



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH
GESELLSCHAFT MIT BESCHRÄNKTER HAFTUNG
Zentralabteilung Strahlenschutz

**Untersuchungen
zur Ablagerung von Jod
und Aerosolen auf Vegetation
und anderen Grenzflächen**

Ergebnisbericht Juli 1973 - Juni 1974 (Teil 2)

**Über das im Rahmen des Vertrages Nr. SC 007 / 61 PSTD
von der Association EURATOM - C. E. A. geförderte
Forschungsvorhaben**

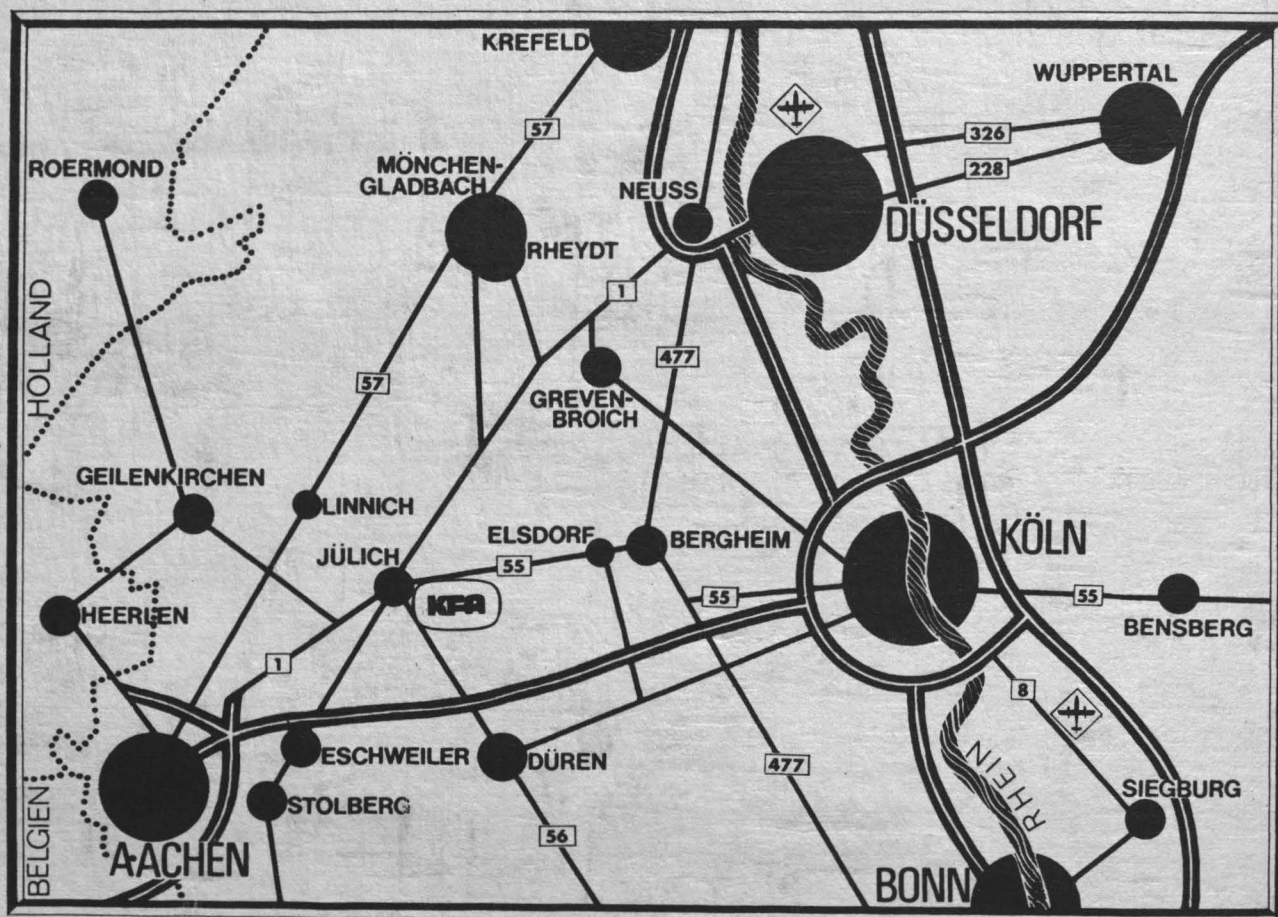
**Ausbreitung von Schadstoffen in der
Atmosphäre und Umweltbelastung**

von

**K. J. Vogt, L. Angeletti, K. Heinemann, M. Horbert,
W. Matthes, G. Polster, M. Stoeppler**

**Jül - 1144 - ST
September 1974**

Als Manuskript gedruckt



Berichte der Kernforschungsanlage Jülich - Nr. 1144

Zentralabteilung Strahlenschutz Jül - 1144 - ST

Dok.: Aerosol - Environmental Pollution
Iodine - Environmental Pollution

Im Tausch zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH,
Jülich, Bundesrepublik Deutschland



Untersuchungen zur Ablagerung von Jod und Aerosolen auf Vegetation und anderen Grenzflächen

Ergebnisbericht Juli 1973 - Juni 1974 (Teil 2)

**über das im Rahmen des Vertrages Nr. SC 007 / 61 PSTD
von der Association EURATOM - C. E. A. geförderte
Forschungsvorhaben**

Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre und Umweltbelastung

von

**K. J. Vogt, L. Angeletti, K. Heinemann, M. Horbert,
W. Matthes, G. Polster, M. Stoeppler**

Inhaltsverzeichnis

	Seite
<u>Vorbemerkung</u>	1
<u>1 Jodablagerung</u>	
1.1 Versuche im geschlossenen System	2
1.2 Feldversuche	10
1.3 Desorptionsuntersuchungen	27
<u>2 Vorbereitungen zur Messung der Ablagerung von Aerosolen</u>	
2.1 Erzeugung von definierten Aerosolspektren	33
2.2 Konzeption zur Messung der Ablagerung von Testaerosolen	43
<u>Literatur</u>	50
<u>Abbildungsverzeichnis</u>	52
<u>Tabellenverzeichnis</u>	53

VORBEMERKUNG

Das Forschungsvorhaben "Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre und Umweltbelastung" wird im Forschungs- und Entwicklungsprogramm der KFA unter der FE-Nr. 51.100 geführt und ist Teil des Umweltforschungsprogramm, das zum Forschungsschwerpunkt "Leben und Umwelt" gehört.

Das Forschungsvorhaben befaßt sich auf experimentellem Gebiet hauptsächlich mit Ausbreitungs- und Ablagerungsstudien atmosphärischer Schadstoffe. Seit 1970 besteht ein Forschungsvertrag mit EURATOM, der als Teil des Associations-Vertrags zwischen der Europäischen Atomgemeinschaft EURATOM und dem Commissariat à l'Energie Atomique (C.E.A.) zu verstehen ist. Nach Ablauf des ersten EURATOM-Vertrags wurde zum 1. Juli 1973 ein neuer Vertrag mit zweijähriger Laufzeit abgeschlossen, der sich primär auf eine Zusammenarbeit bei folgenden Teilvorhaben erstreckt:

1. Ablagerung und Desorption reaktiver Gase (elementares Jod, Methyljodid) auf Vegetation (Gras, Klee).
2. Ablagerung von Aerosolen (Cu SO_4 -Testaerosol, Bleiaerosol) auf Testflächen und auf Vegetation.

Über den Stand der Arbeiten sind vertragsgemäß halbjährliche Technische Berichte sowie Jahres- und Abschlußberichte vorzulegen.

Der folgende Statusbericht zum Forschungsvorhaben "Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre und Umweltbelastung" ist demgemäß gleichzeitig als Jahresbericht im Sinne des EURATOM-Vertrags zu verstehen. Er setzt die Reihe der bisherigen Berichte zum gleichen Vorhaben fort und schließt insbesondere an die inzwischen publizierten Vorberichte (VG 71) (Vg 73 1/2) sowie an den letzten internen Technischen Bericht (Vg 74) an.

1 Jodablagerung

1.1 Versuche im geschlossenen System

1.1.1 Jodretention auf totem (abgeschnittenem) Gras

Seit dem letzten Jahresbericht (Vg 73/2) wurden im geschlossenen System (Box) nur wenige Ablagerungsversuche durchgeführt.

Wir verweisen in diesem Zusammenhang auf die im letzten Zwischenbericht (Halbjahresbericht) gemachten Ausführungen (Vg 74).

Konzeption und Durchführung der Experimente zur Bestimmung der Haftzeit (Halbwertszeit) von Jod auf Gras, das nach der Kontamination abgeschnitten wurde, sind bereits früher (Vg 73/2) ausführlich beschrieben worden. Im Jahre 1973 wurden zwei weitere Experimente durchgeführt, bei denen das nach der Kontamination abgeschnittene Gras einmal der Sonnenstrahlung (Versuch 34) und einmal der Dunkelheit (Versuch 35) ausgesetzt war. Die Ergebnisse sind in Tab. 2/1 und 2/2 zusammengestellt. Die zum Zeitpunkt t nach Emissionsende gemessenen Aktivitäten $A(t)$ wurden jeweils entsprechend der physikalischen Halbwertszeit für J 131 von 8,05 d korrigiert ($A'(t)$) und aus der Abnahme von $A'(t)$ mit der Zeit entsprechend den früher beschriebenen Verfahren die Haftzeit bestimmt. In beiden Versuchen konnte keine Abnahme des Jodgehaltes des Grases gefunden werden. Aus den Meßwerten ergibt sich eine Halbwertszeit der Jodhaftung auf dem toten (abgeschnittenen) Gras, die groß gegen 100 d ist.

Die Messung der Haftzeit von Jod auf nach der Kontamination abgeschnittenem Gras bestätigen damit frühere Ergebnisse (Vg 73/2). Es konnte keine Desorption des Jods von Gras nachgewiesen werden. Obwohl in beiden Experimenten Jod in die Luft entweichen konnte, wurde wie bei den Freilandversuchen mit

Tabelle 2/1

Zur Bestimmung der Haftzeit von Jod auf Gras,
das der Sonne ausgesetzt war

Zeit t nach Emissionsende (min)	gemessene Aktivität A(t) (nCi)	korrigierte Aktivität A'(t) (nCi)	log (A'(t)/A ₀)
295	97,9	99,6	1,998
2 915	82,1	97,7	1990
8 595	62,5	104,5	2,019
13 025	51,1	111,4	2,047
18 665	36,2	110,6	2,044
21 515	30,9	112,0	2,049
27 275	21,2	108,4	2,035

Tabelle 2/2

Zur Bestimmung der Haftzeit von Jod auf Gras,
das der Dunkelheit ausgesetzt war

Zeit t nach Emissionsende (min)	gemessene Aktivität A (t) (nCi)	korrigierte Aktivität A'(t) (nCi)	log (A'(t) /A ₀)
60	55,4	55,6	1,745
6 060	40,9	58,8	1,769
10 079	(48,4)	(88,5)	—
15 839	24,0	61,9	1,792
21 598	16,3	59,4	1,774
27 361	11,1	57,1	1,756

T_{1/2} Haft > 100 d

lebendem Gras (siehe unten) keine Beeinflussung der Haftzeit durch Sonnenschein oder Dunkelheit festgestellt. Daraus läßt sich der Schluß ziehen, daß die Jodabnahme mit den Vorgängen in der lebenden Pflanze, wie z. B. Gasaustausch, Nahrungsaufnahme usw., zusammenhängt.

1.1.2 Ablagerungsgeschwindigkeit von Methyljodid auf Gras

In der Box lassen sich wegen der geänderten meteorologischen Bedingungen keine absoluten Messungen zur Ablagerungsgeschwindigkeit sondern nur relative Aussagen gewinnen.

Die Messungen zur Bestimmung des Verhältnisses der Ablagerungsgeschwindigkeiten von elementarem Jod und Methyljodid sind in Tab. 2/3 zusammengefaßt.

Die durchgeführten Messungen bestätigen im wesentlichen ebenfalls frühere Messungen. Das Verhältnis

$$v_{D, J_2} : v_{D, CH_3J} = 106 \pm 19$$

liegt am unteren Ende des in der Literatur angegebenen Bereichs. Es wurden daher die Vorbereitungen getroffen, durch weitere Experimente zu überprüfen, ob zusammen mit dem Methyljodid eventuell auch andere Jodverbindungen (z. B. elementares Jod, HJ usw.) freigesetzt worden sind, die infolge weit größerer Ablagerungsgeschwindigkeiten auch bei spurenweiser Emission zur Überschätzung der Methyljodidablagerung geführt haben.

Tabelle 2/3

Vergleich der normierten Ablagerungsgeschwindigkeiten v_D für J_2 und CH_3J (Boxversuch)

Versuch Nr.	Datum	v_D (cm ³ /gs) CH_3J	J_2
23	27.9.72	0,095	
24	28.9.72		12,1
25	2.10.72	0,210	
26	3.10.72		12,6
27	5.10.72	0,185	
28	6.10.72		8,5
29	10.10.72	0,122	
30	12.10.72		(56,7)
31	13.10.72	0,175	
32	18.10.72		15,8
33	20.10.72	(0,433)	
34	8. 8.73		9,9
35	9. 8.73		19,8
36	15.10.73	0,028	
37	16.10.73	(1,307)	
38	17.10.73	0,121	
39	18.10.73	(0,004)	
40	22.10.73	0,081	
41	23.10.73	0,076	
42	24.10.73	0,181	
43	25.10.73	0,107	
44	26.10.73	0,060	
45	29.10.73	(0,316)	
46	8.11.73		17,2
47	12.11.73		7,0
48	13.11.73		21,0
49	14.11.73		6,5
50	15.11.73		10,6
		0,1208 ± 0,0164	12,818 ± 1,508

$$v_{D,J_2} / v_{D,CH_3J} = 106 \pm 19$$

ohne Berücksichtigung der eingeklammerten offensichtlich fehlerhaften Werte.

