

Dioxinmessungen im bayerischen Standortfichten-Netz – Ergebnisse der bisherigen Untersuchung und Perspektiven

Einleitung

Polychlorierte Dibenzop-dioxine und Dibenzofurane (PCDD/F) werden unter der Kurzbezeichnung „Dioxine“ subsummiert. Die Stoffgruppe umfasst eine Vielzahl von Verbindungen, die sich in Anzahl und Stellung der Chloratome unterscheiden. Für alle Verbindungen gilt, dass sie gut fettlöslich sind und sich in der Nahrungskette anreichern können. Sie wirken in unterschiedlichem Ausmaß gesundheitsschädigend. Dioxine sind in der Umwelt persistent, d.h. sie sind schlecht oder nicht abbaubar.

In die Umwelt gelangen Dioxine hauptsächlich über Verbrennungsprozesse aller Art. Hierzu zählen Emissionen aus industriellen Anlagen, dem Autoverkehr sowie dem Hausbrand. Durch die Umsetzung gesetzlicher Vorlagen konnte der Dioxinausstoß im industriellen Sektor deutlich verringert werden. Er ist jedoch parziell z.B. in der Metallindustrie (Schmelzbetriebe) immer noch von Bedeutung.

Fichten werden in Bayern bereits seit 1977 als Bioindikator der Schwefelbelastung eingesetzt. Aufgrund der lipophilen Eigenschaften der Fichtennadeln (wachsartige Cuticula) werden auch organische Moleküle wie Dioxine gut an der Nadeloberfläche absorbiert.

Ziele

Seit 1992 werden an ausgewählten Standorten des bayerischen Standortfichten-Messnetzes die Fichtennadeln auf Dioxin-Gehalte untersucht. Das Monitoring erfolgt im 2-jährigen Rhythmus, eingeteilt in eine Herbst- und eine darauf folgende Frühjahrprobennahme. Bis 2002 sollten die Standorte möglichst flächendeckend über Bayern beprobt werden. Aufgrund des hohen Probenaufkommens (pro Standort werden Proben von fünf Bäumen benötigt) und des damit verbundenen Aufwands für die Analytik, wurden

pro Probenserie nur ca. 15 – 30 Standorte untersucht. Insgesamt konnten im Zeitraum von 1992 – 2002 124 unterschiedliche Standorte beprobt werden, der überwiegende Teil der Standorte jedoch nur einmal. Lediglich 11 Fichten, darunter fünf von Dauerbeobachtungsstationen wurden wiederholt untersucht. Damit ist eine Interpretation regionaler Veränderung der PCDD/F-Gehalte in Fichtennadeln nicht möglich. Die genauen Standortcharakteristika (naturnah?, emittentennah?) waren bisher nicht festgelegt.

Um zukünftig standortbezogene Unterschiede der Belastung mit PCDD/F zu erkennen und statistisch gesicherte Aussagen (Signifikanz!) zu Trendentwicklungen zu ermöglichen, sollte nun aus dem bestehenden Standortfichten-Messnetz ein festes „Dioxin-Messnetz“ abgeleitet werden. Diesem Vorhaben gingen folgende Überlegungen voraus:

- Das Messnetz sollte möglichst klein gehalten werden, um den Probenumfang zu begrenzen und damit eine kostenverträgliche Beprobung zu gewährleisten.
- Die Standorte sollten typisiert sein, d.h. den Bezug zu unterschiedlichen Emittenten repräsentieren.
- Die Probenahmestandorte sollten möglichst flächenrepräsentativ über Bayern verteilt sein.

Untersuchungsgebiete

Abbildung 1 gibt einen Überblick der zwischen 1992 und 2002 beprobten Standorte: die erste Jahreszahl in der Legende bezeichnet die Herbstprobennahme, die zweite Jahreszahl jeweils die Frühjahrsbeprobung. In diesem Zeitraum wurden 124 unterschiedliche Standorte beprobt. Die Standorte sind nahezu flächendeckend über alle Landkreise Bayerns verteilt.

Joachim Nittka
Tel.: 0821/9071-5288,
joachim.nittka@lfu.bayern.de

Karten aller bisher beprobter Standorte

Abbildung 2 zeigt die ausgewählten Standorte im Messnetz „Fichten Dioxinbeprobung“: darin enthalten sind 28 Standorte, die vorrangig beprobt werden sollen sowie 18 weitere die, sollte eine Probenahme an einzelnen Standorten im Messnetz nicht möglich sein, alternativ beprobt werden können. Das Messnetz konnte im Herbst 2003 bzw. Frühjahr 2004 erstmals beprobt werden.

Methode

Die Beprobung im Herbst (September bis Oktober) erfolgte gleichzeitig mit der Probenahme zur Schwefeluntersuchung der Fichtennadeln.

Dabei wurden die im aktuellen Jahr gebildeten Triebe im Kronenbereich geschnitten. Die Entnahme der Fichtentriebe von drei (zuvor fünf) Bäumen gewährleistet eine homogene, gebietstypische Probe und liefert eine ausreichend große Probenmenge. Die Probenahme im darauf folgenden Frühjahr (April) berücksichtigt die gleichen Standorte und Bäume.

Die Fichtentriebe werden in Alufolie und Polyethylen-Beutel verpackt und im gekühlten Zustand ins Labor transportiert. Dadurch sollen etwaige Abbauvorgänge der PCDD/F in den Fichtennadeln verhindert werden.

Pro Standort wurde eine Mischprobe aus drei (zuvor fünf) Bäumen gebildet und im Dioxinlabor des LfU mit mittels GC-MS untersucht.

Ergebnisse

Abbildungen 3 bis 8 zeigen die Ergebnisse und die räumliche Zuordnung aller bisherigen Untersuchungen seit 1992. Die einzelnen Dioxin-Verbindungen wurden nicht getrennt ausgewertet sondern nach ihrem Toxizitätsmaß (I-TEQ [ng/kg TG]) betrachtet. Die Skaleneinteilung der I-TEQ- Werte in den folgenden Karten orientiert sich nicht an Grenz- oder Richtwerten sondern dient ausschließlich einer guten Differenzierbarkeit der Ergebnisse. Die Fehlerwahrscheinlichkeit liegt in der Klasse „min. < 0,20 I-TEQ ng/kg“ bei 40 – 50 %; in den Klassen „0,40 – 0,60 I-TEQ ng/kg“ und „0,60 – max. I-TEQ ng/kg“ bei 25 %.

