

Nr.32

Messung und Analyse von
Kohlenwasserstoff-Profilen
im Rhein-Ruhrgebiet

Herausgeber:

Landesanstalt für Immissionsschutz
des Landes Nordrhein-Westfalen
Wallneyer Str. 6
D-4300 Essen 1

1983

ISSN 0720-8499

Messung und Analyse von Kohlenwasserstoff-Profilen
im Rhein-Ruhrgebiet

Dr. R. Beier und Dr. P. Bruckmann

MESSUNG UND ANALYSE VON KOHLENWASSERSTOFF-PROFILEN
IM RHEIN-RUHR-GEBIET

Dr. R. Beier und Dr. P. Bruckmann

Z U S A M M E N F A S S U N G

An 41 Stationen in den Belastungsgebieten an Rhein und Ruhr wurden Jahresmittelwerte für 16 Kohlenwasserstoffe gemessen, darunter lufthygienisch so relevante Stoffe wie Ethen und Benzol. In der vorliegenden Arbeit werden die Ergebnisse diskutiert und mit Messungen aus anders strukturierten Gebieten (Reinluft, KFZ-Verkehr, Nahbereich industrieller Anlagen) verglichen. Der Zusammenhang zwischen den Konzentrationen an Gesamt-C und einzelnen Komponenten wird untersucht. An einer Reihe von gering bis mäßig belasteten Stationen liegen hohe Korrelationen vor, während an Stationen mit hoher Belastung die Korrelationen deutlich geringer sind, und abweichende Anteile der Einzelkomponenten am Gesamt-C-Wert erhalten werden. Darüber hinaus wurden die mittleren KW-Profile der 41 Stationen mittels clusteranalytischer Methoden, welche in Abschnitt 3 beschrieben werden, auf Ähnlichkeiten untersucht. Dabei zeigt sich, daß 44 Prozent aller Stationen ein gemeinsames Profil zugeordnet werden kann, welches im wesentlichen auf den Einfluß des KFZ-Verkehrs zurückzuführen ist. Daneben sind 14 weitere Klassen zu erkennen. Die zugehörigen KW-Profile werden unter ursachenanalytischen Gesichtspunkten diskutiert.

S u m m a r y

Annual averages were measured for 16 hydrocarbons at 41 stations within the polluted Rhein-Ruhr area, including ethene and benzene, which can strongly impact air quality. In this work, the results are discussed and compared to measurements having been performed in regions with different structures (remote, traffic influenced, in the surroundings of industrial facilities). The correlations between total hydrocarbon concentrations and those of single hydrocarbons are examined. Stations with low to moderate pollution loads generally show good correlations. On the other hand, the correlation coefficients become rather low at strongly impacted stations, and the portions of single hydrocarbons of the sum of total hydrocarbons differ considerably from station to station. In addition, the mean HC-profiles of the 41 stations have been compared by methods of cluster-analysis, described in section 3. This way, it is found that 44 percent of these stations can be assigned a common profile, determined primarily by automobile exhaust. Besides, 14 more classes become distinguishable. The related HC-profiles are discussed with respect to underlying pollution sources.

1. E i n l e i t u n g

Die Bundesländer führen im Rahmen ihrer staatlichen Aufgaben [1] Erhebungen über Art und Umfang der Luftverunreinigung, sowie Untersuchungen über die für deren Entstehung und Ausbreitung bedeutsamen Umstände durch. Während die Konzentrationen der "klassischen" anorganischen Luftverunreinigungen sowohl in ihren räumlichen [2] als auch in ihren zeitlichen [3] Verteilungen in den Belastungsgebieten verhältnismäßig gut charakterisiert sind, ist der Informationsstand über die Konzentrationen organischer Luftverunreinigungen deutlich geringer. Zwar existieren flächendeckende Bestimmungen des Gesamt-C-Gehaltes nach dem Silicagelverfahren [2] und auch zeitlich kontinuierliche Gesamt-C-Messungen mit Flammenionisationsdetektoren [4]. Neben meßtechnisch bedingten Grenzen, die z.B. dazu führen, daß beide Verfahren auch am gleichen Meßobjekt oft unterschiedliche Ergebnisse liefern [5], haftet Gesamt-C-Messungen der Mangel an, daß sie in der Regel nicht in Bezug auf Wirkungen eindeutig interpretiert werden können. Dies liegt daran, daß die für eine bestimmte Fragestellung relevanten organischen Komponenten zusammen mit anderen, organischen Stoffen in einem komplexen Gemisch vorliegen. Beispiele sind die phytotoxischen Eigenschaften des Ethens, die um Größenordnungen ausgeprägter sind als die der gleichzeitig vorkommenden anderen Kohlenwasserstoffe [6], oder aber das cancerogene Potential des Benzols, das diesem Stoff lufthygienisch eine ganz andere Bedeutung verleiht als etwa den alkylierten Aromaten. Die Gesamt-C-Messung macht diese Unterschiede aber nicht, so daß Luftproben gleichen Gesamt-C-Gehaltes völlig unterschiedliche Anteile an relevanten Stoffen aufweisen können und demgemäß lufthygienisch auch ganz unterschiedlich zu bewerten sind.

Aus diesem Dilemma können nur Mehrkomponentenmessungen heraus helfen, die die für eine bestimmte Fragestellung wichtigen Komponenten gleichzeitig erfassen. Derartige Untersuchungen sind lokal, z.B. bezogen auf stationäre Emissionsquellen [7] oder kfz-orientiert [8], auch durchaus durchgeführt worden. Es fehlt bislang aber eine umfassende Charakterisierung der Luftqualität bezüglich organischer Verbindungen in Ballungsgebieten.

In der Zeit von April 1981 bis März 1982 wurde von der Landesanstalt für Immissionsschutz in den Belastungsgebieten des Landes Nordrhein-Westfalen eine orientierende Erhebung über die Immissionsbelastung durch 16 Kohlenwasserstoffe durchgeführt.

Die vorliegende Arbeit enthält neben der Beschreibung der Meßmethodik, der Analyse der Immissionsbelastungen durch einzelne der gemessenen Kohlenwasserstoffe sowie ihrer Korrelation zum Gesamt-C-Wert eine erste multivariate Analyse der mittleren Kohlenwasserstoff (KW)-Profile mit Hilfe clusteranalytischer Methoden zum Zweck der Ursachenanalyse.

Mehrkomponentenanalysen enthalten nämlich neben der wichtigen Information über die Konzentrationshöhe der Einzelkomponenten noch weitere Strukturinformationen in Gestalt der Profile ihrer Einzelstoffe, d. h. der charakteristischen Verhältnisse der Komponenten untereinander. Werden Kohlenwasserstoffgemische von verschiedenen Quellen emittiert, so variieren die Verhältnisse der Einzelstoffe oftmals stark von Quelle zu Quelle, sind aber bezogen auf die Emission eines Quellentyps ziemlich konstant. So läßt sich das Emissionsmuster z. B. von Kraftfahrzeugen deutlich vom Emissionsmuster einer Raffinerie oder von Ölheizungen unterscheiden [9]. Während der Transmissionsphase sind die Emissionsmuster in der Atmosphäre durch chemische Reaktionen der emittierten Stoffe und durch Überlagerungen mit anderen Emittenten Veränderungen unterworfen, so daß die beobachteten Immissionsprofile in der Regel nicht direkt den Emissionsprofilen entsprechen. Immerhin erscheint aber der Versuch aussichtsreich, die in den Immissionsprofilen enthaltene Strukturinformation zu nutzen, um vom Immissionsort auf die verursachenden Hauptemittenten zu schließen, und bei einer Überlagerung mehrerer Quellen ggf. deren anteilige Immissionen festzustellen. Dieses Verfahren kann damit als wichtiges Instrument der Ursachenanalyse dienen. Voraussetzung ist natürlich, daß zunächst einmal charakteristische, klar voneinander unterscheidbare Immissionsprofile aufgefunden und beschrieben werden können. In der Literatur lassen sich einige Beispiele finden [9, 10], wo durch Inspektion ermittelte Profile zur Quellenidentifizierung herangezogen wurden. Dieses Verfahren hat jedoch den Nachteil der Subjektivität.

In Abschnitt 3 werden Algorithmen erläutert, die zum automatischen Vergleich und zur Klassierung (Clusteranalyse) der mittleren KW-Profile entwickelt und eingesetzt wurden. Die Ergebnisse werden in Abschnitt 4 vorgestellt und diskutiert.

2. M e ß m e t h o d i k

Die Messungen wurden gaschromatographisch (Gerät: Packard 407) durchgeführt, die Trennung erfolgte auf einer 50 m langen, mit Al_2O_3 beschichteten Kapillarsäule. Zur Analyse wurden 8 ml Probenluft aus einer gasdichten Spritze über ein Gasprobeneinlaßteil auf eine mit Al_2O_3 gefüllte Vorsäule gegeben, die mit flüssigem O_2 gekühlt wurde. Nach Umschalten des Gasprobeneinlaßteils wurden die organischen Komponenten bei 130°C thermisch desorbiert und auf die Kapillarsäule gespült. Nach einer isothermen Vorperiode des Säulenofens (50°C , 3 min) wurde mit einem Temperaturprogramm gearbeitet (von 50°C bis 240°C , Aufheizrate $25^\circ\text{C}/\text{min}$) und die getrennten Substanzen mit einem FID erfaßt. Ein typisches Chromatogramm von 8 ml Außenluft zeigt Abb. 1. Die quantitative Auswertung erfolgte über die Bestimmung der Peakflächen mit einem Integrator (SP 4100 der Fa. Spectra Physics).

Weitere Details des Verfahrens sowie die Kalibrierung wurden eingehend in der Literatur beschrieben [11, 12], so daß hier nur noch auf einige Besonderheiten hingewiesen werden soll. Das Meßverfahren wurde speziell für die Analyse von Kohlenwasserstoffen ausgelegt. Polare organische Verbindungen (z. B. Alkohole, Aldehyde, etc.) werden von der mit Al_2O_3 gefüllten Vor- und Trennsäule absorbiert und nicht oder nur unvollständig erfaßt. Halogenverbindungen (z. B. Vinylchlorid) können zwar gemessen werden, jedoch führt steigende Substitution der Wasserstoffatome durch Halogenreste zu einem stark verminderten Signal im FID.

Die Chromatogramme wurden auf 16 Kohlenwasserstoffe quantitativ ausgewertet (vgl. Tabelle 1 und Abb. 1).

Zusätzlich wurde durch Summierung aller Signale des Chromatogramms ein methanfreier "Gesamt-C-Wert" (" $\sum\text{KW}$ ") gebildet. Dieser Wert ist

kleiner oder höchstens gleich dem Gesamt-C-Wert eines parallel dazu messenden methanfreien Flammenionisationsdetektors ohne Trennsäule, da, wie erwähnt, polare Stoffe durch das Analysenverfahren nicht erfaßt werden. Jedoch weisen auch Gesamt-C-Analysatoren für diese Stoffe deutlich verminderte Empfindlichkeiten auf [13]. Aufgrund von Parallelmessungen mit dem Gesamt-C-Analysator U 100 kann abgeschätzt werden, daß der oben definierte " $\sum KW$ "-Wert im Mittel ca. 80 % des Gesamt-C-Wertes eines methanfreien FID entspricht.

Die Probenahme wurde nach der Richtlinie VDI 3482 mit Gassammelrohren durchgeführt (Momentprobenahme). Es wurde zweimal pro halbe Stunde gemessen. Diese Meßhäufigkeit reicht bei nicht zu inhomogener zeitlicher Belastung bereits aus, um einen guten Schätzer für den Mittelwert aus Kollektiven zu erhalten, die aus "echten" Halbstundenwerten bestehen [14].

Gemessen wurde von April 1981 bis März 1982 an den Standorten aller TEMES-Stationen der Landesanstalt für Immissionsschutz mit Ausnahme der Station LISE (zusammen 41 Meßpunkte). Die TEMES-Stationen sind im 8-km-Raster im Belastungsgebiet Rhein-Ruhr weitgehend gleichmäßig verteilt (vgl. Abb. 2), die genauen Ortslagen können der Literatur entnommen werden [3].

Die Luftproben wurden an den Wochentagen Montag bis Freitag in der Zeit von 8.00-16.00 Uhr genommen. Es wurden pro Station und Jahr 10 "Halbstundenwerte" (vgl. oben) ermittelt, die Probenahmezeiten wurden durch Zufallsauswahl aus einer Gleichverteilung festgelegt.

3. Clusteranalytische Auswertemethodik

Mit der gleichzeitigen Messung mehrerer Schadstoffkomponenten, im vorliegenden Fall von Kohlenwasserstoff-Profilen, stehen nicht nur Informationen über die Häufigkeitsverteilung der einzelnen Komponenten an den Meßorten, sondern zusätzlich auch über die Relationen zwischen den gleichzeitig gemessenen Komponenten, also über die Form des Profils zur Verfügung. Um auch diese Informationen auszuwerten, bedarf es weitergehender Methoden als bei der Analyse von Messungen eines einzelnen Schadstoffes. Diese "multivariaten"

Methoden setzen insbesondere ein Maß für die Ähnlichkeit verschiedener Profile voraus. Ein derartiges Maß soll es ermöglichen, signifikante Unterschiede zwischen Profilen zu erkennen. Ziel dieser Auswertungen ist es, charakteristische Profile für Klassen ähnlicher Profile anzugeben, wobei sich diese Klassenprofile ihrerseits signifikant voneinander unterscheiden.

3.1 Methodische Vorbemerkungen

Auszuwerten sei eine Stichprobe multivariater Daten, im vorliegenden Fall N unabhängig voneinander gemessene Kohlenwasserstoff-Profile von jeweils M gleichzeitig erfaßten Komponenten. Jedes einzelne dieser Profile kann als ein Vektor

$$\underline{X}_i = (X_{i1}, X_{i2}, \dots, X_{iM}) \text{ für } i = 1, 2, \dots, N \quad (1)$$

der Dimension M angesehen werden.

Zu untersuchen sei die Frage, ob in dieser Menge von N Elementen Strukturen zu erkennen sind, d. h. Teilmengen, welche deutlich voneinander separiert sind. Dies kann dadurch geschehen, daß je zwei Elementen \underline{X}_i und \underline{X}_j dieser Menge ein Abstand $d(i,j)$ zugeordnet wird. Aufgabe dieses "Distanzmaßes" ist es, die Abweichungen der betrachteten Profile voneinander und damit komplementär auch ihre Ähnlichkeiten zu beschreiben. Die Auswahl eines für die betrachteten Daten geeigneten Distanzmaßes ist von großer Bedeutung für die durchzuführende Analyse.

Sind beispielsweise die Meßfehler Gauss-verteilt und unabhängig von der Höhe des Meßwertes, so kann das Euklidische Distanzmaß $d_E(i,j)$ Anwendung finden.

$$d_E(i,j) = \sqrt{\sum_{k=1}^M (X_{ik} - X_{jk})^2}$$

Dieses Distanzmaß ist zwar metrisch, jedoch nicht skaleninvariant.

Die wünschenswerte Eigenschaft der Skaleninvarianz, d.h. Unabhängigkeit von der absoluten Höhe der Meßwerte, kann dem Euklidischen Distanzmaß auf verschiedene Weise verliehen werden. Hier wird dies erreicht, indem anstelle der gemessenen absoluten Konzentrationen X_{ij} relative Konzentrationswerte $X_{ij} = X_{ij}/\bar{X}_i$ Verwendung finden. \bar{X}_i bezeichnet die mittlere Konzentration der Komponenten des Profils i gemäß

$$\bar{X}_i = \frac{1}{M} \sum_{k=1}^M X_{ik} \quad (3)$$

Hat man ein geeignetes Distanzmaß gefunden, so ist man in der Lage, die $\binom{N}{2} = N \cdot (N-1)/2$ Abstände der N -Elemente untereinander zu be-

rechnen. Diese Distanzen enthalten offensichtlich die interessierende Strukturinformation. Es fragt sich nun, wie man diese Information aus der u. U. recht großen Menge von Distanzen, bei 100 Elementen sind es immerhin 4950 Distanzen, extrahieren kann. Diese Aufgabe fällt in das Gebiet der Clusteranalyse. In der Literatur [21-24] werden zahlreiche Verfahren diskutiert, welche unterschiedliche Eignung für die praktische Anwendung aufweisen.

Im folgenden werden für die vorliegende Auswertung entwickelte Algorithmen beschrieben, die eine gemeinsame einfache Konzeption aufweisen und auch bei umfangreichen Datenmengen überschaubar und damit leicht interpretierbar bleiben.

3.2. Algorithmen

Im M -dimensionalen Raum, der von den gleichzeitig erfaßten Komponenten aufgespannt wird, entspricht die Objektmenge einer Punktwolke. Eine anschauliche Möglichkeit, Strukturinformationen über eine derartige Punktwolke zu gewinnen, besteht darin, die Punkte dieser Wolke, welche im vorliegenden Fall die gemessenen Profile repräsentieren, durch einen "kürzesten Weg", einen sog. "Pfad" miteinander zu "verbinden" und die Längen der "Wegstücke" zwischen den Punkten zu analysieren. Diese graphentheoretische Betrachtungsweise läßt sich durch ein einfaches Beispiel verdeutlichen:

Man stelle sich vor, die Elemente der zu untersuchenden Objektmenge seien Haltepunkte, welche von einer Buslinie bedient werden sollen. Aus Kostengründen fährt der Bus vom Startpunkt aus den "kürzesten Weg", der diese Haltepunkte miteinander verbindet. Wie kann nun ein Fahrgast ohne Orts- und Sprachkenntnisse in einer regnerischen Nacht herausfinden, ob es sich um einen innerstädtischen Bus handelt, oder ob der Bus verschiedene Ortschaften verbindet? Naheliegenderweise wird er so vorgehen, daß er die Fahrstrecken zwischen den Haltepunkten vergleicht. Folgt nach einigen kürzeren Fahrstrecken mindestens eine auffallend lange, so wird er vermuten, daß der Bus die Stadt verlassen hat. Sobald sich die Abstände der Haltestellen wieder deutlich verringern, wird er annehmen, der Bus habe eine andere Stadt erreicht. Diese Überlegungen wurden in einem pfadsuchenden Algorithmus (PFAD) in folgender Weise umgesetzt:

Zunächst werden die Elemente der zu untersuchenden Objektmenge in willkürlicher Reihenfolge durchnumeriert. Startpunkt für den "Pfadfinder" wird das Element mit der Kennziffer 1.