Tabelle 2/4
Meteorologische Daten zu den Versuchen 14 und 15

Meteorologische Größen	Versuche 14 am 10.5.1974	Versuche 15 am 25.6.1974
Versuchszeiten	9:25 – 10:15	11: 07 – 11: 57
Windrichtung		umlaufend
in 30m Höhe (°)	115	50—240
relative Feuchte (%)	67	55
Temperatur (°C)	12,5	22,0
Druck (Torr)	748,8	750,8
Diffusions- kategorie	D	A
Windgeschwindigkeit (m /s)in Höhe (m)		
0,5	1,10	0,90
1,0	1,30	0,97
2,0	1,68	1,15
5,1	1,82	1,14
9,5	2,07	1,16
15,7	2,13	1,13

Tabelle 2/5

Feldversuch 13 vom 7.11.1973

Ablagerungsmessung auf Klee

Filterwirkungsgrad = 0,99

Versuchsdauer: T = 3600 s

Station- Nr.	Jodniederschlag auf Filter ($\mu\text{g}/\text{T}$)	Luftdurch- satz (m^3/T)	zeitintegrierte Luft- konzentration (gs/m^3)	Vegetation Trocken- masse (g/m^2)	Jodkontamination auf Vegetation ($\mu\text{g}/\text{m}^2$)	Ablagerungs- geschwindigkeit v_g (cm/s)	normierte Ablage- rungsgeschwindig- keit v_D ($\text{cm}^3/\text{g}/\text{s}$)	Quell- distanz (m)	Mittelwerte
121	$25 \pm 11 \%$	1,506	$0,060 \pm 11\%$	$52 \pm 5 \%$	$319 \pm 7\%$	$0,53 \pm 0,07$	104 ± 13	19	Vegetations- Trockenmasse $D = (83 \pm 11) \text{ g}/\text{m}^2$
122	$23 \pm 13\%$	1,303	$0,063 \pm 13\%$	$57 \pm 6\%$	$364 \pm 6\%$	$0,58 \pm 0,08$	102 ± 13	23	
123	$19 \pm 18\%$	1,441	$0,047 \pm 18\%$	$68 \pm 5\%$	$486 \pm 7\%$	$1,02 \pm 0,02$	150 ± 28	23	$v_g = (1,03 \pm 0,16) \text{ cm}/\text{s}$
124	$21 \pm 15\%$	1,339	$0,058 \pm 15\%$	$53 \pm 5\%$	$331 \pm 6\%$	$0,57 \pm 0,09$	108 ± 17	25	$v_D^g = (122 \pm 7) \text{ cm}^3/\text{gs}$
125	$15 \pm 7\%$	1,223	$0,043 \pm 7\%$	$136 \pm 5\%$	$752 \pm 8 \%$	$1,73 \pm 0,19$	127 ± 12	25	
126	$19 \pm 19\%$	1,814	$0,038 \pm 19\%$	$84 \pm 5\%$	$495 \pm 10\%$	$1,31 \pm 0,28$	156 ± 32	25	Luftdurchsatz $(1,442 \pm 0,059) \text{ m}^3/\text{T}$
127	$18 \pm 22\%$	1,435	$0,044 \pm 22\%$	$65 \pm 5\%$	$325 \pm 6\%$	$0,73 \pm 0,16$	113 ± 24	28	
128	$17 \pm 7\%$	1,488	$0,042 \pm 7\%$	$110 \pm 5\%$	$644 \pm 7\%$	$1,53 \pm 0,15$	139 ± 12	28	$v_D = (123 \pm 7) \text{ cm}^3/\text{gs}$
129	$19 \pm 13\%$	1,426	$0,049 \pm 13\%$	$123 \pm 5\%$	$642 \pm 9 \%$	$1,31 \pm 0,20$	106 ± 16	29	

Tabelle 2/6

Feldversuch 14 vom 10.5.1974

Ablagerungsmessung auf Gras

Filterwirkungsgrad = 0,99

Versuchsdauer: T = 3000s

Station Nr.	Jodniederschlag auf Filter ($\mu\text{g}/\text{T}$)	Luftdurch- satz (m^3/T)	zeitintegrierte Luft- konzentration (gs/m^3)	Vegetation Trocken- masse (g/m^2)	Jodkontamination auf Vegetation ($\mu\text{g}/\text{m}^2$)	Ablagerungs- geschwindigkeit v_g (cm/s)	normiert Ablage- rungsgeschwindig- keit v_D ($\text{cm}^3/\text{g}/\text{s}$)	Quell- distanz (m)	Mittelwerte
120	$2,5 \pm 22\%$	0,594	$0,013 \pm 22\%$	$78 \pm 5\%$	$49 \pm 15\%$	$0,39 \pm 0,11$	50 ± 13	23	Vegetations- Trockenmasse: $D=(76 \pm 7) \text{ g}/\text{m}^2$ $v_g=(0,37 \pm 0,02) \text{ cm}/\text{s}$ $v_D^g=(49 \pm 1) \text{ cm}^3/\text{gs}$
121	$10 \pm 13\%$	0,669	$0,045 \pm 13\%$	$99 \pm 5\%$	$209 \pm 7\%$	$0,45 \pm 0,07$	45 ± 7	23	
122	$2,2 \pm 19\%$	0,552	$0,012 \pm 19\%$	$78 \pm 5\%$	$45 \pm 34\%$	$0,37 \pm 0,15$	47 ± 18	28	
123	$4,4 \pm 11\%$	0,652	$0,021 \pm 11\%$	$78 \pm 5\%$	$81 \pm 10\%$	$0,39 \pm 0,06$	51 ± 6	28	
124	$2,1 \pm 25\%$	0,612	$0,010 \pm 25\%$	$48 \pm 5\%$	$27 \pm 24\%$	$0,27 \pm 0,09$	55 ± 19	31	
125	$5,1 \pm 13\%$	0,559	$0,028 \pm 13\%$	$90 \pm 5\%$	$116 \pm 7\%$	$0,42 \pm 0,06$	46 ± 7	31	Luftdurchsatz $(0,597 \pm 0,050) \text{ m}^3/\text{T}$ $v_D=(49 \pm 3) \text{ cm}^3/\text{gs}$
126	—	—	—	—	—	—	—	—	
127	$1,5 \pm 6\%$	0,539	$0,008 \pm 6\%$	$61 \pm 5\%$	$26 \pm 18\%$	$0,31 \pm 0,06$	51 ± 10	34	

Tabelle 2/7

Experimentelle Bestimmung der biologischen Halbwertszeit von Jod auf Gras (Versuch 14)

Probe	Probennahme		Zeit nach Emissionsende(d)	Nettogehalt ($\mu\text{g}/724 \text{ cm}^2$)
1	10.5.74	10:50	0,02	12 ± 2
2	13.5.74	14:00	3,16	$8,9 \pm 1,4$
3	15.5.74	12:45	5,11	$7,2 \pm 1,2$
4	17.5.74	8:20	—	—
5	20.5.74	8:20	—	—
6	22.5.74	8:15	11,93	$2,5 \pm 0,8$
7	24.5.74	8:20	13,94	$4,0 \pm 1,0$
8	27.5.74	8:10	16,93	$2,0 \pm 0,7$
9	29.5.74	8:10	18,93	$1,7 \pm 0,4$
10	31.5.74	8:20	20,93	$2,3 \pm 0,7$

Mit dem Ansatz

$$\log(J/J_0) = y = a't + b$$

und

$$T_{1/2} = -(\log 2)/a'$$

erhält man

$$a' = -0,040 \pm 0,005$$

$$b' = 1,05 \pm 0,07$$

$$T_{1/2} = (7,5 \pm 0,9) \text{ d}$$

J: Nettojodgehalt ($\mu\text{g}/724 \text{ cm}^2$)

$J_0 = 1 \mu\text{g}/\text{cm}^2$: Normierungsgröße

t = Desorptionszeit (d)

1.2 Feldversuche

1.2.1 Dokumentation der neueren Meßergebnisse

Zusätzlich zu den im Zwischenbericht (Vg 74) erwähnten Versuchen wurden bis Ende Juni 1974 zwei weitere Freilandversuche (14 und 15) durchgeführt. Dabei konnte zum erstenmal ein 17 m hoher Mast zur Bestimmung des Windprofils eingesetzt werden, der mit 6 Anemometern in den Höhen 0,5 m, 1m, 2m, 5,1m, 9,5m und 15,7m bestückt ist. Die meteorologischen Meßwerte dieser beiden Experimente sind in Tabelle 2/4 zusammengestellt.

Die Ergebnisse der Versuche 13 und 14 werden in Tabelle 2/5 und 2/6 mitgeteilt.

Bei Versuch 14 wurde neben der Ablagerungsgeschwindigkeit auch die biologische Halbwertszeit von Jod auf Gras bestimmt. Die Meßergebnisse sind in Tabelle 2/7 dokumentiert.

1.2.2 Zur Jodbestimmung der Gras- und Filterproben

Im letzten Ergebnisbericht (Vg 73/2) und an anderer Stelle (M 73) wurde das für die Jodbestimmung der Gras- und Filterproben ausgearbeitete Analysenverfahren ausführlich beschrieben. Wie geplant, wurde in der Zwischenzeit durch den Einsatz eines Technicon Mark II AutoAnalyzers^R das Verfahren teilautomatisiert, worüber anschließend kurz berichtet werden soll.

Beim AutoAnalyzer wird nach der Entnahme des Probenaliquots aus einem Becher - der auf einem Probenteller steht - dieser in einem Schlauchsystem durch eine peristaltische Pumpe mit konstanter Geschwindigkeit vorwärtsbewegt. Durch separate Schläuche und Eingabeteile erfolgt dabei die Zugabe sämtlicher Reagentien ebenfalls unter Benutzung der Pumpe. Die dosierte Einzelmenge kann dabei durch verschiedene Schlauchdurchmesser

variiert werden. Die Probe kann - je nach der erforderlichen Prozedur - danach über Misch-, Trenn-, Heiz- und/oder Kühlkreise zum eigentlichen Meßsystem geleitet werden, das beim Jod aus einer Durchflußküvette in einem Kolorimeter besteht. Während des gesamten Arbeitsablaufs wird durch Segmentierung mit Luft ebenso für gute Durchmischung von Teilmengen wie zur Behebung von memory-Effekten im Schlauchsystem gesorgt.

Unter Beibehaltung des alkalischen Probenaufschlusses wurde der Arbeitsablauf der katalytischen Reaktion automatisiert, wobei im Gegensatz zur manuellen Methode die Entfärbung der Cer(IV)-Lösung gemessen wird.

Da sich beim Übergang auf das AutoAnalyzersystem drei kritische Punkte ergeben, war es notwendig, hier Modifikationen durchzuführen, um zu störungsfreiem Betrieb zu kommen:

- 1) Bei Zugabe der sauren Reagentien zur alkalischen Aufschlußlösung trat eine starke CO_2 -Entwicklung auf, die eine saubere Segmentierung unmöglich machte. Durch Ausschütteln der angesäuerten Proben vor der Aufgabe auf dem Probenteller und Nachschaltung eines Waschvorgangs für jede Probe wurde die Störung behoben.
- 2) Korrosionserscheinungen an Bauteilen durch den hohen Säuregehalt der Reagentien führten zur Verwendung korrosionsfreier Materialien an diesen Stellen.
- 3) Die starke Temperaturabhängigkeit der katalytischen Reaktion ergab bei Schwankungen der Raumtemperatur um einige $^{\circ}\text{C}$ Meßwertschwankungen von bis zu 15%. Durch gesonderte Temperierung des entsprechenden Teils des Transportsystems wurde auch dieser Störfaktor beseitigt.



Abb. 1 Automatisierter Meßplatz zur Jod-Analyse der Gras- und Filterproben

Tabelle 2/8 Teilstandardabweichung für die photometrische Bestimmung

a) Grasmatrix

Meßverfahren	Bereich Skt.	Standardabw.	Probenzahl
Analysen	I : 0-50	1,5	20
	II : 50-100	1,0	40
	III: 100-200	1,0	100
	IV: 200-300	1,0	80
Manuell	I*:	6,5	20
	II*:	4,5	60
	III:	3,5	80
	IV*:	2,5	40

b) wässrige Lösungen (Filter)

Meßverfahren	Bereich Skt.	Standardabw.	Probenzahl
Analyser	I : 0-80	2,0	40
	II : 80-160	1,5	39
	III: 160-220	1,0	38
	IV: 220-280	1,0	31
	V : 280-340	1,0	30
	VI: 340-400	1,0	30
Manuell	I*:	6,5	20
	II*:	3,5	20
	III:	4,0	20
	IV:	4,5	20
	V*:	3,0	20
	VI:	---	---

* Die ausgewählten Bereiche entsprechen in etwa den Analyzerebereichen

Bis Ende 1973 war somit das Gerät voll einsatzbereit, so daß der Routinebetrieb aufgenommen werden konnte.

Abb. 2/1 zeigt die endgültige Anordnung des Systems zur Jodbestimmung nach der Sandell-Kolthoff-Reaktion.

In Tabelle 2/8 sind die mit dem AutoAnalyzer ermittelten Werte der Teilstandardabweichung im Vergleich zum manuellen Verfahren zusammengefaßt.

Der Auto-Analyzer erfüllt somit voll die in ihn gesetzten Erwartungen: Reduzierung des Personalbedarfs bei gleichzeitiger Steigerung der Präzision (M 74).

Die relative Standardabweichung des Gesamtverfahrens sank von 7% beim Hand- auf 4,5% beim halbautomatischen Verfahren, so daß nunmehr ein Gesamtfehler <20% resultiert.

Das - im übrigen ohne besondere Schwierigkeiten auch für Jodbestimmungen in anderen Biomatrices sowie in Wasserproben verwendbare - Verfahren dürfte nunmehr allen Anforderungen bezüglich Richtigkeit und Zeitbedarf voll entsprechen.

1.2.3 Empirisches Ablagerungsmodell

Ehe die bisherigen Ablagerungsuntersuchungen zusammenfassend beschrieben werden, sollen die Überlegungen wiedergegeben werden, die zusammen mit den bisherigen Kenntnissen aus der Literatur zu einem modellmäßigen empirischen Ansatz zur Diskussion unserer Meßergebnisse der Ablagerungsgeschwindigkeit geführt haben.

Es ist üblich, die Ablagerung von Schadstoffen aus der Atmosphäre am Boden durch die Ablagerungsgeschwindigkeit (C_{53}) v_g zu beschreiben, die bei geeigneter Interpretation auch auf die Ablagerung auf Vegetation anwendbar ist.

K_o : Kontamination der Vegetation
pro Flächeneinheit (g/m^2) oder
(Ci/m^2)

$$(2/1) \quad v_g = K_o / I$$

I : zeitintegrierte Luftkonzentration in 1 m Höhe über dem
Boden ($g \text{ s}/m^3$) oder ($Ci \text{ s}/m^3$)

Bei den experimentellen Untersuchungen in Idaho (Z 69) wurden folgende Abhängigkeiten gefunden:

$$v_g \propto D \quad (2/2)$$

$$v_g \propto u_*^2 / u \quad \text{aber auch} \quad v_g \propto u \quad (2/3)$$

D : Massenbelegung des Bodens mit Vegetation
($g \text{ Trockenmasse}/cm^2$)

u : mittlere Windgeschwindigkeit

u_* : Schubspannungsgeschwindigkeit

Im Gegensatz zu den Gleichungen (2/3) kann man theoretisch für adiabatische Verhältnisse für Gase und Aerosol ableiten

$$v_g \propto u_* \quad (2/4)$$

Dabei vernachlässigt man die molekulare neben der turbulenten Diffusion. Mit der Gleichung

$$K \frac{\partial \kappa}{\partial z} = v_{go} \kappa_o = v_g(z) \kappa(z) = \text{const.} \quad (2/5)$$

K: Koeffizient der turbulenten Diffusion in vertikaler Richtung

(z): Konzentration des Gases oder Aerosols in der Höhe z

und der Annahme eines höhenproportionalen Scheindiffusionskoeffizienten

$$K = u_* k z \quad (2/6)$$

k: Karman-Konstante

folgt Gleichung (2/4). Gleichung (2/6) gilt streng nur für adiabatische Schichtung der Atmosphäre. Wie aus unseren Messungen entnommen werden kann, ist jedoch der ihm zugrunde liegende Ansatz des halblogarithmischen Windprofils ohne große Fehler auf alle unsere Versuche anwendbar.