Abbildung 9 zeigt den Zeitverlauf der mittleren I-TEQ Werte einer Serie aller bisher beprobten Standorte getrennt nach Frühjahr und Herbst.

Die Dioxingehalte haben seit der ersten Probenahme 1992/93 abgenommen, wobei die Frühjahrsprobenahme immer höhere Werte zeigt, als die vorherige Herbstunter-

suchung. Der dargestellte Graph hat aber eine begrenzte Aussagefähigkeit, da von Jahr zu Jahr unterschiedliche Standorte beprobt worden sind. Ein Vergleich mit Auswertungen von über die Jahre wiederholt beprobten Standorten (s.u. Untersuchung der GSF) lässt jedoch eine gute Übereinstimmung im Trendverlauf erkennen.

Zusammenfassend stellen wir fest:

- Die Dioxin-Sonderbeprobungen im Immissionsökologischen Fichtenmessnetz zeigen insgesamt einen Rückgang der Dioxingehalte in Fichtennadeln seit 1992.
- Die Dioxingehalte der Fichtennadeln aus der Frühjahrsbeprobung sind bayernweit im Mittel stets höher als die der Herbstbeprobung.

Dies scheint auf den ersten Blick nicht zu verwundern, da die im Frühjahr beprobten Fichtentriebe vergleichsweise länger anreichern konnten. Frühere Untersuchungen (LfU 1994) habe jedoch gezeigt, dass die Beheizung von Haushalten eine zusätzliche Emission zu den ganzjährigen PCDD/F-Emissionen, die durch Verkehr, Industrie und z.T. durch Müllverbrennung entstehen, verursacht. Der durch die Heizperiode bedingte Anstieg der Anreicherung war an den emittentennahen Standorten wesentlich höher als an unbelasteten Standorten.

Inwieweit in Bayern auch regional unterschiedliche Anreicherungen auftreten, lässt sich auf Grund der wenigen Messkampagnen an den jeweiligen Messstandorten nicht abschätzen.

Statistische Auswertungen

Begleitend zu unseren eigenen Untersuchungen wurden die Messdaten der Probenreihen von 1992 bis 2002 am Institut für Entwicklungsgenetik der GSF (Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit) einer umfangreichen statistischen Analyse unterzogen. Im Vordergrund standen die folgenden Fragestellungen:

- Gibt es belastbare Trends zur landesweiten Dioxinbelastung in Bayern?
- Können die bisher beprobten Standorte nach folgenden Gruppen charakterisiert werden:
 - naturnah,
 - Siedlungsgebiet mit Hausbrandbelastung,
 - Verkehrsbelastung,
 - Belastung durch dioxinemittierende Anlagen?
- Kann aus den bisher wechselnd beprobten Standorten ein zukünftig festes Messnetz abgeleitet werden?

Trendauswertung

Die Zeitverläufe der I-TEQ -Werte der Fichten, die in mehreren Serien beprobt worden sind weisen bis einschließlich 2000 auf einen abnehmenden Trend hin. 2001/2002 waren höhere Messergebnisse zu verzeichnen. Dieser Anstieg kann möglicherweise jedoch erst beim Vorliegen der Ergebnisse der aktuellen Serie (2003/2004) bewertet werden.

Untersuchung der Standortcharakteristika

Durch die Typisierung sollten geeignete Standorte für ein festes Messnetz ausgewählt werden. Diese Standorte sollten den jeweiligen Standorttyp möglichst gut widerspiegeln.

Unterstützend wurden hierbei folgende Informationsquelle mit Hilfe eines GIS ausgewertet:

- Verkehrswegenetz (Straßen) → shape-Dateien in ArcView GIS
- Genehmigungspflichtige Anlagen aus EE1996, teilweise EE2000 → shape-Dateien in ArcView GIS
- Anlagen, die laut Betreiberklärung Dioxin emittieren → shape-Dateien in ArcView GIS
- Andere Anlagen, die bekanntermaßen Dioxin emittieren: Gießereien und Schmelzbetriebe, Schredderanlagen, Abfallverbrennungsanlagen, Holzfeuerungen
- Topografische Karten und Orthophotos → shape-Dateien in GeolInfo
- Thematische Karten zu Naturschutzgebieten, Nationalparks, Naturparks und Landschaftsschutzgebieten → shape-Dateien in GeolInfo

Jeder der 124 bislang beprobten Fichtenstandorte wurde im Umkreis von 10 km bzgl. der oben aufgelisteten Faktoren betrachtet. Die Ergebnisse dieser thematischen Untersuchung wurden codiert und mit Hilfe des Statistikprogramms „R“ verrechnet.

Aus den eingespeisten Informationen ließ sich für die 124 Standorte folgende Gruppeneinteilung ableiten:

Gruppe	Anzahl
naturnah	32
naturnah mit Holzfeuerung	7
Siedlung	18
Verkehr	14
Siedlung und Verkehr	14

Diese Gruppeneinteilung ist nicht ganz unabhängig von der *mutmaßlichen* Dioxinbelastung; inwieweit die Fichten ihren zugeordneten Typus *tatsächlich* widerspiegeln, sollen die zukünftigen Beprobungen zeigen. Statistische Analysen der bisherigen Ergebnisse lassen keine signifikanten Unterschiede der I-TEQ-Werte zwischen den Gruppen erkennen.

Ziel der Untersuchung war es, Standorte mit eindeutigen Charakteristika auszuwählen. Hierfür wurden die Eigenschaften von 52 weiteren, bisher nicht beprobten Standorten in der gleichen Weise wie oben beschrieben recherchiert.

Aus den vorliegenden Gruppen konnten anschließend jene Standorte selektiert werden, deren Klassenzugehörigkeit besonders gut ausgeprägt erschien – sie sind als Standorte für die künftige Beprobung festgelegt.

