

7 Zusammenfassung

Die Überwachung der Luftreinhaltung gewinnt immer mehr an Bedeutung und stellt sehr hohe Anforderungen an die jeweiligen Probenahme- und Analysenmethoden. Praktisch zerstörungsfrei arbeitende Analysenverfahren für die Bestimmung partikelgebundener Schadstoffe aus Immissionen und Emissionen, die auf speziell geeigneten Filtermaterialien abgeschieden werden, sind wegen der Möglichkeit einer zusätzlichen vergleichenden Untersuchung mit anderen Methoden und der Archivierung der Proben von großem Interesse.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die energiedispersive Röntgenfluoreszenzspektrometrie für die zerstörungsfreie Multielementanalyse von Aerosolproben etabliert und für die Bearbeitung unterschiedlicher Fragestellungen genutzt. In dem verwendeten energiedispersiven Röntgenfluoreszenzspektrometer X-LAB der Fa. SPECTRO A. I. (Kleve) wird als primäre Strahlungsquelle eine Rh-Seitenfensterröhre verwendet. Die Anregung der Elemente in der Probe erfolgt nicht direkt durch die Röntgenröhre, sondern indirekt über Sekundärtargets aus Reinstelementfolien. Die Fluoreszenzstrahlung der Elemente in der Probe wird in einem Si(Li)-Halbleiterdetektor mit einer Energieauflösung von ca. 155 eV aufgenommen und elektronisch ausgewertet. Die quantitative Multielementanalyse einer Probe dauert ca. 30 Minuten.

Die Kalibrierung des Spektrometers für eine quantitative Multielementanalyse erfolgte über das Modell der Fundamental-Parameter-Methode, wobei dieses Modell hier in Verbindung mit Kalibrierstandards eingesetzt worden ist. Bei der Kalibrierung des Spektrometers können verschiedene Störeinflüsse auftreten, die von den charakteristischen Eigenschaften der Probe abhängen. Aerosolproben gelten als leichte Matrix und weisen daher ein großes Verhältnis der COMPTON- zur RAYLEIGH-Strahlung auf. Zusätzliche Störungen, welche die charakteristische Fluoreszenzstrahlungsintensität und somit auch das Analyseergebnis beeinflussen können, werden durch die Elementzusammensetzung des Aerosols, die Abscheidecharakteristik der Partikel im Filtermaterial oder durch Partikelgrößeneffekte hervorgerufen. Für die Kalibrierung wurden daher angepaßte Standardreferenzfilter hergestellt, die hinsichtlich der genannten Faktoren einem realen Aerosol entsprechen. Zur Erstellung der Kalibrierung für die Multielementanalyse von Tiefbettfiltern wurden speziell belegte Quarzfaserfilter der Fa. MUNKTELL FILTER AB (Schweden) verwendet.

Die Belegung der Standardfilter erfolgte mit einem Aerosolgenerator, der ein polydisperses Aerosol erzeugt. Die Partikelgrößenverteilung des generierten Aerosols wird durch den Salzgehalt der eingesetzten Lösung beeinflusst. Die Herstellung von Standardreferenzfiltern für die Kalibrierung von Röntgenfluoreszenzspektrometern sollte daher mit Standardlösungen erfolgen, deren Salzgehalte 0,2 % betragen. Mit dieser Salzkonzentration wird in dem Aerosolgenerator ein Aerosol mit einer Partikelgrößenverteilung zwischen 0,125 µm und 2,0 µm und einer mittleren Partikelgröße von 0,71 µm erzeugt. Das entspricht der Partikelgrößenverteilung im Abgas von emittierenden Anlagen und im Feinstaubbereich des urbanen Aerosols. Der Aerosolgenerator arbeitet mit einem konstanten Massenfluß, der über einen Zeitraum von zwei Stunden mit einer Abweichung von 3 % um den Mittelwert schwankt. Die Effektivität des Aerosolgenerators liegt bei Standardlösungen mit einem Salzgehalt von 0,2 – 0,5 % im Mittel nur bei 0,33 %, was bedeutet, daß 99,67 % der Standardlösung nicht genutzt werden.

Die Zerstäubereffektivität ist von verschiedenen Faktoren abhängig, wie z. B. dem Salzgehalt der Standardlösung, der Pumprate für die zerstäubte Standardlösung, dem Zerstäubergasdruck, der Art des Zerstäubers, der Sprühkammergeometrie, dem Trockengasstrom, dem Trockenrohr und dem Filtermaterial, auf dem die Partikel abgeschieden werden.