Mittels des gewählten Distanzmaßes wird nun der nächstgelegene Punkt der Wolke, also das ähnlichste Element, ermittelt und mit dem Startpunkt durch ein "Wegstück verbunden". Dorthin begibt sich der Pfadfinder, nachdem er die Kennziffer seines neuen Standortes und die zu überbrückende Distanz registriert hat. Nun wiederholt sich der Vorgang in folgender Weise:

Unter den noch nicht verbundenen Elementen wird wiederum dasjenige gesucht, welches dem Standort des Pfadfinders am nächsten gelegen ist, um es mit diesem durch ein weiteres Wegstück zu verbinden. Nach Registrierung der Kennziffer dieses Elementes und der zu überbrückenden Distanz begibt sich der Pfadfinder zu dem so ermittelten nächsten Pfadpunkt. Diese Vorgehensweise wird fortgesetzt, bis alle N Elemente der Objektmenge verbunden sind. Der so ermittelte Weg ist offenbar der kürzeste, der ausgehend von dem gewählten Startelement alle Elemente einer Objektmenge miteinander verbindet. Offensichtlich sind in einer Objektmenge, welche aus N Elementen besteht, N verschiedene Pfade denkbar, da jedes Element als Startelement in Frage kommt. Ein derartiger Pfad kann durch die Reihenfolge, in welcher er die Elemente der Objektmenge verbind-

det, und durch die $(N-1)$ zugehörigen Wegstücke (Distanzen) charakterisiert werden. Anhand dieser Merkmale eines Pfades kann auf einfache Weise untersucht werden, ob die betrachtete Objektmenge disjunkte (elementfremde) Teilmengen enthält, welche deutlich voneinander separiert sind. Dies ist der Fall, wenn der Abstand zwischen diesen Teilmengen wesentlich größer ist als die Abstände benachbarter Elemente innerhalb derselben. In der Clusteranalyse werden derartige Teilmengen "Klassen" oder "Gruppen" /21-24/ genannt.

Da ein Pfad alle Elemente der betrachteten Objektmenge miteinander verbindet, wird er, falls diese aus K deutlich separierten Teilmengen (Klassen) besteht, demnach mindestens $(K-1)$ Wegstücke enthalten, deren Längen wesentlich größer sind als die der übrigen Wegstücke. Dies gilt unabhängig vom Startpunkt des betrachteten Pfades. Weist eine Objektmenge eine Klassenstruktur auf, so wird diese sich in allen N möglichen Pfaden abbilden. Dies ist wichtig für die Absicherung von Klassierungen, die durch Pfadanalyse gewonnen werden; denn der einzelne Pfad kann methodenbedingte Zufälligkeiten aufweisen. Welcher Art diese sein können, wird am Beispiel der Buslinie deutlich. Allein aus der Abfolge der Fahrstrecken zwischen den Haltepunkten kann der Fahrgast nämlich nicht entscheiden, ob der Bus nun eine andere Stadt ansteuert oder nur aus dem Kern der Stadt in weniger dicht besiedelte Randgebiete fährt und von dort ohne längeren Aufenthalt wieder in dieselbe Stadt zurückkehrt.

Durch Vergleich von Pfaden mit verschiedenen Startpunkten durch dieselbe Objektmenge kann man die methodenbedingten Unsicherheiten allerdings reduzieren.

Vollständig lassen sich die methodenbedingten Unsicherheiten bei der Pfadanalyse allerdings nur durch Vergleich sämtlicher möglichen Pfade durch die Objektmenge eliminieren. Aus graphentheoretischer Sicht ist dies jedoch nicht die effektivste Vorgehensweise. Ein Minimalbaum-Algorithmus [21, 22] wäre beispielsweise vorzuziehen. Der wesentliche Vorzug eines solchen Algorithmus besteht darin, daß er jedes Element der Objektmenge mit seinem "nächsten Nachbarn", d. h. dem ähnlichsten Element durch ein Wegstück verbindet. Deutlich separierte Teilmengen (Klassen) werden

durch die kürzesten möglichen Wegstücke verbunden. Da jeder Objektmenge genau ein Minimalbaum zugeordnet werden kann (bei vorgegebenem Distanzmaß), treten keine methodenbedingten Zufälligkeiten auf. Aufgrund dieser Eigenschaften wird es möglich, bei der Klassierung ein naheliegendes Kriterium zu erfüllen, nämlich daß die ausgewiesenen Klassen zu jedem Element auch den nächsten Nachbarn enthalten, sofern sie aus mehr als einem Element bestehen.

Um dies zu erreichen, wurde, ausgehend vom Algorithmus PFAD, durch eine naheliegende Erweiterung der Algorithmus SURVEY entwickelt. Während im Algorithmus PFAD der Pfadfinder nur nach vorn blickt auf den Teil der Objektmenge, der noch nicht durchlaufen ist, blickt er in SURVEY auch zurück auf den bereits durchlaufenen Teil. So kann er prüfen, ob der jeweilige nächste Pfadpunkt zugleich der nächste Nachbar seines Standortes ist. Ist dies nicht der Fall, so findet er diesen im bereits durchlaufenen Teil des Pfades. Kennziffer und Distanz des nächsten Nachbarn werden in diesem Fall neben den Daten des nächsten Pfadpunktes angegeben.

Mit dieser Erweiterung erweist sich der Algorithmus SURVEY als ein Algorithmus, der durch seine Verknüpfung mit der Suche nach einem kürzesten Weg ein hohes Maß an Anschaulichkeit aufweist und hinsichtlich seiner Klassierungseigenschaften einem Minimalbaum-Algorithmus mindestens ebenbürtig ist.

Damit ist ein erster wesentlicher Schritt der Clusteranalyse getan, die Strukturinformation einer Menge multivariater Daten, hier Kohlenwasserstoff-Profile, zugänglich zu machen.

In welcher Weise kann man nun ausgehend von diesen Informationen herausfinden, aus wie vielen deutlich separierten Teilmengen (Klassen) die Objektmenge besteht? Hat man dies nämlich geklärt, so kann man leicht angeben, welche Elemente zu welcher Klasse gehören und wie die charakteristischen Klassenprofile ausschauen. In der graphentheoretischen Betrachtungsweise hat man also zu entscheiden, wie viele der größten Distanzen des ermittelten Pfades sich von den Distanzen zu dem jeweils nächsten Nachbarn wesentlich unterscheiden. Was heißt nun "wesentlich unterscheiden"?

Man könnte beispielsweise fordern, daß die ermittelten Distanzen zwischen den Klassen mindestens um einen Faktor F größer sein sollen als die Distanzen nächster Nachbarn innerhalb der Klassen. Dies würde die Klassenzahl nach oben hin begrenzen. Zu begründen bliebe der gewählte Faktor F. Man kann aber auch ein einfaches globales Kriterium zur Schätzung der optimalen Klassenzahl anwenden. Dabei wird eine Klassierung dann für optimal gehalten, wenn das Verhältnis aus dem mittleren Abstand zwischen den Klassen und dem mittleren Abstand benachbarter Elemente innerhalb der Klassen maximal wird. Der Algorithmus DENSI führt diese Optimierungsaufgabe durch.

Dieses "Abstandskriterium" erlaubt nicht nur die Schätzung der optimalen Klassenzahl bei vorgegebenem Distanzmaß, sondern insbesondere auch einen Vergleich der Klassierungsfähigkeiten verschiedener Distanzmaße.

4. E r g e b n i s s e u n d D i s k u s s i o n

4.1. Belastungen durch Einzelkomponenten und Gesamt-C

In Tabelle 1 sind die Jahresmittelwerte aller 16 gemessenen Kohlenwasserstoffe für die TEMES-Stationen angegeben, zusätzlich unter (17.) auch der " $\sum KW$ "-Wert. Folgende Komponenten sind aufgeführt (in der Reihenfolge ihrer Retentionszeiten):

(1.) Ethan, (2.) Ethen, (3.) Propan, (4.) Propen, (5.) i-Butan, (6.) n-Butan, (7.) Ethin, (8.) i-Pentan, (9.) n-Pentan, (10.) i-Hexan, (11.) n-Hexan, (12.) Benzol, (13.) Toluol, (14.) Ethylbenzol, (15.) m/p-Xylol, (16.) o-Xylol.

Ein Vergleich der " $\sum KW$ "-Belastung (zur Def. vgl. Abschnitt 2) in Tabelle 1 zeigt, daß Unterschiede im Jahresmittel bis zum Vierfachen zwischen der am geringsten beaufschlagten Station 34 (Düsseldorf-Gerresheim) und den am höchsten belasteten Stationen 67 und 47 (Witten und Duisburg-Meiderich) auftreten.

Die gemessenen " $\sum KW$ "-Jahresmittel liegen mit 56-250 $\mu\text{g C/m}^3$ (105-450 ppbC) in einer Größenordnung, wie sie auch bei kontinuierlichen Messungen mit methanfreien Gesamt-C-Analysatoren in den

Belastungsgebieten anderer Bundesländer beobachtet werden [4, 15]. Bei einem Vergleich ist aber zu berücksichtigen, daß die Standorte der TEMES-Stationen im allgemeinen so gewählt wurden, daß ein direkter Einfluß des KFZ-Verkehrs oder stationärer Emittenten aus unmittelbarer Nähe weitgehend vermieden wurde. Die im folgenden diskutierten Kohlenwasserstoff-Meßwerte charakterisieren deshalb an der Mehrzahl der Stationen einen städtisch und industriell geprägten Grundpegel in den Belastungsgebieten.

Eine interessante Folgerung aus Spalte 17 in der Tabelle 1 ist, daß im regionalen Vergleich die Kohlenwasserstoffkonzentrationen im Belastungsgebiet Rheinschiene Süd, das nach dem Emissionskataster besonders viel petrochemische Industrie aufweist [16], keine Sonderstellung einnehmen. Die Mittelwerte über alle Stationen der jeweiligen Belastungsgebiete betragen $94 \mu\text{g C/m}^3$ (Rheinschiene Süd), $118 \mu\text{g C/m}^3$ (Ruhrgebiet West), $108 \mu\text{g C/m}^3$ (Ruhrgebiet Mitte), $141 \mu\text{g C/m}^3$ (Ruhrgebiet Ost) und $75 \mu\text{g C/m}^3$ (Rheinschiene Mitte). Anhand der Spalten 2 und 12 in Tabelle 1 und anhand Tabelle 2 sollen die Meßergebnisse für die lufthygienisch besonders relevanten Komponenten Ethen und Benzol ausführlicher diskutiert werden. Da gesetzlich festgelegte Immissionsgrenzwerte fehlen, ist allerdings keine absolute, sondern nur eine relative Bewertung möglich. Die Konzentrationen beider Schadstoffe weisen mit Faktoren von 5 (Benzol bzw. 4 (Ethen) zwischen höchst- und niedrigstbelasteter Station ebenfalls deutliche räumliche Unterschiede auf. Die höchsten Benzolmittelwerte (über $6 \text{ ppb} \hat{=} 20 \mu\text{g/m}^3$) wurden an den Ruhrgebietsstationen Castrop-Rauxel-Frohlinde (Nr. 64), Bottrop-Welheim (Nr. 55) und Duisburg-Meiderich (Nr. 47) gemessen. An den Stationen Nr. 64 und Nr. 47 korrespondiert dies mit relativ hohen " ΣKW "-Werten, nicht aber an der Station Nr. 55, die eine durchschnittliche " ΣKW -Belastung zeigt (Tabelle 1). Der höchste gemessene Benzol-Einzelwert trat mit $127 \mu\text{g/m}^3$ an der Bottroper Station (Nr. 55) auf. Dieser im Vergleich zu anderen Stationen große Abstand zwischen Spitzen- und Mittelwert sowie die durchschnittliche " ΣKW "-Belastung trotz erhöhter Benzol-Immission weist bereits auf eine Benzolquelle in der näheren Umgebung der Meßstation hin (vgl. Abschnitt 4.3).

Analog dazu kann man spezifische Ethenquellen in der Umgebung der Station mit erhöhten Ethenkonzentrationen (> 14 ppb) Dormagen (Nr. 21), Oberhausen-Osterfeld (Nr. 45), Bottrop (Nr. 55) und Polsum (Nr. 52) vermuten, während die Stationen Castrop-Rauxel-Frohlinde (Nr. 64) und Witten (Nr. 67) allgemein stärker belastet sind. Der höchste Ethen-Einzelwert wurde mit $106 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ($\hat{=} 85$ ppb) in Polsum (Nr. 52) gemessen. Um die an den TEMES-Stationen erhaltenen Ergebnisse einordnen zu können, werden sie in Tabelle 2 mit den Messungen aus anderen Gebieten verglichen. Angegeben sind in Spalte 1 die Spannbreiten der Mittelwerte der TEMES-Stationen (d. h. die minimalen und maximalen Mittelwerte jeder Komponente an den Stationen), in den übrigen Spalten die Mittelwerte der betreffenden Meßorte.

Bei einem Vergleich ist die unterschiedliche Meßplanung zu berücksichtigen, die den einzelnen Erhebungen zugrunde liegt und zu unterschiedlichen Zeit- und Raumbezügen führt. An dieser Stelle sei auf die Originalliteratur verwiesen [9, 17-19].

Die Meßergebnisse anderer städtischer Gebiete (Spalten 2-4) liegen innerhalb der Spannbreite der TEMES-Daten. Dabei ist das untere Ende der Spannbreite gut vergleichbar mit Werten aus reinen Wohngebieten (Berlin-Dahlem), während das obere Ende Konzentrationen aufweist, wie sie auch von anderen Autoren in dicht besiedelten, industriell genutzten Ballungsräumen gemessen wurden [18]. Diese Konzentrationen liegen bei wichtigen Komponenten wie den Olefinen und den Aromaten aber noch deutlich unterhalb der Werte, die zu Verkehrsspitzenzeiten unter direktem KFZ-Einfluß gemessen wurden (Spalte 5). Vereinfachend kann man sagen, daß die Kohlenwasserstoffbelastung in reinen Wohngebieten um etwa eine Größenordnung kleiner als unter starkem KFZ-Einfluß, aber um ca. eine halbe Größenordnung höher ist als in Reinluftgebieten (Spalte 8).

Interessant ist auch der Vergleich mit den anlagenbezogenen Messungen in den Spalten 6 und 7. Im Nahbereich industrieller Anlagen (ca. 500 m am Beispiel der Petrochemie, ca. 200 m im Fall einer Kokerei) treten bei einigen Komponenten (z.B. Ethen, Benzol) erheblich höhere Werte auf als in den Spitzenzeiten des KFZ-Verkehrs.

Die erhöhten industriell bedingten Immissionen können je nach Quellstärke und Quellhöhe allerdings sehr rasch mit der Entfernung abnehmen, wie das in Bild 2 am Beispiel des bereits angesprochenen Nahbereichs einer Kokerei anhand von Benzol- und Toluolmeßwerten veranschaulicht ist. Die Abb. 3 zugrunde liegenden Messungen wurden mit höherer Ortsauflösung (Gitterabstand 500 m) in einem anderen Zusammenhang in der Umgebung einer Kokerei durchgeführt, über die Ergebnisse wird an anderer Stelle berichtet. An den angegebenen Halbjahresmittelwerten ist zu erkennen, daß bereits in ca. 600 m Abstand von der vermuteten Quelle kaum noch ein Einfluß festgestellt werden kann, während am Meßpunkt, der der Anlage am nächsten liegt, die industriell verursachte Immission überwiegt (Abb. 3, Tabelle 2). Abb. 3 macht deutlich, wie räumlich inhomogen die Kohlenwasserstoffbelastung sein kann, und wie schwierig es in bestimmten Fällen ist, räumlich repräsentative Meßdaten zu erhalten. Da organische Luftverunreinigungen überwiegend aus niedrigen Quellhöhen ≈ 20 m emittiert werden [16] und die Verweilzeiten in der Atmosphäre zum Teil recht kurz sind [20], ist die beispielhaft gezeigte ausgeprägte räumliche Inhomogenität auch in vielen anderen Fällen zu vermuten. Dies sollte bei Meßplanungen berücksichtigt werden.

4.2. Zusammenhang " \sum KW"- und Einzelkohlenwasserstoffkonzentrationen

Messungen des Gesamt-C-Gehaltes (methanfrei) können nur dann als Hilfsgröße zur lufthygienischen Betrachtung herangezogen werden, wenn a) eine hohe Korrelation zwischen Gesamt-C und den lufthygienisch relevanten Stoffen an jeder Meßstation besteht und b) der prozentuale Anteil der relevanten Stoffe am Gesamt-C-Wert bekannt ist und von Station zu Station möglichst wenig variiert. Beide Voraussetzungen sollen am Beispiel der Komponenten Ethen und Benzol überprüft werden.

Abb. 4 zeigt Histogramme der Korrelationskoeffizienten zwischen " \sum KW" und Benzol (Abb 4a) bzw. Ethen (Abb. 4b) sowie Histogramme ihrer mittleren prozentualen Anteile am " \sum KW"-Wert an den Meßstationen (4c, d). An mehr als der Hälfte der Stationen ergeben sich hohe Korrelationskoeffizienten ($r \geq 0,8$) und eng beieinander lie-

gende prozentuale Anteile der Einzelkomponenten am " $\sum KW$ "-Gehalt (Maximum bei 8-10 %). Andere Stationen weichen aber mit Gehalten von 6-20 % deutlich davon ab oder zeigen nur geringe Korrelationen. Dazu gehören vor allem die höher belasteten Stationen Duisburg-Meiderich (Nr. 47), Witten (Nr. 67), Castrop-Rauxel (Nr. 64) sowie, im Fall des Ethens, die Stationen Dormagen (Nr. 21), Oberhausen-Osterfeld (Nr. 45) und Polsum (Nr. 52).

