

SCHRIFTENREIHE

DES VEREINS FÜR WASSER-, BODEN- UND LUFTHYGIENE
BERLIN-DAHLEM / GEGRÜNDET IM JAHRE 1902

HERAUSGEgeben IM AUFRAGE DES
VEREINS FÜR WASSER-, BODEN- UND LUFTHYGIENE
VON PROF. DR. E. TIEGS

—Nr. 25—

Schwefeldioxid-Immissionen im Raum Mannheim/Ludwigshafen

Von

Dr.-Ing. Erdwin Lahmann, Dipl.-Phys. Wolfram Morgenstern
und Physikochemiker Leonhard Grupinski



GUSTAV FISCHER VERLAG · STUTTGART

1967

SCHRIFTENREIHE

DES VEREINS FÜR WASSER-, BODEN- UND LUFTHYGIENE
BERLIN-DAHLEM / GEGRÜNDET IM JAHRE 1902

HERAUSGEGEBEN IM AUFTRAGE DES
VEREINS FÜR WASSER-, BODEN- UND LUFTHYGIENE
VON PROF. DR. E. TIEGS

Nr. 25

Schwefeldioxid-Immissionen im Raum Mannheim/Ludwigshafen

Von

Dr.-Ing. Erdwin Lahmann, Dipl.-Phys. Wolfram Morgenstern
und Physikochemiker Leonhard Grupinski



GUSTAV FISCHER VERLAG · STUTTGART

1967

Alle Rechte der Übersetzung vorbehalten.
Copyright by Verein für Wasser-, Boden- und Lufthygiene, Berlin-Dahlem
Printed in Germany

Schwefeldioxid-Immissionen im Raum Mannheim/Ludwigshafen

Von

Dr.-Ing. ERDWIN LAHMANN

(Bundesgesundheitsamt, Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene,
Berlin-Dahlem),

Dipl.-Phys. WOLFRAM MORGENSTERN

und Physikochemiker LEONHARD GRUPINSKI

(Landesinstitut für Arbeitsschutz und Arbeitsmedizin, Karlsruhe)

1. Allgemeines

Schwefeldioxid ist die am häufigsten analysierte gasförmige Verunreinigung der freien Atmosphäre. Dieses Gas entsteht bei der Oxydation des praktisch in jedem Brennstoff enthaltenen Schwefels und ist somit Bestandteil der Rauchgase von Kraftwerken, Heizungsanlagen und sonstigen industriellen, gewerblichen und häuslichen Feuerungsstätten, sowie in geringerem Maße auch der Abgase von Verkehrsmitteln (Kraftfahrzeuge, Lokomotiven). Darüberhinaus wird Schwefeldioxid von Betrieben, insbesondere der chemischen und der metallurgischen Industrie, emittiert.

Die Häufigkeit des Vorkommens von Schwefeldioxid in der Außenluft ließ dieses Gas zu einem Indikator für den Grad der Verunreinigung der Luft in Stadt- und Industriegebieten werden. Dabei hat der Aufwand für SO₂-Immissionsmessungen in den letzten Jahren erheblich zugenommen. Diese Entwicklung ist auf intensivierte Bestrebungen zur Reinhaltung der Luft, auf die Festsetzung von Grenzwerten für SO₂-Immissionen (1, 2) und auf Fortschritte in der Analyse von SO₂ in Luft (3) zurückzuführen.

In Deutschland ist das Ruhrgebiet auf Grund seiner Bevölkerungsdichte und der Konzentration von Industriebetrieben zweifellos das Schwerpunktgebiet der Luftverunreinigung. Über die dort auftretenden SO₂-Immissionen wurde wiederholt berichtet (z.B. 4, 5). Es ist jedoch von Interesse, die SO₂-Belastung auch anderer Gebiete Deutschlands darzustellen; daher wird im folgenden über die Ergebnisse von SO₂-Immissionsmessungen im Raum Mannheim/Ludwigshafen — einem süddeutschen Industrieballungsgebiet — berichtet¹⁾.

1) Die Untersuchungen wurden im Auftrage der Kommunalen Arbeitsgemeinschaft Rhein-Neckar in Mannheim vom Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene und dem Landesinstitut für Arbeitsschutz und Arbeitsmedizin mit Unterstützung durch die Gewerbeaufsichtsämter Mannheim und Neustadt (Pfalz) durchgeführt. Die Messungen dienten gleichzeitig auf Anordnung des Arbeitsministeriums Baden-Württemberg als Pegelmessungen gemäß § 8 des Immissionsschutzgesetzes des Landes Baden-Württemberg vom 4. Februar 1964 (6).