Sie verteilen sich folgendermaßen auf die Kategorien:

- 13 naturnahe Standorte, darunter sechs bisher nicht beprobte
- sechs Standorte mit Siedlungen in der Nähe, darunter vier bisher nicht beprobte
- vier Standorte mit Verkehrsbelastung, davon ein bisher nicht beprobter
- neun Standorte mit Industrie in der Umgebung, davon vier bisher nicht beprobte
- sechs Standorte mit Belastung durch Siedlung, Verkehr und Industrie, davon ein bisher nicht beprobter
- acht sonstige Standorte, davon zwei bisher nicht beprobte. Sie wurden ausgewählt, damit auch Regionen in Bayern repräsentiert sind, in denen keine Standorte mit prägnanter Belastungscharakteristik zu finden sind.

Eine Übersicht der typisierten und festgelegten Standorte im künftigen Messnetz gibt Abbildung 10.

Perspektiven

In zunehmendem Maße gewinnen nachwachsende Rohstoffe, unter ihnen vor allem Holz, für die Wärmegegewinnung Bedeutung. Unter ungünstigen Bedingungen treten bei Holzfeuerungen Dioxinmissionen auf.

In einem laufenden Projekt des LfU zur Immissionsbelastung durch den Hausbrand werden ausgewählte Gebiete genauer untersucht. Wir beabsichtigen in deren Nähe Fichten gezielt auf Dioxinbelastung zu untersuchen. Damit wollen wir abschätzen, in welchem Maße Holzfeuerungen zur PCDD/F-Anreicherung beitragen können.

Gleichzeitig könnten die dabei gewonnenen Ergebnisse zur Überprüfung und Referenzierung der Standorttypisierung (vgl. Abb. 10) herangezogen werden

Literatur

LfU (2003): Dioxinähnliche PCB in der Umwelt – Quellen, Verbleib, Exposition und gesundheitliche Bewertung, Augsburg

LfU (1994): Berichte aus dem Bayerischen Landesamt für Umweltschutz (6), Heft 126: Der PCDD/F-Gehalt in Fichtennadeln vor und nach der winterlichen Heizperiode. Abklärung des Einflusses von Hausbrand, München