Dies Ergebnis ist durchaus plausibel. Wie in Abschnitt 4.3 näher ausgeführt wird, gehört ein Großteil der geringer belasteten Stationen zum Typus "Städtischer Grundpegel" ohne spezifische Emittenteneinflüsse. In diesem Fall stehen die Einzelkomponenten wegen der Gleichartigkeit der Quellen in relativ festen Verhältnissen zueinander und zum " $\sum KW$ "-Wert. Dies ändert sich bei Einwirkung spezifischer Emittenten. Hier wird durch die Windrichtungsabhängigkeit des Emittenteneinflusses die Variabilität der Verhältnisse Einzelkomponente zu " $\sum KW$ " erhöht, die Korrelation wird geringer. Vor allem aber verschiebt sich der prozentuale Anteil der emittierten Komponente am " $\sum KW$ "-Wert.

Wir können also folgendes Fazit ziehen: Eine lufthygienische Interpretation von Gesamt-C-Messungen läßt sich dann durchführen, wenn sie sozusagen "uninteressant" ist, nämlich im Bereich des städtischen Grundpegels. Bei höherer Belastung durch zusätzliche Emittenten jedoch ist der Schluß von Gesamt-C-Messungen auf lufthygienisch interessante Komponenten ohne nähere Strukturkenntnis durch Mehrkomponentenmessungen nicht mehr möglich.

Im Hinblick darauf, daß kontinuierliche Gesamt-C-Messungen mit automatischen Geräten, etwa in telemetrischen Meßnetzen, bei beschränktem Informationsgehalt sehr aufwendig sind, sollten sie nur dann vorgeschrieben oder durchgeführt werden, wenn hohe Belastungen durch organische Stoffe zu erwarten sind und gleichzeitig das Komponentenspektrum bekannt ist und gewährleistet ist, daß sich die Zusammensetzung im Verlaufe der Zeit nicht ändert.

4.3. Ergebnisse der Clusteranalyse

Für die 41 TEMES-Stationen wurde je ein Stationsprofil, repräsentativ für die durchschnittliche Belastung im Meßzeitraum April 1981 bis März 1982, gebildet.

Um Ähnlichkeiten der Stationsprofile innerhalb der beschriebenen Kollektive unabhängig von der Höhe der Meßwerte untersuchen zu können, fanden anstelle von Volumenkonzentrationen die Verhältnisse der Komponenten zu der über alle Komponenten gemittelten Volumenkonzentration Verwendung.

Die Anwendung des Algorithmus SURVEY auf das Kollektiv der 41 TEMES-Stationenprofile liefert die in Tabelle 3 dargestellten Ergebnisse. Spalte 1 dient der fortlaufenden Numerierung der Pfadplätze. In Spalte 2 sind die Kennziffern der zugehörigen Elemente angegeben. In Spalte 3 findet man jeweils die Distanz des Elementes der betrachteten Zeile zu dem vorangehenden Element des Pfades.

Aus Spalte 4 ist zu entnehmen, welches Element aus dem bereits durchlaufenen Teil der Objektmenge dem in der betrachteten Zeile angegebenen Element am nächsten gelegen ist, d. h. am ähnlichsten ist. Der Pfadplatz dieses Elementes ist angegeben, falls es nicht das im Pfad vorangehende Element ist. In diesem Fall befindet sich in Spalte 4 eine Null. Die zugehörige Distanz, d. h. also die kürzeste Distanz des Elementes aus der betrachteten Zeile zu einem Element aus dem bereits durchlaufenden Teil der Objektmenge ist in Spalte 5 niedergelegt. In Spalte 6 ist die Rangordnung der in Spalte 5 stehenden Distanzen DNN angegeben. In Spalte 7 sind die Stationskennziffern der Elemente zu finden.

Die N-1 Wegstücke DNN spannen den ermittelten Graphen der untersuchten Objektmenge auf. Jedes Element ist zumindest mit seinem nächsten Nachbarn verbunden. Ein Element kann auch mit mehreren anderen Elementen verbunden sein, für die es jeweils nächster Nachbar ist. Dann liegt eine Verzweigung vor. Es kann auch der Fall eintreten, daß zwei Elemente miteinander verbunden sind, von denen keines nächster Nachbar des anderen ist. In einem solchen Fall sind beide auch mit weiteren, nähergelegenen Elementen verbunden. Ein derartiges Wegstück

Das auffälligste Profil besitzt, wie bereits angedeutet, die Station Dormagen (21), es weicht am deutlichsten von denen aller übrigen Stationen ab. Verbunden ist es mit dem Profil der Station Oberhausen-Osterfeld (45). Letzteres bildet gemeinsam mit den Profilen der Stationen Leverkusen (24), Wesseling (29) und Rodenkirchen (28) eine Klasse, welche ihrer Auffälligkeit nach auf Platz 9 rangiert. Die zweitauffälligste Klasse wird von der Station Düsseldorf-Reisholz (35) gebildet, auf den Plätzen 3, 4 und 5 folgen ebenfalls einelementige Klassen. Dabei handelt es sich um die Profile der Stationen Duisburg-Buchholz (50), Recklinghausen (52) und Bottrop (55). Auf Platz 6 folgt eine Klasse bestehend aus den Profilen der Stationen Lünen-Brambauer (62), Lünen-Niederaden (63), Walsum (44), Budberg (43), Herten (53) und Einbrungen (32). Auf dieser Auffälligkeitsebene bildet Vogelsang allerdings eine eigene Klasse. Auf den Auffälligkeitsstufen 7 und 8 treten wiederum jeweils einzelne Profile hervor, und zwar diejenigen der Stationen Gelsenkirchen (56) und Spellen (41). Der neunte Platz wurde bereits im vorangehenden beschrieben. Auf den Plätzen 10 und 11 folgen wiederum einelementige Klassen, gebildet von den Stationen Riehl (26) und Vogelsang (25). Chorweiler (23) und Witten (67) bilden eine gemeinsame Klasse, welche auf Auffälligkeitsstufe 12 steht. Auf den Stufen 13 und 14 folgen die Stationen Hürth (27) und Du-Meiderich (47). Die übrigen Elemente bilden gemeinsam die fünfzehnte Klasse. Zur Veranschaulichung dieser Klassierung wurde in Abb. 5 der ermittelte Graph dargestellt. Dabei wurden Elemente, welche zu einer gemeinsamen Klasse gehören, durch horizontale Wegstücke verbunden. Folglich verbinden vertikale Wegstücke verschiedene Klassen.

Die mittleren Profile der 15 beschriebenen Klassen sind in den Abb. 6-20 wiedergegeben. Angegeben sind die mittleren Konzentrationen der Komponenten nebst den zugehörigen Minimal- und Maximalwerten.

4.4. Diskussion der clusteranalytischen Ergebnisse

Zur Interpretation der Immissionsprofile soll nicht bei der auffälligsten Klasse 1 (vgl. Tab. 5), sondern umgekehrt bei der umfangreichsten Klasse bestehend aus 18 Stationen begonnen werden. Dieses Verfahren hat den Vorteil, daß bei der Diskussion der auf-

fälligsten Klassen diese Klasse als "Referenzprofil" benutzt werden kann, um die Unterschiede deutlich herauszuarbeiten.

Die größte Klasse (Abb. 8) enthält Meßorte mit niedriger bis mittlerer Kohlenwasserstoffbelastung. In Übereinstimmung damit weisen die vorliegenden Emissionskataster in den Luftreinhalteplänen [z.B. 16] für die Umgebung dieser Stationen keine hohen Emissionen organischer Stoffe auf. Da zudem die Belastung an diesen 18 Stationen recht homogen ist, erscheint es vernünftig, diese Klasse als "Grundpegel" anzusehen, wie er für städtisch und industriell geprägte Ballungsgebiete typisch ist. Näheren Aufschluß über die Hauptquellen dieses Grundpegels kann man aus Tabelle 6 gewinnen, in der Verhältnisse einzelner Kohlenwasserstoffe zueinander mit Literaturergebnissen verglichen werden, die an nahezu ausschließlich KFZ-belasteten Meßorten (z. B. Straßentunnels, Autobahnen, Straßenkreuzung) gewonnen wurden [9, 17]. Generell ergibt sich eine sehr gute Übereinstimmung. Bis auf das Benzol-m/p-Xylol Verhältnis liegen alle anderen im aus niederländischen Messungen [17] abgeleiteten Streubereich des typischen KFZ-Musters. Die Standardabweichungen der von uns ermittelten Verhältnisse sind allerdings deutlich geringer als diejenigen der Literaturwerte. Dies ist als eine Folge der Klassierung zu werten. Die Abweichung bei Xylol ist vermutlich auf eine Schwäche des Analyseverfahrens zurückzuführen, da bei der Aufstellung der Analysenfunktion für Xylole bereits eine geringere Reproduzierbarkeit als bei den anderen Stoffen und Absorptionen im chromatographischen System bei niedrigen Konzentrationen festgestellt wurden [12].

Es läßt sich daher der Schluß ziehen, daß als Hauptquelle des städtischen Grundpegels der KFZ-Verkehr anzusehen ist. Dies gilt nicht für die leichten Alkane Ethan und Propan, die von Kraftfahrzeugen nicht in wesentlichem Umfang emittiert werden, und für die deshalb andere Quellen (Erdgas?) vorliegen müssen.

Alle übrigen Klassen enthalten wesentlich weniger Elemente als die Grundpegelklasse.

In drei Klassen werden 2 bis 6 Stationen zusammengefaßt, während die restlichen Klassen aus jeweils nur einer Meßstation bestehen. Interessant ist, daß die in den Kapiteln 4.1 und 4.2 genannten Stationen

mit höheren Belastungen bis auf eine Ausnahme (Station 64) sämtlich vom städtischen Grundpegel getrennten Klassen zugeordnet sind. Dies weist bereits auf spezifische Emittenteneinflüsse hin.

Am stärksten weicht das Profil der Station 21 (Dormagen) vom Grundpegel ab. Während Ethan und Ethen in der Hauptklasse vergleichbare Konzentrationen aufweisen und Ethin nur wenig niedriger liegt, dominiert im Profil der Station 21 die Komponente Ethen eindeutig. Die Ethenkonzentration ist etwa dreimal so hoch wie die Konzentrationen an Ethan und Ethin (Abb. 6). Die übrigen Komponenten zeigen im Vergleich zur Referenzklasse dagegen unterdurchschnittliche Werte. Interessante Ergebnisse liefert eine windrichtungsabhängige Auswertung der Messungen der Station 21. In Abb. 21 sind die mittleren Profile der Messungen bei Windrichtungen aus dem Sektor 90° bis 180° (Ost - Süd, 10 Messungen) denen bei allen übrigen Windrichtungen (8 Messungen) gegenübergestellt. Dabei wurde auf Winddaten des Deutschen Wetterdienstes zurückgegriffen (Station Köln). Danach treten nur bei Windrichtungen von 90° - 180° erhöhte Ethenkonzentrationen auf, während das Profil der Beobachtungen aus den übrigen Windrichtungen unauffällig ist und im wesentlichen dem Profil des städtischen Grundpegels entspricht.

Südöstlich von der Meßstation liegt in ca. 2 km Entfernung der Ortskern von Dormagen und ca. 3-4 km Entfernung ein großes petrochemisches Werk. Die übrige Stationsumgebung zeichnet sich durch dünne Bebauung und fehlende Kohlenwasserstoffquellen aus, wenn man von einer Autobahn absieht, die ca. 200 m westlich an der Meßstation vorbeiführt.

Vergleicht man die Stationsumgebung mit den windrichtungsabhängigen Profilen, lassen sich folgende Schlüsse ziehen:

In Übereinstimmung mit der geringen Siedlungsdichte ist die Kohlenwasserstoffbelastung bei allen Windrichtungen außer Winden aus Ost bis Süd sehr gering und entspricht in ihrem Profil dem städtischen Grundpegel. Die ca. 200 m entfernte Autobahn beeinflusst den Pegel offenbar nur geringfügig. Bei Ost- bis Südwinden ist die Kohlenwasserstoffbelastung etwas höher (Einfluß von Dormagen), vor allem aber wird eine recht hohe Ethenbelastung beobachtet. Diese erhöhten Ethenkonzentrationen weisen auf das südöstlich der Meßstation gele-

gene petrochemische Werk als Verursacher hin. Das abgesehen von Ethen "normale" Immissionsprofil zeigt an, daß es sich um einen spezifischen Ethenemittenten handeln muß, und die Ursache nicht in der allgemein höheren Belastung durch den in gleicher Windrichtung liegenden Ortskern Dormagen verursacht sein kann. Offenbar wirken sich in diesem Fall industrielle Emissionen nicht nur im Nahbereich aus wie im Fall der bereits angesprochenen Kokerei, sondern über eine Entfernung von einigen Kilometern.

Die getroffene Zuordnung wird bestätigt durch eine Analyse der Immissionsprofile, die in der Klassierung die größte Ähnlichkeit zum Profil der Station 21 (Dormagen) aufweisen (vgl. Abb. 5). Es handelt sich um die gemeinsame Klasse der Stationen 45 (Oberhausen-Osterfeld), 24 (Leverkusen), 29 (Wesseling) und 28 (Rodenkirchen), deren mittleres Profil in Abb. 7 wiedergegeben ist. Auch diese Klasse fällt allein durch den erhöhten Ethen-Anteil auf, der aber deutlich geringer ist als an der Station 21 (Dormagen). Deshalb findet sich diese Klasse erst auf Platz 9 der Auffälligkeit (vgl. Tab. 5). Die übrigen Komponenten zeigen im Vergleich zur Referenzklasse (Abb. 8) unterdurchschnittliche Werte. Die an diesen Stationen beobachteten erhöhten Ethenkonzentrationen weisen ebenfalls auf die Nähe petrochemischer Betriebe hin.

An den Stationen 26 (Riehl) und 27 (Hürth) treten neben überdurchschnittlichen Ethen-Anteilen auch noch erhöhte Anteile von Propan in Hürth und von Toluol in Riehl auf. Die zugehörigen Profile sind in den Abb. 9 und 11 wiedergegeben.

Hürth fällt zwar durch die Gestalt seines Profils aus dem Rahmen der Referenzklasse, weist aber für alle registrierten Komponenten im Mittel unterdurchschnittliche Werte auf. Der Einfluß nahegelegener Industriebetriebe zeigt sich also in Hürth nur an der Gestalt des Profils. Durch Messung einer einzelnen Komponente oder des Gesamtc-Wertes wäre dieser Einfluß nicht erkennbar.

Die Station 26 (Riehl) weist dagegen erhöhte Konzentrationen von Ethen, Propan, i-Pentan, Benzol und Toluol, die bis auf Ethen und Toluol in den Anteilprofilen nicht so deutlich hervortreten, auf

Die Tatsache, daß die Station 25 (Vogelsang) ebenfalls eine eigene Klasse darstellt, ist auf erhöhte Ethan-Konzentrationen zurückzuführen.

Als einzige aus dem Belastungsgebiet Rheinschiene-Süd gehört die Station 22 (Langenfeld) zu der vornehmlich durch Verkehrseinflüsse geprägten Referenzklasse. Die Station 23 (Chorweiler) bildet nämlich zusammen mit der Station 67 (Witten) ebenfalls eine eigene Klasse (Abb. 10). Diese fällt dadurch auf, daß Ethan eine höhere Konzentration aufweist als Ethen, insbesondere aber durch erhöhte Ethen-Konzentrationen. Dies ist möglicherweise, insbesondere in Witten, auf einen nahegelegenen Betrieb der petrochemischen Industrie zurückzuführen.

Diese Ergebnisse zeigen, in welcher unterschiedlicher Weise sich industrielle Einflüsse im Raum Köln-Leverkusen in der Kohlenwasserstoffbelastung bemerkbar machen.

Erhöhte Ethen-Anteile weisen auch die Profile der Stationen 52 (Polsum) und 55 (Bottrop) auf, welche jeweils eine eigene Klasse bilden (Abb. 19, 20). An der Station 52 sind zugleich auch die Konzentrationen von Ethan und n-Pentan erhöht.

An der Station 55 (Bottrop) fallen neben erhöhten Ethan- und Ethen-Werten auch überdurchschnittliche Propen- und Benzol-Werte auf, wobei das Toluol/Benzol-Verhältnis den Wert 0,49 annimmt (gegenüber 1,54 im Profil der Referenzklasse).

Da das Toluol-Ethen- oder das Toluol-Pentan-Verhältnis den Referenzverhältnissen in Tabelle 6 nahezu entsprechen, liegt keine verminderte Toluol-, sondern eine erhöhte Benzol-Emission in der Stationsumgebung vor. Das Bottroper Profil zeigt auffällige Ähnlichkeit mit dem Kokereimuster aus Tabelle 2. Tatsächlich befindet sich in weniger als 1 km Entfernung von der Meßstation in südwestlicher Richtung eine Kokerei. Eine Analyse der 20 Einzelmeßdaten ergibt, daß 6 Messungen das Kokereimuster besonders deutlich widerspiegeln (vgl.

Abb. 22), während 14 Messungen mehr dem städtischen Grundpegel entsprechen. An allen Meßtagen mit Kokereimuster herrschte Südwestwind (Deutscher Wetterdienst, Essen). Das Bottroper Profil läßt sich demnach, ähnlich wie die Profile von Dormagen und Reisholz, als Superposition eines typischen Emittentenmusters (hier: Kokerei) und des generellen Ballungsmusters deuten (vgl. Abb. 22).

