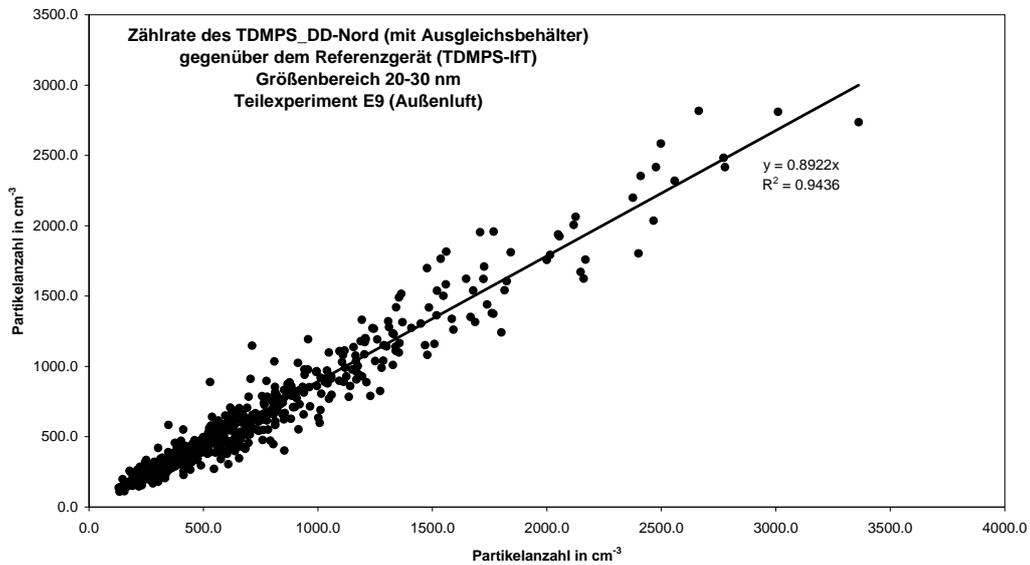


Abb. 4.3.6: Vergleich der Zählraten des TDMPS-DD-Nord mit Ausgleichsbehälter gegenüber dem TDMPS-IFT (Bezugspunkt) für Außenluft. Die Darstellung bezieht sich auf den Partikelgrößenbereich 20-30 nm.

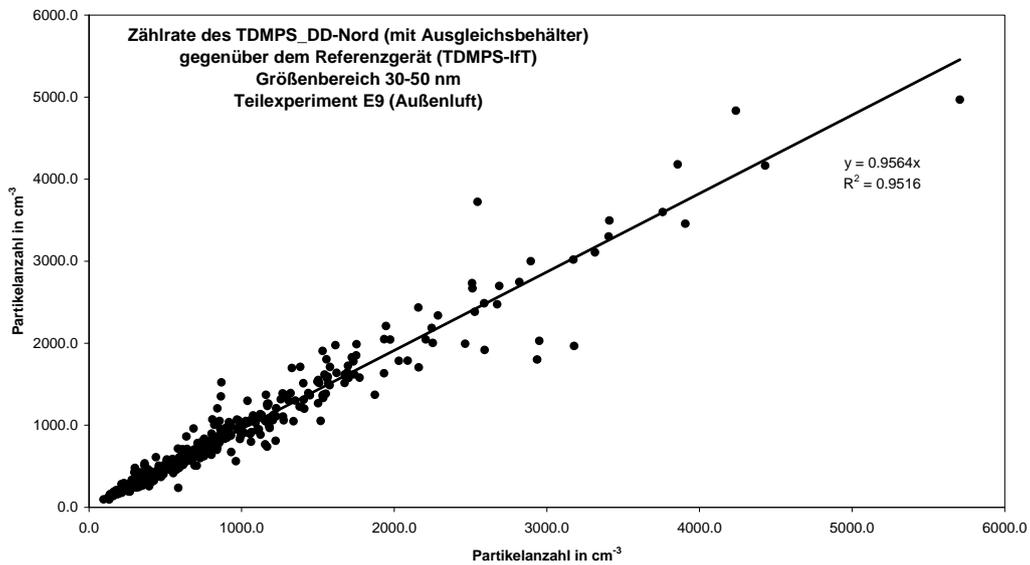


Abb. 4.3.7: Vergleich der Zählraten des TDMPS-DD-Nord mit Ausgleichsbehälter gegenüber dem TDMPS-IFT (Bezugspunkt) für Außenluft. Die Darstellung bezieht sich auf den Partikelgrößenbereich 30-50 nm.

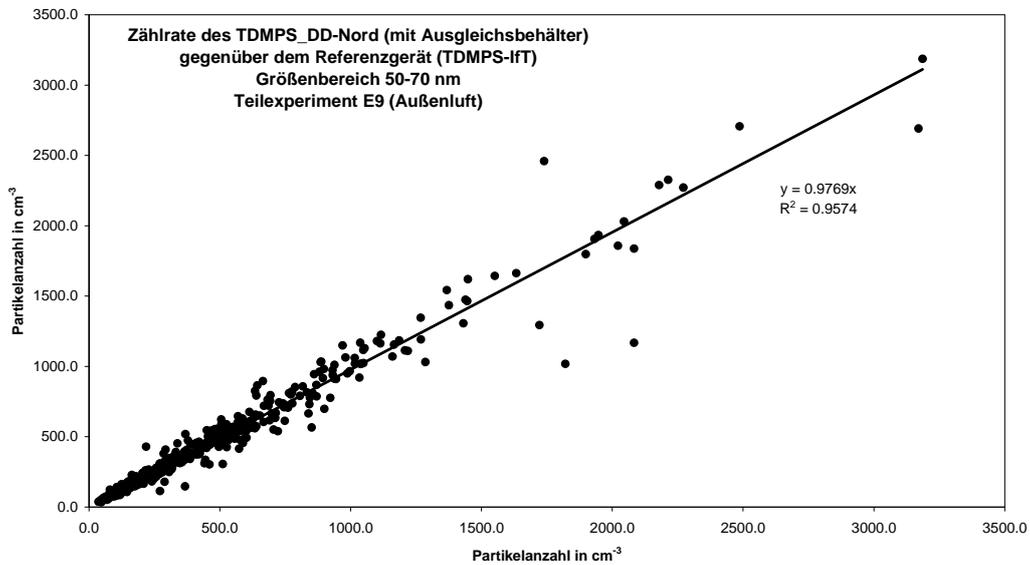


Abb. 4.3.8: Vergleich der Zählraten des TDMPS-DD-Nord mit Ausgleichsbehälter gegenüber dem TDMPS-IFT (Bezugspunkt) für Außenluft. Die Darstellung bezieht sich auf den Partikelgrößenbereich 50-70 nm.

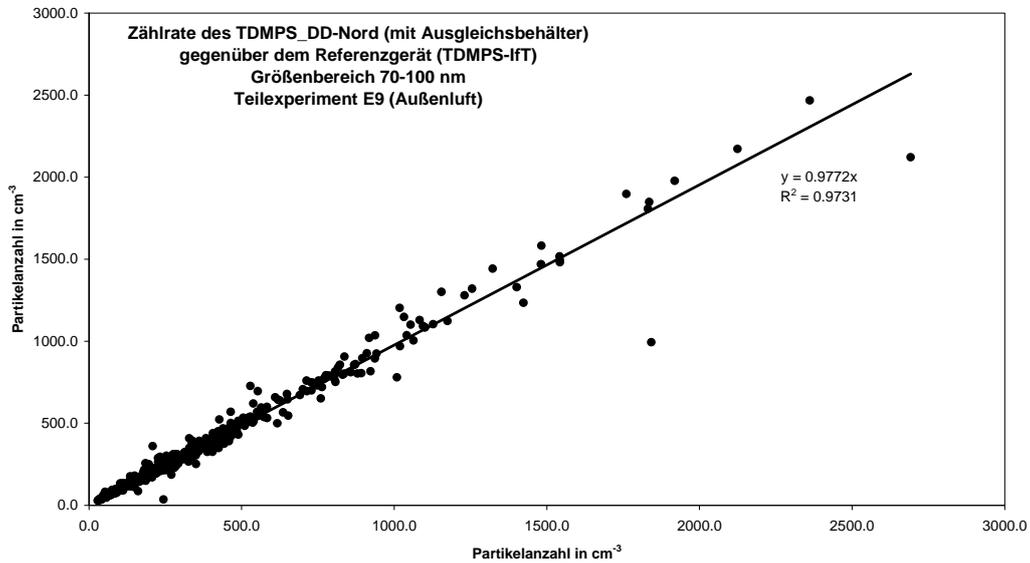


Abb. 4.3.9: Vergleich der Zählraten des TDMPS-DD-Nord mit Ausgleichsbehälter gegenüber dem TDMPS-IFT (Bezugspunkt) für Außenluft. Die Darstellung bezieht sich auf den Partikelgrößenbereich 70-100 nm.

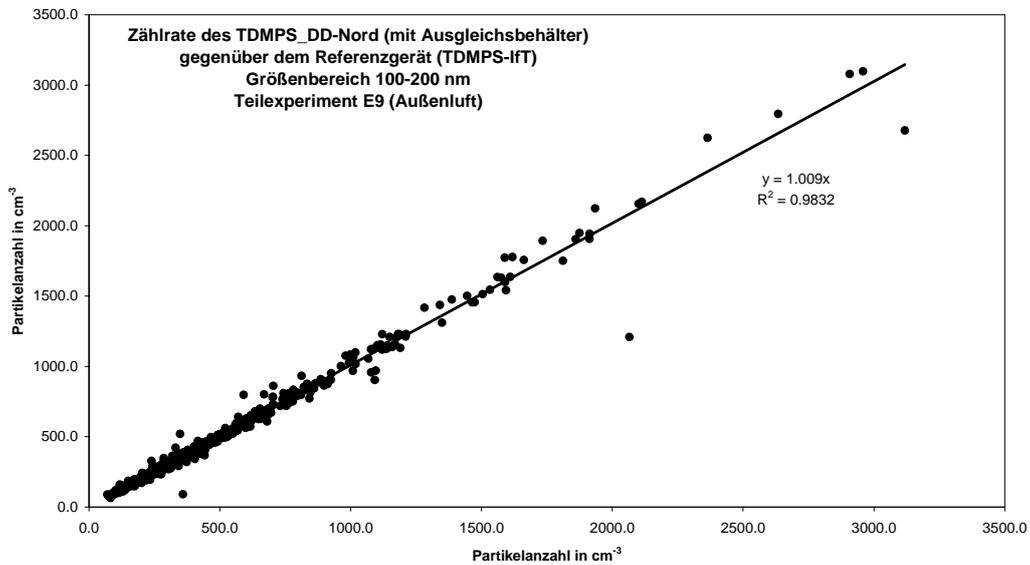


Abb. 4.3.10: Vergleich der Zählraten des TDMP5-DD-Nord mit Ausgleichsbehälter gegenüber dem TDMP5-IFT (Bezugspunkt) für Außenluft. Die Darstellung bezieht sich auf den Partikelgrößenbereich 100-200 nm.