Bei Ablagerungsuntersuchungen von Jod auf Bohnenblättern fanden Barry und Chamberlain (B 63), daß die Ablagerungsgeschwindigkeit bei Tageslicht stark von der relativen Feuchte abhängt.

Verallgemeinert man diese Aussage und nimmt eine lineare Beziehung mit der relativen Feuchte F an, so erhält man

$$v_g \propto a' + b'F \quad (2/7)$$

a' , b' : Konstante

Da die Konstante a' sich gegenüber $b'F$ als sehr klein herausstellt, soll der noch einfachere Ansatz

$$v_g \propto F \quad (2/8)$$

gemacht werden.

Beschreibt man nun noch die Eigenschaften der Vegetation durch einen biologischen Qualitätsfaktor B , der Art, Zustand und Wachstumsphase bezeichnet und sich im Laufe des Jahres mit der Wachstumsperiode und den Umweltbedingungen ändern kann, so erhält man als Ansatz für die Diskussion der Meßergebnisse

$$v_g = c B D u_* F \quad (2/9)$$

nach dem die Ablagerungsgeschwindigkeit dem biologischen Parameter B , der Massenbelegung des Bodens mit Gras D und dem meteorologischen Faktor $M = u_* F$ proportional ist.

In der Proportionalitätskonstanten c sollen auch alle bisher noch unbekannten Parameter enthalten sein, die die Ablagerung beeinflussen. Die Größen D , u_* und F lassen sich direkt messen. Das Produkt $A = c B$ muß man aus den Meßergebnissen bestimmen.

1.2.4 Meßergebnisse

In Tabelle 2/9 sind die Meßergebnisse der meteorologischen Parameter für die Versuche 1 bis 15 zusammengestellt. Die bei den Experimenten gemessenen Windprofile sind in den Abb. 2/2 und 2/3 dargestellt. Vor allem die genaueren Messungen während der Versuche 14 und 15 zeigen, daß der halblogarithmische Ansatz für das Windprofil

$$u(z) = u_* / k (\ln z - \ln z_0)$$

z_0 : Rauigkeitslänge

bis in Höhen von 15 m selbst bei Diffusionskategorie A (Versuch 15) erfüllt ist. Da Gleichung (2/10) nach (R 72) nur für $z > 10 z_0$ gilt, wurden für die Versuche 1 bis 13 zur Bestimmung von u_* und z_0 nur die beiden obersten Punkte berücksichtigt. Damit erklärt sich, daß für diese Experimente keine exakten Fehlerangaben zu den Parametern u_* und z_0 gemacht werden können. (Eine Abschätzung für u_* ergab einen Fehler von etwa 30%). Ab Versuch 14 lassen sich die Fehler für z_0 und u_* berechnen.

Bei der Auswertung der Versuche hat es sich gezeigt, daß die Trockenmassen der Vegetation bei einem Experiment selten an allen 10 Positionen gleich sind. Um aber statistische Aussagen über die Meßwerte von jeweils einem Versuch, bei dem ja sicherlich der biologische Parameter und die meteorologischen Größen konstant sind, machen zu können, wird die auf die Trockenmasse pro Flächeneinheit normierte Ablagerungsgeschwindigkeit v_D eingeführt

$$v_D = v_g / D \quad (2/11)$$

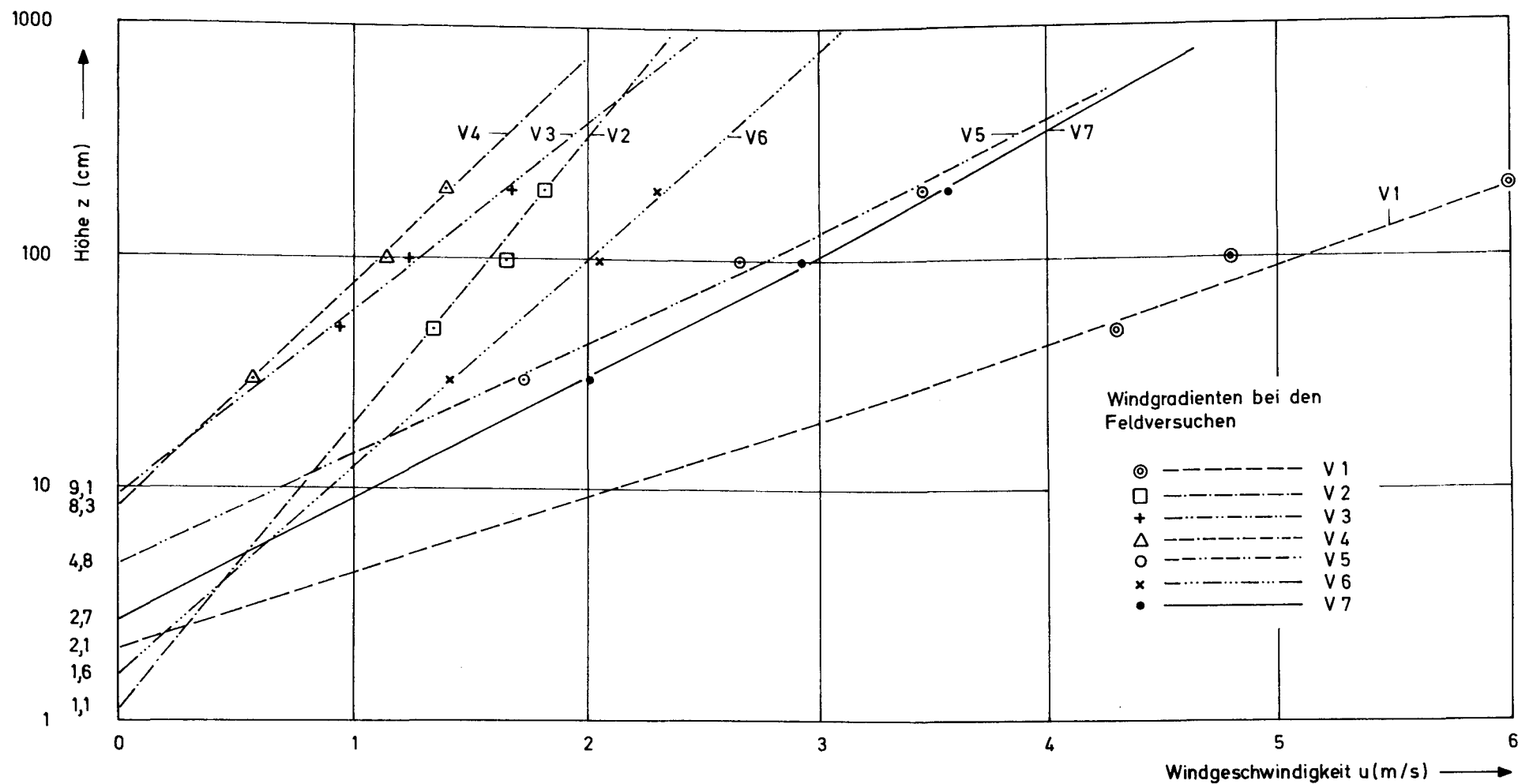


Abb. 2 Gemessene Windprofile 1972

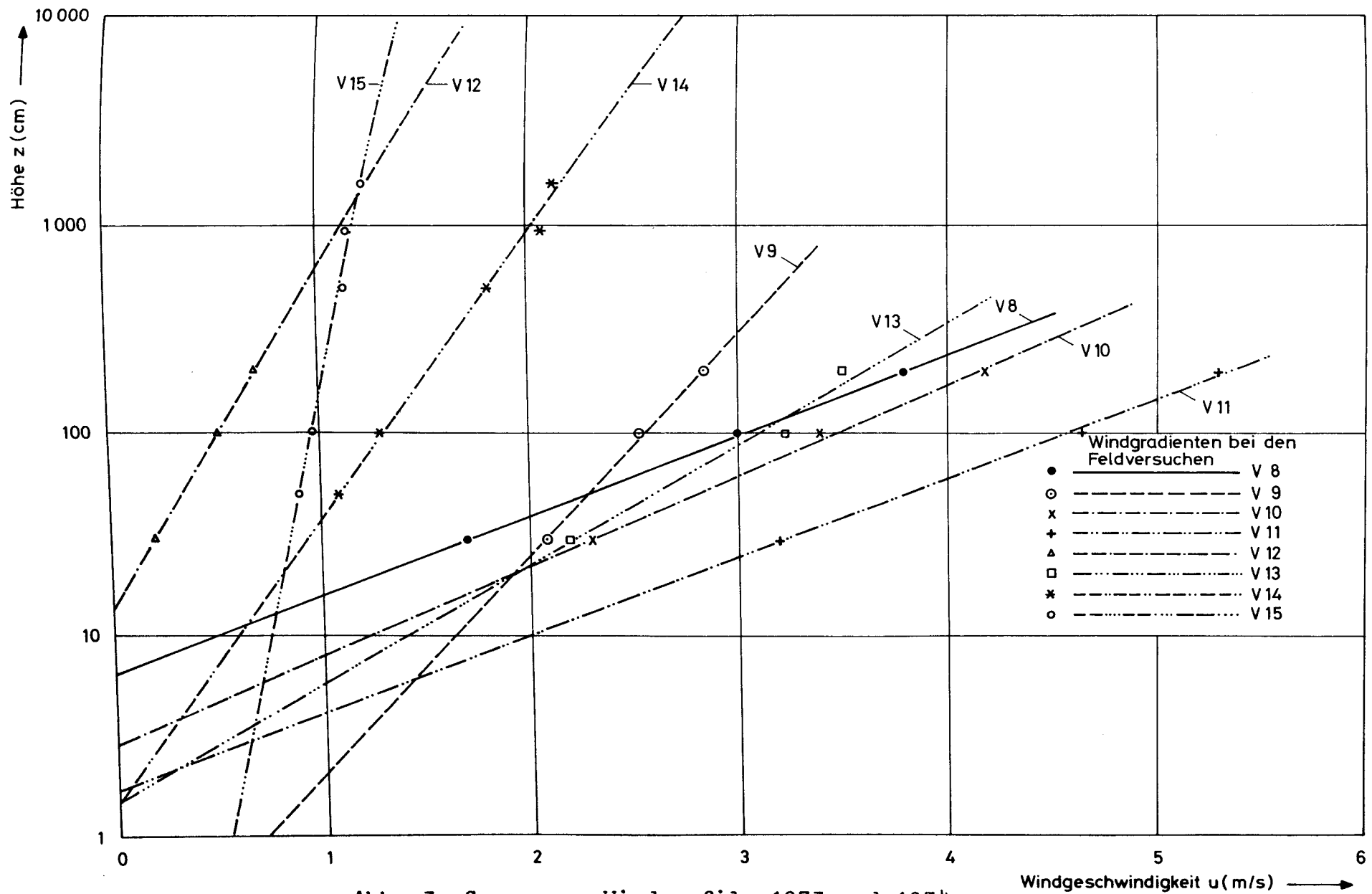


Abb. 3 Gemessene Windprofile 1973 und 1974

Tabelle 2/9

Meteorologische Paramter der Ablagerungsuntersuchungen

Vers. Nr.	Datum	Druck (Toor)	relative Feuchte (%)	Tempe- ratur (oC)	Windge- schwindigk. u(1m m/s)	Wind- richtung in 30m Höhe (o)	Diffu- sions- kategorie	u* (cm/s)	z _o (cm)
1	25. 4.72	759,1	30	9,4	5,10	55	C	69,2	6,2
2	19. 5.72	755,1	46	16,0	1,57	30	A	9,8	0,12
3	18. 7.72	754,5	50	30,3	1,23	35	B	24,8	13,8
4	10. 8.72	759,0	70	24,0	1,10	108	B	15,0	4,9
5	31. 8.72	760,3	64	19,0	2,76	50	D	46,2	10,1
6	22. 9.72	764,2	68	19,0	2,00	310	B	14,4	0,3
7	3. 10.72	765,2	47	14,3	2,95	95	C,D	36,9	4,2
8	16.5.73	760,2	29	16,0	3,02	30	B	46,2	7,4
9	1. 8.73	754,2	40	27,5	2,56	100	B	18,5	0,4
10	15.8.73	756,6	22	29	3,50	110	C	45,6	5,1
11	19.9.73	746,9	60	17	4,56	225	D	37,5	0,7
12	26.9.73	759,3	92	11	0,53	130	G,D ⁺	11,0	15,0
13	7.11.73	764,8	74	7,7	3,10	225	D	15,6	0,02
14	10.5.74	748,8	67	12,5	1,34	115	D	12,5 ⁺ 1,8	1,4 ⁺ 1,1
15	25.6.74	750,8	55	22,0	0,97	umlaufend	A	3,8 ⁺ 0,2	0,0035 ⁺ 0,0004 ⁻

Die Verwendung der normierten Ablagerungsgeschwindigkeit v_D ist sinnvoll, weil die in Gleichung (2/2) behauptete Proportionalität durch unsere Messungen belegt ist (vgl. auch (Z 69)). Die Einführung von v_D bedeutet eine leichte Modifikation bei der Berechnung der Ingestionsdosis, die durch kontaminiertes Gras verursacht wird.

In Tabelle 2/10 sind für die ausgewerteten Versuche 1 bis 14 die aus den Messungen berechneten Mittelwerte der Ablagerungsgeschwindigkeiten v_g und v_D , die Trockenmasse pro Flächeneinheit D , die Schubspannungsgeschwindigkeit u_* und die relative Feuchte F mit ihren Fehlern zusammengestellt. Mit den reziproken relativen Fehlern der Einzelbestimmungen eines Versuchs als Gewichte wurde der Parameter v_D und sein Fehler bestimmt. Alle anderen Mittelwerte sind ungewichtet berechnet. Für u_* und F wurde der Fehler geschätzt.

1. 2. 5 Diskussion der Meßergebnisse

In Tabelle 2/11 sind neben der Versuchsnummer und dem Versuchsdatum für alle ausgewerteten Ablagerungsuntersuchungen von Jod auf Gras (bis auf den Nachtversuch) die Größen

$$M = u_* F \quad (2/12)$$

$$\bar{A} = v_D / M \quad (2/13)$$

angegeben.