Die Ursachenanalyse erlaubt es darüber hinaus, die Immissionen an Benzol den Emittentengruppen in etwa anteilig zuzuordnen. Gäbe es an der Meßstelle Bottrop nur den Grundpegel des Ballungsraums, kann man aufgrund des gemessenen ("normalen") Toluol-Wertes und des Benzol/Toluol-Verhältnisses auf einen mittleren Benzol-Wert von ca. 2 ppb schließen (vgl. Abb. 22). Gemessen wurden aber 6,4 ppb, so daß sich die Anteile an der Benzol-Immission annähernd wie 1 (Grundpegel) zu 2 (Kokerei) verhalten.

Während die Station 55 (Bottrop) auf Platz 5 der Auffälligkeitsskala rangiert, liegt die Station 52 (Polsum) auf Platz 4. Auf Platz 3 dieser Skala findet sich eine Klasse bestehend aus der Station 50 (Duisburg-Buchholz) Sie weist erhöhte Konzentrationen von Propan und Benzol auf (Abb. 17).

Noch auffälliger ist neben der bereits diskutierten Station 21 (Dormagen) die Station 35 (Düsseldorf-Reisholz), deren mittleres Profil in Abb. 12 wiedergegeben ist. Hier fällt in Relation zu den anderen Komponenten sofort der erhöhte Toluol-Gehalt auf.

Nimmt man die Konzentration der Kohlenwasserstoffe außer Toluol als Kriterium, gehört Reisholz zu den am geringsten belasteten Stationen. Eine Analyse der Einzelwerte ergibt, daß 4 Messungen mit hohen Toluolwerten zu dem abweichenden Stationsmuster führen, während die übrigen 16 Messungen unauffällig sind. An den Tagen der 4 Messungen herrschte WSW-Wind. Da sich in dieser Windrichtung in geringer Entfernung zur Station ein großes Chemiewerk befindet, liegt die Vermutung nahe, dort eine Toluolquelle anzunehmen.

Neben diesen Strukturen fällt als nächste eine Klasse auf (Abb. 16), zu der die 6 Stationen 62 (Lünen-Brambauer), 63 (Lünen-Niederaden), 43 (Rheinberg-Budberg), 44 Duisburg-Walsum), 32 (Einbrungen) und

53 (Herten gehören. Diese Klasse fällt wie die Station 25 (Vogelsang) durch erhöhte Ethan-Anteile auf, unterscheidet sich jedoch von Vogelsang durch geringere Toluol-Werte. Folgt man der Skala der Auffälligkeit (Tab. 5), so findet man auf Platz 7 die Station 56 (Gelsenkirchen). Hier (Abb. 15) liegen signifikant erhöhte Anteile von i-Butan und n-Butan vor. Daneben weisen auch die Komponenten i-Pentan und Benzol erhöhte Konzentrationen auf. Dabei handelt es sich um typische Kraftstoffkomponenten, welche verursacht sein könnten durch Kraftstofflager oder Betankungsvorgänge. An der Station 47 (Duisburg-Meiderich) weisen neben den Komponenten i-Butan und n-Butan auch n-Pentan und n-Hexan signifikant erhöhte Anteile auf (Abb. 14). Auch hier liegt es nahe, Tanklager im Hafengebiete als Ursache zu vermuten. Betrachtet man nicht Anteile, sondern Konzentrationswerte, so tritt Meiderich deutlicher hervor, denn fast alle erfaßten Komponenten zeigen überdurchschnittliche Konzentrationswerte. Bleibt die Station 41 (Voerde-Spellen) zu erwähnen (Abb. 13), welche durch erhöhte Anteile von Toluol, Ethylbenzol, m/p-Xylol und o-Xylol auffällt.

5. S c h l u ß b e t r a c h t u n g

In der vorliegenden Arbeit wurde gezeigt, daß die Anwendung clusteranalytischer Methoden mit verhältnismäßig geringem Aufwand eine umfassendere Auswertung von Mehrkomponentenmessungen ermöglicht als monovariante Methoden. Die auf diese Weise zusätzlich gewonnenen Informationen über die Ähnlichkeiten der Profile vereinfachten die Einordnung der Ergebnisse wesentlich. Der benutzte graphentheoretische Algorithmus wurde ausgehend von einfachsten Vorstellungen mit dem Ziel entwickelt, ein Höchstmaß an Transparenz und Anwendungsfreundlichkeit zu erreichen, ohne auf formale Strenge und Effektivität zu verzichten. Es wurde deutlich, daß dieses Instrument der Clusteranalyse empfindlich genug ist, um aus Mehrkomponentenmessungen selbst in einem so groben Raster wie dem der TEMES-Stationen Hinweise auf Emittenten und Verursacher spezieller Belastungsprofile zu geben. Ein so durchgeführtes "screening" gibt die Möglichkeit, bei Bedarf gezieltere Untersuchungen anzusetzen. Die Vielzahl unterschiedlicher Profile, welche vorgefunden wurden, macht deutlich, daß Kohlenwasserstoff-Profil-Messungen nicht ohne entscheidenden Verlust an Informationen durch Gesamt-C-Messungen ersetzt werden können.

S c h r i f t t u m

- [1] Gesetz zum Schutz vor schädlichen Umwelteinwirkungen durch Luftverunreinigungen, Geräusche, Erschütterungen und ähnliche Vorgänge (Bundes-Immissionsschutzgesetz - BImSchG) vom 15.03.1974, Bundesgesetzblatt, Teil I, Nr. 27 (1974), S. 721
- [2] IXFELD, H., K. ELLERMANN und M. BUCK:
Bericht über die Ergebnisse des III. und IV. Meßprogramms des Landes Nordrhein-Westfalen (Schwefeldioxid- und Mehrkomponentenmessungen). Schriftenreihe der Landesanstalt für Immissionsschutz des Landes NW, H. 54, S. 58-111, Verlag W. Girardet, Essen 1981.
- [3] Monatsbericht über die Luftqualität an Rhein und Ruhr 6/82, Landesanstalt für Immissionsschutz des Landes NW, Hrsg., Essen 1982.
- [4] Lufthygienischer Monatsbericht 12/81, Bayerisches Landesamt für Umweltschutz (1981).
- [5] GUGGENBERGER, J. und G. KRAMMER:
Ein Beitrag zur Emissionsmessung organischer Verbindungen. Staub-Reinhaltung Luft, 42 (1982), S. 309-314.
- [6] VAN HAUT, H., B. PRINZ und F. E. HÖCKEL:
Ermittlung der relativen Phytotoxizität von Luftverunreinigungen im LIS-Kurzzeittest - verschiedene organische Komponenten und Ammoniak - Schriftenreihe der Landesanstalt für Immissionsschutz des Landes NW, H. 49, S. 29-65, Verlag W. Girardet, Essen 1979.

- [7] FROHNE, J. Ch., und J. REIS:
Identifizierung von charakteristischen Kohlenwasserstoff-Immissionen.
Erdöl und Kohle-Erdgas-Petrochemie, Bd. 34 (1981), S. 209-213.
- [8] SEIFERT, B. und D. ULLRICH:
Konzentration anorganischer und organischer Luftschadstoffe an einer Straßenkreuzung in Berlin.
Staub-Reinhaltung Luft, 38 (1978), S. 359-363.
- [9] ^{Dülson, W.} Organisch-chemische Fremdstoffe in atmosphärischer Luft.
Schriftenreihe des Vereins für Wasser-, Boden- und Lufthygiene 47.
Gustav Fischer Verlag, Stuttgart (1978).
- [10] Immissionsmessungen von polycyclischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAH).
Bericht des Ministers für Arbeit, Gesundheit und Soziales des Landes NW (Hrsg.), Düsseldorf, 1981.
- [11] SCHNEIDER, W., J. C. FROHNE und H. BRUDERRECK:
Determination of Hydrocarbons in the Parts Per 10^9 Range Using Glass Capillary Columns Coated with Aluminium Oxide.
J. Chromatog., 155 (1978), S. 311-327.
- [12] BRUCKMANN, P. und W. MÜLDER:
Immissionsmessungen von Kohlenwasserstoffen mit Hilfe der Kapillargaschromatographie (Schneider-Frohne-Verfahren) - Bestimmung der Verfahrenskenngrößen und Meßergebnisse.
Schriftenreihe der Landesanstalt für Immissionsschutz des Landes NW, H. 55, S. 29-41, Verlag W. Girardet, Essen 1982.

- [13] MANNS, H. und H. GIES:
Ergebnis der Erprobung von Meßvorrichtungen - Bendix 8202 und Siemens U 100 - zur fortlaufenden Messung organischer Verbindungen in Luft als methanfreie Kohlenstoffmenge.
Schriftenreihe der Landesanstalt für Immissionsschutz des Landes NW. (in Vorbereitung)
- [14] FROHNE, J. C. und J. REIS:
Zur Ermittlung von Immissionskenngrößen mit Momentprobenverfahren.
Staub-Reinhaltung Luft, 40 (1980), S. 522-529.
- [15] Vgl. z.B. Monatsbericht Juli 1982 des Lufthygienischen Überwachungssystems.
Niedersachsen (LÜN), Hannover (1982).
- [16] Luftreinhalteplan Rheinschiene Süd (Köln).
Ministerium für Arbeit, Gesundheit und Soziales des Landes NW (Hrsg.), Köln, 1977.
- [17] GUICHERIT, R. (Hrsg.):
Photochemical smog formation in the netherlands.
TNO Report (1978), TNO's-Gravenhage.
- [18] SCHNEIDER, W., und FROHNE, J. C.:
Messung und Auswertung von Kohlenwasserstoff-Immissionen; Teil I Probenahme und gaschromatographisches Analysenverfahren für Kohlenwasserstoff-Immissionen.
Staub-Reinhaltung Luft, 35 (1975), S. 275-281.
- [19] DEIMEL, H. und W. DULSON:
Kohlenwasserstoffmessungen im Köln-Bonner Raum, Fallstudie.
Bericht des Amtes für Umweltschutz der Stadt Köln, Köln, 1978.

- [20] BRUCKMANN, P.:
Cycles of Organic Gases in the Atmosphere. Proceedings of the Second European Symposium
'Physico-chemical Behaviour of Atmospheric Pollutants', D. Reidel Co., Dordrecht (1982), S. 336-348.
- [21] STEINHAUSEN, D. und K. LANGER:
"Clusteranalyse", Walter de Gruyter, Berlin 1977.
- [22] BOCK, H. H.:
"Automatische Klassifikation",
Vandenhoeck & Ruprecht, Göttingen 1974.
- [23] SPÄTH, H.:
"Cluster-Analyse-Algorithmen", 2. Aufl.
R. Oldenbourg Verlag, München 1977.
- [24] HARTIGAN, J. A.:
"Clustering Algorithms", New York 1975.

T a b e l l e n - u n d B i l d a n h a n g

Tabelle 1: Jahresmittelwerte ($\mu\text{g}/\text{m}^3$ bzw. $\mu\text{gC}/\text{m}^3$) von 16 Kohlenwasserstoffen (vgl. Text) an den TEMES-Stationen

Station Nr.	Komponenten																
	(1.)	(2.)	(3.)	(4.)	(5.)	(6.)	(7.)	(8.)	(9.)	(10.)	(11.)	(12.)	(13.)	(14.)	(15.)	(16.)	(17.)
DORM 21	6,8	17,6	6,6	1,8	3,1	6,3	5,3	8,4	4,8	2,1	1,8	5,8	11,1	2,6	4,0	2,6	75
LANG 22	6,9	7,2	6,6	1,8	2,9	6,3	6,0	7,5	4,5	1,8	1,8	6,2	11,9	3,5	6,6	3,1	77
CHOR 23	5,9	7,8	6,4	1,9	3,6	8,0	8,4	9,9	6,0	2,9	2,1	7,1	15,3	3,1	5,3	2,6	77
LEVE 24	7,3	12,9	9,2	3,7	4,1	8,9	7,8	11,7	6,9	3,6	2,5	9,1	14,6	3,1	6,2	2,6	98
VOGE 25	21,0	8,0	8,2	3,3	3,6	8,4	6,5	12,9	6,3	3,9	2,9	7,8	17,2	4,0	6,6	3,1	130
RIEH 26	6,9	14,3	7,0	4,6	4,8	9,9	9,5	15,0	8,1	5,0	3,2	10,7	32,2	4,9	9,7	4,0	138
HUER 27	5,5	8,0	8,1	2,1	1,9	4,6	6,7	7,5	3,6	2,5	1,8	4,9	10,3	2,6	4,4	3,1	63
RODE 28	4,3	9,5	4,8	2,8	2,9	6,7	5,5	7,2	3,9	2,1	1,4	5,8	10,7	2,6	5,3	2,6	63
WESS 29	4,9	9,0	6,6	2,1	2,7	6,5	4,6	9,6	5,1	2,1	1,8	5,8	11,5	3,1	5,7	3,1	75
KREF 31	9,5	10,1	7,0	1,6	2,9	6,3	10,4	7,2	4,8	3,6	2,9	6,2	12,3	3,1	5,7	3,1	80
EINB 32	12,1	7,8	6,2	2,6	2,7	5,1	5,6	6,0	3,9	2,5	1,4	6,5	11,5	2,6	4,4	2,6	69
LOER 33	11,3	8,5	6,6	2,1	3,1	7,0	5,7	9,6	4,8	4,3	2,9	7,8	15,3	2,2	4,9	2,6	83
GERR 34	6,3	4,4	4,8	1,1	1,7	4,3	4,6	6,3	3,9	1,4	1,4	4,2	8,4	2,2	3,1	2,0	53
REIS 35	6,0	6,4	4,4	1,9	1,9	4,6	4,3	6,6	3,9	2,1	2,1	5,5	28,7	3,5	6,6	3,1	69
SPEL 41	9,0	7,3	4,9	1,4	1,9	4,3	6,2	5,4	3,3	2,9	2,1	8,7	16,1	5,3	5,7	5,7	78
BRUC 42	9,0	7,5	6,0	1,6	2,4	5,5	7,6	6,3	3,3	1,8	1,4	8,1	8,8	2,6	4,9	2,6	68
BUDB 43	11,4	8,0	7,1	3,7	2,7	6,0	5,7	6,6	3,3	2,1	1,4	6,8	8,0	3,1	5,3	3,5	72
WALS 44	25,0	12,8	11,9	3,5	5,3	11,3	11,8	11,7	6,3	3,6	2,1	13,6	13,4	3,1	7,1	3,5	125
OSTE 45	9,9	16,5	8,6	3,7	6,0	11,8	7,7	15,8	7,8	3,9	2,5	6,8	16,1	3,5	6,2	2,6	113
MEER 46	12,0	10,4	10,6	2,6	4,1	2,2	7,8	9,6	5,7	3,2	2,1	8,1	14,2	4,0	7,9	3,5	98
MEID 47	20,0	14,0	17,8	4,4	16,9	30,8	11,4	28,6	18,8	0,4	7,9	18,7	27,2	6,2	12,8	4,0	223
STYR 48	8,6	8,8	7,1	2,8	3,4	9,2	6,0	9,6	5,1	2,9	2,1	5,8	11,5	2,6	4,0	2,6	76
KALD 49	11,3	9,9	9,5	2,3	7,0	13,0	6,4	13,5	7,5	6,4	3,6	8,1	18,4	4,0	7,9	3,1	111
BUCH 50	13,5	10,3	21,0	2,6	4,1	9,2	8,5	10,2	6,6	3,9	2,9	9,4	17,6	3,1	6,6	3,1	139
SICK 51	10,0	9,6	8,1	2,1	4,3	6,3	6,8	7,5	4,2	2,9	1,8	7,8	13,0	3,5	7,1	3,1	93
POLS 52	21,9	17,4	10,2	3,2	5,1	4,8	6,5	11,4	7,8	3,9	2,5	7,5	12,6	3,5	7,1	3,1	117
HERT 53	15,1	8,1	9,2	2,5	3,4	7,7	8,1	9,9	6,0	3,6	2,1	7,1	14,9	4,0	7,1	3,5	106
RECK 54	9,6	12,1	7,0	3,2	4,8	9,6	8,6	11,7	6,9	5,0	3,2	9,1	23,0	5,3	11,5	4,0	118
BOTT 55	21,0	19,0	7,9	4,2	2,9	7,0	5,6	9,0	5,1	3,2	2,1	20,7	11,9	2,6	4,9	2,6	117
GELS 56	14,3	8,4	9,9	2,5	7,2	15,2	5,2	14,4	6,0	2,9	1,8	11,0	12,6	2,6	4,9	2,6	121
HERN 57	10,4	9,5	8,6	3,9	4,3	9,2	6,5	24,8	7,5	4,3	2,1	8,1	14,6	3,1	6,2	2,6	95
ALTE 58	6,9	7,2	5,3	1,8	2,4	6,0	4,8	9,3	4,2	2,1	1,4	5,2	10,7	2,6	4,9	2,6	66
LEIT 59	10,0	8,9	8,4	1,9	3,1	6,7	5,6	8,7	7,5	6,4	3,2	6,5	16,9	2,2	4,0	2,6	92
BOCH 60	8,5	9,2	7,9	1,9	3,1	6,0	6,9	10,5	5,1	3,2	2,1	6,5	15,7	3,5	6,6	2,6	84
LOCKE 61	16,9	13,9	11,3	3,2	4,6	9,2	9,9	11,1	8,1	3,9	2,9	13,9	18,0	4,4	8,4	3,5	136
BRAM 62	16,3	8,5	8,4	1,6	3,4	7,7	6,8	9,9	5,4	2,1	1,4	7,5	10,0	2,6	4,4	2,6	87
NIED 63	15,1	8,4	8,8	2,1	2,9	6,7	5,9	9,3	4,8	2,5	1,4	7,5	11,1	3,1	4,9	2,6	84
FRON 64	21,3	18,8	13,9	4,9	5,5	9,2	14,9	14,4	14,1	6,1	4,3	21,4	25,3	5,3	11,0	4,0	197
DORT 65	13,4	11,3	10,6	2,6	4,8	9,4	8,2	12,6	7,5	3,9	3,6	9,1	18,0	4,0	7,9	3,1	115
ASSE 66	9,5	8,5	7,1	2,3	2,7	5,8	6,5	9,0	5,1	2,9	1,8	6,5	11,5	3,5	6,2	3,1	81
WITT 67	11,5	16,6	11,7	5,3	5,8	13,3	18,8	18,5	9,9	9,0	6,8	17,2	31,4	6,2	13,7	4,4	227