2. Meßmethoden

Kontinuierliche Schwefeldioxidmessungen wurden mit Ultragas-3-Geräten der Firma Wösthoff (3) ausgeführt. Für diskontinuierliche SO₂-Bestimmungen wurde das Silikagelverfahren nach STRATMANN (3, 7) eingesetzt. Bei beiden Methoden wurde die Probeluft ohne Vorbehandlung analysiert. Es wurde also auf die Vorschaltung einer Filterpatrone (3, 8) für die kontinuierliche Messung bzw. einer mit Phosphorsäure beschickten Waschflasche (3) für die diskontinuierliche Bestimmung verzichtet. Demnach wurden im Prinzip bei der kontinuierlichen Arbeitsweise alle leitfähigen und bei der diskontinuierlichen Analyse alle schwefelhaltigen Substanzen erfaßt. In der Regel ist Schwefeldioxid der weitaus dominierende Bestandteil beider Gruppen von Luftverunreinigungen, so daß meist eine ausreichende Übereinstimmung der Ergebnisse aus beiden verschiedenen Untersuchungsverfahren angenommen werden kann. Eine für die Erfassung von Schwefeldioxid spezifische Methode kann zwar vom analytisch-chemischen Standpunkt aus befriedigen sowie in Fällen erforderlich werden, in denen das Auftreten oder die Wirkung allein dieses Abgasbestandteiles beurteilt werden soll. Wenn jedoch SO₂-Bestimmungen die lufthygienische Situation in einem Gebiet charakterisieren sollen, so hat eine selektive Analyse den Nachteil, daß Schwefeltrioxid nicht miterfaßt wird. Dieses Oxydationsprodukt des Schwefeldioxids bzw. die mit Wasserdampf gebildeten Schwefelsäureaerosole dürften an der freien Atmosphäre zwar in der Regel nur in geringem Maße auftreten; für den menschlichen Atemtrakt sind sie jedoch eine unangenehmere Luftverunreinigung als das Schwefeldioxid. Daher ist eine summarische Bestimmung der beiden Schwefeloxide berechtigt, solange kein geeignetes Verfahren für die getrennte SO₂- und SO₃-Analyse in atmosphärischer Luft zur Verfügung steht.

3. Ausführung der Untersuchungen

Im Untersuchungsraum Mannheim/Ludwigshafen wurden an sieben Meßstationen kontinuierliche und an 100 Meßpunkten diskontinuierliche SO₂-Bestimmungen ausgeführt. Die Lage der Meßstellen ist in Abbildung 1 dargestellt.

3.1 Kontinuierliche Messungen

Die sieben Meßstationen für kontinuierliche SO₂-Bestimmungen waren annähernd gleichmäßig über das Untersuchungsgebiet verteilt (siehe Abb. 1). Die Aufstellungsorte für die Meßgeräte mußten jeweils mit Strom versorgt, vor Fremdeinwirkungen ausreichend gesichert und für Wartungsarbeiten gut zugänglich sein. Sie befanden sich durchweg in öffentlichen Gebäuden, überwiegend in Schulen.

Der Untersuchungszeitraum umfaßte das Kalenderjahr 1965. Lediglich an der Meßstation II betrug aus technischen Gründen die Meßzeit nur neun Monate dieses Jahres. Von dieser Station lagen jedoch Meßergebnisse aus dem Jahre 1964 vor, die zur Darstellung der mittleren monatlichen SO₂-Konzentrationen im Jahresgang (siehe Abb. 5) verwendet werden konnten.