Anhang

Immissionsökologisches Standortfichten-Messnetz Dioxin-Sonderbeprobung

LfU - PS 3

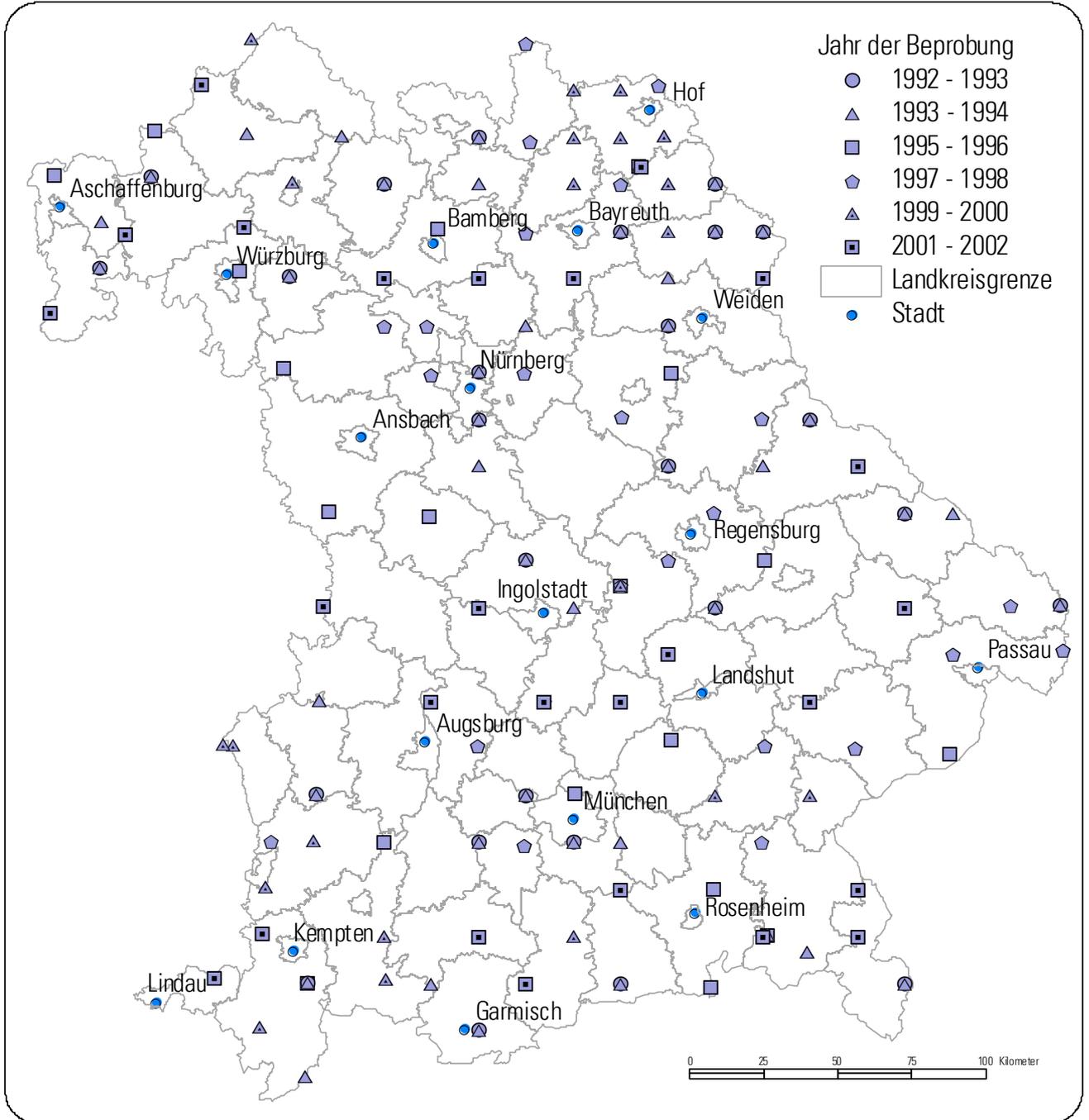


Abb. 1: Dioxin Sonderbeprobung – Beprobungsplan 1992 – 2002

Immissionsökologisches Standortfichten-Messnetz Dioxin-Sonderbeprobung

LfU - PS 3

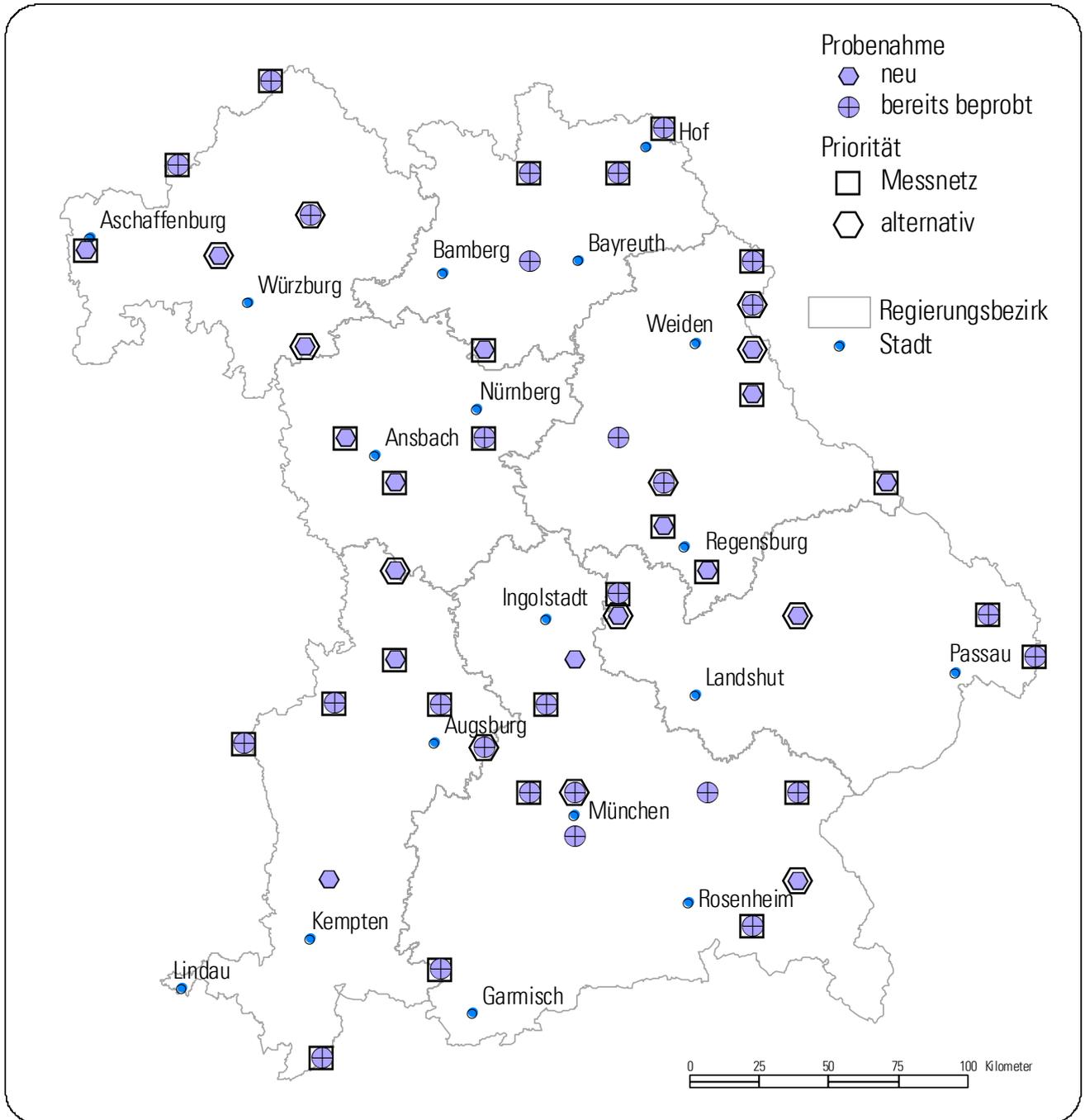


Abb. 2: Dioxin Sonderbeprobung – Zukünftiges Messnetz