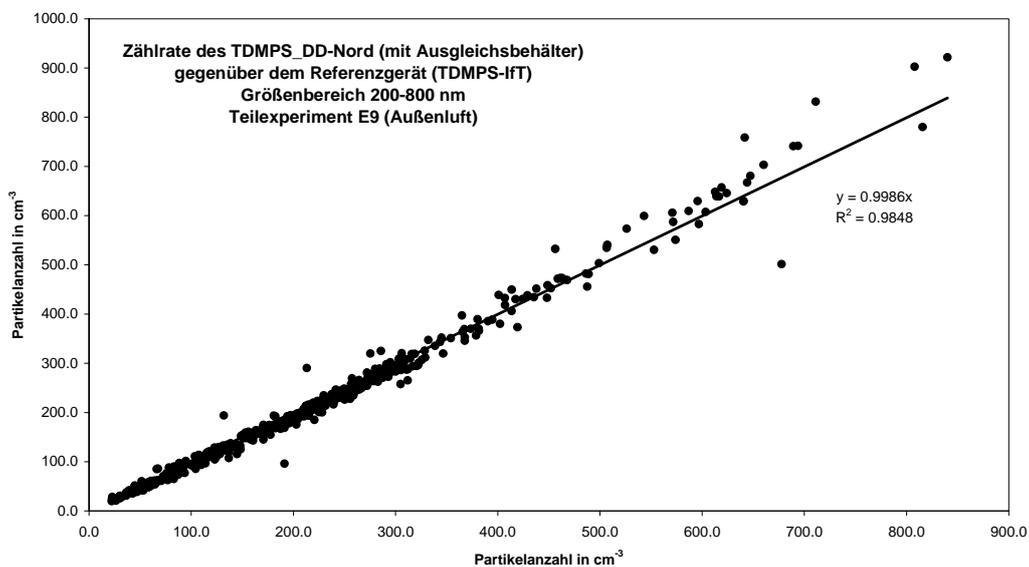


Abb. 4.3.11: Vergleich der Zählraten des TDMP5-DD-Nord mit Ausgleichsbehälter gegenüber dem TDMP5-IFT (Bezugspunkt) für Außenluft. Die Darstellung bezieht sich auf den Partikelgrößenbereich 200-800 nm.

Teilexperiment	Typ	Größenbereich	Steigung	R ²
E1 & E2	Außenluft ohne Ausgleichsbehälter	10-800 nm	1.05	0.96
		V(< 800 nm)	0.98	0.97
		3-10 nm	0.75	0.57
		10-20 nm	0.95	0.91
		20-30 nm	1.04	0.93
		30-50 nm	1.06	0.94
		50-70 nm	1.07	0.95
		70-100 nm	1.06	0.98
		100-200 nm	1.06	0.98
		200-800 nm	1.05	0.97
E1 & E2	Außenluft mit Ausgleichsbehälter	10-800 nm	0.91	0.96
		V(< 800 nm)	0.94	0.98
		3-10 nm	0.44	0.63
		10-20 nm	0.73	0.85
		20-30 nm	0.89	0.94
		30-50 nm	0.96	0.97
		50-70 nm	0.98	0.96
		70-100 nm	0.98	0.97
		100-200 nm	1.01	0.98
		200-800 nm	1.00	0.98

Tabelle 4.3.1: Lineare Anpassungskoeffizienten der Vergleichsmessung TDMP5-DD-Nord gegenüber dem Referenzgerät (TDMP5-lfT) für Außenluft (Teilexperimente E1, E2 und E9).

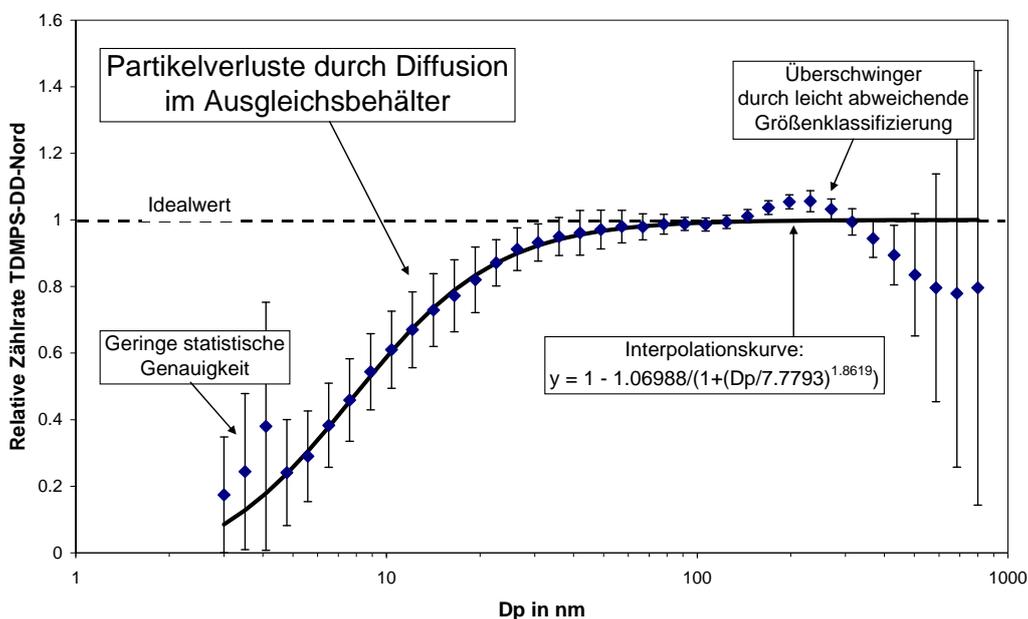


Abb. 4.3.12: Für das TDMP5-DD-Nord abgeleitete Kurve zur größenabhängigen Korrektur der Partikelverluste im Ausgleichsbehälter.

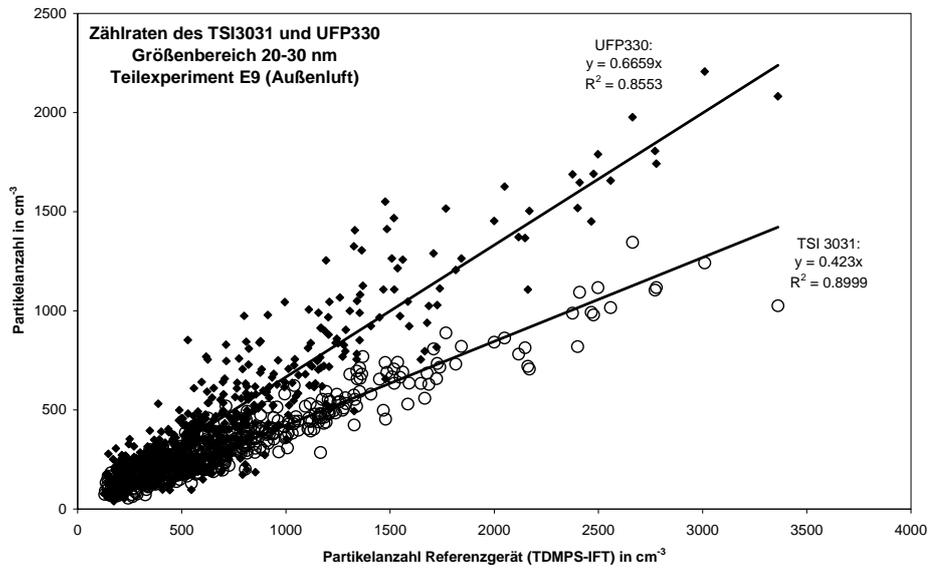


Abb. 4.3.13: Vergleich der Zählraten des TSI 3031 und UFP330 gegenüber dem Referenzgerät für Außenluft (Partikelgrößenbereich 20-30 nm)

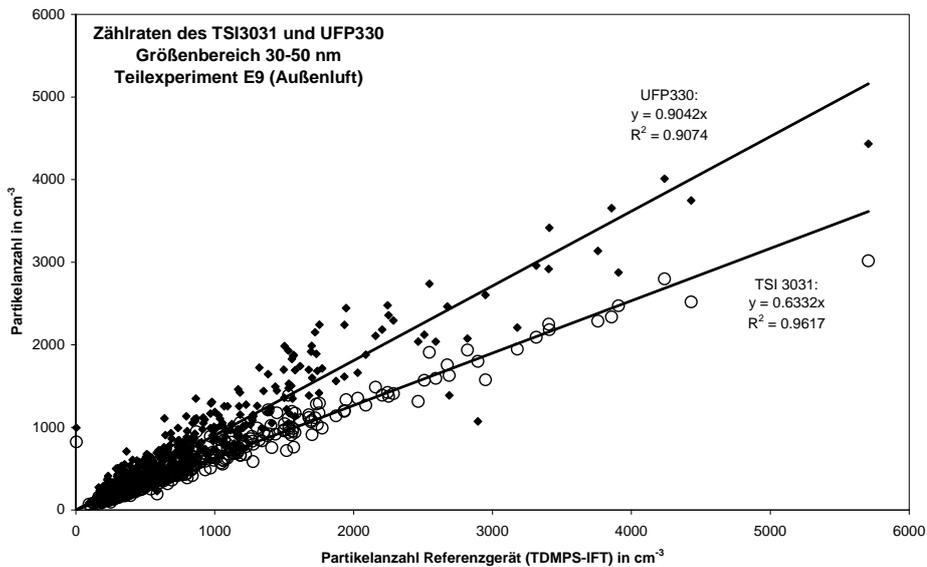


Abb. 4.3.14: Vergleich der Zählraten des TSI 3031 und UFP330 gegenüber dem Referenzgerät für Außenluft (Partikelgrößenbereich 30-50 nm)