Zur Vorbereitung des Meßprogramms wurden bereits 1964 Versuchsmessungen über einen Zeitraum von drei Monaten auf der Friesenheimer Insel in Mannheim durchgeführt. Hierbei wurden drei verschieden ausgerüstete Geräte gleichzeitig für die Feststellung eingesetzt, ob im Untersuchungsgebiet mit dem Auftreten von Luftverunreinigungen zu rechnen war, welche die konduktio-

metrische Bestimmung von Schwefeloxiden stören. Bei einem dieser drei Geräte wurde die Probeluft über ein mit Kaliumhydrogensulfat (KHSO_4), bei dem zweiten Gerät über ein mit Silbersulfat (Ag_2SO_4) imprägnierte Quarzwollefilter geleitet (8). KHSO_4 eliminiert basische, Ag_2SO_4 salzaure Komponenten aus dem Probeluftstrom. Das dritte Gerät wurde ohne Filter betrieben. Bei diesen Vergleichsmessungen in einem Gebiet des Untersuchungsraumes, in welchem wegen

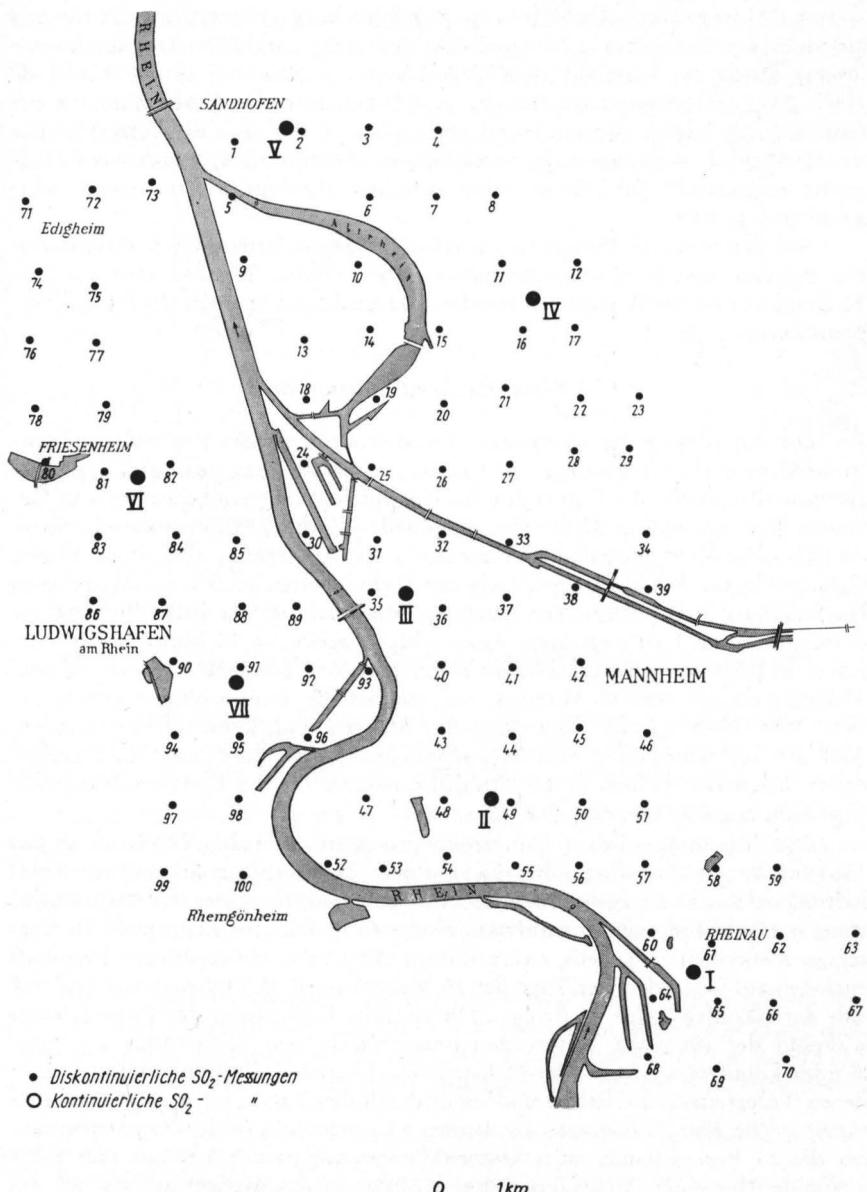


Abb. 1. Meßstellenverzeichnis.

nahe gelegener chemischer Betriebe am ehesten mit Störungen der konduktometrischen SO₂-Bestimmung zu rechnen war, traten bei den Meßwerten der drei Geräte keine Unterschiede auf, welche die Aussage der Untersuchungsergebnisse unzulässig beeinflußten. Bei praktisch allen anderen ionenbildenden gasförmigen Luftverunreinigungen liegen die Dissoziationskonstanten in wäßrigen Lösungen in einem erheblich kleineren Bereich als bei H₂SO₄, HCl oder NH₄OH.