Aus dieser Tabelle kann man entnehmen, daß die Versuche 1, 2, 5, 7, 8 und 11 etwa gleiche Werte für den Parameter $A = c \cdot B$ liefern, d.h. für diese Versuche ist anzunehmen, daß der biologische Faktor B (Gleichung (2/9)) konstant ist. Daher kann man für diese Versuche einen Mittelwert bestimmen. Die Rechnung ergibt

$$\bar{A} = 2,22 \text{ cm}^2/\text{g}$$

Dieses Ergebnis wurde aus nur wenigen Experimenten ermittelt. Bei einer größeren Anzahl geeigneter Versuche kann eine neue Rechnung leicht zu einer Veränderung der empirischen Werte für A führen.

Aus Gleichung (2/19) folgt, daß die Ablagerungsgeschwindigkeit bei 15% relativer Feuchte um den Faktor 6 kleiner ist als bei 90% relativer Feuchte. Beachtet man, daß die Untersuchungen von Barry und Chamberlain sich auf Bohnenblätter bezogen, so ist die Übereinstimmung mit ihrem Faktor von 9,4 bei unseren vereinfachenden Annahmen erstaunlich.

Trägt man die Werte des Parameters A wie in Abb. 2/4 nach der Jahreszeit geordnet auf, so findet man eine deutliche Erhöhung dieser Werte für die Zeit von etwa 20.5. bis 20.8. Dabei fällt nur der nicht eingezeichnete Nachtversuch heraus. Experiment 14 vom 10.5.1974 läßt sich deuten, wenn man annimmt, daß aufgrund besonderer klimatologischer Bedingungen in diesem Jahr die größeren A-Werte zeitlich früher erreicht werden.

Betrachtet man nur die größten und die kleinsten Werte, so findet man zwischen ihnen eine Erhöhung in dem genannten Zeitraum um etwa den Faktor 4,5. Die Erhöhung der A-Werte kann mit der Wachstumsphase zusammenhängen. Ein ähnlicher Verlauf deutet sich für die Ablagerung von Jod auf Klee an.

Für die Berechnung einer Langzeitverteilungskurve der Bodenkontamination aufgrund der Kurzzeitalagerungen benötigt man klimatologische Untersuchungen mit einer zweidimensionalen Statistik der Parameter u_* und F. Diese Untersuchungen sind für die nächste Zeit vorgesehen.

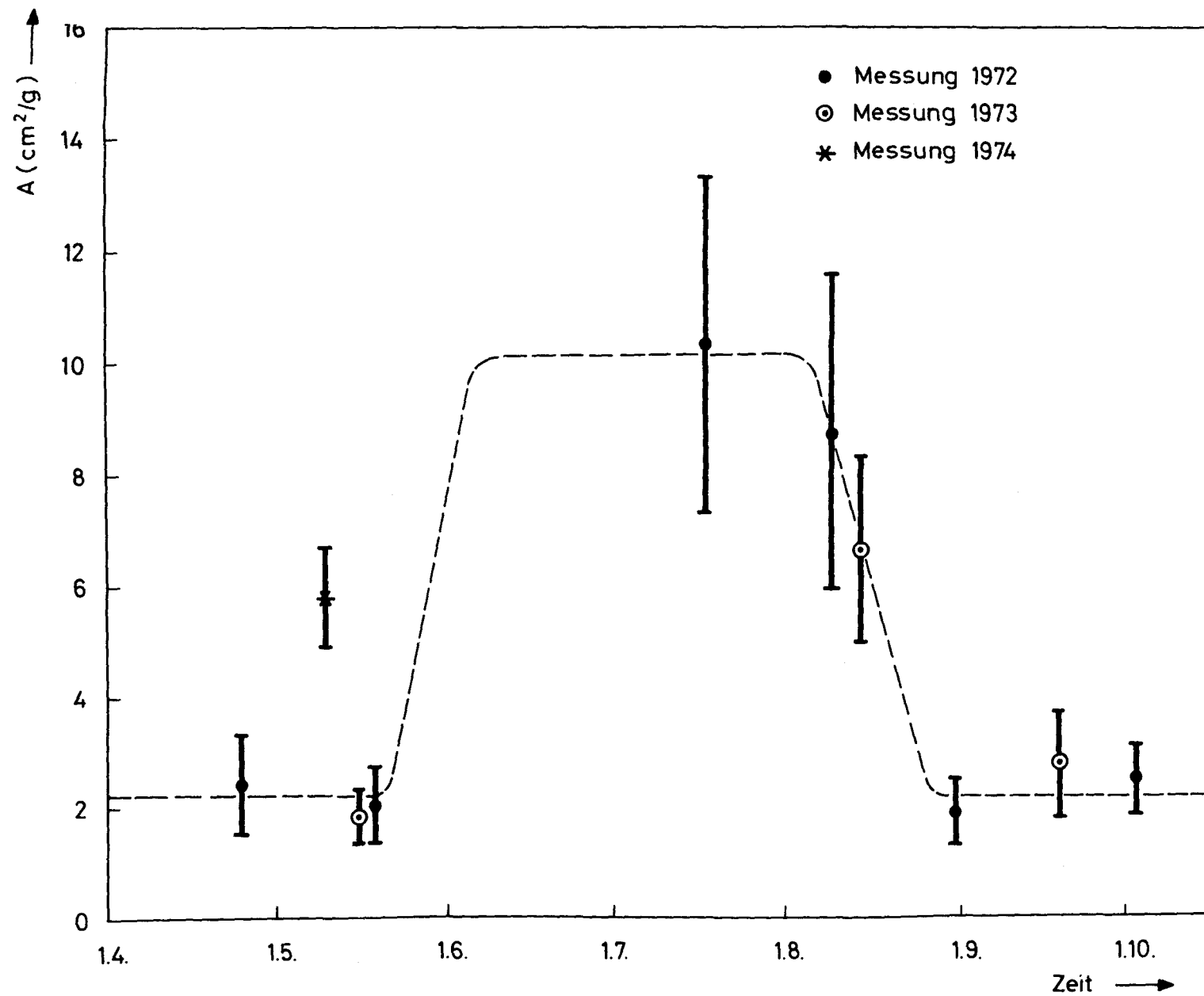


Abb. 4 Jahreszeitlicher Verlauf des Parameters A, der proportional zu dem biologischen Qualitätsfaktor B ist

Tabelle 2/10
Meßergebnisse der Versuche 1 bis 14

Vers. Nr.	v _D (cm ³ /gs)	D (g/m ²)	v _g (cm/s)	u* (cm/s)	F (%)	Vegetationsart	Bemerkung
1	50± 10	156± 74	0,8± 0,4	69± 30%	30± 5%	Gras	
2	9± 2	412± 30	0,4± 0,1	10± 30%	46± 5%	Gras	
3	128± 14	230± 26	2,7± 0,4	25± 30%	50± 5%	Gras	
4	92± 10	103± 12	0,9± 0,1	15± 30%	70± 5%	Gras	
5	57± 6	50± 3	0,3± 0,1	46± 30%	64± 5%	Gras	
6	121± 6	107± 7	1,3± 0,1	14± 30%	68± 5%	Klee	
7	43± 2	113± 9	0,5± 0,1	37± 30%	47± 5%	Gras	
8	23± 2	227± 26	0,6± 0,1	46± 30%	29± 5%	Gras	
9	178± 12	74± 2	1,4± 0,1	18± 30%	40± 5%	Klee	
10	56± 3	111± 11	0,6± 0,1	46± 30%	22± 5%	Gras	
11	63± 5	185± 13	1,2± 0,1	37± 30%	60± 5%	Gras	
12	52± 6	219± 20	1,1± 0,2	11± 30%	92± 5%	Gras	Nachtversuch
13	122± 7	83± 11	1,0± 0,2	16± 30%	74± 5%	Klee	
14	49± 1	76± 7	0,4± 0,1	12± 14%	67± 5%	Gras	

Tabelle 2/11 Zur Diskussion der Ablagerungsgeschwindigkeiten
von elementarem Jod auf Gras und Klee

Vers. Nr.	Datum	$M = u \cdot F$ (cm/s)	$A = v_D/M$ (cm ² /g)	Bemerkungen	Vegetations- art
1	25.4.72	21 ± 6	2,4 ± 0,9		Gras
14	10.5.74	8,4 ± 1,3	5,8 ± 0,9		Gras
8	16.5.73	13 + 4	1,7 + 0,5		Gras
2	19.5.72	4,5 + 1,4	2,0 + 0,7		Gras
3	18.7.72	12 + 4	10 + 3		Gras
4	10.8.73	10 + 3	8,7 + 2,8		Gras
10	15.8.73	10 + 3	5,6 + 1,7		Gras
5	31.8.72	30 + 9	1,9 + 0,6		Gras
11	19.9.73	23 + 7	2,8 + 0,9		Gras
7	3.10.72	17 + 5	2,5 + 0,6		Gras
12	26.9.73	10 + 3	5,0 + 1,9	Nachtversuch	Gras
9	1.8.73	7,4 + 2	24 + 8		Klee
6	22.9.72	9,9 + 3	12 + 4		Klee
13	7.11.73	12 + 4	11 + 3		Klee

Für die typischen Werte $u_* = 35 \text{ cm/s}$, $D = 0,02 \text{ g/cm}^2$,
 $F = 0,75$ und $A = 2,2$ erhält man nach Gleichung (2/9)

$$v_g = 1,2 \text{ cm/s}$$

Für die Ablagerung von Jod auf Klee liegen nur wenige Meßwerte vor. Vergleicht man jeweils die größten Werte von A für Gras und Klee (Tabelle 2/11) so findet man, daß die Ablagerungsgeschwindigkeit von Jod auf Klee (bei gleicher Trockenmasse und unter gleichen meteorologischen Bedingungen) mehr als doppelt so groß ist wie die auf Gras.

1.3 Desorptionsuntersuchungen

Um die biologische Halbwertzeit zu bestimmen, wurden in speziellen Versuchen von einer kontaminierten Fläche 10 Mischproben innerhalb von etwa 20 Tagen entnommen. Die Zeitabstände zwischen den Probennahmen betrugen etwa 2 Tage. Jede Mischprobe bestand jeweils aus 10 Einzelproben, die an 10 verschiedenen Positionen aus einer $1,5 \text{ m} \times 1,5 \text{ m}$ großen Fläche genommen wurden. Bestimmungsgröße war jeweils der Jodgehalt des Grases pro Flächeneinheit.

Bisher konnten vier Versuche zur Halbwertzeit durchgeführt werden, wobei drei die biologische Halbwertzeit von Jod auf Gras und einer die auf Klee ermittelten. Für die biologische Halbwertszeit von Jod auf Gras wurden folgende Ergebnisse erzielt:

$$T_{1/2} = (4,9 \pm 1,7) \text{ d} \quad (16.5.1973)$$

$$T_{1/2} = (7,5 \pm 0,9) \text{ d} \quad (10.5.1974)$$

$$T_{1/2} = (7,7 \pm 5,4) \text{ d} \quad (31.8.1972)$$

Bildet man den Mittelwert (mit den reziproken relativen Fehlern als Gewicht), so erhält man

$$\bar{T}_{1/2} = (6,9 \pm 0,8) \text{ d}$$

Wie die Abb. 2/5 bis 2/7 zeigen, ist keine Beeinflussung eines Meßpunktes durch Niederschläge (schraffierte Fläche) oder Sonnenscheindauer (gestrichelte Kurve) festzustellen.

Die biologische Halbwertszeit von Jod auf Klee wurde bisher in einem Versuch zu etwa 5 d bestimmt (Abb. 2/8).

Alle gemessenen Halbwertszeiten ergeben sich direkt aus den Meßwerten und nicht, wie in anderen Experimenten, indirekt aus der effektiven Halbwertszeit. Sie fallen im Vergleich zu den in Idaho (13 d) durchgeführten Experimenten (Z 69) klein aus. Das kann aber an der anderen Grassorte und den klimatologischen Bedingungen liegen.

Wurde in Parallel-Versuchen mit Radiojod das Gras nach der Kontamination abgeschnitten (siehe Kapitel 2.1.1), so konnte keine signifikante Abnahme des Jodgehaltes des Grases gemessen werden. Daraus ist zu folgern, daß die Jodabnahme des Grases mit den Prozessen in der lebenden Pflanze zusammenhängt.