LIS-Berichte Nr. 32 (1983)

Tabelle 2: Kohlenwasserstoffkonzentrationen ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) in verschiedenen Meßgebieten

Komponente	Streube- reich an TEMES- Stationen	Wohnge- biet a) [9]	Wohnge- biet [17]	Ruhrge- biet [18]	KFZ-Ver- kehr a) [9] c)	Kokerei d)	Petro- chemie, e) [19]	Reinluft- gebiet f)
Ethan	4,7-26,8	3,5	8,0	20	6,3	47	8,7	-
Ethen	4,8-20,5	4,2	6,3	20 ^{b)}	31,4	69	81,4	1,9
Propan	4,9-22,6	3,0	9,8	20	5,1	24	-	1,6
Propen	1,5-5,6	1,7	5,6	10	14,1	17	27,3	0,2
n-Butan	5,2-33,6	5,6	12,9	30 (ΣC_4)	29,2	61,6	10,4	2,0
Ethin	4,6-19,7	4,9	4,6	-	28,9	14,7	9,4	2,8
i-Pentan	6,4-30,5	6,9	9,6	30 (ΣC_5)	52,8	64,6	-	2,7
Benzol	4,6-22,3	7,5	7,1	20	51,3	142	-	2,0
Toluol	9 -34,5	11,5	18,4	30	102	102	-	2,0
m/p-Xylol	4,3-10,5	6,2	9,9	10 ($C_8\text{Aro}$)	52,8	55	-	1,4
N	802	26	?	765	26	13	2110	64
Meßzeit	Jahr	Halbjahr	Jahr	Jahr	Halb- jahr	Viertel- jahr	Viertel- jahr	Woche,

a) Messungen nur zu Verkehrsspitzenzeiten 7-8.15 Uhr und 15-15.15 Uhr.

b) Σ Ethen, Ethin, c) verkehrsreiche Kreuzung, Berlin, d) Wohngebiet nahe Kokerei

e) Wohngebiet nahe Petrochemie, f) Schwarzwald

Tabelle 3: SURVEY-Ergebnisse: Pfad- und Minimalbaumdaten
(Erläuterungen in Abschnitt 4.3)

I	KE	DVE	INN	DNN	RDNN	Station
1	1	0.000	0	0.000	0	21
2	19	.442	0	.442	1	45
3	4	.187	0	.187	16	24
4	9	.115	0	.115	32	29
5	8	.193	3	.148	25	28
6	28	.280	3	.246	9	54
7	34	.175	0	.175	19	60
8	2	.105	0	.105	36	22
9	32	.150	7	.113	33	58
10	22	.123	0	.123	29	48
11	31	.121	0	.121	30	57
12	39	.107	0	.107	35	65
13	20	.091	0	.091	40	46
14	25	.096	0	.096	37	51
15	40	.100	12	.093	39	66
16	35	.126	0	.126	28	61
17	38	.121	0	.121	31	64
18	16	.185	0	.185	17	42
19	10	.189	0	.189	15	31
20	7	.283	8	.220	13	27
21	3	.260	8	.222	12	23
22	41	.133	0	.133	27	67
23	6	.322	6	.238	10	26
24	14	.408	0	.408	2	35
25	15	.476	14	.263	8	41
26	12	.284	12	.148	24	33
27	33	.155	12	.144	26	59
28	23	.226	11	.163	21	49
29	21	.214	0	.214	14	47
30	30	.269	0	.269	7	56
31	37	.358	26	.270	6	63
32	36	.095	0	.095	38	62
33	18	.112	0	.112	34	44
34	11	.185	31	.151	22	32
35	17	.149	0	.149	23	43
36	27	.218	34	.179	18	53
37	13	.218	12	.164	20	34
38	24	.385	13	.327	3	50
39	5	.633	31	.229	11	25
40	26	.449	34	.316	4	52
41	29	.301	0	.301	5	55

Tabelle 4: SURVEY-Ergebnisse zur Ermittlung der Klassenzahl

Rang	DNN	Platz	Verhältnis	Dichte
1	.442	2	1.082	29.926
2	.408	24	1.249	12.285
3	.327	38	1.034	92.169
4	.316	40	1.050	66.532
5	.301	41	1.117	31.763
6	.270	31	1.004	956.357
7	.269	30	1.020	192.475
8	.263	25	1.072	56.182
9	.246	6	1.031	133.315
10	.238	23	1.042	105.281
11	.229	39	1.032	140.326
12	.222	21	1.006	812.350
13	.220	20	1.032	147.666
14	.214	29	1.131	40.342
15	.189	19	1.011	475.190
16	.187	3	1.009	607.872
17	.185	18	1.034	163.562
18	.179	36	1.022	261.397
19	.175	7	1.068	89.924
20	.164	37	1.004	1575.002
21	.163	28	1.082	80.489
22	.151	34	1.013	528.381
23	.149	35	1.004	1566.402
24	.148	26	1.003	2680.170
25	.148	5	1.030	232.177
26	.144	27	1.083	90.437
27	.133	22	1.052	152.249
28	.126	16	1.024	336.189
29	.123	10	1.017	491.131
30	.121	11	1.003	2589.862
31	.121	17	1.051	171.205
32	.115	4	1.015	590.024
33	.113	9	1.014	659.525
34	.112	33	1.038	243.447
35	.107	12	1.024	395.077
36	.105	8	1.094	111.243
37	.096	14	1.007	1550.302
38	.095	32	1.022	489.591
39	.093	15	1.025	431.201
40	.091	13	1.022	500.000

Tabelle 5: SURVEY-Ergebnisse: Die 15 auffälligsten Klassenstrukturen

Rang	Station	Nr.	relative Auffälligkeit
1	DORM	21	2.34
2	REIS	35	2.16
3	BUCH	50	1.73
4	POLS	52	1.67
5	BOTT	55	1.59
6	NIED	63	1.43
	BRAM	62	
	WALS	44	
	EINB	32	
	BUDB	43	
	HERT	53	
7	GELS	56	1.42
8	SPEL	41	1.39
9	LEVE	24	1.30
	OSTE	45	
	WESS	29	
	RODE	28	
10	RIEHL	26	1.26
11	VOGE	25	1.21
12	CHOR	23	1.17
	WITT	67	
13	HUER	27	1.16
14	MEID	47	1.13
15	KREF	31	1.00

Tabelle 6: Verhältnisse von Kohlenwasserstoffen (ppb/ppb) und Standardabweichung (\pm sw) der Grundpegelklasse im Vergleich zu Kohlenwasserstoffverhältnissen KFZ-bezogener Messungen

Komponenten	Klasse 3 (Grundpegel)	B-Steglitz, KFZ [9], [8]	Niederlande, KFZ [17]
Toluol/Bezol	1,54 \pm 0,08	1,69 (1,80)	1,6 ^{a)}
n-Pentan/Benzol	0,77 \pm 0,04	0,89 (0,72)	0,80 ^{a)}
i-Pentan/Toluol	0,86 \pm 0,04	0,66 (0,59)	0,75-1,13 ^{a)}
n-Pentan/i-Pentan	0,58 \pm 0,03	0,80 (0,59)	0,44-0,67 ^{a)}
Benzol/m/p-Xylol	1,68 \pm 0,11	1,23 (1,0)	1,0 ^{a)}
Ethen/Ethin	1,22 \pm 0,05	1,0	0,75-1,40
n-Butan/Ethin	0,47 \pm 0,03	0,45	0,35-0,65
Toluol/Ethin	0,56 \pm 0,03	1,0	0,40-0,80
Propen/Ethin	0,20 \pm 0,01		0,17-0,39

a): umgerechnet aus Komponenten/Ethin Verhältnis

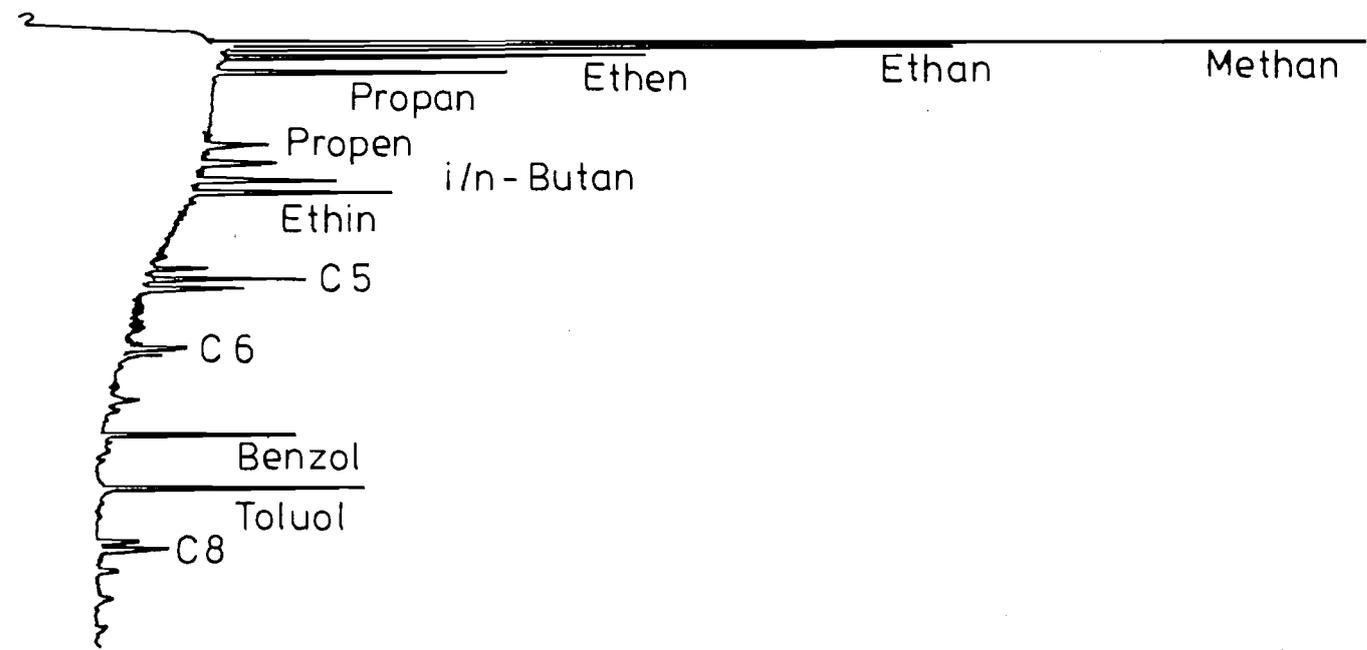


Abb. 1:
Chromatogramm einer Außenluftprobe, 8 ml, gezogen
am 24.3.1982 um 9.50 Uhr an der TEMES-Station Nr. 32

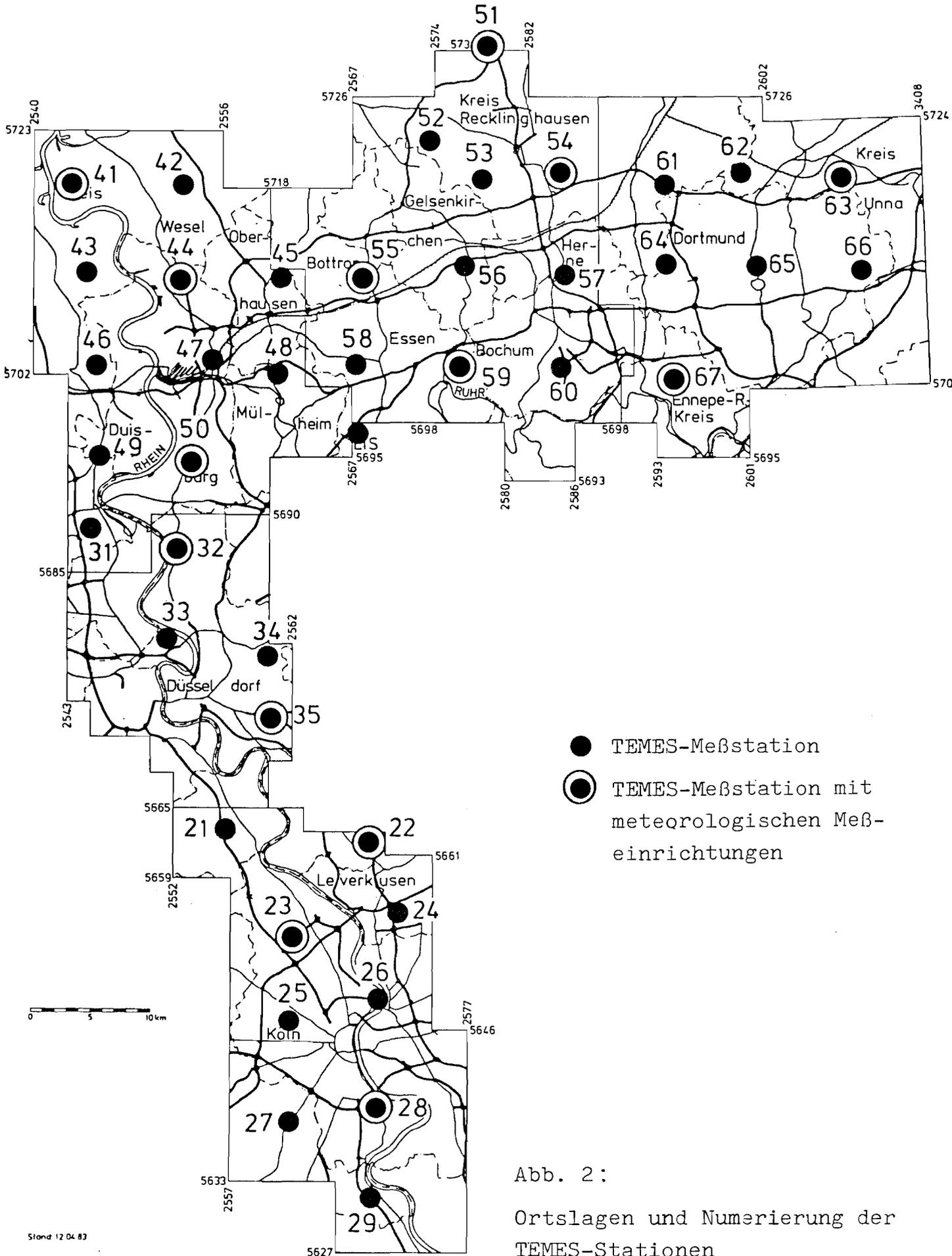


Abb. 2:
Ortslagen und Numerierung der TEMES-Stationen

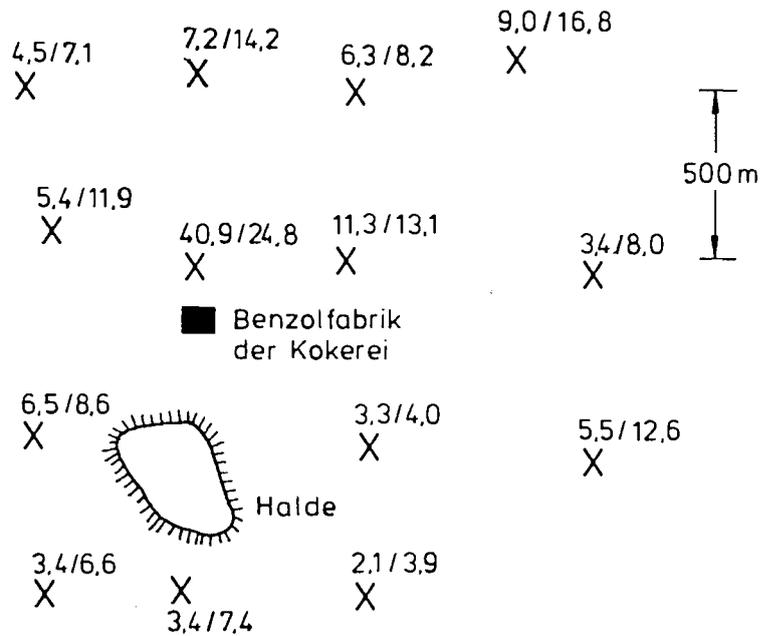


Abb. 3:

Benzol-/Toluoljahresmittelwerte in ppb aus 13 Messungen pro Punkt in der Umgebung einer Kokerei

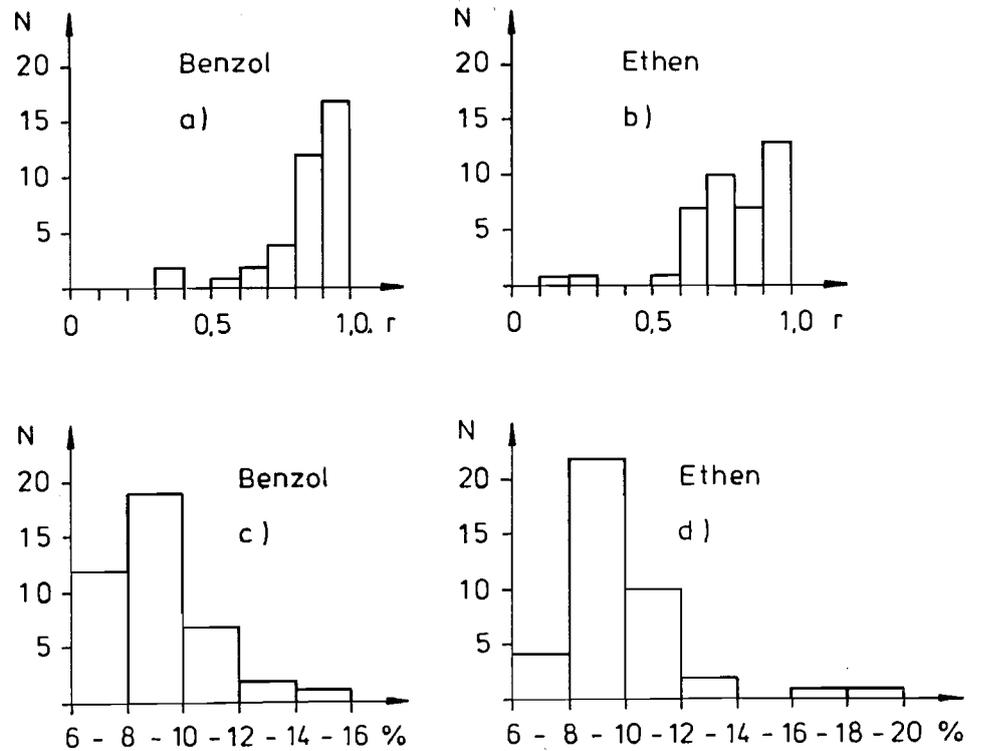


Abb. 4:

Zusammenhang zwischen Benzol bzw. Ethen und "ΣKW" (vergl. Text). N bezeichnet die Anzahl der Stationen; r den Korrelationskoeffizienten und % den prozentualen Anteil am "ΣKW"-Wert

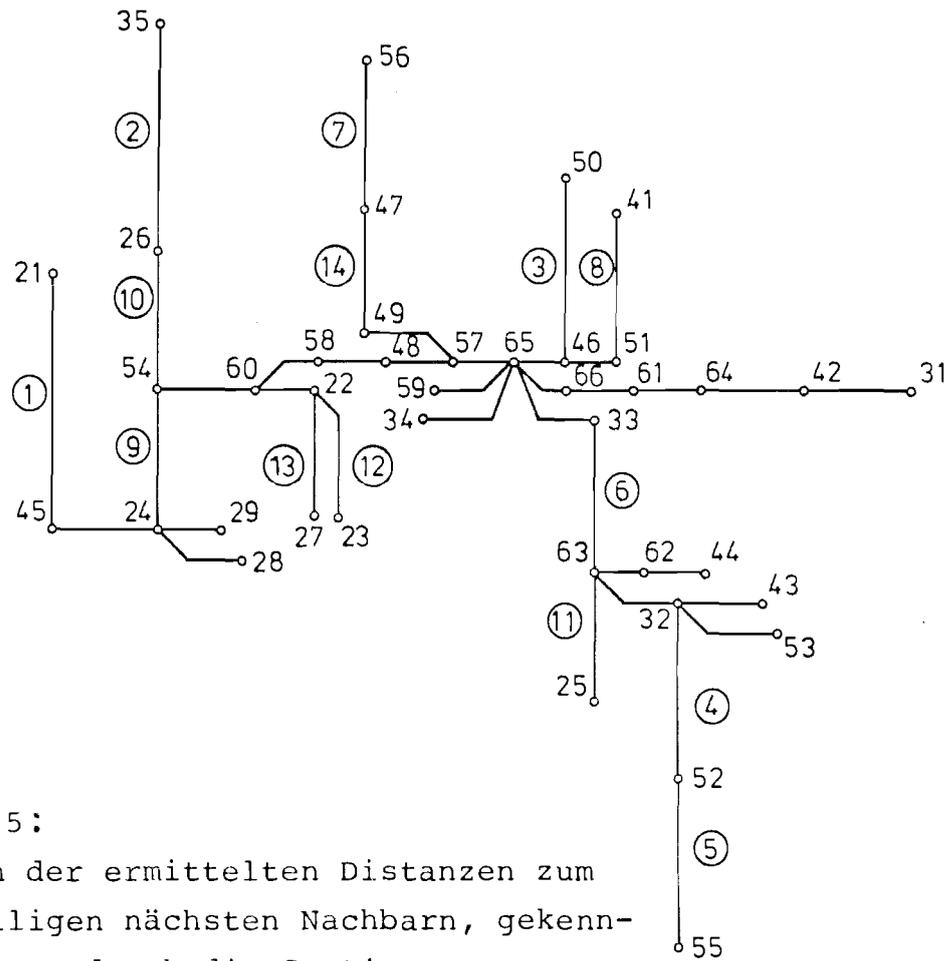


Abb. 5:
 Graph der ermittelten Distanzen zum jeweiligen nächsten Nachbarn, gekennzeichnet durch die Stationsnummern. Die eingekreisten Zahlen markieren die 14 größten Distanzen, welche die gewählte Klassierung bestimmen, entsprechend ihrer Rangfolge

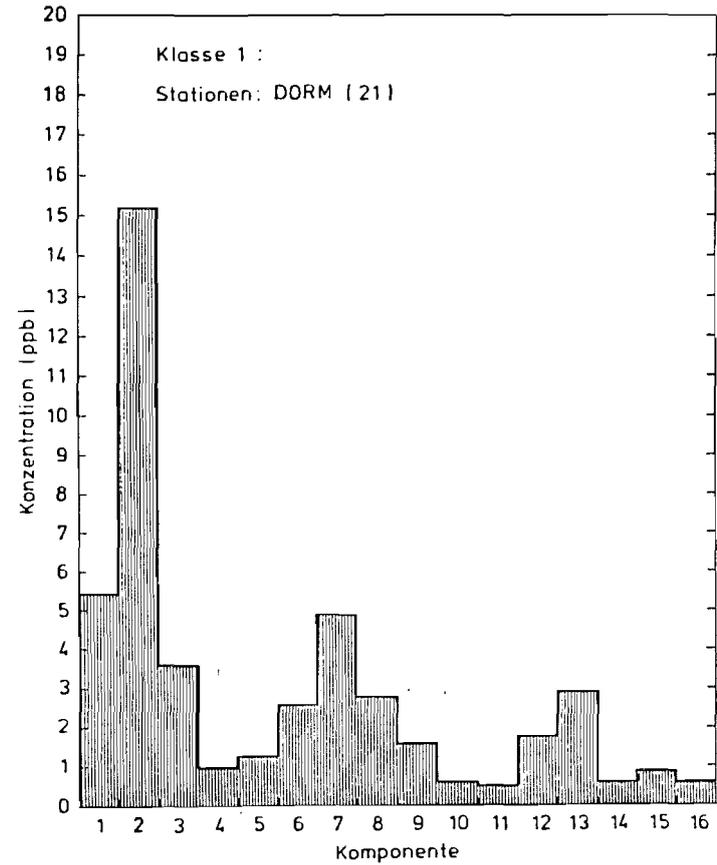


Abb. 6:
 Stationsprofil von Dormagen

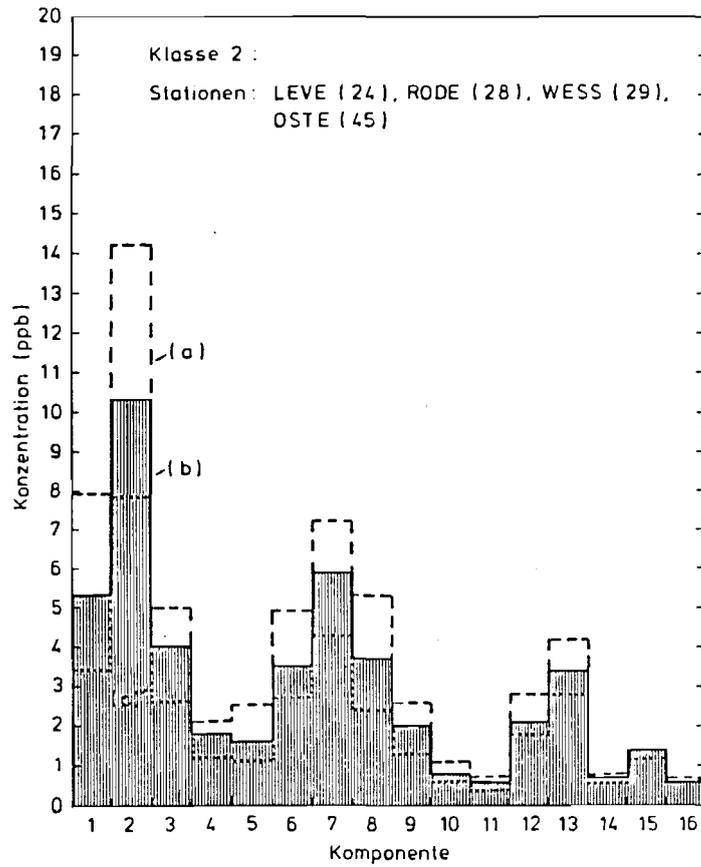


Abb. 7:
(a) Maximalwerte, (b) Mittelwerte
und (c) Minimalwerte der Stations-
profile der Klasse 2

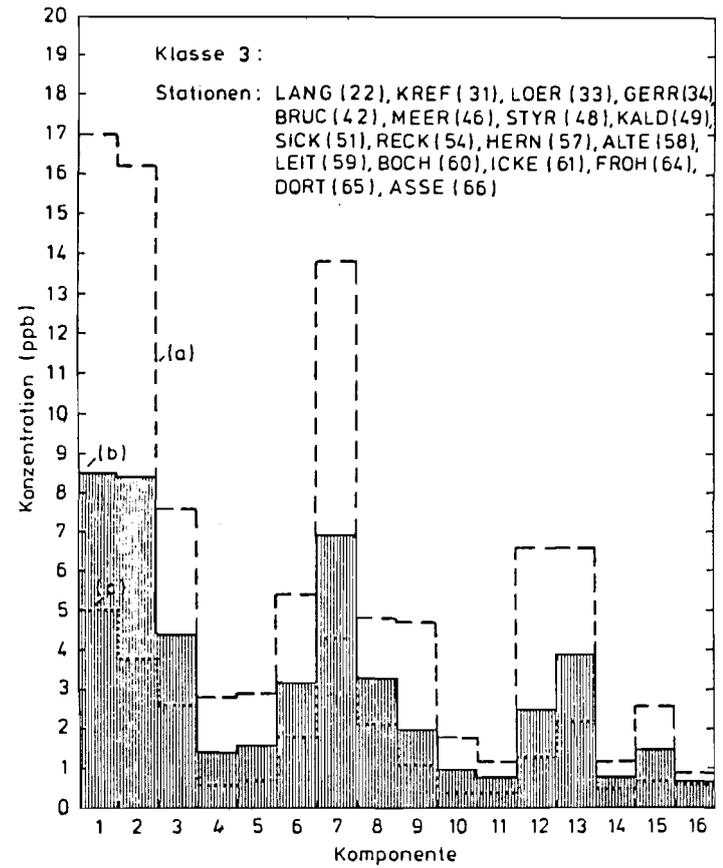


Abb. 8:
(a) Maximalwerte, (b) Mittelwerte
und (c) Minimalwerte der Stations-
profile in Klasse 3

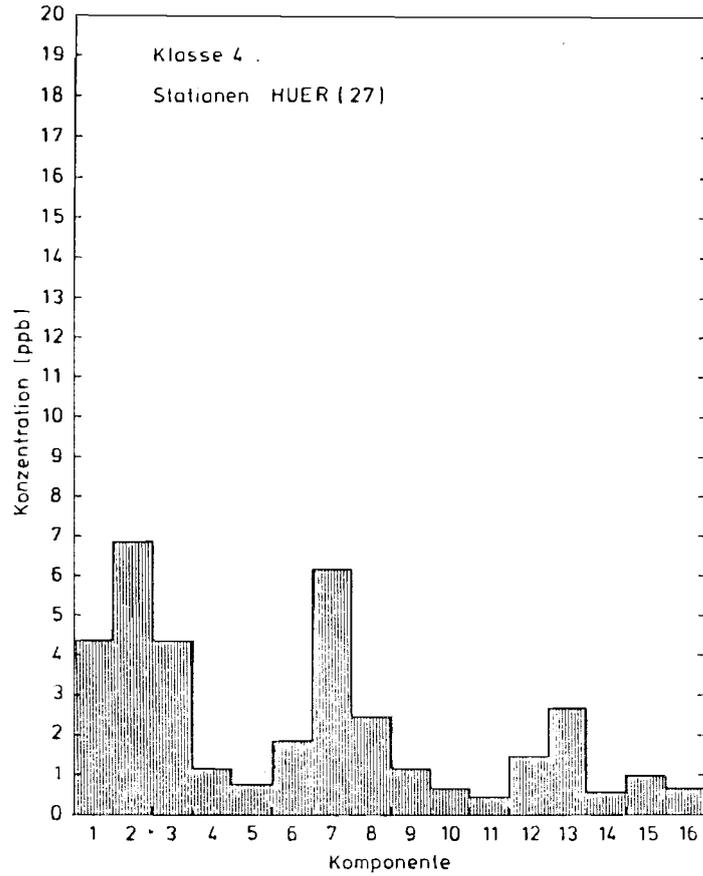


Abb. 9:
Stationsprofil von Huerth

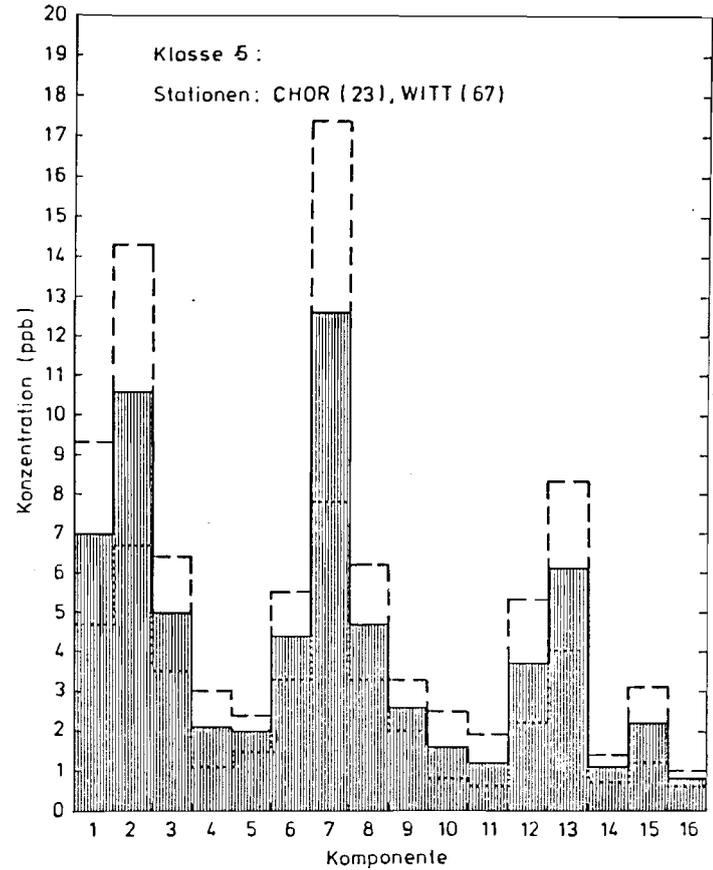


Abb. 10:
(a) Maximalwerte, (b) Mittelwerte
und (c) Minimalwerte der Stations-
profile in Klasse 5