Immissionsökologisches Standortfichten-Messnetz Dioxin-Sonderbeprobung

LfU - PS 3

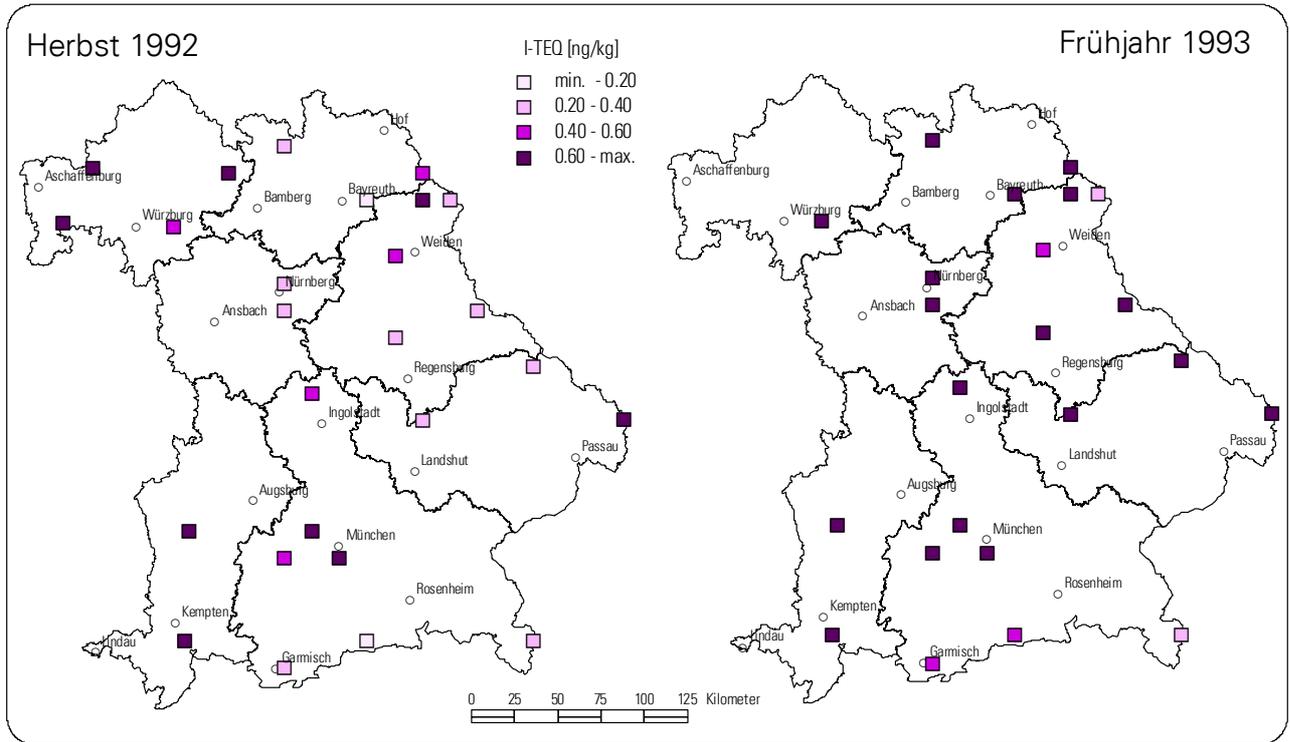


Abb. 3: Dioxin Sonderbeprobung –Herbst 1992 und Frühjahr 1993

Immissionsökologisches Standortfichten-Messnetz Dioxin-Sonderbeprobung

LfU - PS 3

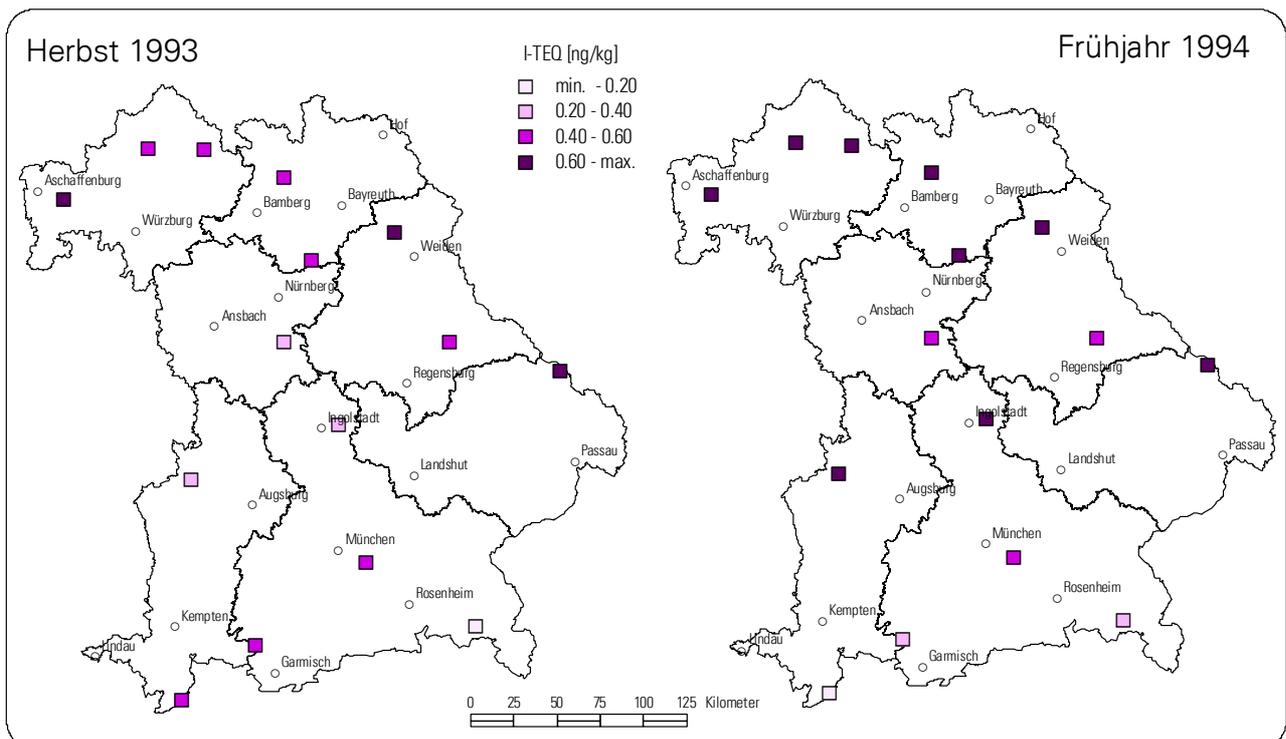


Abb. 4: Dioxin Sonderbeprobung – Herbst 1993 und Frühjahr 1994