Die Optimierung der Betriebsparameter des Aerosolgenerators ergab, daß der Durchfluß den stärksten positiven Effekt auf die Belegung, aber auch den stärksten negativen Effekt auf die Effektivität des Aerosolgenerators hatte. Das Optimum für den Durchfluß unter Berücksichtigung der beiden gegenläufigen Zielgrößen Belegung und Effektivität lag bei 0,42 mL/min. Der Einsatz einer speziell angefertigten Mehrfachzerstäuber kammer ermöglichte die simultane Belegung eines Filterstandards mit bis zu vier Standardlösungen, deren Salze nicht in einer Lösung mischbar sind. Weiterhin konnte mit Hilfe eines Ultraschallzerstäubers genügend Aerosol erzeugt werden, so daß die Herstellung von Standardfiltern mit einem Durchmesser von 257 mm gelang. Dadurch war es möglich geworden, durch Ausstanzen bis zu 40 Teilfilter mit einem Durchmesser von 32 mm zu erhalten, die eine nahezu identische Elementbelegung mit Abweichungen unter 3 % aufwiesen.

Die Kalibrierung des energiedispersiven Röntgenfluoreszenzspektrometers X-LAB der Fa. SPECTRO A. I. erfolgte für jedes Element durch das Auftragen der gemessenen und normierten Impulse [Impulse/(s mA)] gegen die Gehalte [ng/cm²] der Filterstandards in einem X/Y-Diagramm. Die zugrunde gelegten „wahren“ Gehalte in [ng/cm²] wurden über die Referenzmethoden ICP-AES und GF-AAS bestimmt. Über lineare Regressionen wurden sodann die Kalibriergeraden der nachfolgend genannten 24, nach steigender Ordnungszahl aufgeführten Elemente berechnet:

Al, P, S, Cl, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Se, Br, Cd, Sn, Sb, Ba, Tl, Pb.

Das „leichteste“ Element, für das eine Kalibrierung durchgeführt wurde, war Aluminium mit der Ordnungszahl 13. Die Elemente mit einer niedrigeren Ordnungszahl konnten auf Grund ihrer zu geringen Fluoreszenzstrahlungsenergie nicht erfaßt werden. Das „schwerste“ kalibrierte Element war Blei (Z = 82). Blei und Thallium (Z = 81) wurden nicht über ihre energiereiche K_{α} -Fluoreszenzstrahlung, sondern über die energieärmere L -Fluoreszenzstrahlung ausgewertet.

Ein Vergleich der in dieser Arbeit entwickelten Methode zur Herstellung von Standardreferenzmaterialien mit der Methode nach der VDI-Richtlinie 2267 (Blatt 11) und nach dem Entwurf VDI-Richtlinie 2267 (Blatt 12), in denen das Auftropfen von Standardlösungen auf Quarzfaserfilter mittels Pipette vorgeschlagen wird, hat gezeigt, daß sich das trockene Aerosol aus dem Aerosolgenerator wie ein natürliches Aerosol verhält und in den ersten 100–150 µm des 600–650 µm dicken Quarzfaser-Filtermaterials abgeschieden wird. Die aufpipettierten Lösungströpfchen hingegen dringen bis in die Mitte des Tiefbettfiltermaterials ein. Dies kann bei Elementen mit einer Ordnungszahl < 30 zu Überbestimmungen von bis zu 50 % führen. Bei der Kalibrierung des Röntgenfluoreszenzspektrometers für die Analyse des Elementes Brom wurden mit Kaliumbromid belegte Standardfilter verwendet. Die Röntgenstrahlung besonders unter Vakuum, das während der Analyse der leichten Elemente an die Probenkammer angelegt wird, führte zu einer Verminderung der Brombelegung. Das Vakuum hatte dabei einen verstärkenden Einfluß auf den Bromverlust. Bei Verwendung von Kaliumbromat an Stelle des Kaliumbromids konnten dagegen auch nach wiederholten Messungen keine Bromverluste mehr festgestellt werden.

Mit Hilfe verschiedener theoretischer Modelle wurden die Nachweisgrenzen des energie-dispersiven Röntgenfluoreszenzspektrometers für die Analyse von Partikeln auf Quarzfaserfiltern bestimmt. Die nach IUPAC-Definition ermittelten Werte lagen in Abhängigkeit von den Elementblindwerten der eingesetzten Filterchargen im Bereich zwischen 1,5 ng/cm² (Brom) und 755,2 ng/cm² (Aluminium).