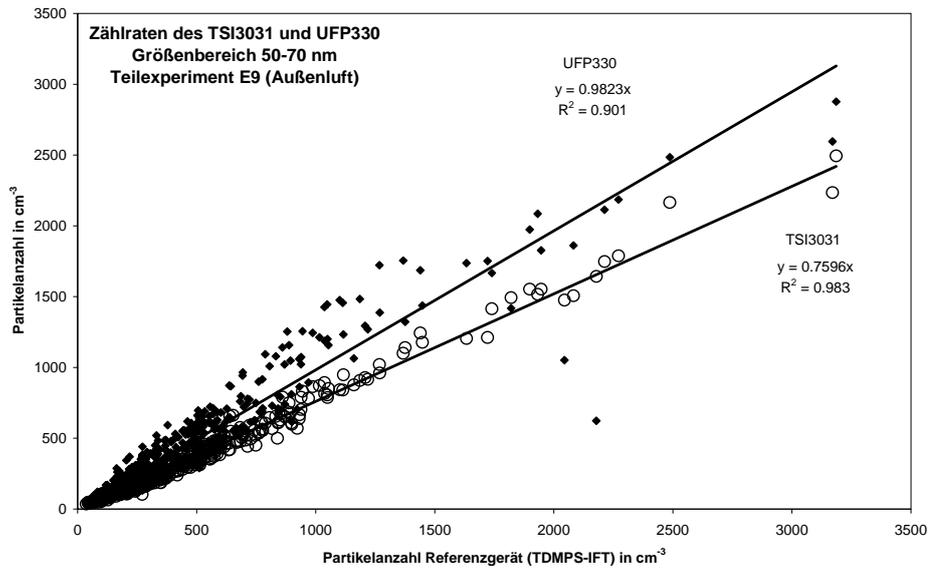


Abb. 4.3.15: Vergleich der Zählraten des TSI 3031 und UFP330 gegenüber dem Referenzgerät für Außenluft (Partikelgrößenbereich 50-70 nm)

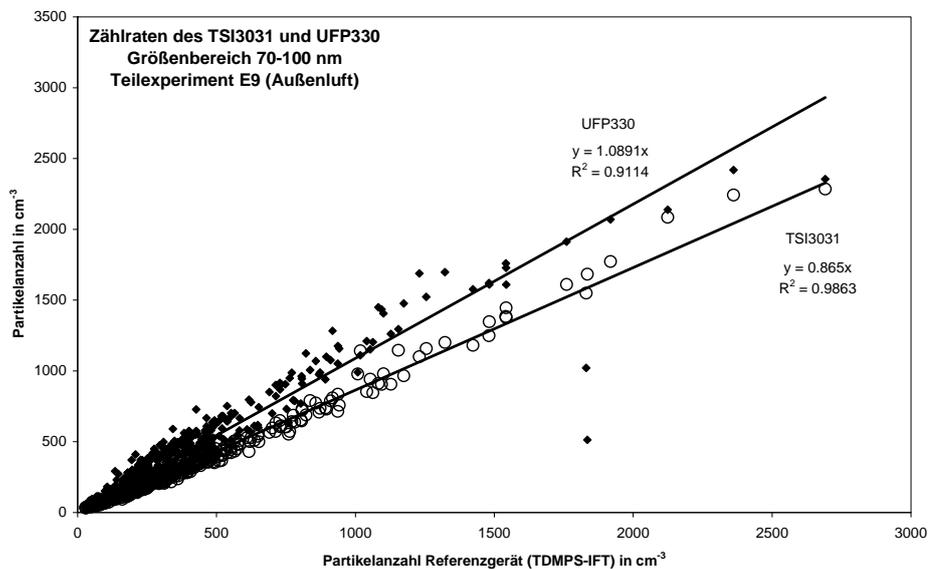


Abb. 4.3.16: Vergleich der Zählraten des TSI 3031 und UFP330 gegenüber dem Referenzgerät für Außenluft (Partikelgrößenbereich 70-100 nm)

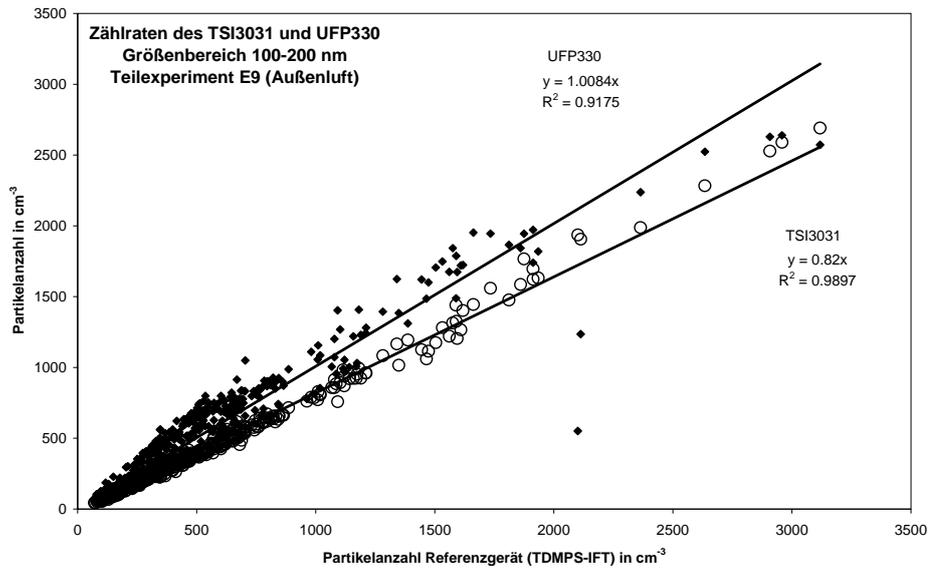


Abb. 4.3.17: Vergleich der Zählraten des TSI 3031 und UFP330 gegenüber dem Referenzgerät für Außenluft (Partikelgrößenbereich 100-200 nm)

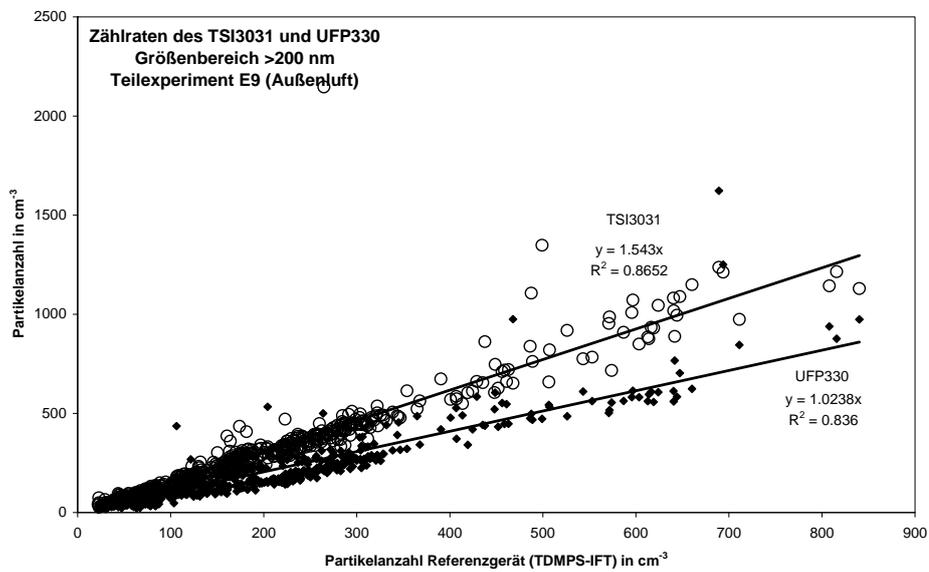


Abb. 4.3.18: Vergleich der Zählraten des TSI 3031 und UFP330 gegenüber dem Referenzgerät für Außenluft (Partikelgrößenbereich > 200 nm)

Teilexperiment	Typ	Größenbereich	UFP 330		TSI 3031	
			Steigung	R ²	Steigung	R ²
E1	Außenluft ohne Probenahmesystem	20-30 nm	0.99	0.85	0.48	0.85
		30-50 nm	1.42	0.91	0.69	0.95
	aber mit kleinem PM1-Zyklon	50-70 nm	1.50	0.96	0.77	0.97
		70-100 nm	1.42	0.98	0.82	0.98
		100-200 nm	0.97	0.97	0.78	0.98
		> 200 nm	0.34	0.86	0.74	0.93
E9	Außenluft mit Probenahmesystem	20-30 nm	0.67	0.85	0.42	0.90
		30-50 nm	0.90	0.90	0.63	0.96
		50-70 nm	0.98	0.90	0.76	0.98
		70-100 nm	1.09	0.91	0.87	0.99
		100-200 nm	1.01	0.91	0.82	0.99
		> 200 nm	1.02	0.84	1.54	0.87

Tabelle 4.3.2: Lineare Anpassungskoeffizienten (Steigung und R²) der mit UFP 330 und TSI 3031 gemessenen Partikelanzahlkonzentrationen gegenüber dem Referenzgerät (TDMPS-I/T). Gezeigt sind die Werte für Außenluft (Teilexperimente E1 und E9). Deutlich sieht man den Effekt eines vorhandenen bzw. nichtvorhandenen Probenahmesystems.

4.4 Vergleichsmessungen für Außenluft: Zeitliche Trends

Nun wird der zeitliche Ablauf der Vergleichsmessungen genauer in Augenschein genommen. Abb. 4.4.1 bis 4.4.5 stellen Verhältnisse der Zählrate zwischen jeweils zwei Instrumenten auf Basis von Halbstundenmitteln dar, Abb. 4.4.6 bis 4.4.10 dasselbe auf Grundlage gleitender Tagesmittelwerte. Die gezeigten Werte wurden stets mit Außenluft als Proben aerosol bestimmt, weil dies das letztlich relevanteste Prüfaerosol darstellt. Durch die 6wöchige Zeitreihe können mögliche Trends abgeleitet werden.

In Abb. 4.4.1 ist der Vergleich zwischen UFP 330 und TDMPS-I/T, dem „Referenzsystem“ dargestellt. Zu Beginn des Workshops wurden von Topas mehrere technische Probleme beseitigt. Konkret wurde am 20.10. das TSI 3031 kontrolliert, der Auflader justiert und die Durchflüsse kontrolliert (auch Aufladervolumenstrom). Am 23.10. erfolgte ein Filterwechsel am UFP 330. Daher können die Messwerte des TSI 3031 ab 20.10., diejenigen des UFP 330 ab 23.10. als vertrauenswürdig angesehen werden.

Einen deutlichen Effekt hatte die Montage des Probenahmesystems (PM₁-Zyklon und extern montierter Ausgleichsbehälter) am 27.10. – hiernach hatten sich die relativen Zählraten der meisten Kanäle erhöht und lagen in der Regel zwischen 0,5 und 2. Je nach Partikelgrößenintervall fallen die Vergleichswerte unterschiedlich aus. Neben statistischem Rauschen in den Zeitreihen fallen beim UFP 330 auch systematische Trends in den Zählraten auf. Diese sind am besten in Abb. 4.4.6 ersichtlich, wo die kurzzeitigen Schwankungen herausgeglättet wurden. Im Größenkanal N[70-100] beispielsweise sank die relative Zählrate des UFP 330 über die 19 Tage zwischen 5.11. und 24.11.

von 1,6 auf unter 1. Obwohl die in diesem Bericht besprochene Vergleichsmessung nicht die langfristige Analyse solcher langfristigen Schwankungen (Drifts) zum Ziel hatte, so ähneln die beobachteten Drifts in ihrer Größenordnung und im zeitlichen Verhalten den bereits in LÖSCHAU (2009a, b) für Außenluft beschriebenen Effekten.