Immissionsökologisches Standortfichten-Messnetz Dioxin-Sonderbeprobung

LfU - PS 3

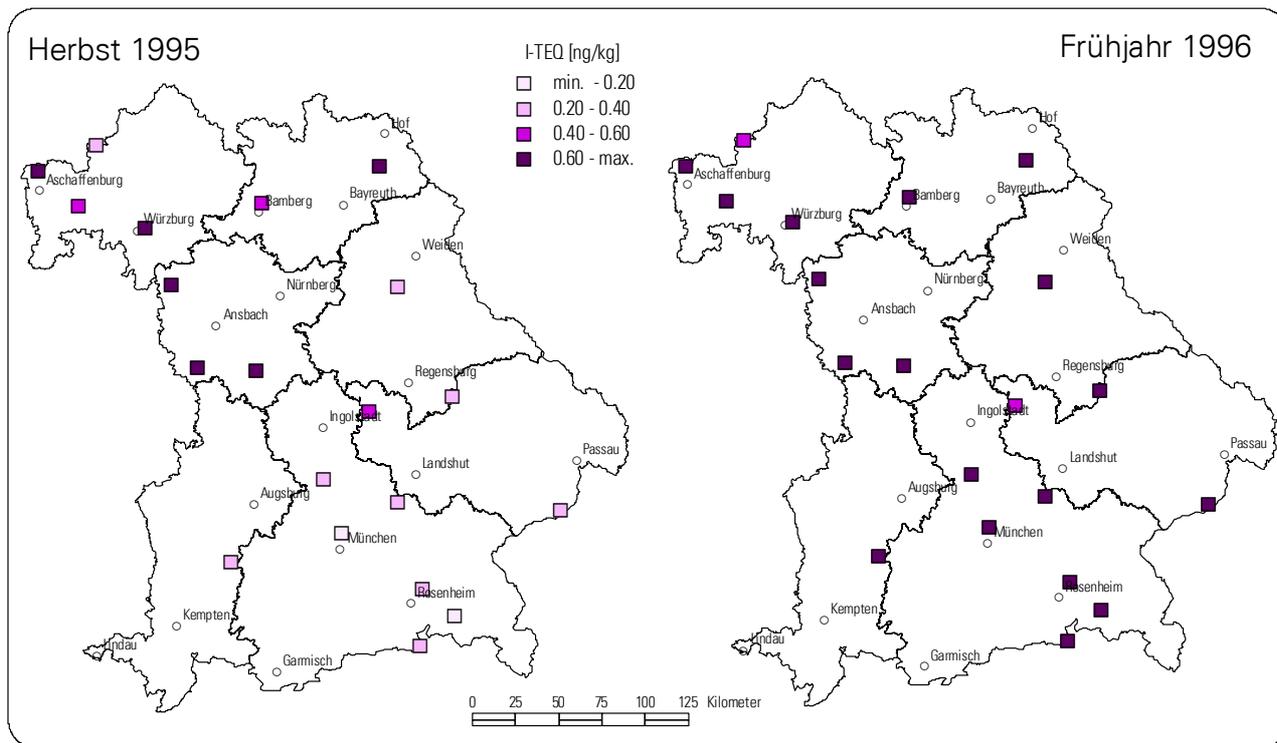


Abb. 5: Dioxin Sonderbeprobung – Herbst 1995 und Frühjahr 1996

Immissionsökologisches Standortfichten-Messnetz Dioxin-Sonderbeprobung

LfU - PS 3

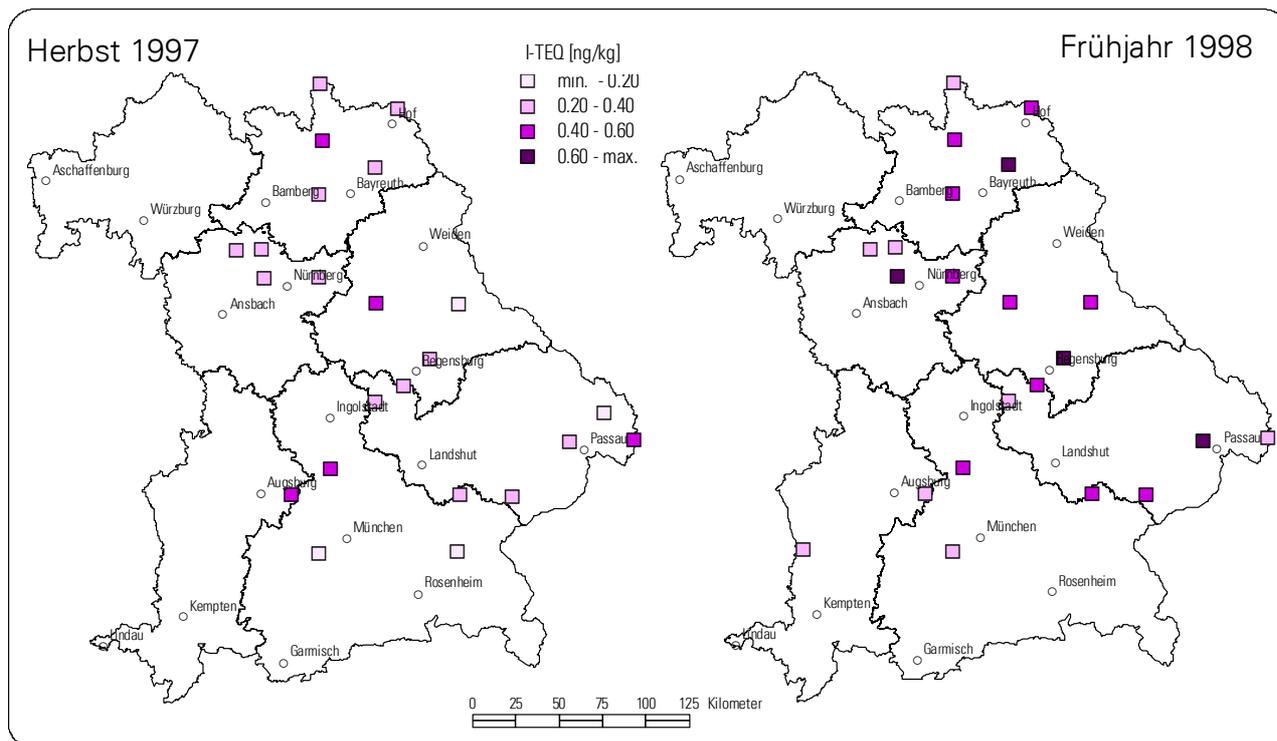


Abb. 6: Dioxin Sonderbeprobung – Herbst 1997 und Frühjahr 1998