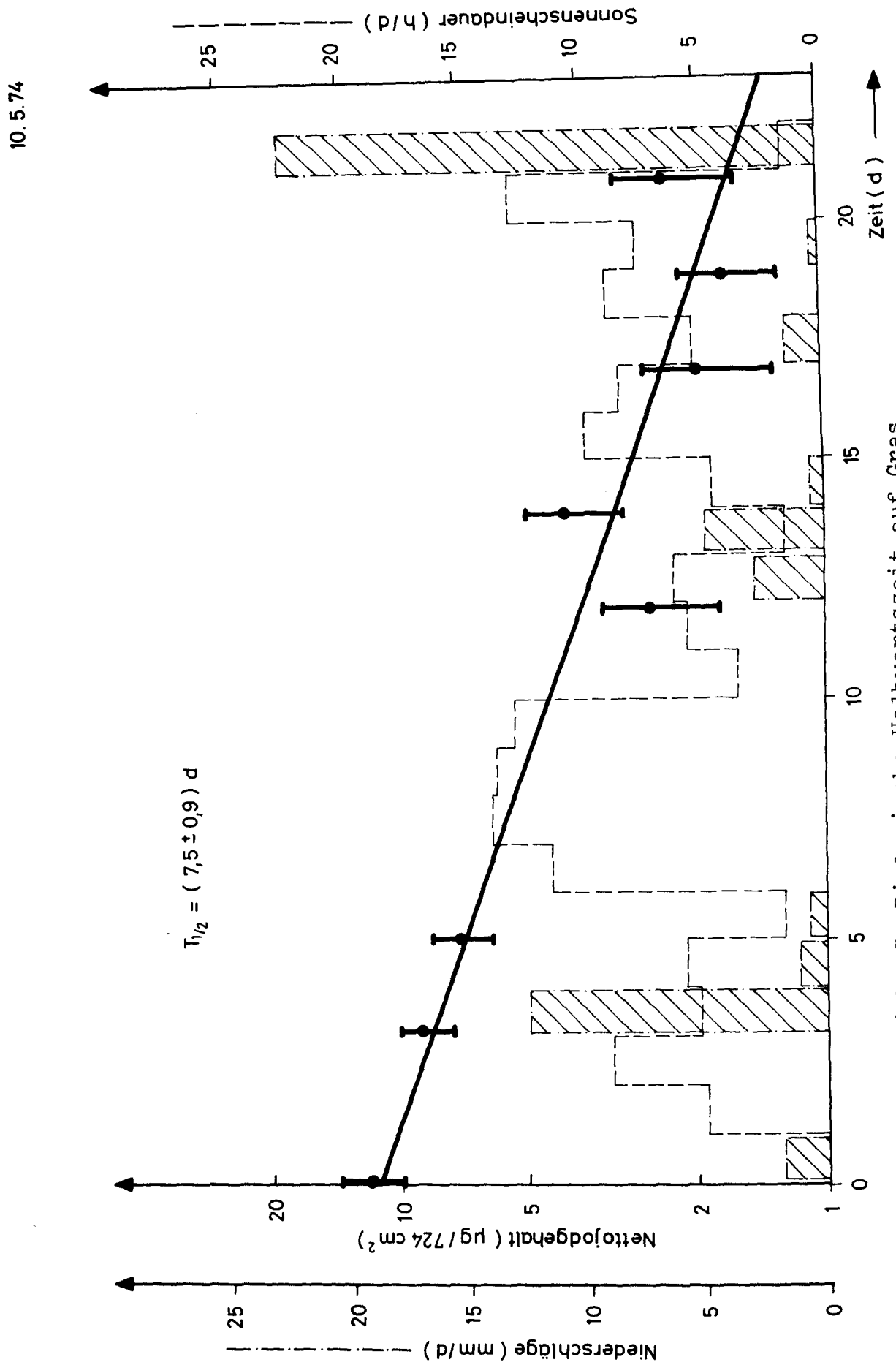


Abb. 5 Biologische Halbwertszeit auf Gras

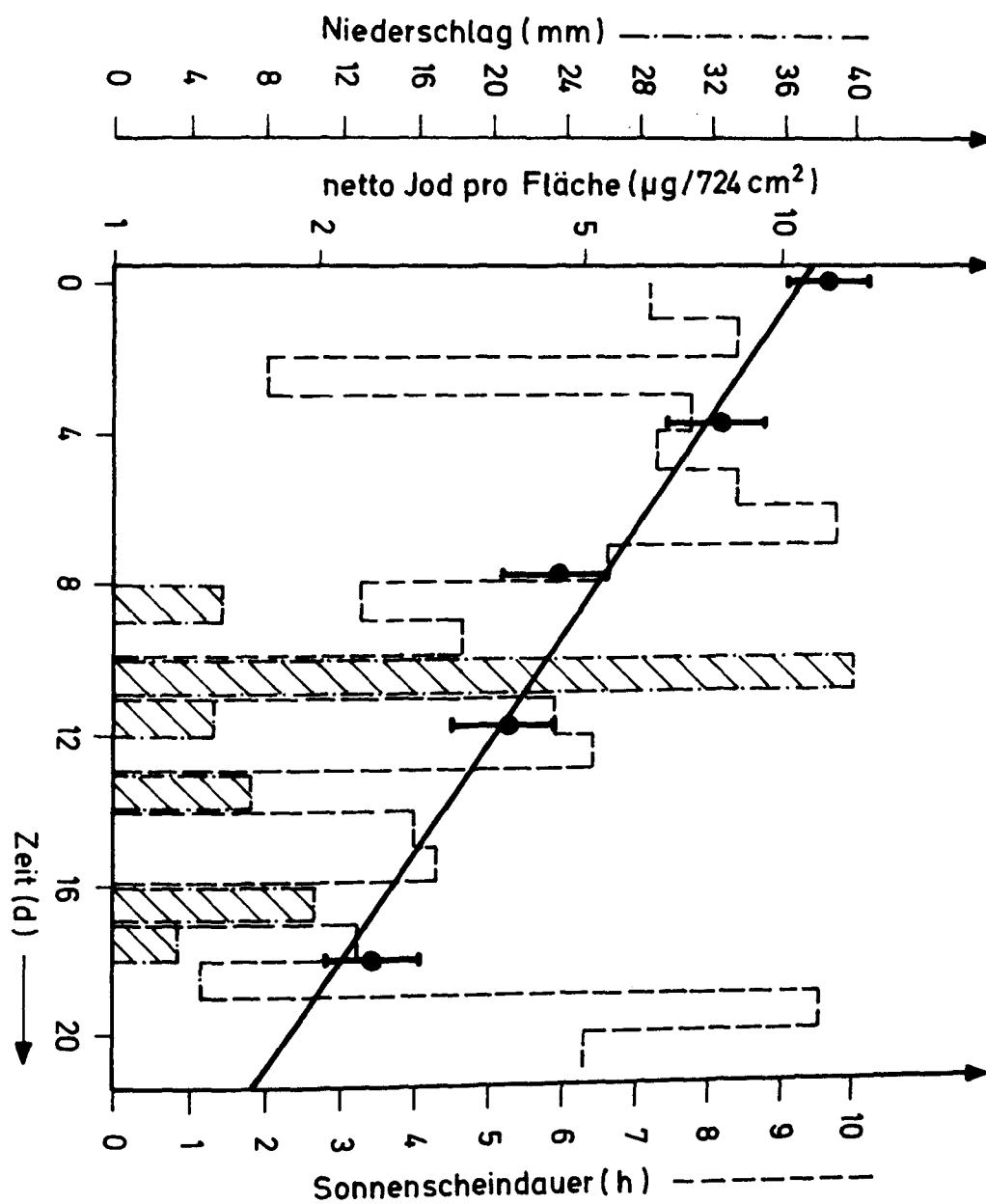


Abb. 6 Biologische Halbwertszeit auf Gras

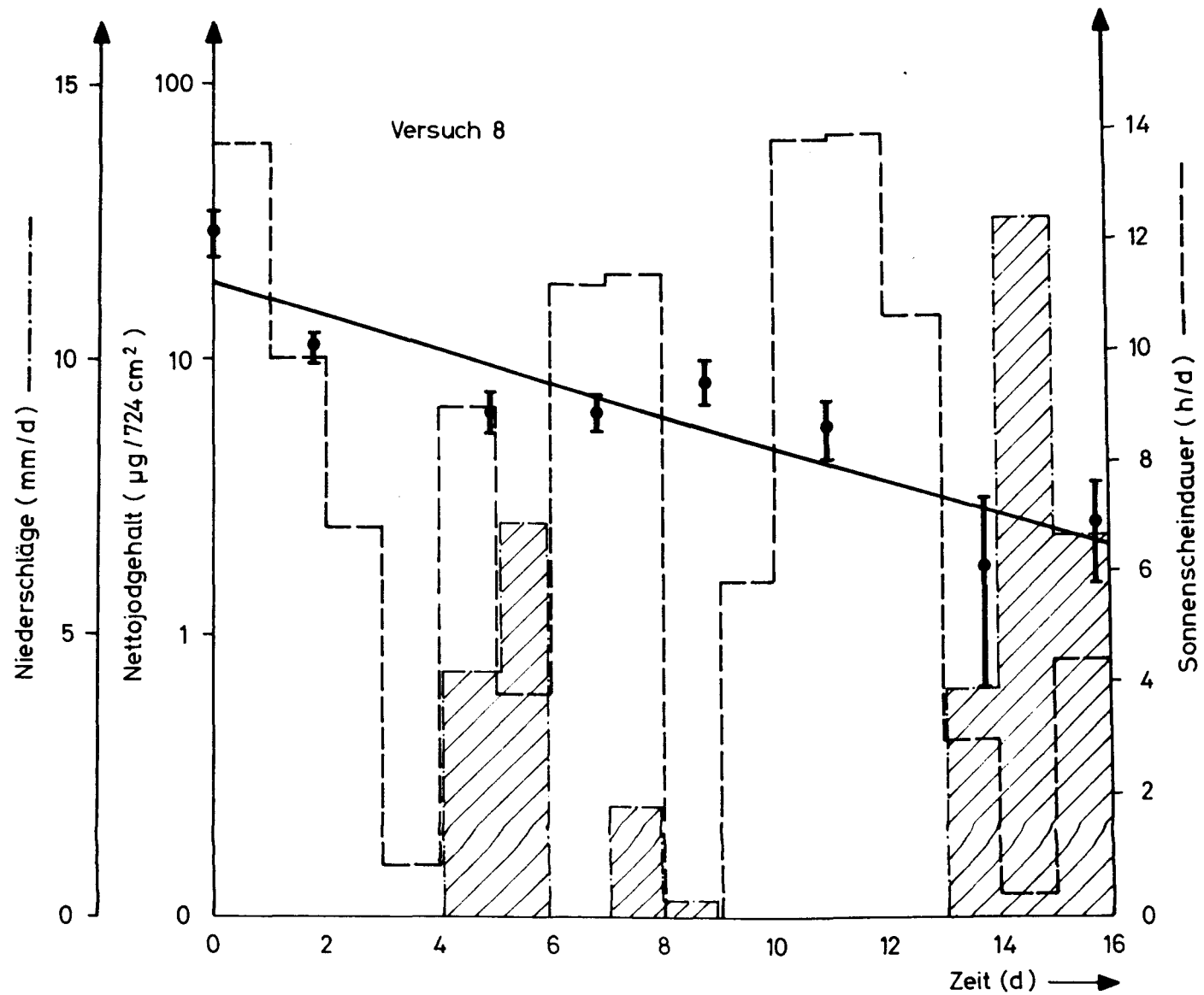


Abb. 7 Biologische Halbwertszeit auf Gras

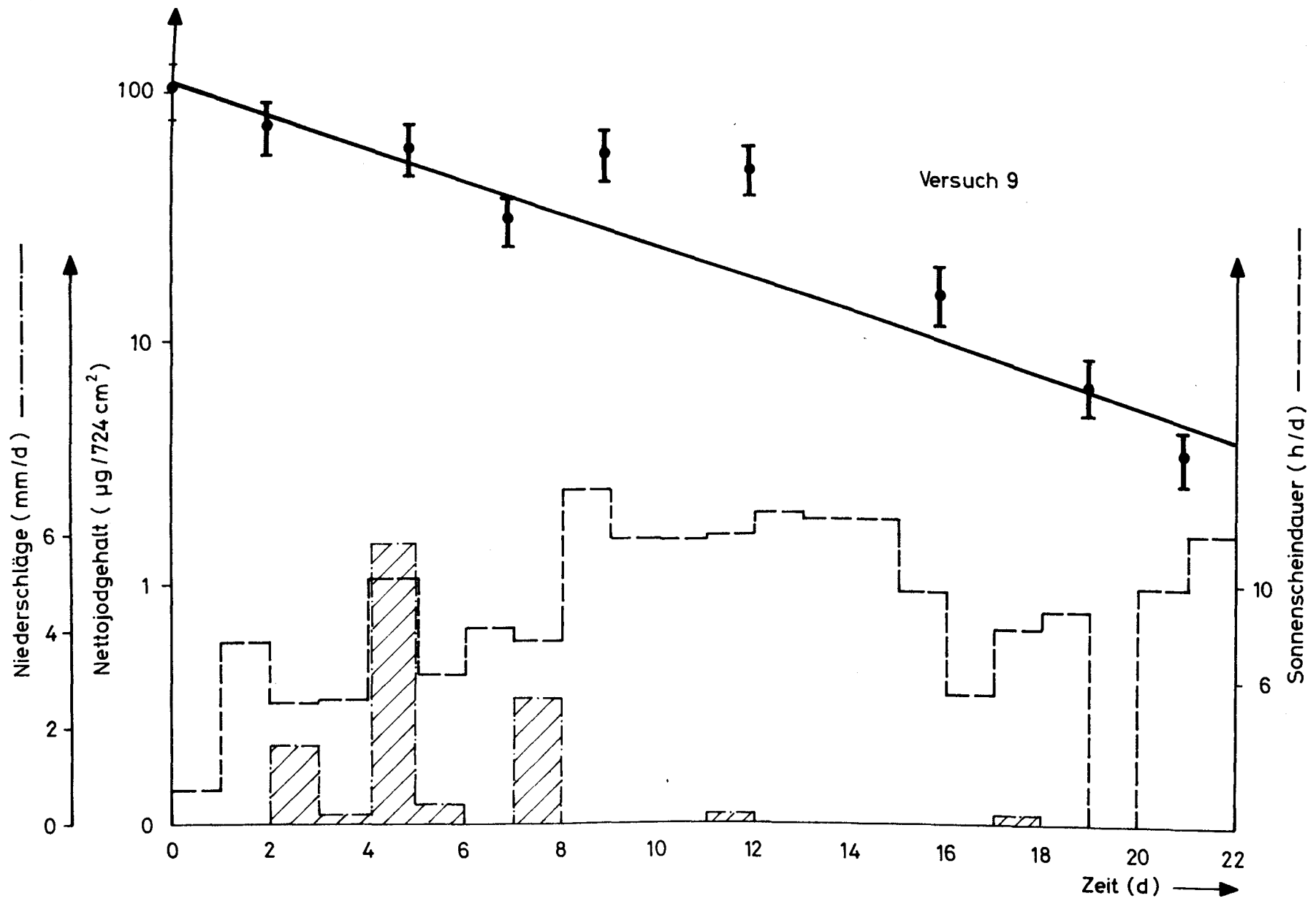


Abb. 8 Biologische Halbwertszeit auf Klee

2 Vorbereitungen zur Messung der Ablagerung von Aerosolen

Zur Ergänzung der bereits seit einiger Zeit durchgeführten Ablagerungsuntersuchungen von Jod auf Gras, Klee und anderen Grenzflächen soll mit Förderung von Euratom die Behandlung dieser Problematik auch auf definierte Test- und Schwermetallaerosole ausgedehnt werden. Da dieses Gebiet jedoch durch den komplexen Zusammenhang von Aerosolbeschaffenheit (Größe, chemische und physikalische Zusammensetzung), biologischen Fragen (Art und biologischer Zustand der Vegetation) und den verschiedensten klimatologischen Faktoren sehr weit gespannt ist, werden diese Versuche vorerst auf das bei den Ausbreitungsversuchen verwendete radioaktive Kupfersulfat und auf Bleiverbindungen beschränkt. Dabei soll das Kupfersulfat wegen seiner relativ leichten Nachweisbarkeit als in seiner Größe veränderliches Testaerosol Verwendung finden, während das Blei in der für die Umwelt relevanten Form von Motorabgasen freigesetzt werden soll.

2.1 Erzeugung von definierten Aerosolspektren

Die Durchführung von Ablagerungsuntersuchungen in Form von offenen Feldexperimenten stößt besonders bei Aerosolen auf Schwierigkeiten, da neben einem variablen Aerosolspektrum auch eine ausreichende Menge freigesetzt werden muß. Einige handelsübliche Generatoren liefern zwar geeignete Spektren oder sogar monodisperse Aerosole, erzeugen aber für derartige Untersuchungen eine zu geringe Emissionsrate. Im Vordergrund der Ablagerungsvorbereitungen stand daher die Entwick-

lung eines brauchbaren Generators und als eine weitere wichtige Voraussetzung die Beschaffung von Geräten, die eine genaue Bestimmung und Kontrolle der erzeugten Spektren gewährleisten.