In Abb. 4.4.2 ist hingegen der Vergleich zwischen dem TSI 3031 und dem TDMP5-IFT dargestellt. Dieses Instrument zeigt ein wesentlich anderes Verhalten als das UFP 330. Bis auf den Größenkanal > 200 nm lagen die relativen Zählraten weitgehend unterhalb von 1,0. Nur in der Situation der Benutzung des Probenahmesystems (nach 27.10.) zeigte jener Größenkanal einen Mehrbefund, im Mittel um 1,5. Diese Abweichungen sind Abweichungen am oberen Ende der Größenverteilung zuzuschreiben – siehe Abb. 4.3.1.

Eine äußerst positive Feststellung ist jedoch, dass das TSI 3031 zeitlich deutlich stabilere Zählraten gegenüber dem Referenzinstrument aufwies als das UFP 330. Dies wird vor allem in der geglätteten Version der Zeitreihe (Abb. 4.4.2) deutlich.

Die Abb. 4.4.3-4.4.5 nehmen nun die Qualität der Referenzinstrumente selbst in Augenschein. Das Verhältnis der Zählraten der drei Partikelgrößenpektrometer gegenüber dem Gesamtpartikelzähler (CPC 3010) ist in Abb. 4.4.3 dargestellt. Da der untere Cut-Off-Durchmesser des CPCs bei ca. 10 nm liegt, beziehen sich alle Konzentrationswerte notwendigerweise auf das Größenintervall 10-800 nm. In Abb. 4.4.3 sieht man, dass die relativen Zählraten der Partikelgrößenpektrometer um 1,0 liegen. Abweichungen zwischen den Partikelgrößenpektrometern liegen im Bereich 10-20 %, wobei die zeitlichen Trends leichte Schwankungen auf Basis von mehreren Tagen aufzeigen (Abb. 4.4.8).

Interessant an Abb. 4.4.8 ist, dass die relativen Schwankungen der Partikelgrößenpektrometer gegenüber dem CPC 3010 häufig synchron ausfallen (z.B. nach dem 10.11.). Hier muss auch die Frage gestellt werden, ob nicht eventuell der CPC 3010 driftet. Die Durchsatzrate des CPC 3010 wurde im Experiment durch ein passives Nadelventil eingestellt.

Abb. 4.4.4, 4.4.5 und die zugehörigen Abb. 4.4.9 und 4.4.10 vermitteln einen weiteren Eindruck von der Datenqualität der Partikelgrößenpektrometer. Um die Stabilität der Instrumente zu verdeutlichen, wurden die relativen Zählraten der verschiedenen Instrumente für den Zeitraum nach dem 5.11. gemittelt, die zugehörigen Standardabweichungen berechnet und die Werte in einer Tabelle (Tabelle 4.4.1) zusammengefasst.

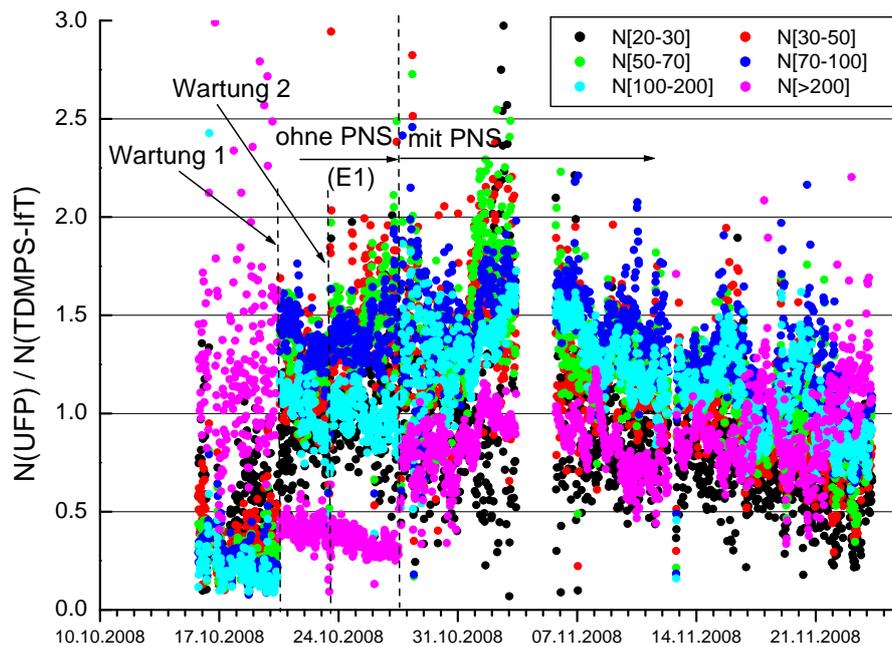


Abb. 4.4.1: Verhältnis der Zählraten zwischen UFP330 und TDMPS-IFT für Außenluft (Zeitauflösung 30 min). Wartungen und das Vorhandensein des Probenahmesystems (PNS) beeinflussen die Werte.

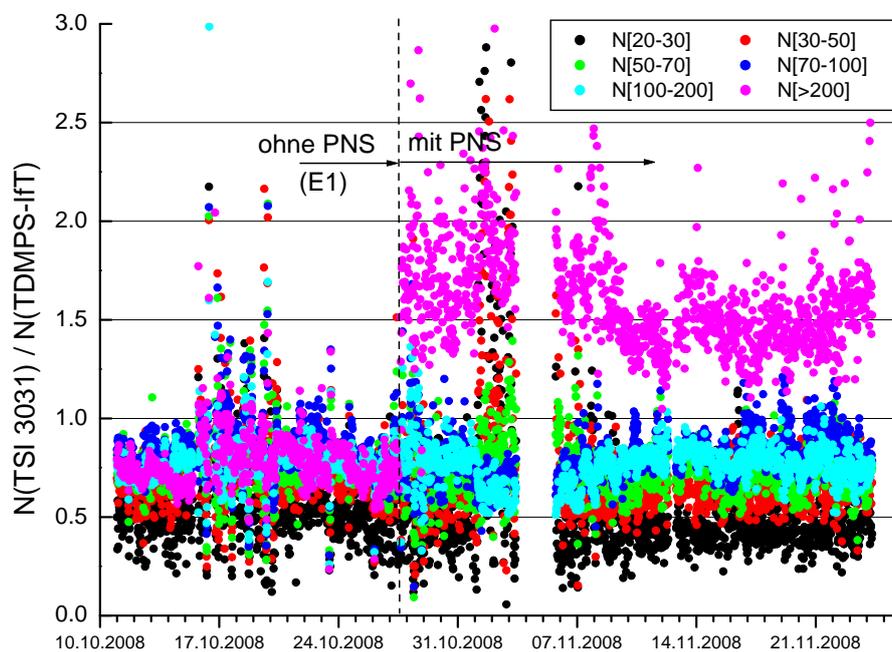


Abb. 4.4.2: Verhältnis der Zählraten zwischen TSI3031 und TDMPS-IFT für Außenluft (Zeitauflösung 30 min). Wartungen und das Vorhandensein des Probe-nahme-systems (PNS) beeinflussen die Werte.

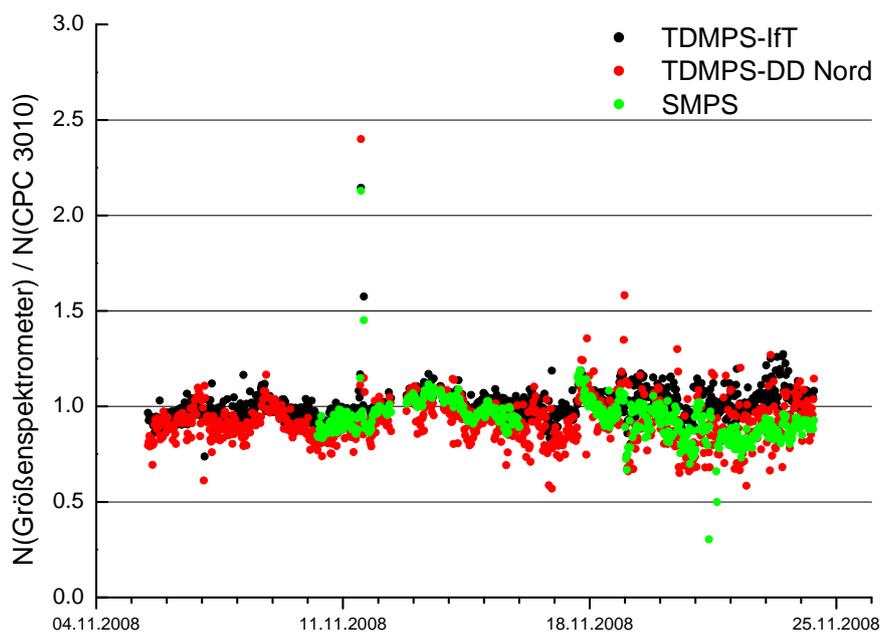


Abb. 4.4.3: Verhältnis der Zählraten zwischen Größenspektrometern und Gesamtpartikelzähler CPC 3010 für das Größenintervall 10-800 nm und Außenluft (Zeitauflösung 30 min).

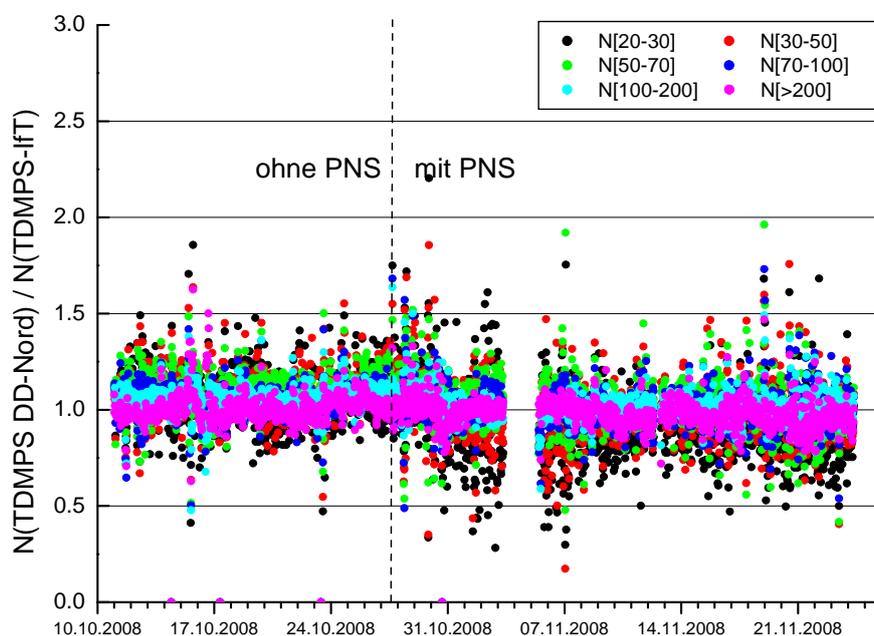


Abb. 4.4.4: Verhältnis der Zählraten zwischen TDMPS DD-Nord und TDMPS-Ift (Referenz) für Außenluft (Zeitauflösung 30 min).