Die Wösthoffgeräte wurden — in Abweichung von der Normalausführung — mit 10-Litern-Wechselbehältern aus Polyäthylen ausgestattet, die eine für drei bis vier Tage ausreichende Menge Reaktionslösung enthielten. Der Reaktionslösung wurde ein Fungizid (0,0075 % Chiniofon-Natrium, Firma Riedel de Haen AG., Hannover) zugesetzt (9). Dadurch wurde eine Verunreinigung der Geräte durch Pilzbefall weitgehend verhindert, so daß sich die Betriebsbereitschaft erheblich verlängerte. In regelmäßigen Zeitabständen wurden die Meßgeräte ausgetauscht, im Laboratorium gründlich gereinigt und mit einem Testgasgemisch geeicht.

Aus den von den Meßgeräten fortlaufend registrierten SO₂-Konzentrationen wurden jeweils Halbstundenmittelwerte gebildet. Meßzeitintervalle von 30 Minuten sind die Bezugsbasis für die in Deutschland festgelegten Immissionsgrenzwerte (1, 2).

3.2 Diskontinuierliche Messungen

Die Anordnung der Meßpunkte für diskontinuierliche Probenahmen entsprach dem in der „Technischen Anleitung zur Reinhaltung der Luft“ (1) angegebenen Schema für die Ermittlung der Schwefeldioxidgrundbelastung von Gebieten. Das regelmäßige Meßstellennetz wurde jedoch an Punkten unterbrochen, die auf größeren Werksgeländen oder in für Kraftfahrzeuge nicht zugänglichen Gebieten lagen. Mit derartigen Geländeschwierigkeiten muß bei vorgegebenen regelmäßigen Meßstellennetzen gerechnet werden (10). Bei jeder Probenahme wurden 25 Liter Luft angesaugt, wozu in der Regel etwa 10 Minuten erforderlich sind. Diese mit einer erheblichen Zeiterparnis verbundene Abweichung vom Meßzeitintervall von 30 Minuten, auf welches die Immissionsgrenzwerte (1) bzw. MIK-Werte (2) für Schwefeldioxid bezogen sind, kann toleriert werden, weil die zur Beurteilung von SO₂-Immissionen herangezogenen Kenngrößen durch diesen Unterschied in der Probenahmedauer für die Einzelanalyse praktisch nicht beeinflußt werden (11, 12).

Die diskontinuierlichen Untersuchungen wurden in der Zeit von August 1964 bis August 1965 ausgeführt. Dem in der „Technischen Anleitung zur Reinhaltung der Luft“ angegebenen Meßschema zur Ermittlung der SO₂-Grundbelastung entsprechend wurden während dieses zwölfmonatigen Zeitraumes 26 vier tägige Meßreihen in jeweils zweiwöchigen Abständen durchgeführt. Demnach entfielen auf jeden der vier Tage der 26 Meßperioden 25 Probenahmen und auf jede der 100 Meßstellen 26 Proben. Die zeitliche Reihenfolge der Probenahmen während der einzelnen Untersuchungstage wurde von Meßperiode zu Meßperiode geändert, um von jeder Meßstelle Untersuchungsergebnisse von verschiedenen Tageszeiten zu erhalten und somit durch den Tagesgang von SO₂-Immissionen (siehe Abb. 2) bedingte Tendenzen auszuschalten. In der Regel erforderten die 25 Probenahmen jedes Untersuchungstages eine Arbeitszeit von 8 bis 9 Stunden für einen Meßwagen (ohne Anfahrt in das Meßgebiet), da sich die Meßstellen jeweils über das gesamte Untersuchungsgebiet verteilten und somit stets erhebliche Fahrzeiten notwendig waren.

4. Auswertungen

Zur Darstellung des Wertematerials wurden außer Mittel- und Maximalwerten für verschiedene Zeitabstände, Gebiete oder Meßstellen zwei Immissionskenngrößen (13) herangezogen, die in der „Technischen Anleitung zur Reinhal tung der Luft“ (1) zur Auswertung von diskontinuierlichen SO₂-Grundbelastungsmessungen angeführt werden. Dabei charakterisiert die Kenngröße I₁ Dauerbelastungen und I₂ Kurzzeitbelastungen (Spitzenbelastungen). I₁ gibt die obere Grenze des Vertrauensbereiches für den arithmetischen Mittelwert und I₂ die obere Grenze des Vertrauensbereiches für die Einzelwerte eines Meßkollektivs an. Beide Kenngrößen werden für eine „einseitige“ statistische Sicherheit von 97,5 % mittels einer empirischen Kenngröße s₀ berechnet, welche aus den oberhalb des arithmetischen Mittelwertes liegenden Einzelwerten ermittelt wird:

$$I_1 = \bar{x} + A \bar{x} = \bar{x} + s_0 \cdot \frac{t}{\sqrt{2 z}}$$

$$I_2 = \bar{x} + A x = \bar{x} + s_0 \cdot t$$

$$s_0 = \sqrt{\frac{2 \sum (x_i - \bar{x})^2}{2 z - 1}} \quad \text{für alle } x_i > \bar{x}$$

Darin bedeuten:

\bar{x} = arithmetischer Mittelwert

x_i = Einzelwert

t = Faktor der Studentverteilung (praktisch = 2)

z = Zahl der Einzelwerte oberhalb des arithmetischen Mittelwertes.

Die Berechnung der Kenngrößen I₁ und I₂ erfordert einen erheblichen Arbeitsaufwand, vor allem wenn diese aus Vielzahlen von Einzelwerten ermittelt werden sollen, wie sie insbesondere bei kontinuierlichen Messungen anfallen.

Die Ergebnisse der im Raum Mannheim/Ludwigshafen kontinuierlich gemessenen SO₂-Immissionen wurden vorwiegend mit Hilfe einer elektronischen Datenverarbeitungsanlage (IBM 1620) ausgewertet¹⁾. Die Auswertungen der diskontinuierlichen SO₂-Bestimmungen wurden überwiegend „von Hand“ ausgeführt; für einige Fragestellungen wurde jedoch ein Computer LPG-21 (Firma Eurocomp) eingesetzt²⁾.

Für die hier dargestellten Auswertungen der kontinuierlich gemessenen SO₂-Immissionen wurden die Ergebnisse von Messungen der Windrichtung und -geschwindigkeit herangezogen, die die Wetterwarte Mannheim³⁾ zur Verfügung stellte. Dieses vereinfachte Vorgehen wurde möglich, nachdem ein Vergleich der

¹⁾ Für die Erlaubnis zur Benutzung dieser Maschine und fördernde Unterstützung haben wir den Farbenfabriken Bayer, Leverkusen, zu danken.

²⁾ Für die Übernahme dieser Arbeiten danken wir Herrn Diplom-Mathematiker GOTTSCHEWSKI, Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene.

³⁾ Für die freundliche Unterstützung der Arbeiten gilt der Dank Herrn Dr. von KIENLE, dem Leiter der Wetterwarte Mannheim.

Ergebnisse von mehreren direkt bei den Meßstationen eingesetzten Wölflewindschreibern mit den Werten der Wetterwarte Mannheim keine signifikanten Unterschiede ergeben hatte.

5. Untersuchungsergebnisse

5.1 Ergebnisse der kontinuierlichen SO₂-Bestimmungen

5.1.1 Häufigkeitsverteilungen, Mittelwerte und Immissionskenngrößen

Von sieben Meßstationen lagen insgesamt über 100 000 Halbstundenmittelwerte vor. Wegen verschiedenartig bedingter und bei Luftuntersuchungen unvermeidlicher Ausfallzeiten lag diese Gesamtzahl unterhalb der theoretisch möglichen Zahl von Meßdaten. Die Verteilung sämtlicher Einzelwerte aller Stationen auf verschiedene Konzentrationsklassen im Tagesverlauf ist in Tabelle 1 dargestellt. Außerdem sind dort die Häufigkeitsverteilungen der SO₂-Konzentrationen und die prozentuale Häufigkeit der Überschreitung (Überschreitungshäufigkeit) von Konzentrationsgrenzen für das gesamte Untersuchungsjahr sowie für das „Sommer“- (April bis September) und für das „Winter“-Halbjahr (Januar bis März und Oktober bis Dezember) aufgeführt. In Tabelle 2 sind gleichartige Auswertungen für jede der sieben Meßstationen getrennt aufgeführt. Die für jede Station für das Jahr 1965 sowie für die Sommer- und Wintermonate berechneten Mittelwerte und Immissionskenngrößen I₁ und I₂ sind in Tabelle 3 zusammengestellt. Wie aus den Tabellen 2 und 3 hervorgeht, lagen die an der Station I gemessenen SO₂-Konzentrationen erheblich über dem mittleren Immissionsniveau des Untersuchungsgebietes.