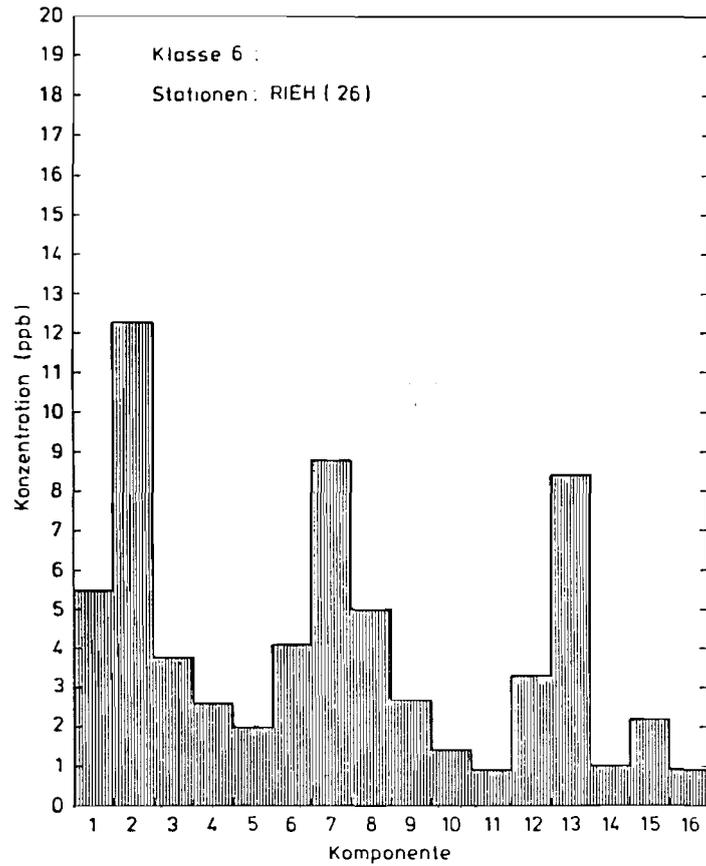


Abb. 11:
Stationsprofil von Riehl

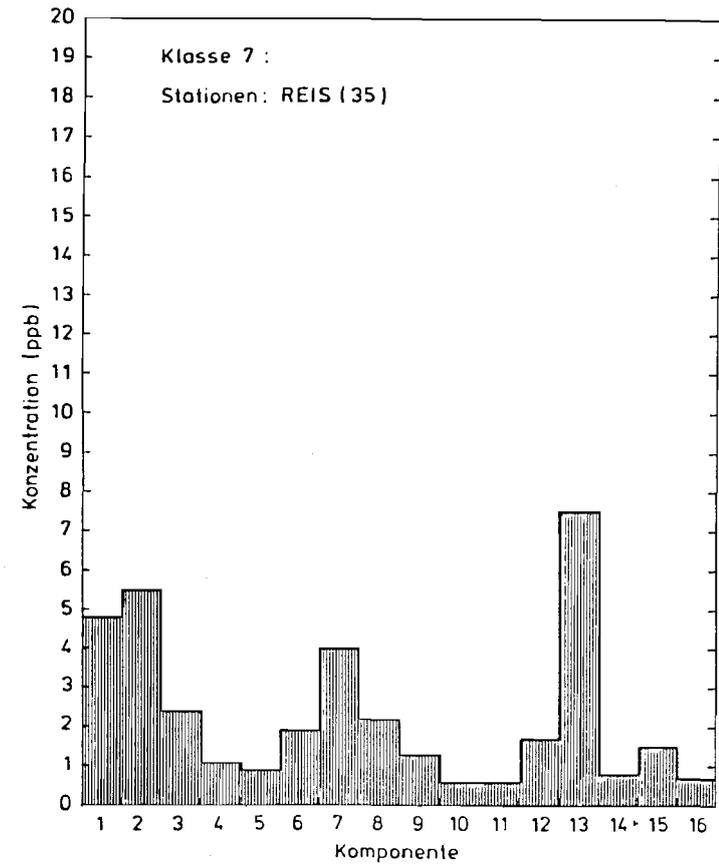


Abb. 12:
Stationsprofil von Düsseldorf-Reisholz

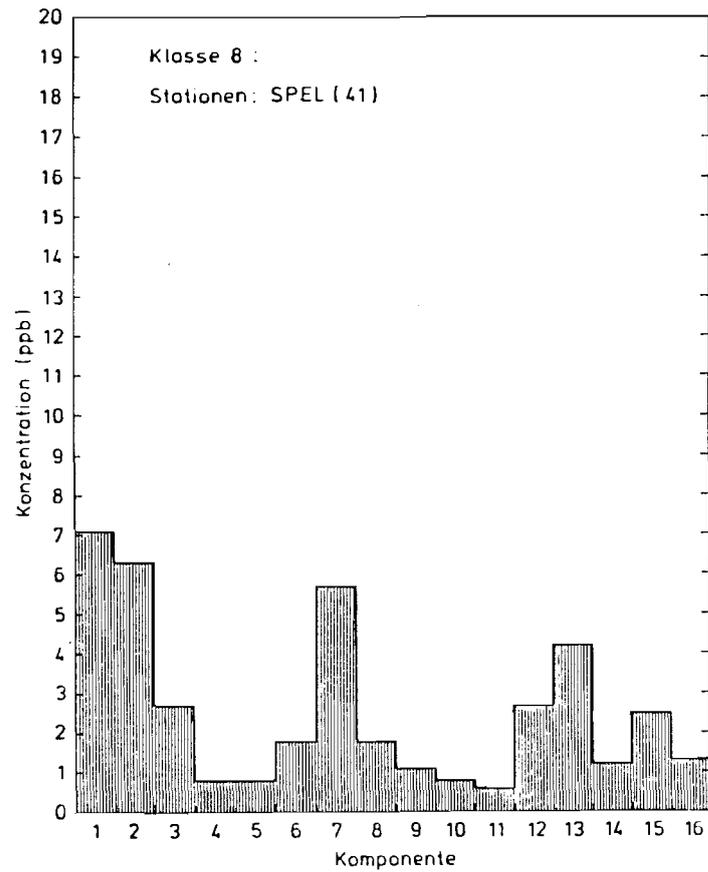


Abb. 13:
Stationsprofil von Voerde-Spellen

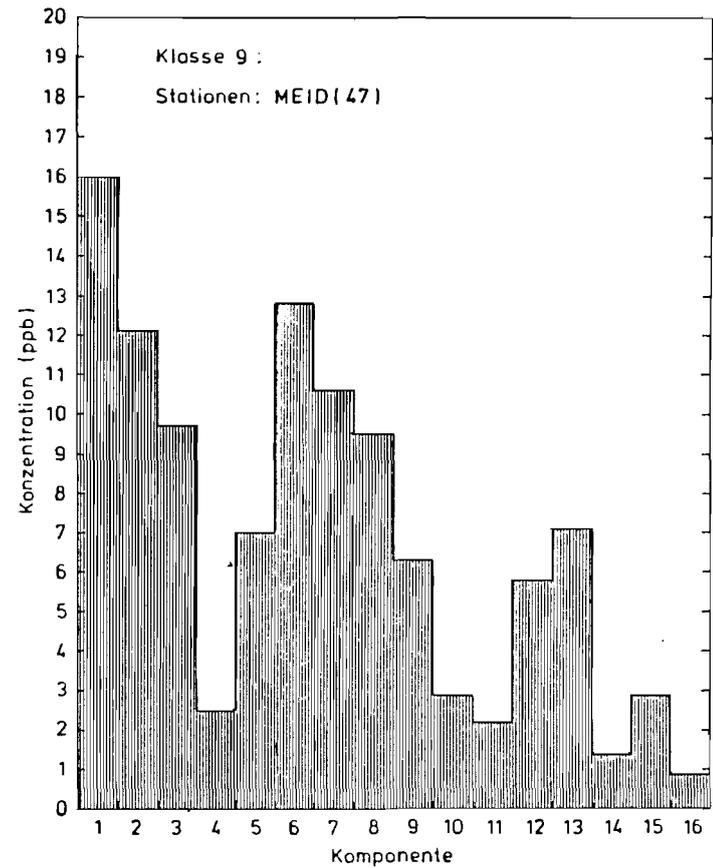


Abb. 14:
Stationsprofil von Duisburg-Meiderich

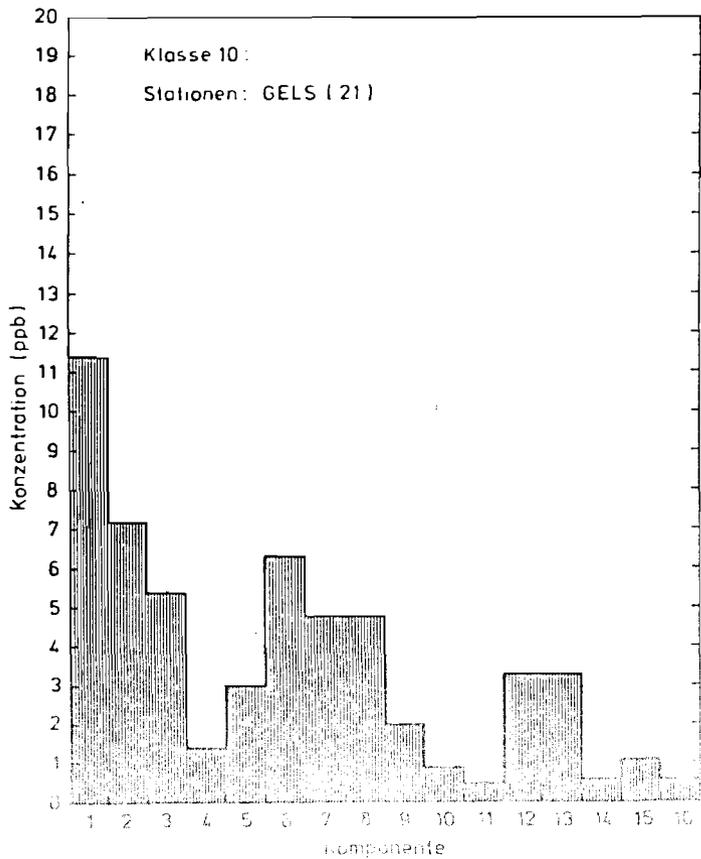


Abb. 15:
Stationsprofil von Geisenkirchen

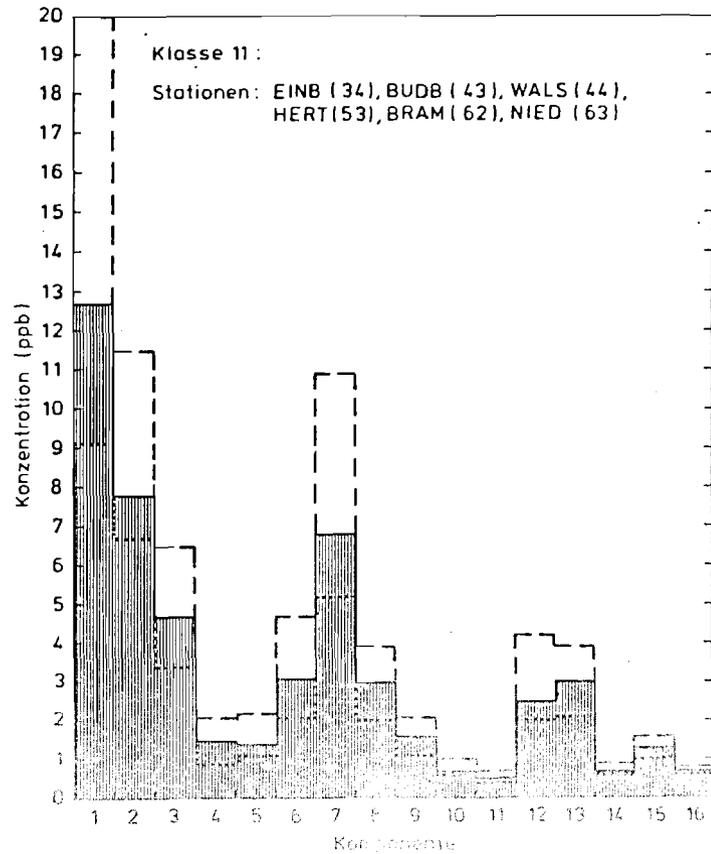


Abb. 16:
(a) Maximalwerte, (b) Mittelwerte
und (c) Minimalwerte der Stations-
profile in Klasse 11

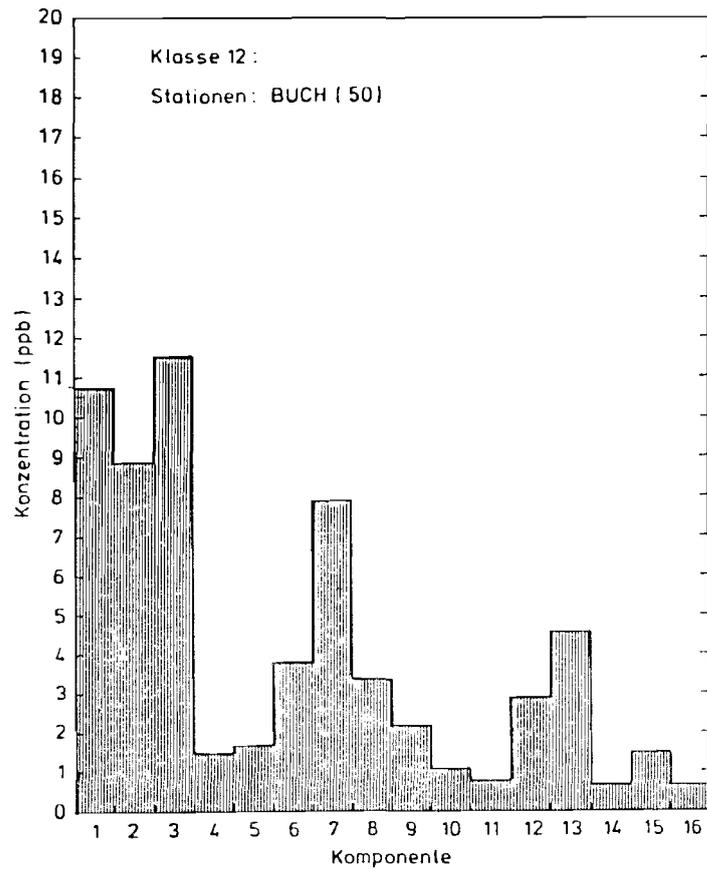


Abb. 17:
Stationsprofil von Duisburg-Buchholz

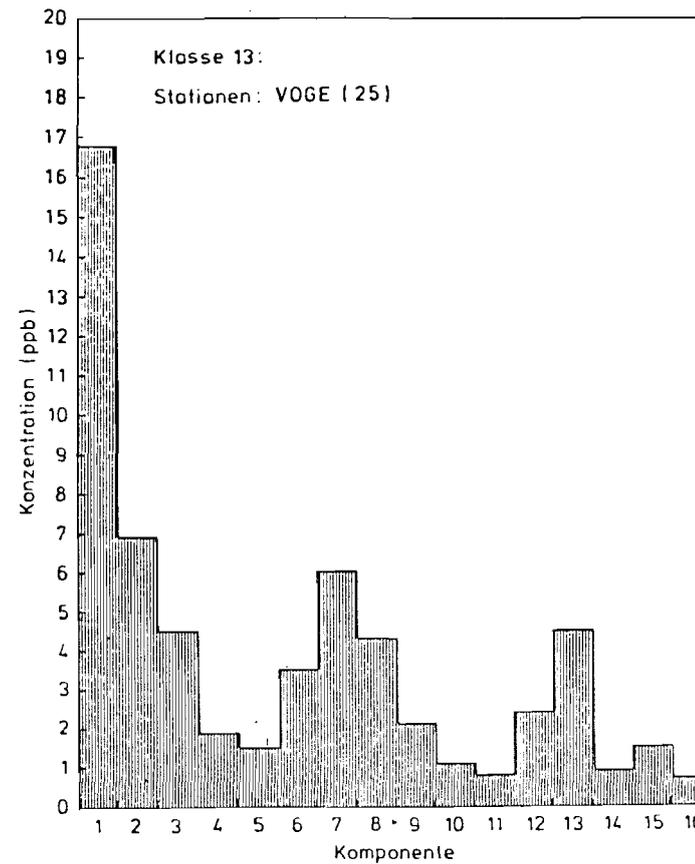


Abb. 18:
Stationsprofil von Vogelsang

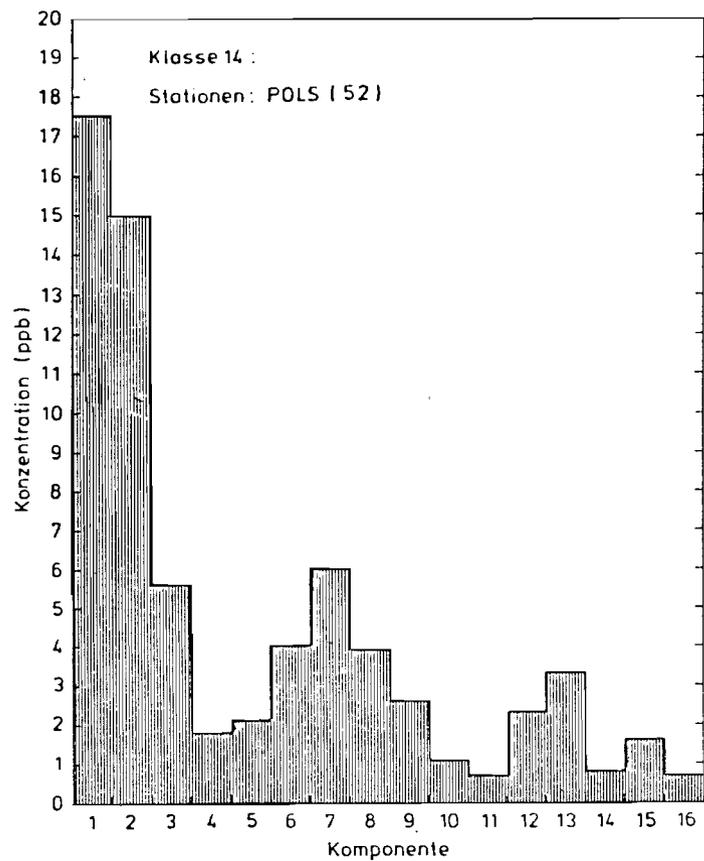


Abb. 19:
Stationsprofil von Marl-Polsum

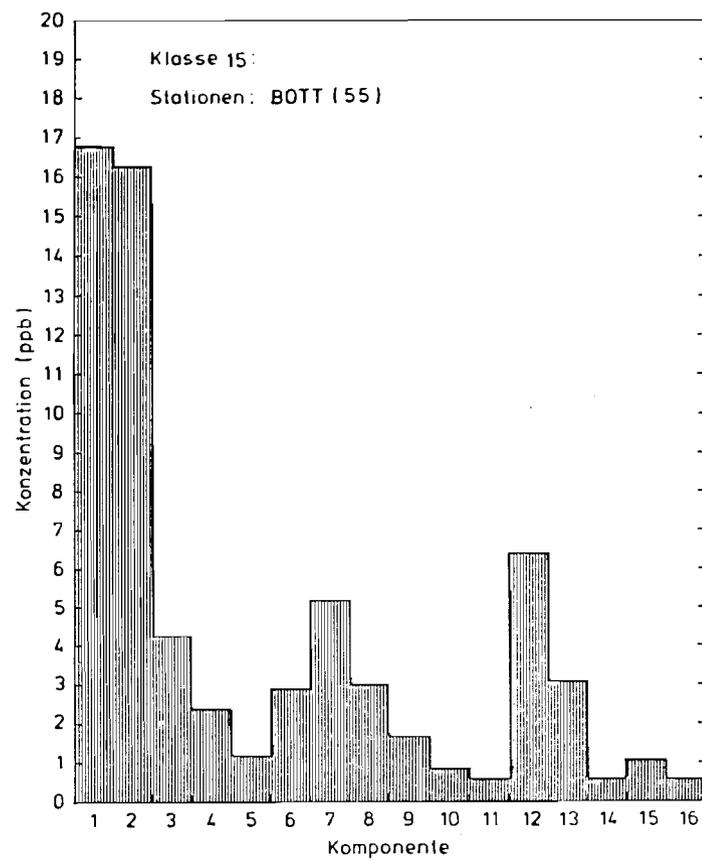


Abb. 20:
Stationsprofil von Bottrop

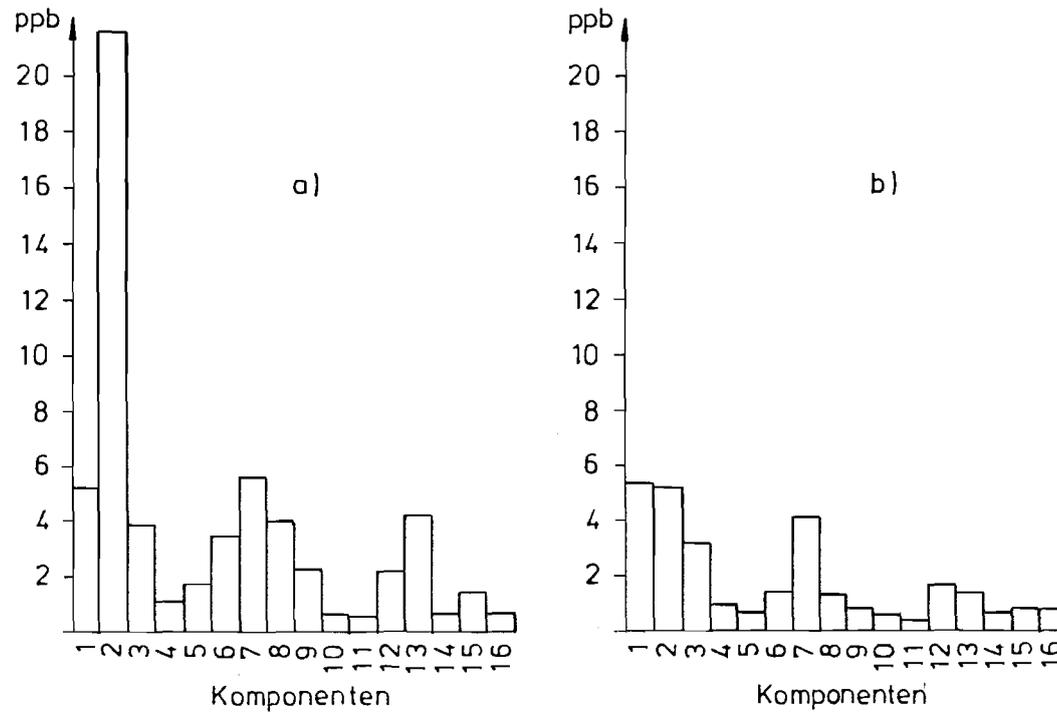


Abb. 21:

Windrichtungsabhängige

KW-Profile an der Station Dormagen (21).