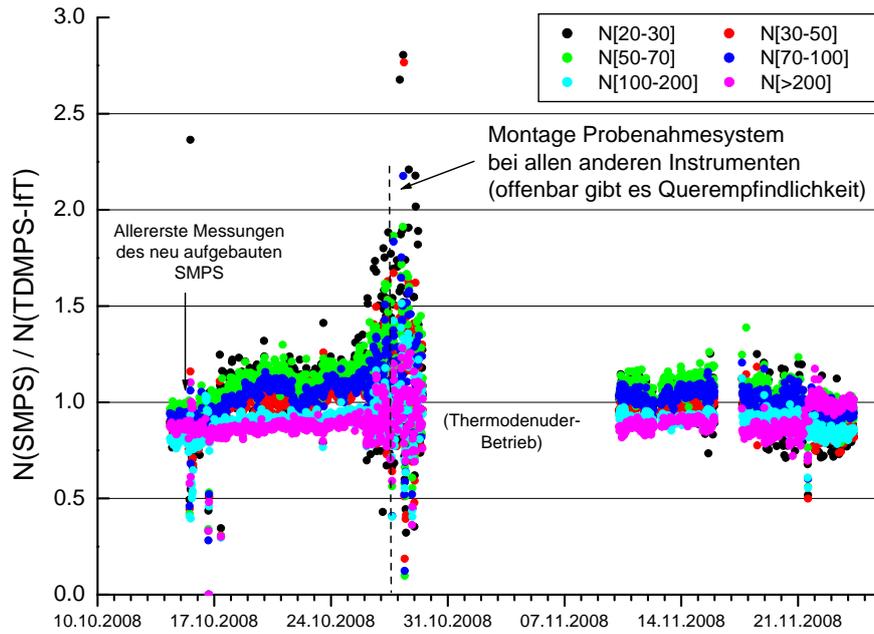


Abb. 4.4.5: Verhältnis der Zählraten zwischen SMPS und TDMP5-IFT (Referenz) für Außenluft (Zeitaufösung 30 min).

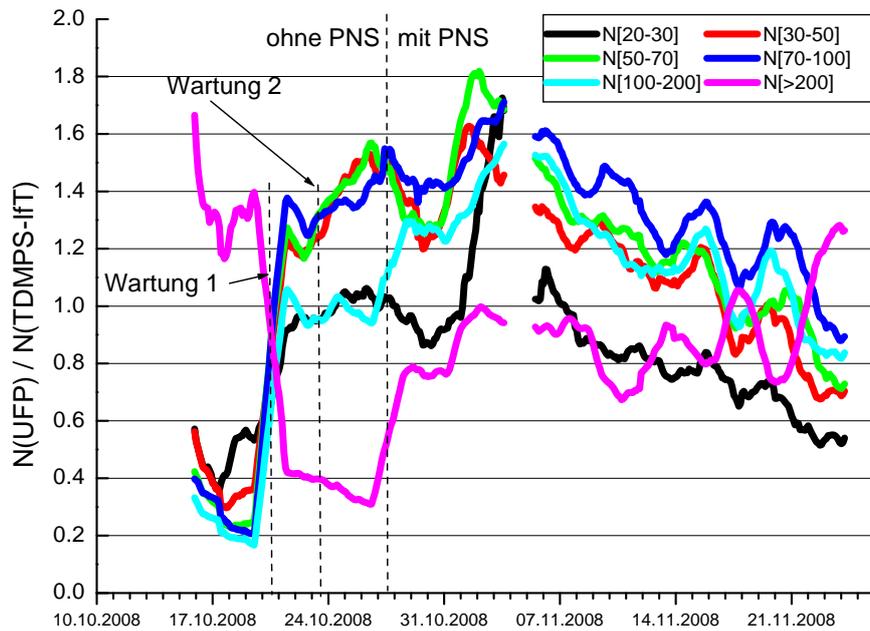


Abb. 4.4.6: Verhältnis der Zählraten zwischen UFP330 und TDMP5-IFT für Außenluft (Gleitende Tagesmittelwerte).

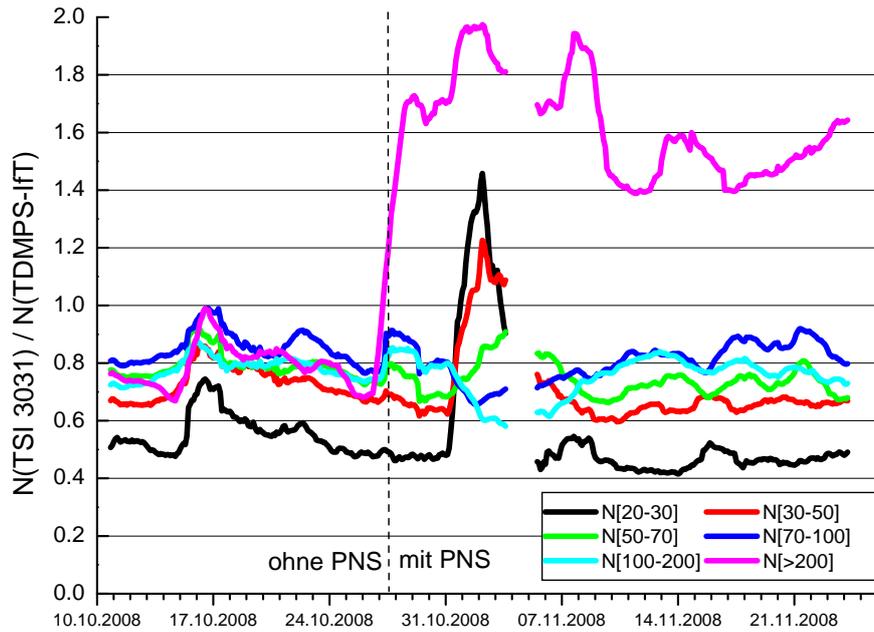


Abb. 4.4.7: Verhältnis der Zählraten zwischen TSI3031 und TDMPS-IFT für Außenluft (Gleitende Tagesmittelwerte).

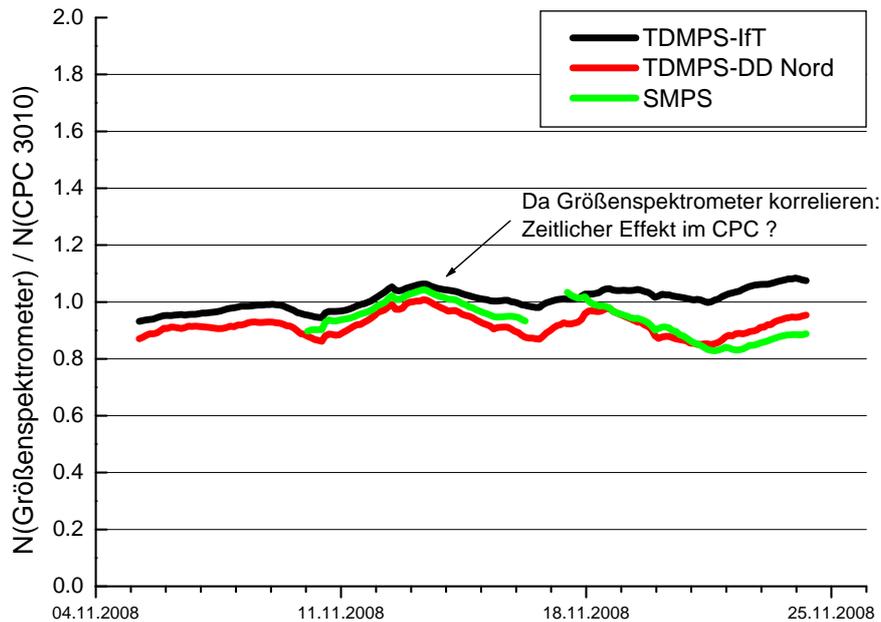


Abb. 4.4.8: Verhältnis der Zählraten zwischen Größenspektrometern und Gesamtpartikelzähler CPC 3010 (Größenintervall 10-800 nm; Außenluft; Gleitende Tagesmittelwerte).

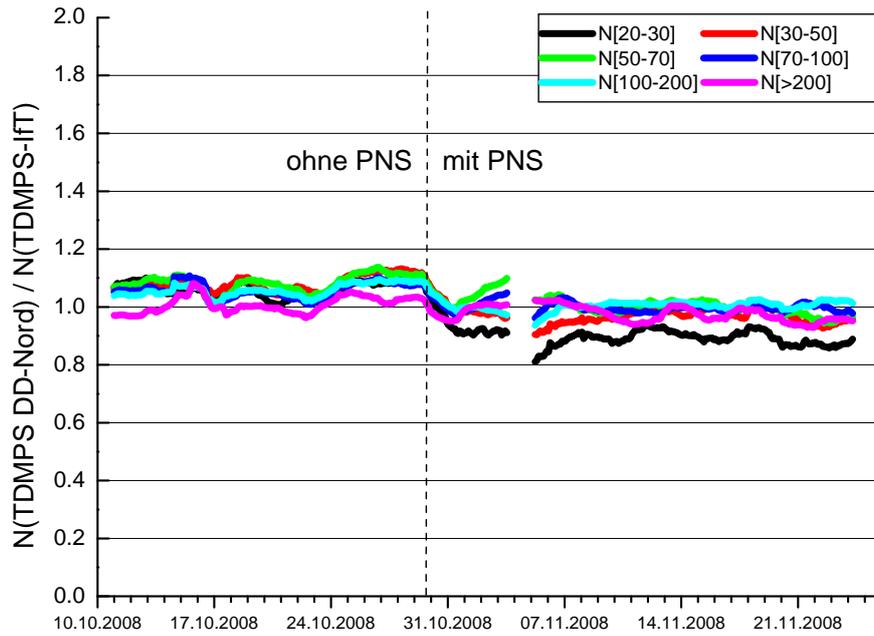


Abb. 4.4.9: Verhältnis der Zählraten zwischen TDMPS DD-Nord und TDMPS-Ift (Referenz) für Außenluft (Gleitende Tagesmittelwerte).