5.1.2 Tagesgang der SO₂-Immissionen

Die mittleren SO₂-Konzentrationen im Tagesverlauf sind in Abbildung 2 als Mittel über sämtliche sieben Meßstationen graphisch dargestellt. Die dort aufgezeichneten 30-Minuten-Werte wurden jeweils aus sämtlichen während der Halbstunden gemessenen Einzelwerten berechnet. Der Tagesgang der SO₂-Immissionen an den einzelnen Meßstellen zeigte praktisch den gleichen Kurvenverlauf wie das Gesamtmittel; die absolute Höhe der in Abbildung 2 wiedergegebenen mittleren Immissionen wurde jedoch durch die an der Meßstation I gemessenen hohen SO₂-Konzentrationen stark beeinflußt. Das Maximum der SO₂-Immissionen trat in den Vormittagsstunden von 8 bis 10 Uhr auf; seine Höhe liegt fast 50 % über den in den Nachtstunden anzutreffenden mittleren Konzentrationen. Ein weiteres, aber weniger ausgeprägtes Maximum fiel in die Zeit von 18 bis 20 Uhr. Dieser im Raum Mannheim/Ludwigshafen festgestellte Tagesgang der SO₂-Immissionen stimmte sehr gut mit dem für eine Meßstation in Essen dargestellten relativen Tagesverlauf der SO₂-Konzentrationen überein (4). Das Gesamtmittel über die 24 Tagesstunden betrug 0,121 mg SO₂/m³. Für die Zeit von 8 bis 15 Uhr wurde ein Mittelwert von 0,132 mg/m³ berechnet. Während dieser Tageszeit sollen nach der „Technischen Anleitung zur Reinhaltung der Luft“ diskontinuierliche Messungen zur Ermittlung der SO₂-Grundbelastung von Gebieten ausgeführt werden.

Der Tagesverlauf der mittleren SO₂-Konzentrationen wird vorwiegend durch das meteorologische Austauschgeschehen in der bodennahen Luftsicht bedingt. Da die meteorologischen Einflüsse auf die Verteilung von Luftverunreinigungen in der Atmosphäre im Sommer und im Winter zu verschiedenen Tagesstunden wirksam werden, ergeben sich auch Verschiebungen der zeitlichen Lage der Immissionsmaxima, wie aus der graphischen Gegenüberstellung in

Tabelle 1

Häufigkeitsverteilung der SO₂-Konzentrationen in mg/m³ (Mittelwerte über 30 Minuten) im Tageslauf und Überschreitungshäufigkeiten von Konzentrationsgrenzen bei kontinuierlichen Immissionsmessungen im Raum Mannheim/Ludwigshafen im Jahr 1965 (7 Meßstationen).

Zeit	Anzahl der Werte	bis 0,10	0,11 bis 0,20	0,21 bis 0,30	0,31 bis 0,40	0,41 bis 0,50	0,51 bis 0,75	0,76 bis 1,00	über 1,00	
0— 1	4474	3146	789	261	94	61	54	28	41	
1— 2	4469	3183	758	235	114	50	55	31	43	
2— 3	4467	3174	761	248	80	50	56	42	56	
3— 4	4469	3172	757	278	90	54	38	27	53	
4— 5	4468	3225	703	259	108	45	58	27	43	
5— 6	4468	3126	760	272	99	65	61	30	55	
6— 7	4461	2920	820	336	148	75	69	37	56	
7— 8	4452	2727	897	379	179	85	83	39	63	
8— 9	4437	2607	918	386	195	111	117	47	56	
9—10	4428	2583	888	408	209	122	109	49	60	
10—11	4440	2631	856	414	212	123	98	59	47	
11—12	4454	2769	845	341	188	107	89	55	60	
12—13	4471	2899	829	324	163	78	84	44	50	
13—14	4484	3023	791	288	124	82	81	52	43	
14—15	4484	3077	776	286	130	69	66	35	45	
15—16	4486	3099	750	282	118	82	71	30	54	
16—17	4510	3092	750	300	126	73	82	41	46	
17—18	4515	3009	798	325	154	70	70	43	46	
18—19	4515	2923	810	358	195	70	66	38	55	
19—20	4501	2901	826	367	161	82	81	37	48	
20—21	4494	2924	805	392	145	82	82	26	42	
21—22	4491	2998	802	333	141	80	73	30	33	
22—23	4487	3018	787	328	139	72	74	24	41	
23—24	4485	3098	768	274	130	71	72	31	40	
Jahr	0—24	107410	71324	19244	7674	3442	1859	1789	902	1176
Anteil in %	100	66,4	17,9	7,1	3,2	1,7	1,7	0,9	1,1	
Überschreitungshäufigkeit der Klassenobergrenze in %		33,6	15,7	8,6	5,4	3,7	2,0	1,1		
Sommer	0—24	56738	46204	6116	1612	682	417	594	430	683
Anteil in %	100	81,3	10,8	2,9	1,2	0,7	1,1	0,8	1,2	
Überschreitungshäufigkeit der Obergrenze in %		18,7	7,9	5,0	3,8	3,1	2,0	1,2		
Winter	0—24	50672	25120	13128	6062	2760	1442	1195	472	493
Anteil in %	100	49,6	25,9	12,0	5,4	2,8	2,4	0,9	1,0	
Überschreitungshäufigkeit der Obergrenze in %		50,4	24,5	12,5	7,1	4,3	1,9	1,0		