Die erstellte Kalibrierung wurde u. a. mit dem Standardreferenzmaterial BCR CRM 128 überprüft. Zur Validierung der hergestellten Multielement-Standardmaterialien wurde eigens ein Ringversuch unter internationaler Beteiligung verschiedener Institute und Laboratorien geplant und durchgeführt. Hierbei konnte gezeigt werden, daß die in dieser Arbeit erstellte Kalibrierung zu sehr guten Ergebnissen führte, die mit den im internationalen Vergleich ermittelten Filterbelegungen bestens übereinstimmten. Weitere Vergleichsanalysen von realen und synthetischen Filterproben mit Referenzmethoden wie GF-AAS, ICP-MS oder ICP-OES haben bei den analysierten Elementen K, Ca, Ti, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Se, Sb und Pb ebenfalls sehr gute mittlere Wiederfindungsraten zwischen 90 % und 110 % ergeben. Lediglich bei den Elementen Al, V, Cd und Sn lagen die mittleren Wiederfindungsraten aufgrund zu geringer Filterbelegung oder nicht optimierter Kalibrierung bei 66 %, 117 %, 122 % und 88 %.

Die Richtigkeit des analytischen Ergebnisses hängt u. a. von dem Gesamtfehler der Analyse-methode ab, weshalb eine Quantifizierung der verschiedenen Fehlerquellen vorgenommen wurde. Die Präzision des analytischen Ergebnisses wurde aus jeweils 20 Wiederholmessungen von unterschiedlich hoch belegten Standardfiltern ermittelt. Im unteren Meßbereich lagen die Standardabweichungen mit Ausnahme des Elementes Al unterhalb von 2 %. Die Präzision nahm mit steigender Elementkonzentration auf dem Filter und mit steigender Ordnungszahl des analysierten Elementes zu, so daß bei Wiederholungsmessungen für Elemente mit einer Ordnungszahl $Z > 19$ und einer Elementbelegung über 1000 ng/cm² Standardabweichungen von unter 1 % angenommen werden können. Es zeigte sich, daß die optionale Probenrotation im X-LAB-Gerät bei homogen belegten Filterproben nicht notwendig ist. Lediglich für die Analyse „leichter“ Elemente in geringen Belegungen auf dem Filter kann die Probenrotation den Meßfehler reduzieren. Das Einlegen der Probe in den Probenhalter und das anschließende Verbringen mit dem Probenteller in das Spektrometer ergab für Elemente mit einer Ordnungszahl $Z \geq 19$ Standardabweichungen deutlich unter 2 %. Die größten Abweichungen wurden bei Messungen ein und derselben Probe auf den 18 verschiedenen Positionen des Probentellers festgestellt.

Untersuchungen zur Langzeitstabilität des Spektrometers X-LAB haben gezeigt, daß zur Ermittlung von Trends, die durch Alterung der Gerätekomponenten oder durch Defekte am Meßsystem hervorgerufen werden, möglichst Qualitätsregelkarten erstellt und diese durch Kontrollmessungen von Standardproben wöchentlich aktualisiert werden sollten.

Als obere und untere Kontroll- bzw. Eingriffsgrenzen (OEG bzw. UEG) wird die dreifache Standardabweichung ($3s$) der Meßwerte definiert. Als Kontrollelemente werden solche mit einer Ordnungszahl $Z < 19$ empfohlen, da diese einen möglichen Trend frühzeitig anzeigen.

Mit Hilfe des hier vorgestellten Analysensystems konnten verschiedene Fragestellungen bearbeitet werden, die eine hohe Anzahl von Proben und somit einen hohen Analysenaufwand bedingen. Es wurden unterschiedliche Immissionsprobenahmesysteme getestet und anhand der am Röntgenfluoreszenzspektrometer X-LAB analysierten Aerosolproben beurteilt.

Zuerst erfolgte die Probenahme mit High-Volume-Samplern (HVS) unter Verwendung eines Kaskaden-Impaktors der Fa. SIERRA INSTRUMENTS (USA), wobei der Impaktor zur gezielten Vorabscheidung von Partikeln bestimmter Größe eingesetzt worden ist. Für die richtige Interpretation der Analyseergebnisse, die von Teilproben eines HVS-Filters ermittelt werden, ist es von großer Bedeutung, ob die Elementbelegung über die gesamte Filterfläche des HVS-Filters homogen ist.