Immissionsökologisches Standortfichten-Messnetz Dioxin-Sonderbeprobung

LfU - PS 3

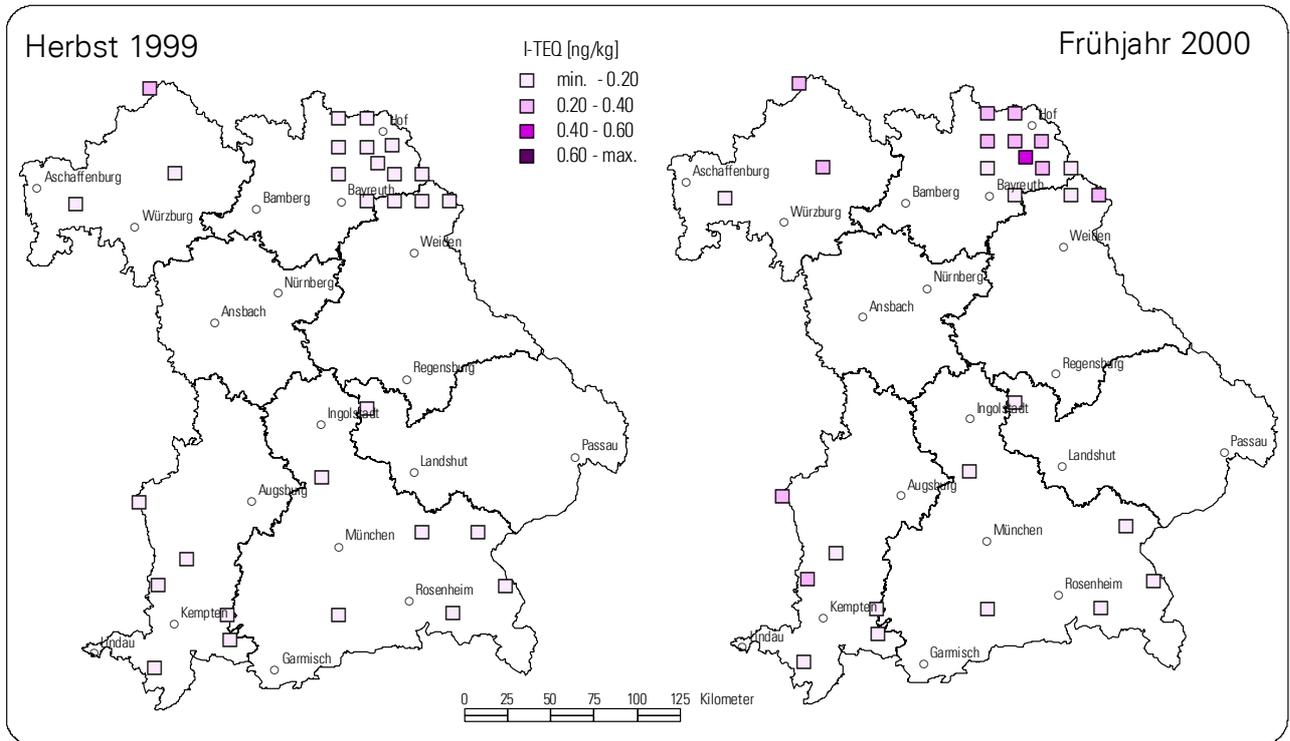


Abb. 7: Dioxin Sonderbeprobung – Herbst 1999 und Frühjahr 2000

Immissionsökologisches Standortfichten-Messnetz Dioxin-Sonderbeprobung

LfU - PS 3

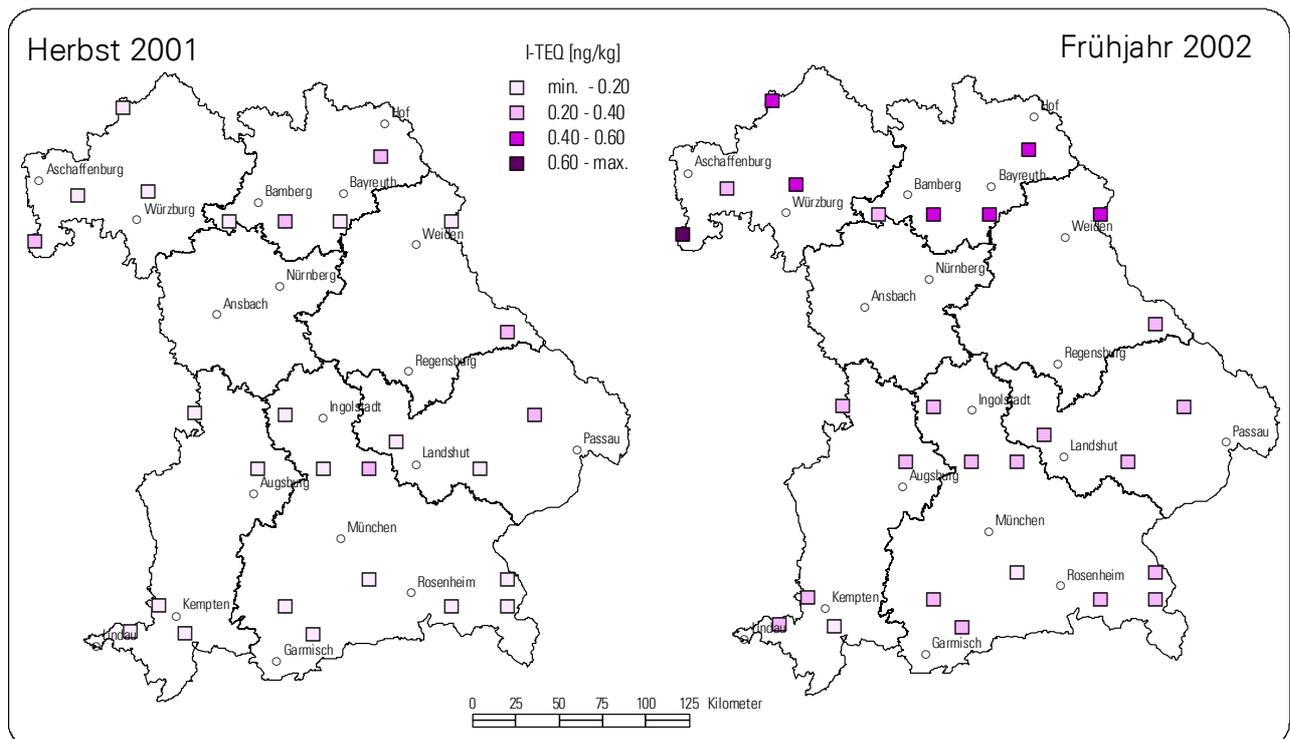


Abb. 8: Dioxin Sonderbeprobung – Herbst 2001 und Frühjahr 2002