Abbildung 3 hervorgeht. Wie aus den Abbildungen 2 und 3 ersichtlich ist, wurde der mittlere jährliche Tagesgang der SO₂-Konzentrationen überwiegend durch die höheren Immissionen im Winter bestimmt.

Tabelle 2

Häufigkeitsverteilung der SO₂-Konzentrationen in mg/m³ und Überschreitungshäufigkeiten von Konzentrationsgrenzen an sieben Meßstationen im Raum Mannheim/Ludwigshafen (1965).

a) Häufigkeitsverteilung der Einzelwerte (30-Minuten-Mittelwerte); b) Häufigkeitsverteilung in Prozent; c) Überschreitungshäufigkeit der jeweiligen Klassenobergrenze

Station Nr.	Anzahl der Werte	bis 0,10	0,11 bis 0,20	0,21 bis 0,30	0,31 bis 0,40	0,41 bis 0,50	0,51 bsi 0,75	0,76 bis 1,00	über 1,00
I	a)	16382	6619	3782	1895	975	619	881	639
	b)	100	40,4	23,1	11,6	5,9	3,8	5,4	3,9
	c)		59,6	36,5	24,9	19,0	15,2	9,8	5,9
II	a)	12384	8954	2378	738	205	77	27	1
	b)	100	72,3	19,2	5,96	1,66	0,62	0,22	0,01
	c)		27,7	8,5	2,54	0,88	0,26	0,04	0,03
III	a)	17297	11394	2901	1436	773	378	324	80
	b)	100	65,9	16,8	8,3	4,4	2,2	1,9	0,4
	c)		34,1	17,3	9,0	4,6	2,4	0,5	0,1
IV	a)	14264	10618	2143	879	357	165	84	18
	b)	100	74,4	15,0	6,2	2,5	1,2	0,6	0,1
	c)		25,6	10,6	4,4	1,9	0,7	0,1	
V	a)	15321	11372	2218	761	438	285	188	46
	b)	100	74,2	14,5	5,0	2,8	1,9	1,2	0,3
	c)		25,8	11,3	6,3	3,5	1,6	0,4	0,1
VI	a)	16139	11482	2676	1026	435	190	153	67
	b)	100	71,1	16,6	6,4	2,7	1,2	0,9	0,4
	c)		28,9	12,3	5,9	3,2	2,0	1,1	0,7
VII	a)	15623	10885	3146	939	259	145	132	51
	b)	100	69,7	20,1	6,0	1,7	0,9	0,9	0,3
	c)		30,3	10,2	4,2	2,5	1,6	0,7	0,4

Tabelle 3

Mittelwerte und Immissionskenngroßen in mg SO₂/m³ bei kontinuierlichen Messungen im Jahr 1965 im Raum Mannheim/Ludwigshafen.