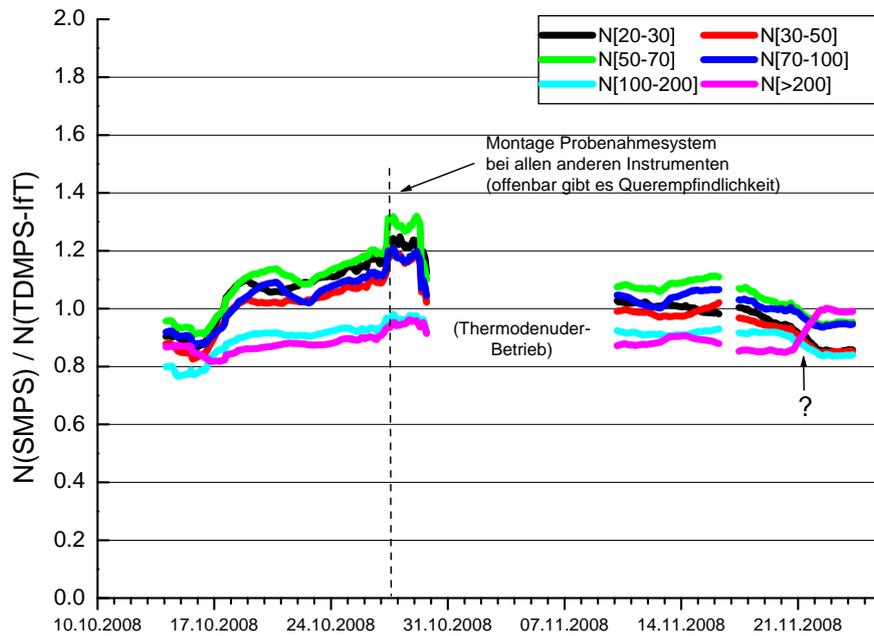


Abb. 4.4.10: Verhältnis der Zählraten zwischen SMPS und TDMPS-Ift (Referenz) für Außenluft (Gleitende Tagesmittelwerte).

	<i>N</i> [10-20]	<i>N</i> [20-30]	<i>N</i> [30-50]	<i>N</i> [50-70]	<i>N</i> [70-100]	<i>N</i> [100-200]	<i>N</i> [>200]
TSI 3031 / TDMPS-IFT							
Mittelwert		0.47	0.66	0.73	0.85	0.77	1.52
Median		0.44	0.65	0.72	0.84	0.78	1.48
Stabw		0.12	0.10	0.10	0.11	0.07	0.36
Stabw(relativ)		26%	15%	14%	13%	9%	24%
UFP330 / TDMPS-IFT							
Mittelwert		0.68	0.92	1.00	1.17	1.04	0.95
Median		0.65	0.88	0.99	1.17	1.02	0.91
Stabw		0.23	0.26	0.23	0.23	0.20	0.28
Stabw(relativ)		33%	28%	23%	19%	20%	30%
TDMPS DD-Nord/TDMPS-IFT							
Mittelwert	0.76	0.89	0.97	1.00	1.00	1.01	0.97
Median	0.75	0.88	0.96	0.99	0.99	1.00	0.97
Stabw	0.17	0.17	0.15	0.13	0.09	0.07	0.07
Stabw(relativ)	22%	19%	16%	13%	9%	7%	7%
SMPS/TDMPS-IFT							
Mittelwert	0.83	0.96	0.94	1.04	1.00	0.90	0.90
Median	0.83	0.97	0.95	1.05	1.01	0.90	0.89
Stabw	0.13	0.10	0.07	0.08	0.06	0.04	0.06
Stabw(relativ)	15%	11%	8%	8%	6%	5%	7%
Größenspektrometer / CPC							
		IFT/CPC	DD-Nord/CPC	SMPS/CPC			
Mittelwert		1.01	0.92	0.93			
Median		1.00	0.91	0.94			
Stabw		0.08	0.12	0.11			
Stabw(relativ)		8%	13%	11%			

Tabelle 4.4.1: Verhältnisse der experimentellen Zählraten zwischen UFP 330, TSI 3031, drei Partikelgrößenspektrometern (TDMPS-IFT, TDMPS-DD-Nord, SMPS) und Gesamtpartikelzähler (CPC Typ 3010) für Außenluftaerosol und den Zeitraum des Teilerperiments E9 (5.11.-24.11.2008).

4.5 Vergleichsmessungen mit Probenahmesystem für Ammoniumsulfat

Dieser Abschnitt stellt die Vergleichsmessungen für Ammoniumsulfat als Testaerosol dar. Ammoniumsulfatlösung wurde zerstäubt, abgetrocknet und elektrisch mit einem Neutralisator der Stärke 370 Bq m^{-3} neutralisiert (TSI, Typ 3077 A). Alle Prüflinge wurden hierbei mit ihrem dezidierten Probenahmesystem betrieben. Die Abb. 4.5.1. und Abb. 4.5.2. zeigen die Partikelgrößenverteilungen von 5 Instrumenten für die Teilerperiment E6B und E6C. Die beobachtete Größenverteilung ist polydispers mit einem Anzahlmaximum um 40 nm. Gegen 10 nm bzw. 800 nm fällt die Größenverteilung stark ab.

Mehrere Aspekte fallen beim Vergleich auf: Zum einen stimmen die TDMPS- und SMPS-Systeme sehr gut überein, analog zu den Experimenten für Außenluft (vgl. Abschnitte 4.2 und 4.3). Sowohl für das UFP 330 als auch das TSI 3031 kann man niedrigere Partikelgesamtkonzentrationen ablesen. Dies stellt eine starke Abweichung von der Vergleichsmessung für Außenluft dar (siehe Abb. 4.3.1), wo das UFP 330 über die ganze Größenverteilung, das TSI 3031 wenigstens für Partikelgrößen $< 200 \text{ nm}$ gut mit den Werten der TDMPS- und SMPS-Systeme übereinstimmen. Die Größenverteilungen beider Geräte weichen signifikant voneinander ab, was allerdings auch schon für Außenluft festgestellt wurde.

Am 4.12. wurde das Experiment mit Ammoniumsulfat wiederholt (Experiment 10A und 10B), um den Sachverhalt nochmals zu überprüfen (Abb. 4.5.3.-4.5.5). Diese Ergebnisse bestätigen die bereits bestimmten Befunde.

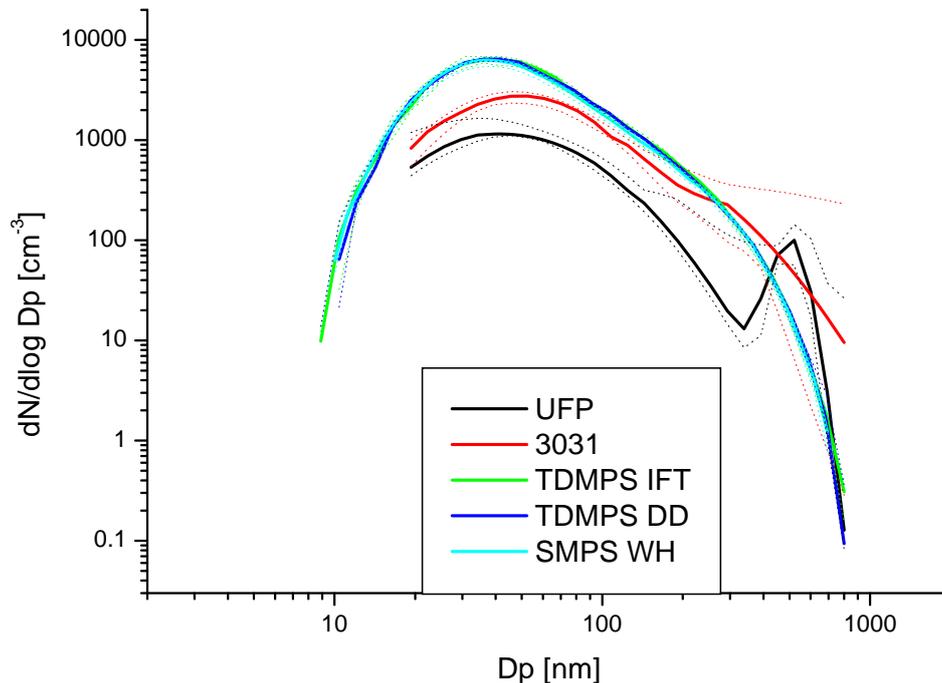


Abb. 4.5.1: Vergleich der Größenverteilungen (durchgezogen: Median, gestrichelt: Quartile) während des Teilerperiments E6B (Ammoniumsulfat).

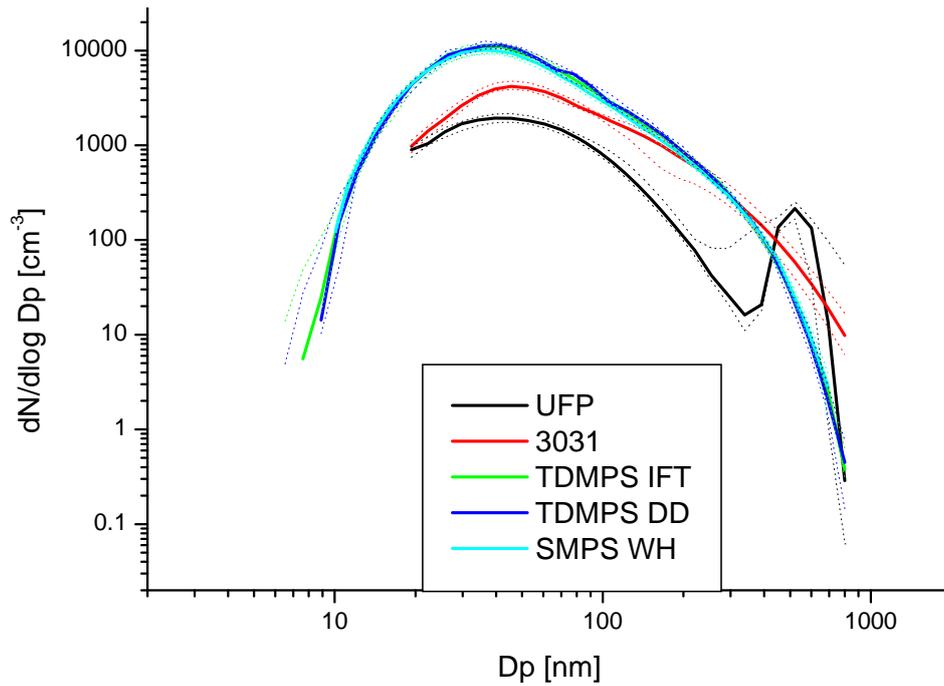


Abb. 4.5.2: Vergleich der Größenverteilungen (durchgezogen: Median, gestrichelt: Quartile) während des Telexperiments E6C (Ammoniumsulfat).