Die Untersuchungen ergaben, daß unter Verwendung der Impaktorstufe 4 und den hier geltenden Versuchsparametern, bei denen nur Partikel aus dem Feinstaubbereich mit einem $D_{ae,50} < 1,3 \mu\text{m}$ den Impaktor passieren können, die homogensten Elementverteilungen erzielt werden. Die Abweichungen der Elementbelegungen über alle Teilfilter lagen mit Ausnahme von Kupfer unterhalb von 3 %. Eine ähnlich homogene Belegung der HVS-Filter fand sich nur bei den Filterproben, bei denen kein Impaktor vorgeschaltet war. Hier lagen die Abweichungen der Elementbelegungen über die gesamte Filterfläche unterhalb von 6 %. Für die Bestimmung der Elementkonzentrationen im Gesamtstaub aus Teilproben eines HVS-Filters sollte folglich keine Impaktorstufe verwendet werden. Sind nur die Elementkonzentrationen in der toxisch besonders relevanten Feinstaubfraktion von Interesse, empfiehlt es sich bei der Probenahme mit HVS-Geräten die Impaktorstufe 4 des SIERRA-Impaktors zu verwenden.

Die Multielementanalyse eines Probenkollektivs aus 50 Tagesproben, die während einer Immissionsmeßkampagne mit einem Low-Volume-Sampler (LVS) in Nebra (Sachsen-Anhalt) gesammelt wurden, zeigte weiterhin, daß die energiedispersive Röntgenfluoreszenzspektrometrie die Methode der Wahl ist, wenn eine große Anzahl von Proben auf eine Vielzahl von Elementen quantitativ analysiert werden muß. Durch die schnelle, zerstörungsfreie Analyse des gesamten Probenkollektivs und die Gegenüberstellung der Konzentrationsverläufe verschiedener Elemente ist es möglich, mit relativ kleinem Aufwand Quellenanalysen durchzuführen.

Für jede Filterprobe dieser Meßkampagne wurden die aufsummierten Elementgehalte den gravimetrisch bestimmten Gesamtstaubkonzentrationen gegenübergestellt, woraus sich ein mittlerer Korrelationskoeffizient von $r = 0,9216$ ergab. Es besteht also ein hochsignifikanter Zusammenhang zwischen den gravimetrisch bestimmten Gesamtstaubkonzentrationen und den am Röntgenfluoreszenzspektrometer ermittelten Elementkonzentrationen. Mit Hilfe der energiedispersiven Röntgenfluoreszenzanalyse (EDRFA) lassen sich aufgrund der einfachen Probenvorbereitung und der guten Automatisierbarkeit der Methode innerhalb kürzester Zeit eine Vielzahl von quantitativen Multielementanalysen kostengünstig und mit relativ geringem Personalaufwand durchführen. Die zerstörungsfreie Multielementanalyse ermöglicht zudem die weitere Untersuchung der Proben mit anderen Methoden sowie die Archivierbarkeit der auf einem Filterband befindlichen Proben.

Vergleichende Probenahmen zur Bestimmung des Gesamtstaubgehaltes zwischen einem Low-Volume-Sampler und einem automatisch arbeitenden Beta-Staubmeter haben gezeigt, daß zwischen der gravimetrischen und der radiometrischen Methode zur Bestimmung des Gesamtstaubgehaltes ein signifikanter Zusammenhang besteht, was durch den Korrelationskoeffizienten von $r = 0,8035$ für 15 Wertepaare bestätigt wurde (Grenzwert für $r(0,99; f = 15-2) = 0,64$). Die Summierung der Staubgehalte ergab für die Werte des Beta-Staubmeters im Mittel eine Überbestimmung von 23,3 % gegenüber den Werten der LVS-Probenahme.

Für die quantitative Bestimmung toxischer Spurenelementkonzentrationen im Emissionsbereich, für die in der 17. BImSchV und der TA-Luft Emissionsgrenzwerte festgelegt sind, wurde im Rahmen dieser Arbeit in enger Zusammenarbeit mit dem industriellen Projektpartner SPECTRO A. I. aus Kleve und mit finanzieller Unterstützung des Bundesministeriums für Bildung und Forschung (BMBF) ein automatisch arbeitendes Probenahme- und Analysensystem entwickelt. Dieses System mit der Bezeichnung X-DUST ermöglicht die kontinuierliche isokinetische „Online“-Probenahme aus rauchgasführenden Kanälen von emittierenden Anlagen auf der Grundlage der VDI-Richtlinie 2066. Die partikelgebundenen Spurenelemente werden auf dem neuartigen Quarzfaser-Filterband MK 370 abgeschieden, das zusammen mit der Fa. MUNKTELL FILTER AB (Schweden) entwickelt wurde und das den Anforderungen an ein mechanisch stabiles, temperaturbeständiges Filtermaterial mit niedrigen Blindwerten und einer hohen Resistenz gegenüber aggressiven Stoffen entspricht.