Bei der Konzeption und Entwicklung eines Aerosolgenerators konnte auf die Erfahrungen zurückgegriffen werden, die bei den Ausbreitungsuntersuchungen mit radioaktiv markiertem Kupfersulfat als Tracer gewonnen werden konnten. Bei diesen Experimenten wird eine ausreichend hohe Emissionsrate mit Hilfe eines Ultraschallgenerators oder einer Zweistoffdüse erreicht. Für die geplanten Ablagerungsexperimente muß allerdings eine zusätzliche Einrichtung zur Separierung der erzeugten Aerosole nach der Partikelgröße geschaffen werden. Während bei einem Ultraschallgenerator die Änderung der Spektren über die Frequenz oder die Lösungskonzentration physikalisch außerordentlich unübersichtlich ist, bietet sich die Zweistoffdüse durch eine Beeinflussung der Strömungscharakteristik für diese Aufgabe an.

Als Ergebnis dieser Überlegungen wurde das in Abb.7/9 dargestellte Versuchsmodell angefertigt und einer ausführlichen Erprobung unterzogen. Kernstück der Anlage ist eine Zweistoffdüse, wie sie bereits bei den Ausbreitungsexperimenten erfolgreich betrieben worden ist: Das Ansaugen und Zerstäuben der Tracerlösung erfolgt durch die Injektorwirkung der an einem Ringspalt austretenden Preßluft. Das im Zentrum des Freistrahles stehende Flüssigkeitsröhrchen ist gegenüber den üblichen Düsen verlängert, um ein Verstopfen durch abgelagerte Salze zu vermeiden. Um die nicht gewünschten Partikel ab einer bestimmten Größe aus dem Spektrum zu entfernen, ist

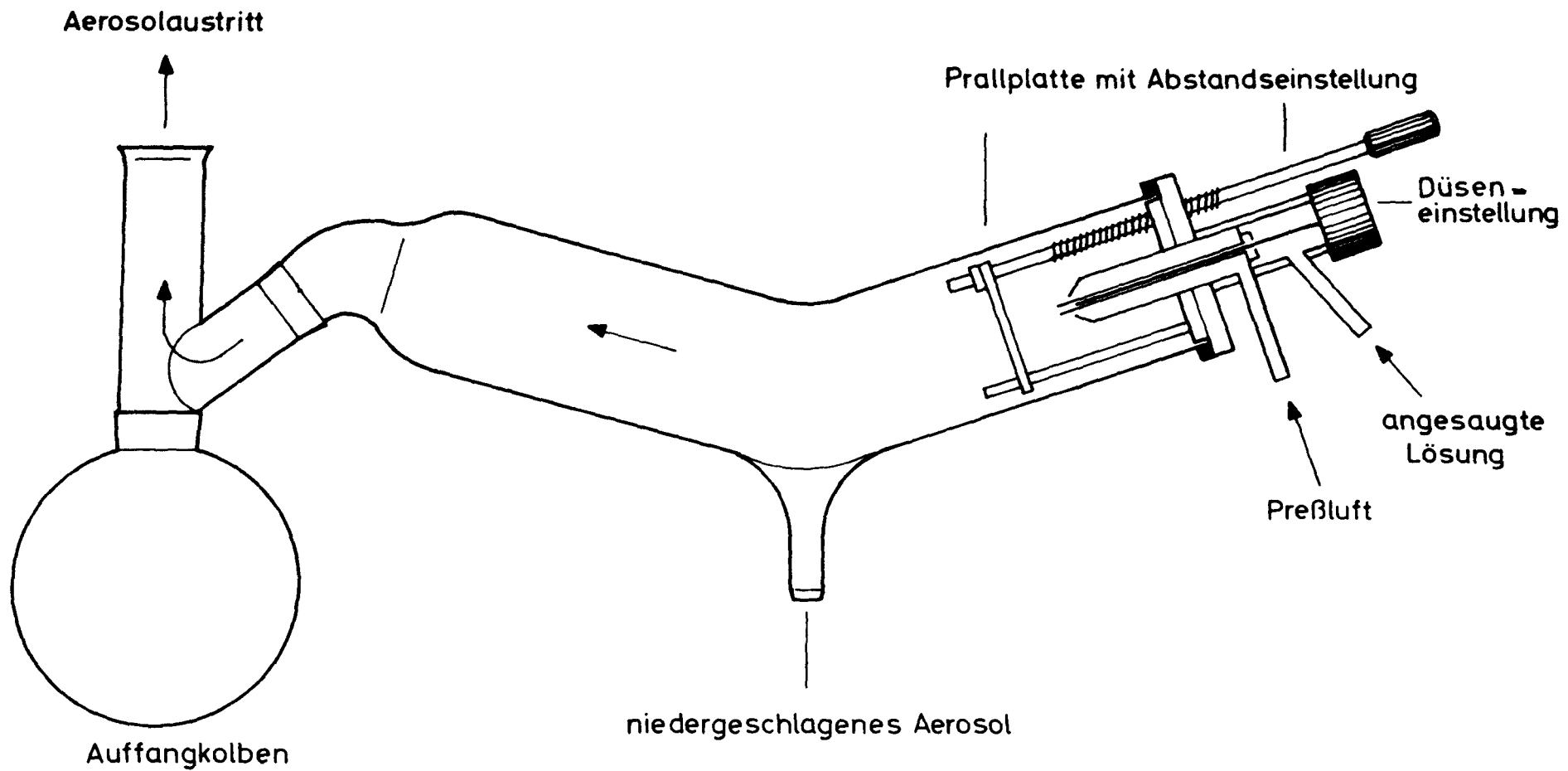


Abb. 9 Generator zur Erzeugung variabler Aerosolspektren

der Düse ein aus Glas gefertigter Rohrkrümmer nachgeschaltet, der durch seine Impaktorwirkung die größeren Tropfen niederschlägt und diese durch eine Trichteröffnung wieder der ursprünglichen Vorratsflasche zuführt. Die Ausscheidung großer Partikel kann durch eine zusätzliche Prallplatte vor der Düsenöffnung erheblich verstärkt werden. Es ist möglich, über ein Schraubengewinde den Abstand der Platte von außen zu verstellen und damit das emittierte Aerosolspektrum ohne Demontage der Anlage zu beeinflussen.

Zur Bestimmung und Kontrolle der erzeugten Aerosolspektren wurde ein Royco-Partikelzähler (Modell 225) angeschafft.

Dieses Spektrometer arbeitet nach dem Streulichtverfahren und ist in der vorhandenen Ausführung auch bei den hohen, am Ausgang des Generators auftretenden Aerosolkonzentrationen ohne zu hohe Koinzidenzverluste verwendbar. Das System mißt Konzentrationen bis zu $3 \cdot 10^6$ Partikeln/Liter mit Durchmessern, die in einem Bereich von 0,3 bis ca. 30μ liegen. Damit kann das bei den Versuchen interessierende Aerosolspektrum über die Sedimentationsgrenze hinaus erzeugt und gemessen werden. Die Auswertung der Spektren erfolgt über einen Vielkanalanalysator (Nuclear Data) mit Plotter- und Digitalausgang. Die Eichung des Spektrometers wird mit Latexaerosolen definierter Größe und geringer Standardabweichung durchgeführt.

Das Ziel der Voruntersuchungen bestand darin, die physikalischen und konstruktiven Möglichkeiten zur Erzeugung variabler und vor allen Dingen reproduzierbarer Spektren zu untersuchen und in eine endgültige Generatorkonstruktion zu übertragen. Die

Ergebnisse können wie folgt zusammengefaßt werden: Die erzeugten Aerosolspektren hängen bei der vorgegebenen Konstruktion von der Konzentration der Lösung, vom Abstand der Prallplatte, der Strömungscharakteristik hinter der Platte und in geringerem Maße von der Einstellung der Düse ab. In einer Reihe von Versuchen sind unter Einbeziehung der o.g. Parameter mehrere Spektren mit dem Royco-Partikelzähler aufgenommen worden. In Abb. 2/10 sind drei dieser Spektren bei gleicher Generatoreinstellung, aber verschiedenen Konzentrationen einer NaCl-Lösung dargestellt. Über dem Teilchendurchmesser ist in halb-logarithmischer Darstellung die im Maximum normierte Anzahl der in der gleichen Zeiteinheit gemessenen Teilchen aufgetragen. Es zeigt sich, daß die erzeugten Aerosolspektren durch die Impaktorwirkung des Gerätes erwartungsgemäß auf der Seite der größeren Teilchen beeinflußt werden. Bei geringer werdender Lösungskonzentration verschiebt sich das Maximum in Richtung kleinerer Partikeldurchmesser. Da jedoch bei den Ablagerungsuntersuchungen in erster Linie das Volumen oder die Masse der emittierten Teilchen und der diese Masse repräsentierende Partikeldurchmesser interessiert, sind in Abb. 2/11 die Volumenabhängigkeiten der in Abb. 2/10 dargestellten Spektren aufgezeichnet. Auch hier ist das Maximalvolumen wegen der besseren Vergleichbarkeit normiert.

Die Lösungskonzentrationen der NaCl-Lösungen belaufen sich auf 10 (a), 20 (b) und 40 (c) gr. NaCl pro 250 ml Wasser. Die Zunahme der Teilchengröße bei stärkeren Konzentrationen ist offensichtlich und beweist, daß unmittelbar nach der Erzeugung der Lösungströpfchen der Wassergehalt weitgehend verdampft, d. h. im wesentlichen trockene Teilchen den Generator verlassen.

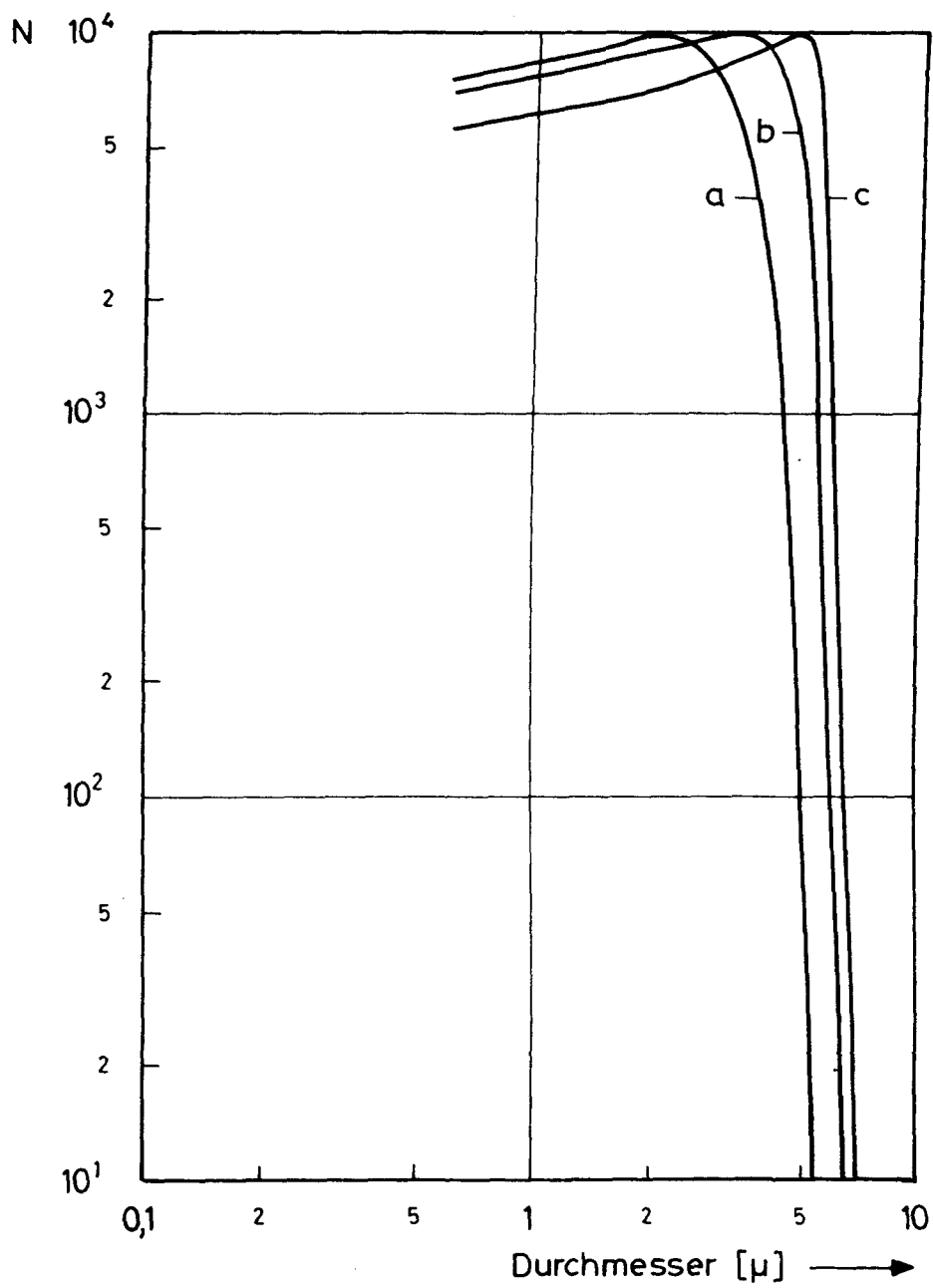


Abb. 10 Normierte Häufigkeitsverteilung der emittierten Aerosole in Abhängigkeit vom Partikeldurchmesser bei verschiedenen Lösungskonzentrationen