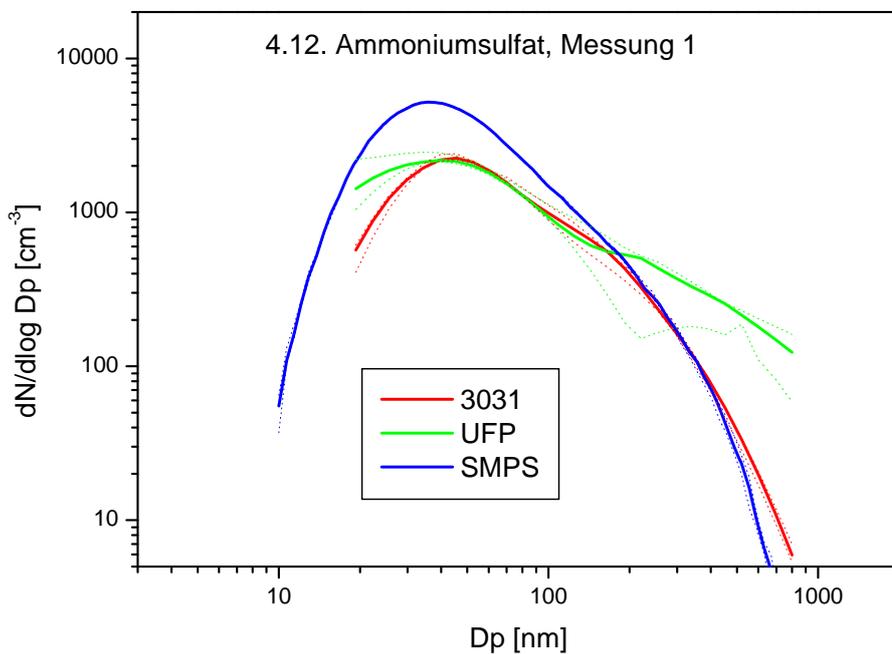


Abb. 4.5.3: Vergleich der Größenverteilungen (durchgezogen: Median, gestrichelt: Quartile) während des Telexperiments E10A (Ammoniumsulfat).

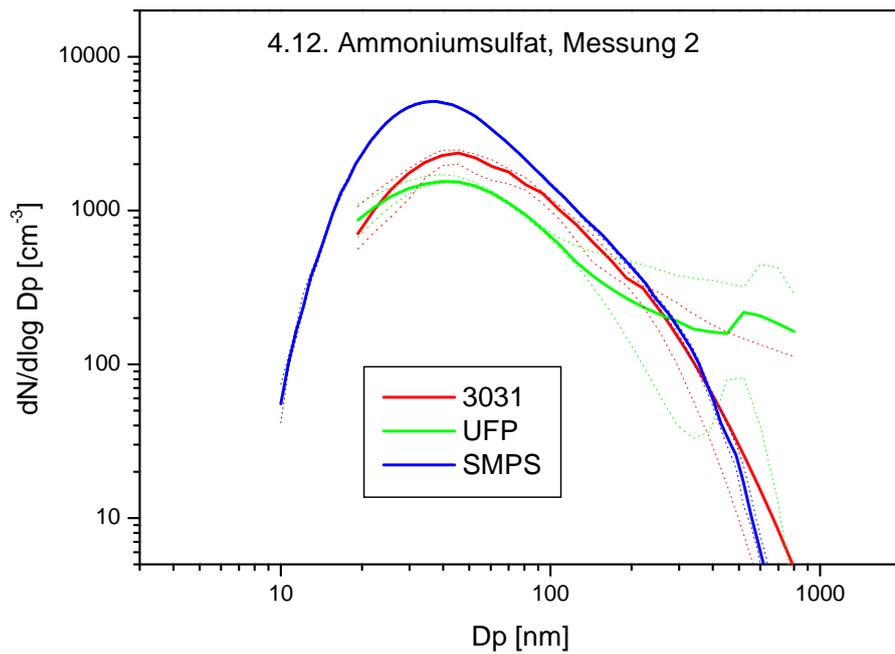


Abb. 4.5.4: Vergleich der Größenverteilungen (durchgezogen: Median, gestrichelt: Quartile) während des Teilexperiments E10B (Ammoniumsulfat).

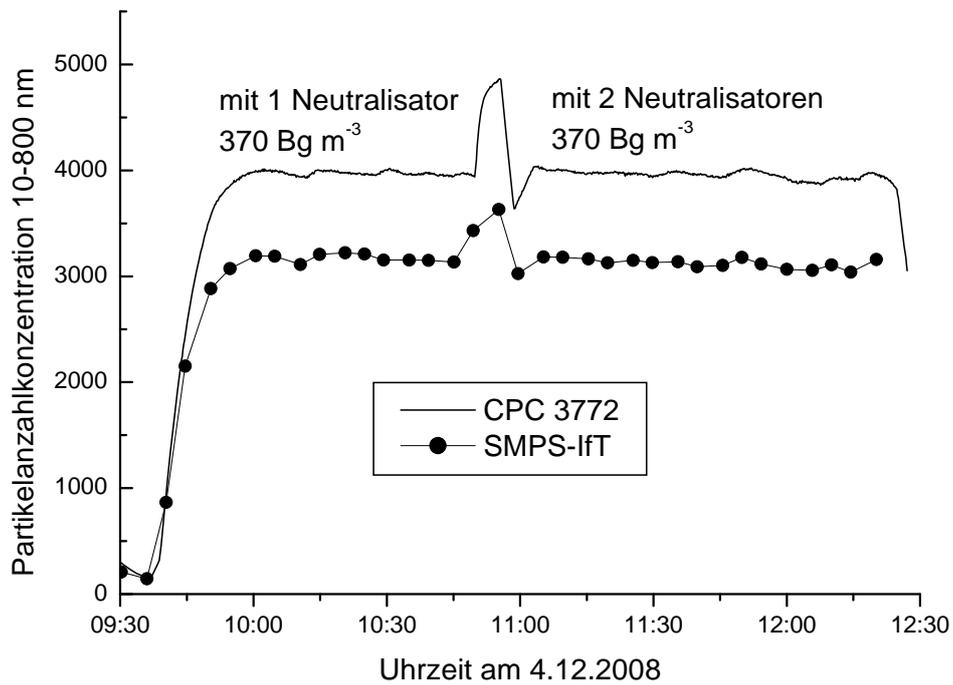


Abb. 4.5.5: Zeitreihe der Partikelanzahlkonzentration (10-800 nm) während der Teilexperimente E10A und E10B (Ammoniumsulfat).

4.6 Vergleichsmessungen mit Probenahmesystem für Latexpartikel

Als drittes Testaerosol wurden 200 nm-Latexpartikel verwendet (monodisperse Polystyrenpartikel; 3000 Series - Nanosphere Size Standards, Typ 3200A; Thermo Fisher Scientific Inc., Waltham, USA). Diese Partikel zeichnen sich durch eine gut definierte Größe und geringe Abhängigkeit der Größe von der relativen Luftfeuchte aus. Polystyrenpartikel sind für viele Partikelgrößen im sub- μm -Größenbereich erhältlich. Vom Hersteller ist ihre Größe zu 200 ± 6 nm zertifiziert; die experimentell vom Hersteller bestimmte Standardabweichung der Partikeldurchmesser beträgt 3.4 nm (1.7% relativer Durchmesser). Für die Messgerätepraxis sind diese Latexpartikel vor allem als Partikelgrößenstandard bedeutsam. Analog zu den Ammoniumsulfatpartikeln wurden die Latexpartikel im Zerstäuber des mobilen Aerosolstandard des LFULG (BIRMILI ET AL., 2009) erzeugt.

Abb. 4.6.1. zeigt die Größenverteilungen vierer Geräte für ein Vergleichsexperiment mit Latexpartikeln. Deutlich sieht man den Konzentrationspeak bei 200 nm, der die einfach geladenen Testpartikel darstellt. Ein weiterer hoher Partikelmode ist sichtbar im Größenbereich 10-40 nm; diese Partikel stellen Residualpartikel aus Salzresten dar, die trotz der Verwendung von destilliertem Wasser noch im Erzeugungssystem vorhanden sind. Während bei den Partikelgrößenpektrometern eine markante Spitze in der Größenverteilung wahrgenommen wird, fällt diese beim TSI 3031 und beim UFP 3031 wesentlich flacher aus. Auch kann der mittlere Durchmesser der Testpartikel nicht gleichermaßen genau nachvollzogen werden. Diese Beobachtungen legen nahe, dass die TSI 3031 und UFP 3031 nicht zur genauen Abbildung monodisperser Verteilungen geeignet sind – hierzu wurden diese Instrumente aber auch ausdrücklich nicht entworfen.

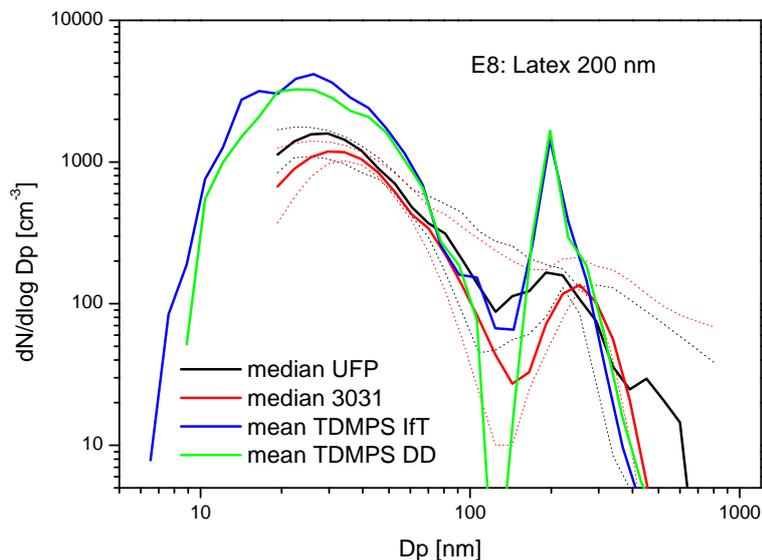


Abb. 4.6.1: Vergleich der Größenverteilungen (durchgezogen: Median, gestrichelt: Quartile) während des Telexperiments E8 (200 nm-Latexpartikel).

5 Charakterisierung der Probenahmesysteme

Zu den BfUL-Messeinrichtungen UFP 330 und TSI 3031 gehört das Probenahmesystem PNS 3031200 (TSI, 2008b). Es umfasst einen PM_{10} -Zyklon, eine Trocknungseinheit und einen Ausgleichsbehälter. Beim UFP 330 gibt es einen externen Ausgleichsbehälter, beim TSI 3031 ist dieser fest eingebaut. Generell wird für einen Feldeinsatz stets ein Betrieb mit Probenahmesystem empfohlen. Gleichzeitig sollten die Probenahmesysteme isoliert charakterisiert werden, um die dazugehörigen Messunsicherheiten kennenzulernen.