Alle Komponenten des Probenahmesystems, die mit dem Probengas in Kontakt kommen, sind einschließlich der Filterhalterbacken aus Titan gefertigt und können beheizt werden, um Kondensation zu verhindern. Die Nulldrucksonde für die isokinetische Probenahme wurde von der Fa. PAUL GOTHE STIFTUNG in Bochum hergestellt. Das speziell an die Erfordernisse einer kombinierten Probenahme- und Analyseneinheit angepaßte Probenahmegerät stammt von der Fa. VEREWA (Hamburg). Das Analysensystem wurde in das Probenahmegerät integriert, um ein möglichst kompaktes Gerätesystem zu realisieren.

Nach beendeter Staubprobenahme erfolgt automatisch der Transport der beaufschlagten Filterfläche (7,07 cm²) ins Analysensystem, das im wesentlichen aus einem energiedispersiven Röntgenfluoreszenzspektrometer mit einer Rhodium-Endfensterröhre und einem neuartigen Halbleiterdetektor besteht. Der Detektor ist eine sogenannte Si-Driftkammer und wird thermoelektrisch über zwei Peltierelemente auf -10 °C gekühlt. Das Röntgenfluoreszenzspektrometer wurde für die quantitative Multielementanalyse der Elemente K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Se, Cd, Sn und Pb kalibriert und ermöglicht u. a. die Überwachung emittierender Anlagen hinsichtlich der vorgeschriebenen Emissionsgrenzwerte, wobei eine halbstündige Probenahme ausreichend ist. Für die Elemente Sb und Tl konnten noch keine zufriedenstellenden Kalibrierfunktionen ermittelt werden, welche aber durch Einsatz angepaßter Kalibrierstandards erstellbar sind.

Die Kalibrierung des X-DUST ermöglicht die Konzentrationsbestimmung für alle Elemente, die in der 17. BImSchV aufgeführt sind, mit Ausnahme von Hg, das nur zu einem sehr geringen Prozentsatz auf dem Filtermaterial abgeschieden wird. Die Nachweisgrenzen des X-DUST liegen im Bereich von 0,5–41 ng/cm², was bei der Filterfläche von 7,07 cm² und einem angenommenen Probenahmenvolumen von 1 m³ je nach Element Nachweisgrenzen zwischen 0,004 und 0,3 µg/m³ entspricht.

Der erfolgreiche Einsatz des prototypischen Probenahme- und Analysensystems an Rauchgaskanälen der NORDDEUTSCHEN AFFINERIE (NA) und der MÜLLVERBRENNUNGSANLAGE Stapelfeld (MVA) im Mai und Oktober 1998 haben gezeigt, daß mit dem X-DUST die Konzentrationsverläufe für eine Vielzahl von Elementen bestimmt und dokumentiert werden können. Die Elementkonzentrationen im Prozeßgas der NA lagen für die Elemente Cu und Pb teilweise weit über den Kalibrierbereichen, im Reingas der MVA hingegen waren viele Elementkonzentrationen unterhalb der Bestimmungsgrenzen des X-DUST. An der MVA wurden im November 1995 Aktivkoksfilter als zusätzliche Abgasreinigungsstufen in Betrieb genommen, wodurch weitere Verminderungen der Elementkonzentrationen um Faktoren zwischen 3 und 15 erzielt worden sind.

Vergleichsanalysen des gesamten Probenkollektivs im Labor mit dem Röntgenfluoreszenzspektrometer X-LAB sowie die Analyse von Stichproben mit Hilfe der AAS haben die zeitlichen Verläufe der Elementkonzentrationen, die das X-DUST ausgegeben hat, bestätigt. Für die Elemente Ni, Cu, Cd, Sn und Pb konnten sehr zufriedenstellende Übereinstimmungen der Analyseergebnisse festgestellt werden. Für die Elemente Mn und As hingegen lagen die am X-DUST bestimmten Konzentrationen im Mittel um den Faktor 3 bis 4,5 höher als am X-LAB, was nicht zuletzt auf die geringen Elementbelegungen für diese Elemente zurückzuführen war. Für das leichte Element Ca ergaben sich am X-DUST methodenbedingte Minderbefunde. Beide beprobten Anlagen haben zu keinem Zeitpunkt der Meßkampagnen die Grenzwerte der 17. BImSchV bzw. der TA-Luft überschritten. Für die Überwachung von Müllverbrennungsanlagen hinsichtlich der Einhaltung der Emissionsgrenzwerte könnte künftig die kontinuierliche Bestimmung der Pb-Konzentration vorgenommen werden, da dieses Element den Großteil der Metall- und Metalloidemissionen ausmacht und somit als sog. Kontrollelement fungieren kann.