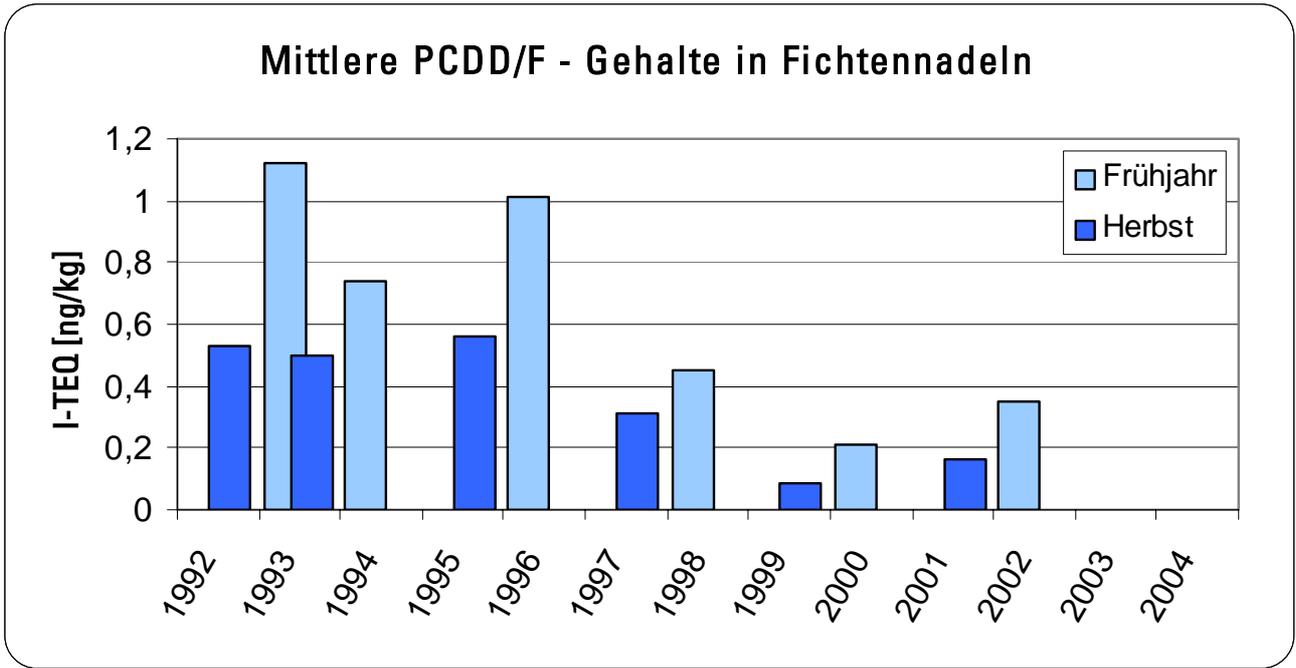


Abb. 9: Zeitverlauf 1992 – 2002 der Mittleren PCDD/F-Gehalte in Fichtennadeln (Messergebnisse stammen z.T. von unterschiedlichen Messstandorten!)

Immissionsökologisches Standortfichten-Messnetz Dioxin-Sonderbeprobung

LfU - PS 3

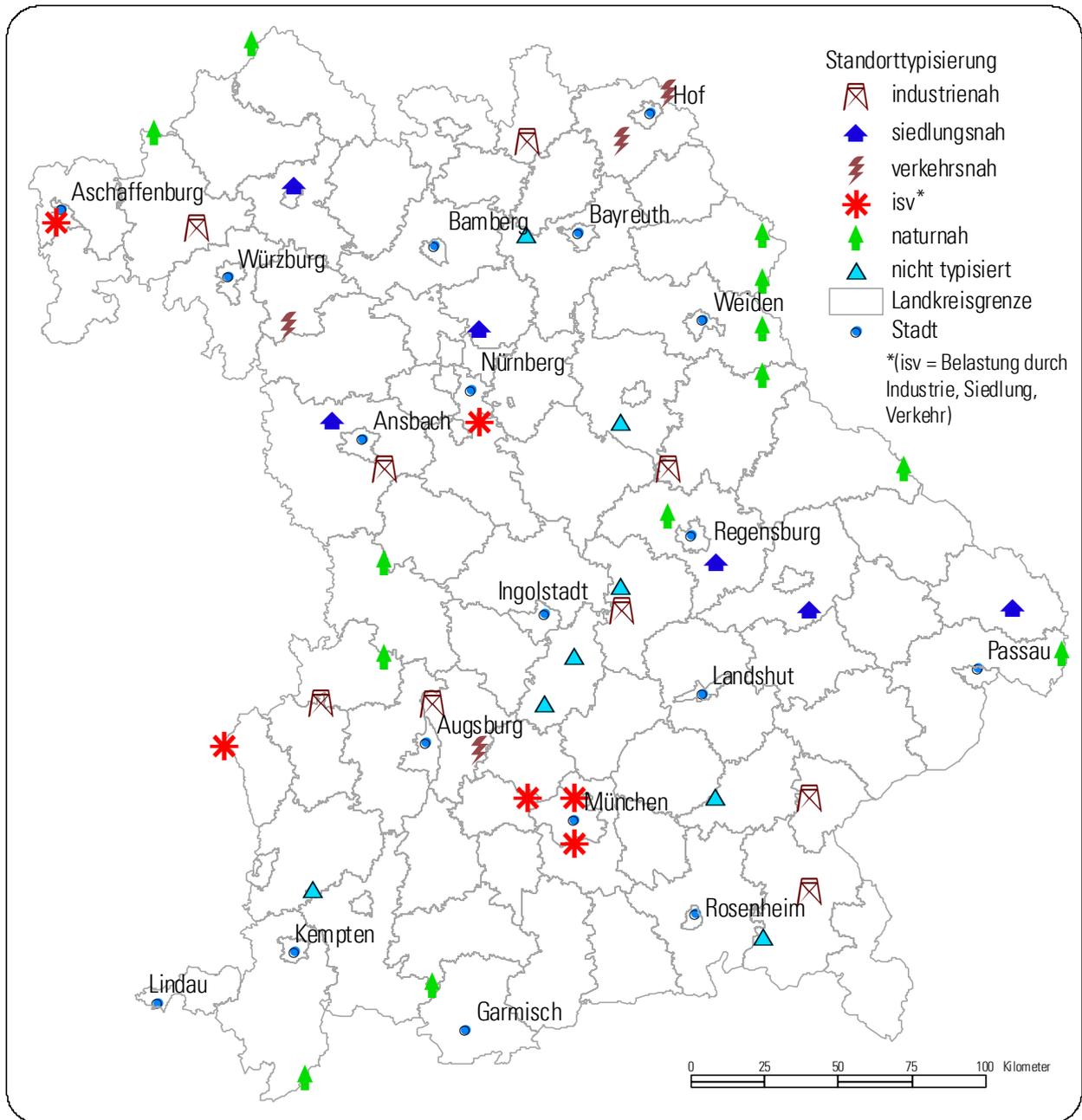


Abb. 10: Übersicht der typisierten und festgelegten Standorte im künftigen Messnetz