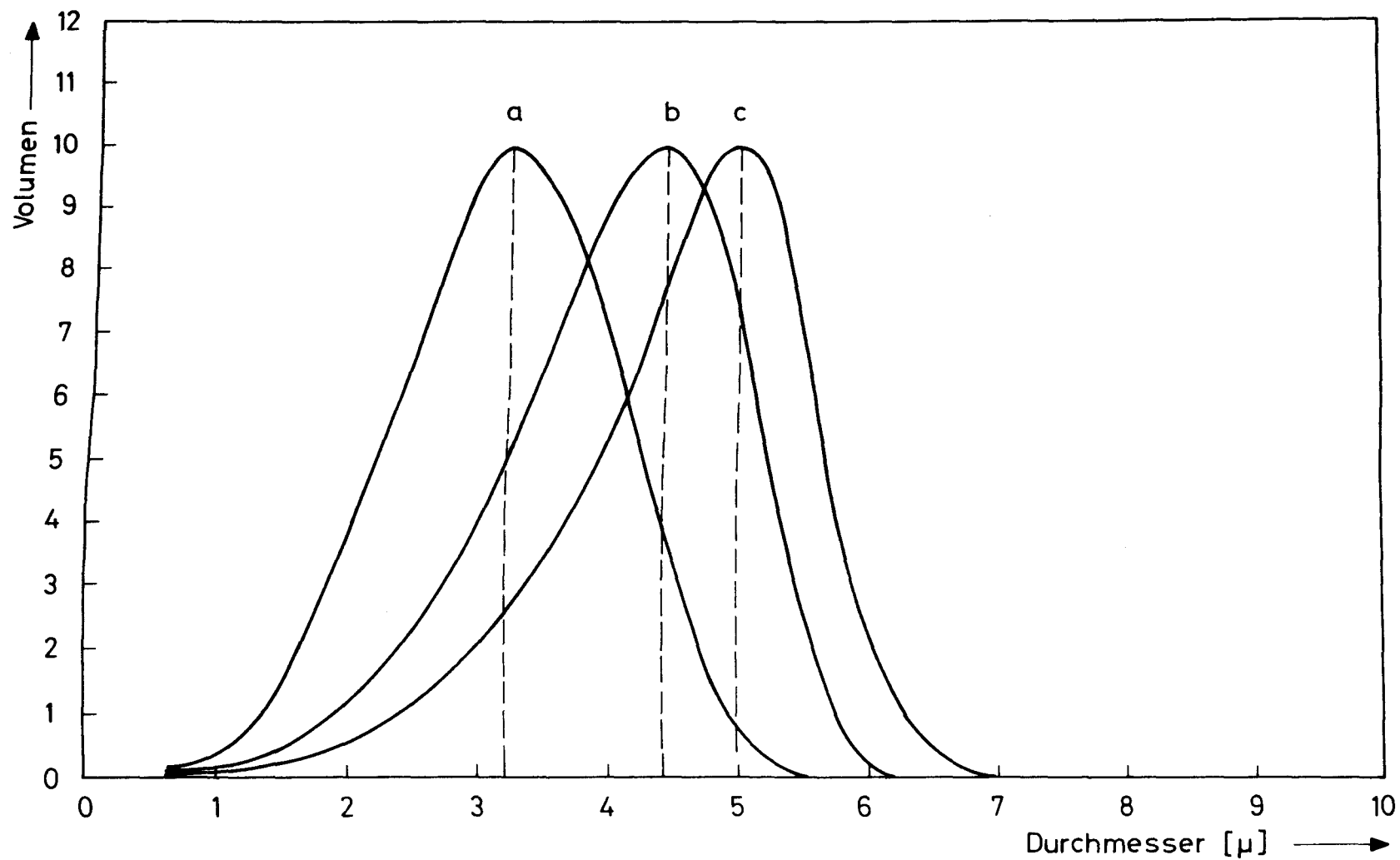


Abb. 11 — Normierte Radius-Volumenverteilung der emittierten Aerosole in Abhängigkeit von verschiedenen Lösungskonzentrationen

Soweit die Verdampfungsvorgang nicht schon im Generator abgeschlossen ist, erfolgt die Resttrocknung unmittelbar nach der turbulenten Durchmischung mit der Außenluft.

Eine weitere Möglichkeit, die Aerosolspektren zu verändern, ist in Abb. 2/12 dargestellt. Hier wird die Impaktorwirkung der Prallplatte zur Ausfällung der größeren Teilchen benutzt:

Bei kleineren Plattenabständen besitzen die emittierten Aerosole einen geringeren Durchmesser. Die Wirkung der Platte ist in diesem Beispiel nicht sehr groß, da durch die zu steile Geometrie des zuerst benutzten Krümmers der Anteil der größeren Teilchen auch ohne Prallplatte schon stark reduziert wird. Der endgültige Generator erhält eine wesentlich günstigere Strömungscharakteristik, so daß die Ausfällung der größeren Partikel hauptsächlich durch die Prallplatte besorgt werden kann. Damit kann auch eine Verschiebung des Spektrums zu größeren Teilchen hin erreicht werden. Inwieweit die Aerosolspektren durch die Charakteristik der Aerosolströmung, d. h. durch die Geometrie des Krümmers und der nachgeschalteten Auffangvorrichtung, beeinflußt werden können, zeigt sich in Abb. 2/13. Das Spektrum mit dem repräsentativen Maximaldurchmesser von $5,5 \mu$ (c) ist bei einer geringen Lösungskonzentration mit einem relativ strömungsgünstigen Rohrkrümmer und ohne die zusätzliche Auffangvorrichtung erzeugt worden. Verschlechtert man dagegen diese Charakteristik durch einen sehr steilen Rohrknick, so verschiebt sich das Spektrum in den Bereich kleinerer Teilchen (b). Das zusätzliche Vorschalten der Auffangvorrichtung (siehe Abb. 2/9) führt zu einem noch geringeren Maximalradius von $1,5 \mu$ (a).

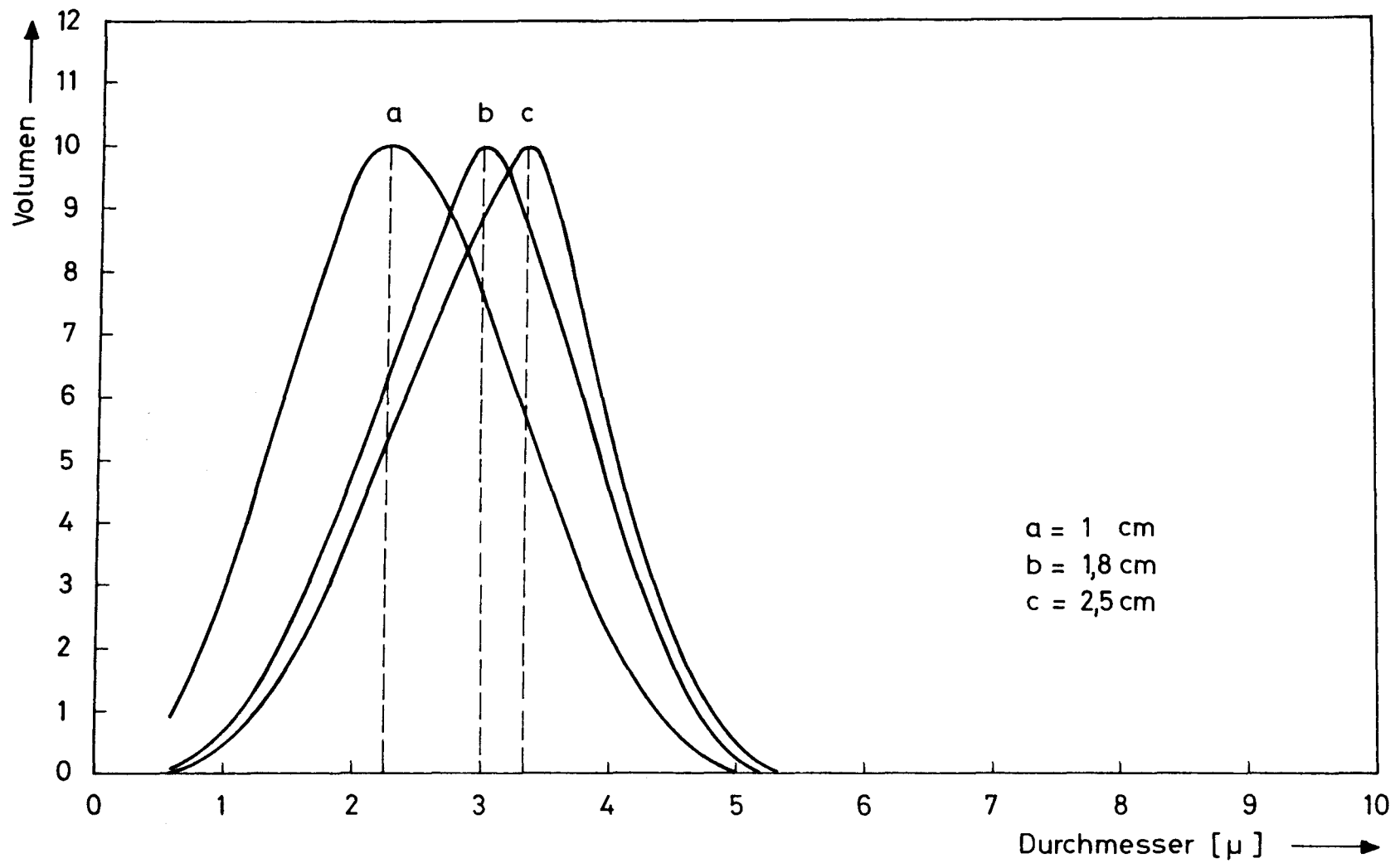


Abb. 12 Normierte Radius-Volumenverteilung der emittierten Aerosole in Abhängigkeit von verschiedenen Prallplattenabständen

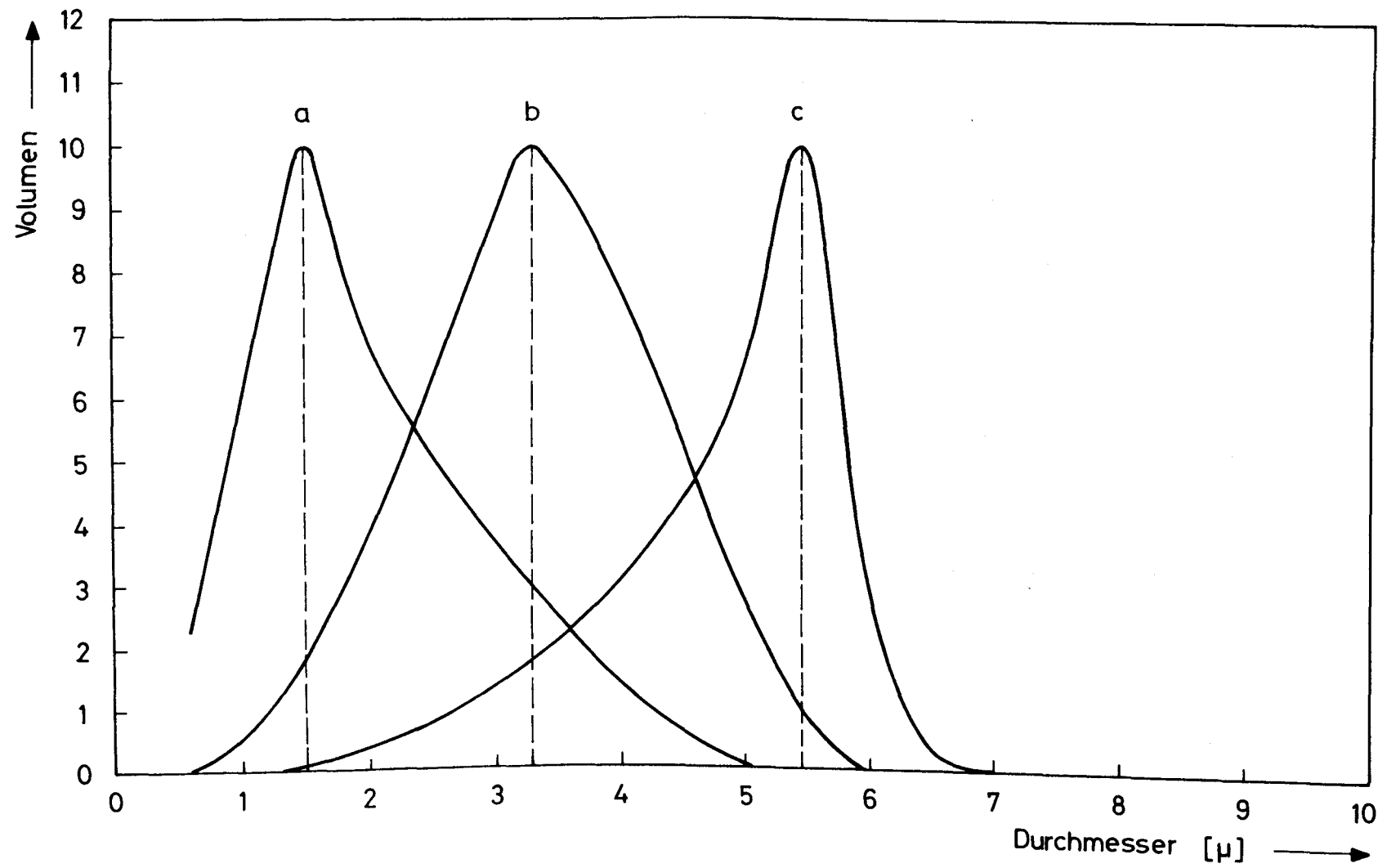


Abb. 13 Normierte Radius-Volumenverteilung der emittierten Aerosole in Abhängigkeit von der Strömungscharakteristik des Generators

Zusammenfassend kann gesagt werden, daß die für die Ablagerungsuntersuchungen notwendige Aerosolerzeugung einerseits durch die Lösungskonzentration des Tracers, andererseits durch die Impaktorwirkung einer veränderlichen Strömungsgeometrie gesteuert werden sollte. Dabei sollten die Strömungseigenschaften des Krümmers und der Auffangvorrichtung soweit verbessert werden, daß die entscheidende Impaktorwirkung weitgehend von der verstellbaren Prallplatte ausgeht. Eine derartige Konstruktion wird z. Zt. vorbereitet, so daß noch in diesem Jahr mit dem Beginn der Ablagerungsuntersuchungen gerechnet werden kann.

2.2 Konzeption zur Messung der Ablagerung von Testaerosolen

Für die Ablagerung von Testaerosolen soll - wie bereits dargestellt - radioaktiv markiertes Kupfersulfat Verwendung finden. Dabei spielt die vorhandene Erfahrung in der Erzeugung dieser Aerosole als auch die leichtere Nachweisbarkeit der in der Luft und im Gras erzeugten Konzentrationen eine ausschlaggebende Rolle. Die Anzahl der Versuche kann so bemessen werden, daß dem statistischen Bedarf bei der Untersuchung der Ablagerung der verschiedenen Spektren an einer Reihe ausgewählter Grenzflächen wie Gras, Klee usw. Rechnung getragen wird.

Die Auswertung der Luftfilterproben erfolgt, wie bei den Ausbreitungsversuchen, durch den Nachweis der β -Aktivität der Tracersubstanz, während die Gras- oder anderen Vegetationsproben γ -spektrometrisch untersucht werden müssen.

Dieser Umstand erfordert aber eine höhere Mindestkonzentration der Ablagerung und damit auch eine entsprechende Quellstärke des Generators: Geht man davon aus, daß zur sicheren γ -spektrometrischen Ausmessung der Grasproben etwa 40 nCi/Probe erforderlich sind, und die Ringschale das Gras von etwa $0,1 \text{ m}^2$ Fläche aufnehmen kann, so benötigt man eine minimale Kontamination von 400 nCi/m^2 Bodenfläche. Legt man eine minimale Ablagerungsgeschwindigkeit von $1 \cdot 10^{-3} \text{ m/sec}$ zugrunde, so sind bei den Versuchen zeitintegrierte Luftkonzentrationen von etwa $4 \cdot 10^{-4} \text{ Ci sec/m}^3$ über den Probeflächen zu erzeugen. Bei einer Versuchsdauer von einer Stunde ergibt sich eine Luftkonzentration von etwa $1,1 \cdot 10^{-7} \text{ Ci/m}^3$ über diesen Probeflächen.