Nach der erfolgreichen Testung des X-DUST an emittierenden Anlagen sollte in vergleichenden Untersuchungen unter definierten Bedingungen überprüft werden, wie gut die Ergebnisse der hier durchgeführten Probenahmetechnik mit denen der VDI-Richtlinie 2066 übereinstimmen. Weiterhin wäre von Interesse, ob bei der Entnahme eines Teilvolumenstromes aus dem Abgas tatsächlich kein signifikanter Anteil der Partikel an den Rohrwandungen der Probenahmesonde verlorengeht. Die ersten Versuche, bei denen jeweils die Sondenrohre und Krümmer nach den Meßkampagnen eluiert wurden, zeigten, daß wegen der geringen Partikelgrößen im untersuchten Staub keine hohen Partikelverluste auftraten. Zur Bearbeitung dieser Fragen wird jedoch ein definierter Partikelstrom mit bekannten Elementkonzentrationen benötigt, wie er beispielsweise im Windkanal der HESSISCHEN LANDESANSTALT für UMWELT erzeugt werden kann. Weiterhin wäre zur besseren Einschätzung von möglichen Einflüssen und den Zusammenhängen zwischen Emission und Immission von Schadstoffen ist deren kontinuierliche Erfassung auch im Immissionsbereich von großer Bedeutung. Hier bieten sich zusätzliche Untersuchungen im Immissionsbereich unter Einsatz des automatischen Probenahme- und Analysensystems X-DUST vorteilhaft an.

Summary

The control of air pollution is of increasing importance and is an ongoing challenge for the respective sampling and analytical methods. Non-destructive analytical methods for the determination of particle-bound pollutants from emissions and immissions precipitated on filter materials are of particular interest as they allow the subsequent use of different methods for the analysis of the sample.

This work shows the usefulness of the energy-dispersive x-ray fluorescence spectroscopy as a non-destructive method for the multielement analysis of aerosol samples. For calibration standard filters were prepared by precipitation of polydispers aerosols on quartz fiber filters. The calibration was done for Al, P, S, Cl, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Se, Br, Cd, Sn, Sb, Ba, Tl, Pb. The particle size distribution of the aerosol depended on the concentration of the salt solution and correlated to the size distribution of particles from industrial exhausts and the fine mode ($PM < 2.5 \mu m$) of urban aerosols. Thus it was possible to prepare up to 40 standard filters with a diameter of 32 mm and almost identical element concentrations with a variation of less than 3%. The obtained calibrations were checked against standard reference material BCR CRM 128. An international laboratory comparison was carried out to validate the data for the obtained multielement standard materials. As the accuracy of the result depends on the analytical method used, several sources of error were quantified.

Using our new analytical system several problems in the area of sampling immissions and emissions were studied. Sampling systems like High Volume Sampler (HVS) with cascade impactors (SIERRA INSTRUMENTS, USA), Low Volume Sampler (LVS), and the automatic sampling system Beta-Staubmeter were tested with regards to their usefulness for sampling with subsequent element analysis.

An automated system for continuously sampling and analysis of toxic trace elements in stack gas emissions from industrial furnaces named X-DUST was developed. For emission limits of these elements see 17. BImSchV and TA Luft. This was achieved in close co-operation with SPECTRO A. I. as industrial partner and funding from the Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF). This new system allows the continuous, isokinetic on-line sampling of stack gas emissions following the VDI-Richtlinie 2066. The particle-bound trace elements were precipitated on the new quartz fibre filter tape MK 370 which was developed together with MUNKTELL FILTER AB, Sweden. The quartz fibre filter tape is mechanically stable, has low blanks, and a high resistance against aggressive compounds.

Successful trials of the prototype at the NORDDEUTSCHE AFFINERIE (NA) and the Müllverbrennungsanlage Stapelfeld (MVA) in May and October 1998 have shown that using X-DUST it was possible to determine and document the concentrations a multitude of elements. For better understanding of a possible correlation between emission and immission of toxic elements a continuous collection of immission data is also important. Therefore X-DUST should be used in further studies in the area of immission sampling.