(a) Wind aus südlichen Richtungen (10 Messungen),

(b) übrige Windrichtungen (8 Messungen)

Landesamt für
Umwelt und
Geologie
Bottrop

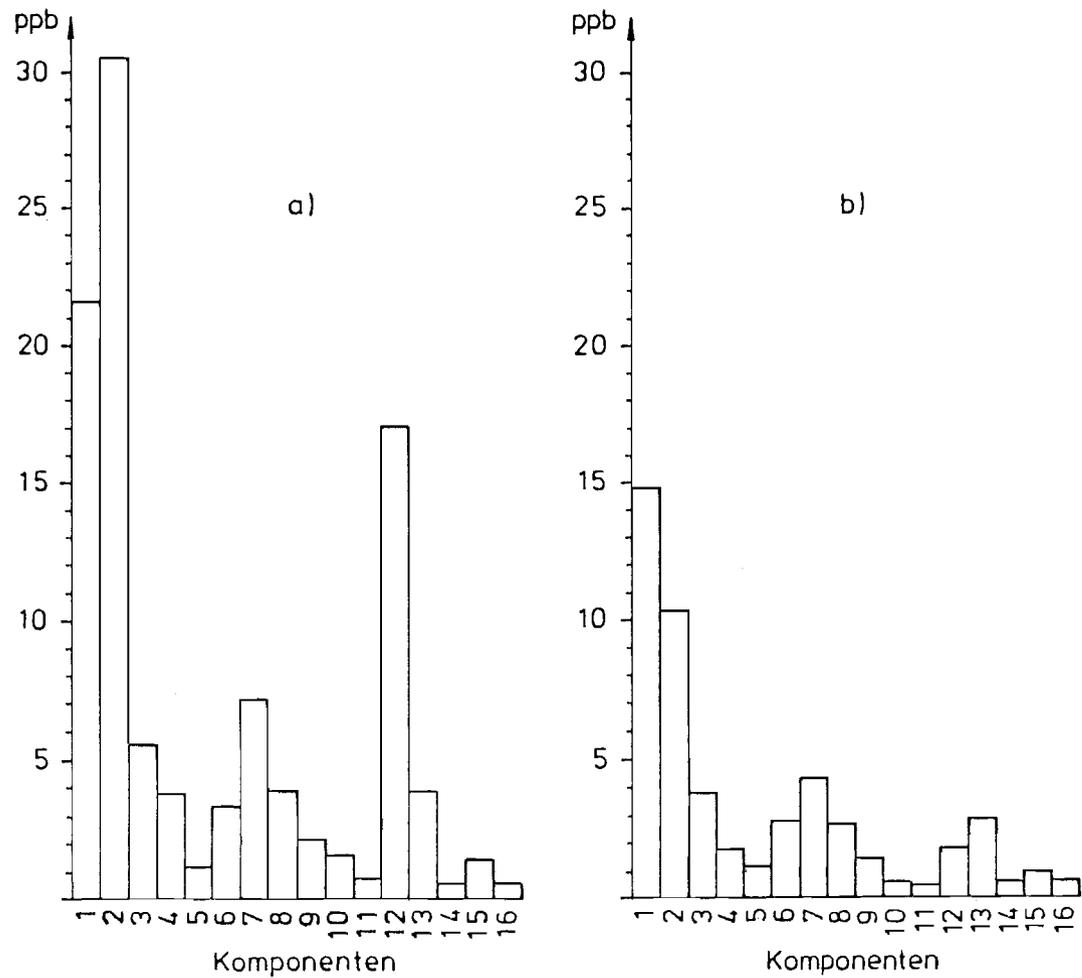


Abb. 22:

Windrichtungsabhängige KW-Profile
an der Station Bottrop (55).

(a) Wind aus SW (6 Messungen),

(b) übrige Windrichtungen (14 Messungen)

Berichte der

LANDESANSTALT FÜR IMMISSIONSSCHUTZ DES LANDES NORDRHEIN-WESTFALEN, ESSEN

- LIS-Berichte -

Die LIS-Berichte haben spezielle Themen aus den wissenschaftlichen Untersuchungen der LIS zum Gegenstand. Die in der Regel umfangreichen Texte sind nur in begrenzter Auflage vorrätig. Einzel Exemplare werden Interessenten auf Anforderung kostenlos zur Verfügung gestellt.

Anforderungen sind zu richten an die

Landesanstalt für Immissionsschutz
des Landes Nordrhein-Westfalen
Wallneyer Str. 6
4300 E s s e n 1

- Berichte-Nr. 1: KRAUTSCHEID, S. und P. NEUTZ:
(vergriffen) LIDAR zur Fernüberwachung von Staubemissionen.
- Nachweis der Kalibrierfähigkeit eines LIDAR-Systems -
Kurztitel: Fernüberwachung mit LIDAR
1978. 47 Seiten mit 11 Abbildungen, 6 Tabellen und 4 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 2: BUCK, M.:
(vergriffen) Die Bedeutung unterschiedlicher Randbedingungen bei der Messung und Beurteilung der Luftqualität.
Kurztitel: Randbedingungen bei der Beurteilung der Luftqualität.
1978. 44 Seiten mit 8 Abbildungen, 10 Tabellen und 20 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 3: SCHEICH, G.:
(vergriffen) Entwicklung und Anwendung von Ausbreitungsmodellen und Luftüberwachungsprogramme in den USA.
Kurztitel: Luftüberwachung und Ausbreitung - Ein USA-Reisebericht -
1979. 47 Seiten mit 17 Abbildungen und 74 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 4: SPLITTGERBER, H. und K.H. WIETLAKE:
(vergriffen) Ermittlung der Luftschalldämmung von Bauelementen für Industriebauten am Bau.
Kurztitel: Luftschalldämmung von Bauelementen für Industriebauten.
1979. 133 Seiten mit 53 Abbildungen, 13 Tabellen und 6 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 5: SPLITTGERBER, H.:
(vergriffen) Zur Problematik der Meßgrößen und Meßwerte bei Erschütterungsimmissionen.
Kurztitel: Meßgrößen und Meßwerte bei Erschütterungsimmissionen.
1979. 52 Seiten mit 13 Abbildungen, 2 Tabellen und 27 Literaturhinweisen.

- Berichte-Nr. 6: STRAUCH, H. und K.H. Goldberg:
(vergriffen) Ermittlung der Dämmwirkung von Dachentlüftern für Werkshallen im Einbauzustand unter Berücksichtigung der baulichen Nebenwege.
Kurztitel: Dämmwirkung von Dachentlüftern.
1979. 33 Seiten mit 13 Abbildungen, 2 Tabellen und 7 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 7: KRAUSE, G.M.H., B. PRINZ UND K. ADAMEK:
(vergriffen) Untersuchungen zur Anwendbarkeit der Falschfarbenfotografie für die Aufdeckung und Dokumentation von Immissionswirkungen auf Pflanzen.
Kurztitel: Falschfarbenfotografie - Ein Mittel zur Erkennung von Pflanzenschäden.
1980. 43 Seiten mit 9 Abbildungen, 2 Tabellen und 11 Karten.
- Berichte-Nr. 8: WIETLAKE, K.H.:
Erschütterungsminderung durch "Direktabfederung" von Schabotte-Schmiedehämmern.
Kurztitel: Erschütterungsminderung durch "Direktabfederung" von Schmiedehämmern.
1980. 59 Seiten mit 15 Abbildungen, 5 Tabellen und 7 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 9: STRAUCH, H.:
(vergriffen) Methoden zur Aufstellung von Lärminderungsplänen.
Kurztitel: Konzept für Lärminderungspläne.
1980. 49 Seiten mit 11 Abbildungen und 18 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 10: HILLEN, R.:
(vergriffen) Untersuchung zur flächenbezogenen Geräuschbelastungs-Kennzeichnung
-Ziele, Methodik, Ergebnisse-
Kurztitel: Flächenbezogene Geräusch-Immissionen.
1980. 75 Seiten mit 18 Abbildungen, 7 Tabellen und 12 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 11: MANNS, H., H. GIES und W. STRAMPLAT:
(vergriffen) Erprobung des Staub-Immissionsmeßgerätes FH62I für die kontinuierliche Bestimmung der Schwebstoffkonzentration in Luft.
Kurztitel: Schwebstaubmeßgerät FH62I für die automatische Immissionsmessung.
1980. 26 Seiten mit 10 Abbildungen und 2 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 12: GIEBEL, J.:
Verhalten und Eigenschaften atmosphärischer Sperrschichten.
Kurztitel: Verhalten atmosphärischer Sperrschichten.
1981. 39 Seiten mit 12 Abbildungen, 3 Tabellen und 4 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 13: BRÖKER, G., H. GLIWA und E. MEURISCH:
Abscheidegrade von biologisch- und chemisch-aktiven Aggregaten zur Desodorierung osmogener Abluft von Tierkörperbeseitigungsanlagen.
1981. 44 Seiten mit 7 Abbildungen, 13 Tabellen und 14 Literaturhinweisen.

- Berichte-Nr. 14: BRANDT, C.J.:
(vergriffen) Untersuchungen über Wirkungen von Fluorwasserstoff auf Lolium Multiflorum und andere Nutzpflanzen.
Kurztitel: Wirkungen von Fluorwasserstoff auf Lolium Multiflorum.
1981. 140 Seiten mit 37 Abbildungen, 22 Tabellen und 149 Literaturhinweisen.
(Abdruck der Dr. agr.-Dissertation vom 13. August 1979, Rheinische-Friedrich-Wilhelms-Universität, Landwirtschaftliche Fakultät, Bonn)
- Berichte-Nr. 15: WELZEL, K. und H.D. WINKLER:
Emission und interner Kreislauf von Thallium bei einem Drehrohrofen mit Schwebegaswärmeaustauscher zur Herstellung von Portlandzementklinker unter Einsatz von Purpurerz als Eisenträger. - 1. Bericht -
Kurztitel: Thallium-Emissionen bei der Herstellung von Portlandzement-Klinker.
1981. 67 Seiten mit 29 Abbildungen und 16 Tabellen.
- Berichte-Nr. 16: PRINZ, B.:
Umweltpolitik in der VR China und technologische Entwicklung.
(In Vorbereitung).
- Berichte-Nr. 17: BRÖKER, G. und H. GLIWA:
(vergriffen) Untersuchungen zu den Dioxin-Emissionen aus den kommunalen Hausmüllverbrennungsanlagen in Nordrhein-Westfalen.
Kurztitel: Dioxin-Emissionen aus Müllverbrennungsanlagen.
1982. 25 Seiten mit 2 Abbildungen, 6 Tabellen und 8 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 18: BUCK, M., H. IXFELD und K. ELLERMANN:
Die Entwicklung der Immissionsbelastung in den letzten 15 Jahren in der Rhein-Ruhr-Region.
Kurztitel: Entwicklung der Immissionsbelastung in der Rhein-Ruhr-Region seit 1965.
1982. 56 Seiten mit 7 Abbildungen, 14 Tabellen und 27 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 19: PFEFFER, H.U.:
(vergriffen) Das Telemetrische Echtzeit-Mehrkomponenten-Erfassungssystem TEMES zur Immissionsüberwachung in Nordrhein-Westfalen.
Kurztitel: Das Telemetrische Immissionsmeßsystem TEMES.
1982. 45 Seiten mit 12 Abbildungen, 4 Tabellen und 23 Literaturhinweisen.

- Berichte-Nr. 20: BACH, R.W.:
Über Schätzfunktionen zur Bestimmung hoher Quantile der Grundgesamtheit
luftverunreinigender Schadstoffkonzentrationen aus Stichproben.
Kurztitel: Über Schätzfunktionen zur Bestimmung hoher Quantile der
Grundgesamtheit.
1982. 43 Seiten mit 17 Abbildungen, 5 Tabellen und 22 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 21: STRAUCH, H.:
(vergriffen) Hinweise zur Anwendung flächenbezogener Schalleistungspegel.
1982. 92 Seiten mit 40 Abbildungen und 15 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 22: SPLITTGERBER, H.:
Verfahren zur Auswertung von Erschütterungsmessungen und zur Beurteilung von
Erschütterungsimmissionen.
Kurztitel: Erschütterungsmeß- und Beurteilungsverfahren.
1982. 71 Seiten mit 9 Abbildungen, 6 Tabellen und 23 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 23: KRAUSE, G.M.H.:
(vergriffen) Immissionswirkungen auf Pflanzen - Forschungsschwerpunkte in den Vereinigten
Staaten von Amerika. Bericht über eine Reise in die USA und die Teilnahme am 13.
Air Pollution Workshop in Ithaca, N. Y., in der Zeit vom 02.05.-24.05.1981.
Kurztitel: Immissionswirkungen auf Pflanzen - ein USA-Reisebericht -.
1982. 74 Seiten mit 1 Abbildung und 32 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 24: KÜLSKE, S.:
Analyse der Periode sehr hoher lokaler Schadstoffbelastungen
im Ruhrgebiet vom 15.01.1982 bis 20.01.1982.
Kurztitel: Hohe lokale Schadstoffbelastungen im Ruhrgebiet im Januar 1982.
1982. 80 Seiten mit 31 Abbildungen, 15 Tabellen und 4 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 25: VAN HAUT, H. und G.H.M. KRAUSE:
Wirkungen von Fluorwasserstoff-Immissionen auf die Vegetation.
Kurztitel: Fluorwasserstoff-Wirkungen auf Pflanzen.
1982. 27 Seiten mit 1 Abbildung, 4 Tabellen und 43 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 26: KOCH, E., V. THIELE, J. GIEBEL, H. STRAUCH und P. ALTENBECK:
Empfehlungen für die problemgerechte Erstellung von Immissionsschutzgutachten in
Bauleitplanverfahren.
Kurztitel: Empfehlungen bezüglich Immissionsschutzgutachten in Bauleitplan-
verfahren.
1982. 53 Seiten mit 10 Tabellen und 12 Literaturhinweisen.

- Berichte-Nr. 27: MANN, H., H. GIES und G. NITZ:
Verbesserung der Zuverlässigkeit und Vergleichbarkeit von Messungen zur Ermittlung aromatischer Kohlenwasserstoffe in der Außenluft.
Kurztitel: Anlage zur Qualitätssicherung von Immissionsmessungen (Aquim).
1982. 139 Seiten mit 21 Abbildungen, 8 Tabellen und 38 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 28: PRINZ, B., G.M.H. KRAUSE und H. STRATMANN:
Vorläufiger Bericht der Landesanstalt für Immissionsschutz über Untersuchungen zur Aufklärung der Waldschäden in der Bundesrepublik Deutschland.
Kurztitel: Waldschäden in der Bundesrepublik Deutschland.
1982. 154 Seiten mit 34 Abbildungen, 14 Tabellen und 101 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 29: GIEBEL, J.:
Untersuchungen über Zusammenhänge zwischen Sperrschichthöhen und Immissionsbelastung.
Kurztitel: Zusammenhänge zwischen Sperrschichthöhen und Immissionsbelastung.
1983. 42 Seiten mit 8 Abbildungen, 2 Tabellen und 9 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 30: MANN, H. und H. GIES:
Ergebnisse der Laborprüfung und Optimierung des meßtechnischen Teiles der Ozon-Meßplätze im Meßnetz LIMES-TEMES.
Kurztitel: Optimierung des Ozon-Meßplatzes in TEMES.
1983. 39 Seiten mit 10 Abbildungen, 11 Tabellen und 3 Literaturhinweisen.
- Berichte-Nr. 31: BEINE, H., R. SCHMIDT und M. BUCK:
Ein Meßverfahren zur Bestimmung des Schwefelsäure- und Sulfatgehaltes in Luft.
Kurztitel: Verfahren zur Bestimmung des Schwefelsäure- und Sulfatgehaltes in der Luft.
1983. 38 Seiten mit 3 Abbildungen, 2 Tabellen und 38 Literaturhinweisen.

Anmerkung:

Die LIS-Berichte - auch die vergriffenen - stehen Interessenten in vielen Universitäts- und Hochschulbibliotheken zur Ausleihe bzw. Einsichtnahme zur Verfügung.