Um aus den in einer Quelldistanz von etwa 25 m benötigten zeitintegrierten Luftkonzentrationen $I(x, 0, 0)$ die erforderliche Emissionsstärke Q zu bestimmen, wurden nach der Gleichung

$$I(x, 0, 0) = \frac{Q}{u \sigma_z \sigma_y} \exp \left(- \frac{H^2}{2 \sigma_y^2} \right)$$

für die häufigste Diffusionskategorie D und $H = 2 \text{ m}$ mit den bei den Ausbreitungsversuchen gemessenen Parametern

$$\begin{aligned}\sigma_y &= 0,138 \text{ x} \\ \sigma_z &= 0,103 \text{ x} \\ u &= 3,5 \text{ m/sec}\end{aligned}$$

Berechnungen durchgeführt und durch Messungen bei den Jodablagerungen belegt. Es ergab sich eine benötigte Emissions-

stärke von etwa $Q = 50 \text{ m Ci/Versuch}$. Dieser Wert ist allerdings als Maximalwert zu betrachten, da er sich auf kleine Partikel mit entsprechend niedriger Ablagerungsgeschwindigkeit bezieht (s. o.). Bei größeren Aerosoldurchmessern genügen kleinere Emissionsstärken. Die für diese Versuche erforderliche Ausnahmegenehmigung wurde inzwischen erteilt.

2.3 Konzeption zur Ablagerungsuntersuchung von Blei

Die Emission von Bleiverbindungen beim Verbrennungsvorgang im Otto-Motor ist ausschließlich darauf zurückzuführen, daß zur Erhöhung der Klopfestigkeit dem verwendeten Treibstoff Bleialkyle (Bleitetraäthyl und Bleitetramethyl) in der Größenordnung von $0,2 - 0,4 \text{ g Pb/l}$ zugesetzt werden müssen. Die weiteren Zusätze von Äthylendibromid und Äthylendichlorid führen dazu, daß in den Motorabgasen das Blei im wesentlichen als Bleichlorid und Bleibromid emittiert werden. In geringeren Mengen ist in diesen Abgasen auch Bleioxid und Bleisulfat enthalten. Der Anteil der ursprünglich zugegebenen Bleialkyle am Bleigehalt der Abluft dürfte bei etwa 5-8% liegen.

Die Aerosolgröße von etwa 70% der emittierten Bleiverbindungen liegt nach Literaturangaben in dem Bereich von $0,01 - 10 \mu$, wobei im Maximum eine Größe von $0,5 - 0,7 \mu$ gegeben sein dürfte. Das Spektrum dieser Teilchen hängt allerdings nicht unerheblich vom Verbrennungsprozeß, von der Auspuffanlage oder von eventuell vorhandenen Filtereinsätzen ab. Im primären Zustand ist das Aerosol noch recht monodispers (ca. $0,01 \mu$) verteilt. Erst später erfolgt eine Adsorption an größere Partikel, vor allen Dingen an Carbonaten.

Bei der Durchführung von Ablagerungsuntersuchungen muß der Motor wesentlich höhere Bleimengen als bei Normalbetrieb emittieren, um auf der Versuchsfläche innerhalb einer realistischen Versuchsdauer eine deutlich über dem Nulleffekt liegende Ablagerung zu erreichen. Zur Abschätzung der erforderlichen Bleiemiission wurde im August 1973 auf dem vorgesehenen Versuchsgelände die Bleikonzentration sowohl in der Luft als auch in der Trockenmasse des Grases untersucht. Es ergaben sich folgende Werte

in Luft:	$0,21 \pm 0,012 \mu\text{g Pb/ m}^3$
in Gras:	$3,0 \pm 0,6 \text{ ppm}$

Dies entspricht sehr gut den aus der Literatur bekannten Werten für verkehrsarme Gebiete [Eur71]. Für eine brauchbare Analyse sollte mindestens etwa der 5-fache Betrag, d.h. 15 ppm, abgelagert werden. Bei einer angenommenen Ablagerungsgeschwindigkeit von 0,01 m/sec ergibt sich für die erforderliche Immissionsbelastung der bodennahen Atmosphäre ein Wert von $0,3 \text{ gs/m}^3$. Geht man ferner davon aus, daß bei den obengenannten Aerosolspektren der Anteil der sedimentierenden Teilchen sehr gering ist, so läßt sich über die Ausbreitungsgleichung für mittlere Wetterlagen und für einen den Joduntersuchungen entsprechenden Versuchsaufbau eine Quellstärke von 35 g Blei pro Versuch errechnen. Wenn man den Anteil des Antiklopfmittels im Treibstoff auf ca. 5% erhöht, was ohne zu starke Veränderung des Grundgemischs möglich ist, ergibt sich, daß während des gesamten Versuchs eine Mindesttreibstoffmenge von ca. 2 Litern zu verbrennen ist. Diese Menge würde einer Emis-

sionsdauer von etwa 15 Minuten entsprechen, so daß bei ein möglichen Verlängerung der Emission genügend Spielraum zur Änderung der Versuchskonzeption besteht. Die chemischen Analysen der Luftfilter und Grasproben sollen im hiesigen Zentralinstitut für analytische Chemie durchgeführt werden.

2.4 Die Ablagerung als Randbedingung der natürlichen Radioaktivität der Atmosphäre

Abschließend sollen noch einige theoretische Überlegungen dargelegt werden, die es erlauben, die Ablagerung als Randbedingung der Vertikalverteilung der natürlichen Radioaktivität der Atmosphäre zu verstehen. Dies betrifft insbesondere die kurzlebigen Radon-Folgeprodukte, die erst in der Atmosphäre entstehen und nach ihrer spontanen Anlagerung an Aerosole den bodennahen Diffusions- und Ablagerungsprozessen unterworfen sind. Unter stationären Bedingungen, die wegen der kurzen Halbwertszeit der interessierenden Kontaminanten erfüllt sind, kann für die vertikale Bilanz des Radons und seiner Folgeprodukte folgendes Gleichungssystem aufgestellt werden:

$$\int_0^{\infty} \lambda_i \cdot n_i \cdot dz = \int_0^{\infty} \lambda_{i-1} \cdot n_{i-1} \cdot dz + E_i - \alpha \cdot n_i(0)$$

$n(z)$ = Konzentration in der Höhe z

λ = Zerfallskonstante

E = Exhalation mit $E_i = E_0$ für $i=0$ (Radon)

$E_i = 0$ für $i > 0$ (Folgeprodukt)

α = Anteil der abgelagerten Aerosole

Für die Radon-Folgeprodukte ($i > 0$) vereinfacht sich demnach die Gleichung zu

$$a_i \cdot n_i(0) = \int_0^{\infty} [\lambda_{i-1} \cdot n_{i-1} - \lambda_i \cdot n_i] \cdot dz$$

Nach Einsetzen der bekannten Diffusionsgleichung für den turbulenten Massentransport ergibt sich

$$a_i \cdot n_i(0) = - \int_0^{\infty} \left[\frac{d}{dz} \left\{ K(z) \frac{dn}{dz} \right\} \right] \cdot dz$$

mit dem höhenabhängigen Scheindiffusionskoeffizienten $K(z)$. Die Lösung dieses Gleichungssystems ist in Ho 72 unter der Bedingung eines linearen $K(z)$ angegeben. Eine Integration dieser Gleichung unter der Bedingung $n_i(z \rightarrow \infty) = 0$ führt zu einer näheren Definition der Größe a_i .

$$a_i \cdot n_i(0) = K_{(z=0)} \frac{d}{dz} n_i(z=0) = K_{(z=0)} \cdot \text{grad}_z n(z) = Q_i(z)$$

Die Größe $Q_i(z)$ bedeutet demnach der Vertikalfluß durch eine Einheitsfläche. Daraus ergibt sich

$$\frac{Q_i(z=0)}{n_i(z=0)} = a_i \quad \left[\frac{\text{m}}{\text{sec}} \right]$$

wobei α als partielle Ablagerung oder auch als die bekannte Ablagerungsgeschwindigkeit definiert werden kann. Grenzfälle ergeben sich unter den Bedingungen

$$\frac{dn_i}{dz} = 0 \longrightarrow Q_i = 0 \longrightarrow \alpha_i = 0 \quad \text{totale Reflexion}$$

$$n_i(z=0) = 0 \qquad \alpha_i = \infty \quad \text{totale Absorption}$$

Dies bedeutet, daß theoretisch aus der gemessenen Vertikalverteilung der kurzlebigen Radon - Folgeprodukte die entsprechende Ablagerung bestimmt werden kann. Experimentell dürften sich jedoch insofern Schwierigkeiten ergeben, als das Vertikalprofil gerade an der Grenzfläche zum Boden sehr stark gekrümmt ist. Vorteilhaft dagegen wäre die Möglichkeit einer kontinuierlichen Ablagerungsuntersuchung, die genügend statistisches Material für die Beziehung zwischen Ablagerung, Klimatologie und Vegetation liefern könnte. Die Durchführbarkeit solcher Messungen wird z. Zt. geprüft.

LITERATUR

- B63 P.J.Barry, A.C.Chamberlain
Deposition of Iodine onto Plant Leaves from Air
Health Physics 9, 1963, 1149
- C53 A.C.Chamberlain
Aspects of Travel and Deposition of Aerosols
and Vapour Clouds
A.E.R.E., HP/R 1261, 1963, H.M.S.O.
- C65 A.C.Chamberlain, R.C.Chadwick
Transport of Jodine from Atmosphere to ground
Tellus XVIII, 1966,2
- Ho72 M.Horbert, C.de la Riva and L.Jantowsky
Mass Transfer in the lower Atmosphere,
F.T.R.European Research Office
London W.1, England,
Contract No.DAJA 37-72-C-0440
- Js61 N.F.Islitzer
Short Range Atmosph.Dispersion
Measurements from an Elevated Source
J.Met. 18, 443 (1961)
- M73 W.Matthes, T.Kiss und M.Stoeppler
Zur Jodbestimmung im Nanogrammbereich
nach der Sandell-Kolthoff-Reaktion
Z.Anal.Chem. 267, 1973, 89-95
- M74 W.Matthes, R.Flucht, M.Stoeppler
Automatisierung eines Verfahrens zur Jodbestimmung
in Pflanzen und Filterproben.
Fortschritte in der Automatisierung der Analytik
Internationales Technicon Symposium
1974, Frankfurt, Proceedings, im Druck
- R72 R.Roth
Modelle für das Windprofil über einer rauhen und
glatten Oberfläche
Beiträge zur Physik der Atmosphäre
45. Band, 1972, 277
- Vg71 K.J.Vogt, K.Heinemann, H.Nordsieck, G.Polster,
F.Rohloff und L.Angeletti
Jahresbericht Juli 1970-Juni 1971
Ausbreitung und Ablagerung
Jül-807-ST (1971)

- Vg73/1 K.J.Vogt, H.Geiß, H.Nordsieck, G.Polster, F.Rohloff
Untersuchungen zur Ausbreitung und Abluftfahnen in
der Atmosphäre
Ergebnisbericht Juli 1971 - Dezember 1972 (1.Teil)
über das im Rahmen des Vertrages Nr. SC 24-003-PSTD
von der Association EURATOM-C.E.A. geförderte
Forschungsvorhaben
Ausbreitung von Schadstoffen in der Atmosphäre und
Umweltbelastung
Jül-998-St, Juli 1973
- Vg73/2 K.J.Vogt, K.Heinemann, W.Matthes, G.Polster,
M.Stoeppler und L. Angeletti
Untersuchungen zur Ablagerung von elementarem und
organisch gebundenem Jod auf Gras
Ergebnisbericht Juli 1971 - Dezember 1972 (2.Teil)
über das im Rahmen des Vertrages Nr. SC 24-003-PSTD
von der Association EURATOM-C.E.A. geförderte
Forschungsvorhaben Ausbreitung von Schadstoffen in
der Atmosphäre und Umweltbelastung
Jül-999-ST, Juli 1973
- Z69 J.D.Zimbrick and P.G.Voillequé (Editors)
Controlled Enviromental Radioiodine Tests
at the National Reactor testing Station
Progress Report Number Four
IDO-12065, 1969
- EUR71 Der atmosphärische Bleigehalt in der europäischen
Gemeinschaft (Jahresbericht für die Zeit vom
April 1971 bis März 1972). Kommission der
Europäischen Gemeinschaften EUR 4982 d,e,f,i,n.

<u>Abbildungsverzeichnis</u>	<u>Seite</u>
Abb. 1 Automatisierter Meßplatz zur Jod-Analyse der Gras- und Filterproben	12
Abb. 2 Gemessene Windprofile 1972	19
Abb. 3 Gemessene Windprofile 1973 und 1974	20
Abb. 4 Jahreszeitlicher Verlauf des Parameters A, der proportional zu dem biologischen Qualitätsfak- tor B ist	24
Abb. 5 Biologische Halbwertszeit auf Gras	29
Abb. 6 Biologische Halbwertszeit auf Gras	30
Abb. 7 Biologische Halbwertszeit auf Gras	31
Abb. 8 Biologische Halbwertszeit auf Klee	32
Abb. 9 Generator zur Erzeugung variabler Aerosolspektren	35
Abb. 10 Normierte Häufigkeitsverteilung der emittierten Aerosole in Abhängigkeit vom Partikeldurchmesser bei verschiedenen Lösungskonzentrationen	38
Abb. 11 Normierte Radius-Volumenverteilung der emittierten Aerosole in Abhängigkeit von verschiedenen Lösungs- konzentrationen	39
Abb. 12 Normierte Radius-Volumenverteilung der emittierten Aerosole in Abhängigkeit von verschiedenen Prall- plattenabständen	41
Abb. 13 Normierte Radius-Volumenverteilung der emittierten Aerosole in Abhängigkeit von der Strömungscharak- teristik des Generators	42

<u>Tabellenverzeichnis</u>	<u>Seite</u>
Tab. 1 Zur Bestimmung der Haftzeit von Jod auf Gras, das der Sonne ausgesetzt war	3
Tab. 2 Zur Bestimmung der Haftzeit von Jod auf Gras, das der Dunkelheit ausgesetzt war	3
Tab. 3 Vergleich der normierten Ablagerungsgeschwin- digkeit v_0 für J_2 und CH_3J (Boxversuch)	5
Tab. 4 Meteorologische Daten zu den Versuchen 14 u. 15	6
Tab. 5 Feldversuch 13	7
Tab. 6 Feldversuch 14	8
Tab. 7 Experimentelle Bestimmung der biologischen Halbwertszeit von Jod auf Gras (Versuch 14)	9
Tab. 8 Teilstandardabweichung für photometrische Bestimmung	13
Tab. 9 Meteorologische Parameter der Ablagerungs- untersuchungen	21
Tab. 10 Meßergebnisse der Versuche 1 bis 14	25
Tab. 11 Zur Diskussion der Ablagerungsgeschwindigkeiten von elementarem Jod auf Gras und Klee	26