Abb. 5.1. zeigt den komplexen Aufbau der Probenahmesysteme, die ja Außenluftaerosol aus der großen Mischkammer unter ähnlichen Bedingungen wie an der Messstation entnehmen müssen. UFP 330 und TSI 3031 wurden beim Experiment nicht verwendet, weil das Fehlen der Probenahmesysteme als ungünstig für die Messwerterfassung dieser Geräte überhaupt eingeschätzt wurde (vgl. Abschnitt 4). Daher wurde das Partikelgrößenspektrometer in Verbindung mit Ammoniumsulfatpartikeln als Messgerät eingesetzt.

Die mittleren Messungen mit und ohne Probenahmesystem sind in Abb. 5.2 dargestellt. Man sieht, dass die Verwendung des Probenahmesystems einen Verlust an Partikelanzahl (ca. 10-15 %) verursacht. Gleichzeitig sind die Verluste der beiden individuellen Probenahmesysteme nahezu gleich.



Abb. 5.1: Zwei Probenahmesysteme vom Typ 3031200 während Messungen mit dem UFP 330 und TSI 3031 an der großen Mischkammer.

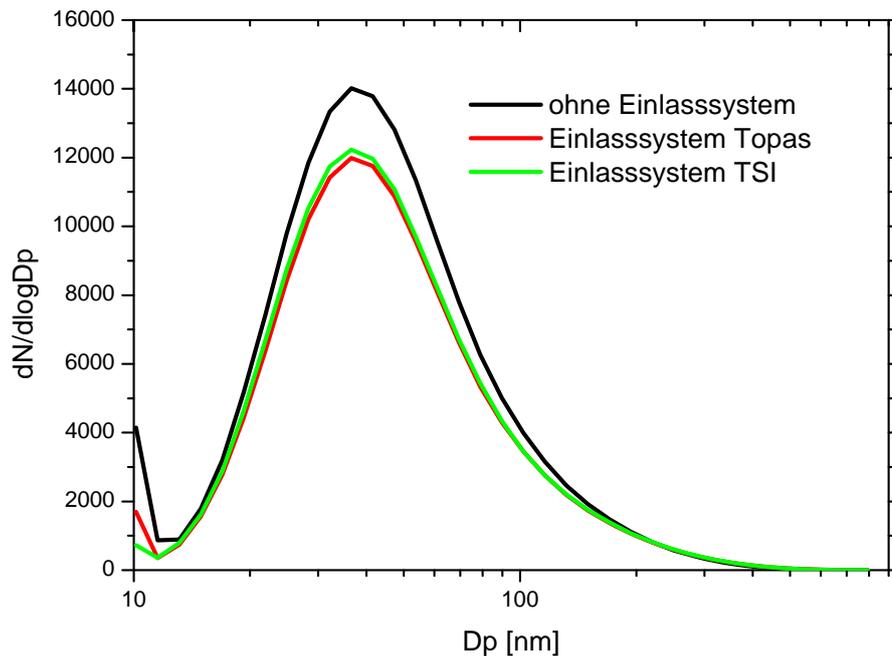


Abb. 5.2: Partikelgrößenverteilungen mit und ohne Probenahmesysteme vom Typ 3031200 (lineare Ordinatenarstellung). Zwei Exemplare wurden getestet, zum einen das Probenahmesysteme des UFP 330 („TOPAS“), zum anderen dasjenige des TSI 3031, beide Instrumente von der BfUL.

Für die 6 verwendeten Größenklassen ergibt sich folgendes Bild an Partikeltransmission: N[20-30]: 0.89 (PNS TSI3031), 0.86 (PNS UFP 3031); N[30-50]: 0.87 (PNS TSI3031), 0.85 (PNS UFP 3031); N[50-70]: 0.86 (PNS TSI3031), 0.85 (PNS UFP 3031); N[70-100]: 0.87 (PNS TSI3031), 0.86 (PNS UFP 3031); N[100-200]: 0.92 (PNS TSI3031), 0.91 (PNS UFP 3031). Für einzelne Durchmesser ergeben sich folgende Transmissionen: 0.89 bzw. 0.86 (25 nm), 0.87 bzw. 0.85 (40 nm), 0.86 bzw. 0.85 (60 nm), 0.91 bzw. 0.90 (150 nm), 1.09 bzw. 1.08 (300 nm). Die Ursache für den leichten Mehrbefund bei den größten Partikeln ist nicht klar.

Diese Zahlen stimmen tendenziell gut mit den Herstellerangaben (TSI, 2008b) überein.

6 Zusammenfassung

Zwei Exemplare kostengünstiger Mobilitätsspektrometer (UFP 330 und TSI 3031), drei konventionelle Mobilitätsspektrometer (TDMPS, SMPS) und ein Gesamtpartikelzähler (CPC 3010) wurden unter kontrollierten Laborbedingungen für drei verschiedene Arten an Testaerosolen verglichen. Relativ hohe quantitative und zeitliche Übereinstimmungen wurden zwischen den drei konventionellen Mobilitätsspektrometern untereinander und gegenüber dem Gesamtpartikelzähler festgestellt (Absolutverhältnis zwischen 0.8 und 1.1; relative Schwankungen < 10 %). Aufgrund der hinreichend guten Übereinstimmungen wurden die Konzentrationen des TDMPS-IFT im Folgenden als Bezugsgröße gewählt.

Der Geräteprototyp UFP 330 stimmte mit dem TDMPS-IFT gut bezüglich der zeitlichen Schwankungen und der absoluten Größenordnung der Partikelkonzentration überein. Schwächen waren jedoch beobachtbar bezüglich a) der unmittelbaren Einsatzfähigkeit (zwei besondere Wartungen durch Topas waren nötig), b) der exakten Form der aus den Modalparametern abgeleiteten Partikelgrößenverteilung > 100 nm, bzw. c) der Langzeitstabilität der Konzentration. Leider wurden beim UFP 330 für Außenluftaerosol Drifts in der Anzahlkonzentration beobachtet, die bereits innerhalb einer Woche die relativen Zählraten des Instruments wesentlich veränderten. Der kommerzialisierte Typ TSI 3031 stimmte exzellent mit den Referenzgeräten bezüglich der zeitlichen Schwankungen und auch der mittelfristigen Stabilität über den 6wöchigen Messzeitraum. Schwächen waren beobachtbar bezüglich der Größenordnung der Partikelkonzentration (leider absolut zu niedrig), sowie der Partikelkonzentration > 200 nm (konsistent zu hoch). Letzterer Fehler stellte sich als Gerätedefekt heraus und konnte mittlerweile behoben werden. Generell zeigten UFP 330 und TSI 3031 ein unterschiedliches Verhalten bezüglich mehrerer der genannten Parameter. Wenn man vom unerwünschten und offenbar unkontrollierbaren Drift des UFP 330 absieht, erfüllten die Instrumente UFP 330 und TSI 3031 für Außenluftaerosol die an sie gestellten Erwartungen weitgehend.

Zusätzliche, mit standardisierten Latexpartikeln und Ammoniumsulfatpartikeln (mobiler Aerosolstandard) durchgeführte Vergleichsexperimente führten jedoch zu stärkeren Abweichungen in den Zählraten nach unten. Hieraus ergeben sich Fragezeichen über einen Einsatz dieser Testpartikel in Verbindung mit den TSI 3031 und UFP 330 bei der Qualitätssicherung im Messnetz.

Beim TDMPS DD-Nord wurde der separate Ausgleichsbehälter charakterisiert. Er sorgt für geringfügige und quantifizierbare Anzahlverluste bei der Probenahme, die sich auf den Partikelgrößenbereich < 20 nm beschränken. TSI 3031 und UFP 330 sollten nur mit Probenahmesystem betrieben werden. Die beiden zugehörigen Probenahmesysteme stimmten exzellent bezüglich ihrer Partikelanzahlverluste (10-15 %) überein.

Für die Zukunft werden der BfUL intervallmäßige Vergleichsmessungen zwischen dem TDMPS sowie den TSI 3031 und UFP 330 unter Feldbedingungen in Dresden empfohlen. Die Experimente werden im Sommer 2009 fortgesetzt werden, um die angedeuteten offenen Fragen, vor allem bezüglich der Reproduzierbarkeit und Stabilität der TSI 3031 und UFP 330, zu klären.

7 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, 2006.
- BIRMILI W., D. HINNEBURG, A. SONNTAG, K. KÖNIG, B. ALAVIIPOLA, 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., SONNTAG A., TUCH T., WIEDENSOHLER A. (2009) Entwicklung eines mobilen Aerosolstandards. LFULG-Schriftenreihe, Heft R51-01/200. Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie, Referat 51, Dresden.
- DAHMAN, D., RIEDIGER, G., SCHLATTER, J., WIEDENSOHLER, A., CARLI, S., GRAFF, A., ET AL. (2001) Intercomparison of mobility particle sizers (MPS). *Gefahrstoffe Reinh. Luft* 61: 423-428.
- 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>.
- HELSPER, C., HORN, H.-G., SCHNEIDER, F., WEHNER, B. (2008) Intercomparison of five mobility size spectrometers for measuring atmospheric submicrometer aerosol particles. *Gefahrstoffe Reinh. Luft* 68: 475-481.
- LÖSCHAU (2009a). Abschätzung der Datenqualität des UFP330 für die Anzahlkonzentration ultrafeiner Partikel in der Außenluft durch Vergleichsmessung an der verkehrsnahen Messstation Dresden-Nord im Sächsischen Luftgütemessnetz. Interner Bericht, Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie, Referat 51, Dresden., 13 S.
- LÖSCHAU (2009b). Datenqualität der Messeinrichtung UFP330 für die Anzahlkonzentration ultrafeiner Partikel in der Außenluft in Augsburg. Interner Bericht (Entwurf, Stand vom 19.3.2009), Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie, Referat 51, Dresden., 13 S.
- TSI (2008a). Ultrafine Particle (UFP) Monitor Model 3031. Product Brochure, Revision B, TSI Inc., Shoreview (MN), USA.
- TSI (2008b). Environmental Sampling System Model 3031200. Product Brochure, Revision A, TSI Inc., Shoreview (MN), USA.
- 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>.

Impressum

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, Kay Weinhold, André Sonntag, Dr. Birgit Wehner,
Dr. Andreas Nowak, Florian Ditas, 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>
Andreas Zschoppe
Topas GmbH, Oskar-Röder-Str. 12, 01237 Dresden

Redaktion: siehe Autoren

Für alle angegebenen E-Mail-Adressen gilt:

Kein Zugang für elektronisch signierte sowie für verschlüsselte elektronische Dokumente

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.