Meß- station Nr.	Jahr 1965			Sommermonate			Wintermonate		
	\bar{x}	I ₁	I ₂	\bar{x}	I ₁	I ₂	\bar{x}	I ₁	I ₂
I	0,27	0,28	1,42	0,25	0,27	1,60	0,28	0,30	1,29
II	0,09	0,10	0,32	0,06	0,06	0,24	0,13	0,13	0,34
III	0,12	0,12	0,54	0,06	0,07	0,28	0,12	0,12	0,57
IV	0,08	0,08	0,38	0,06	0,06	0,29	0,14	0,15	0,46
V	0,09	0,09	0,49	0,06	0,06	0,37	0,12	0,13	0,57
VI	0,10	0,11	0,67	0,06	0,08	0,80	0,14	0,14	0,56
VII	0,10	0,10	0,51	0,06	0,06	0,36	0,15	0,15	0,62

5.1.3 Jahresgang der SO₂-Immissionen

Die Tagesmittelwerte der SO₂-Konzentration für jede der sieben Meßstationen sind in Abbildung 4 fortlaufend aufgezeichnet. Die Häufigkeitsverteilung der berechneten Tagesmittelwerte auf verschiedene Konzentrationsklassen ist in Tabelle 4 angegeben.

An jeder Meßstation waren starke Schwankungen der mittleren SO₂-Konzentration von einem Tag zum anderen festzustellen. Die überwiegende Zahl höherer Tagesmittelwerte trat im Winterhalbjahr (Januar bis März und

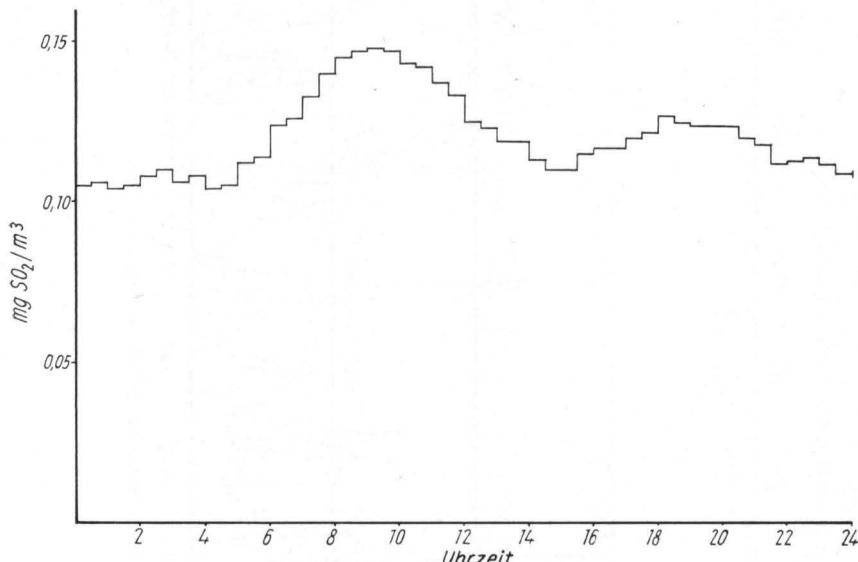


Abb. 2. Tagesverlauf der mittleren SO₂-Konzentrationen im Raum Mannheim/Ludwigshafen 1965.

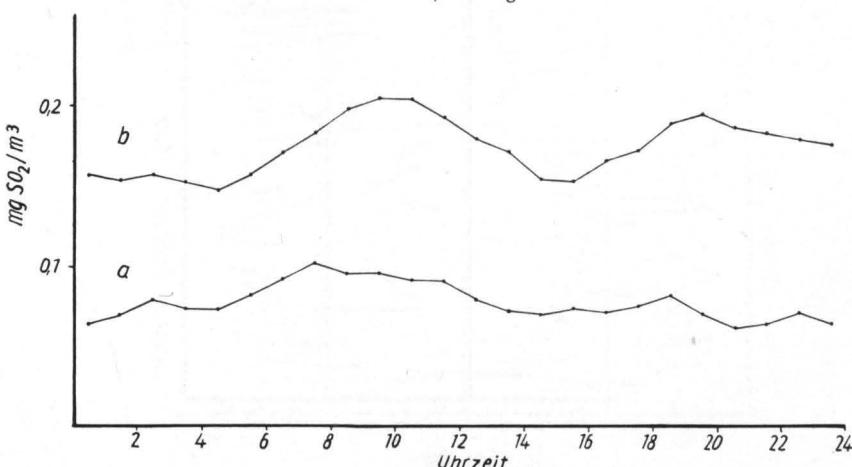


Abb. 3. Tagesverlauf der mittleren SO₂-Konzentrationen.
a) im Sommer (Juni, Juli, August), b) im Winter (Januar, Februar, Dezember).

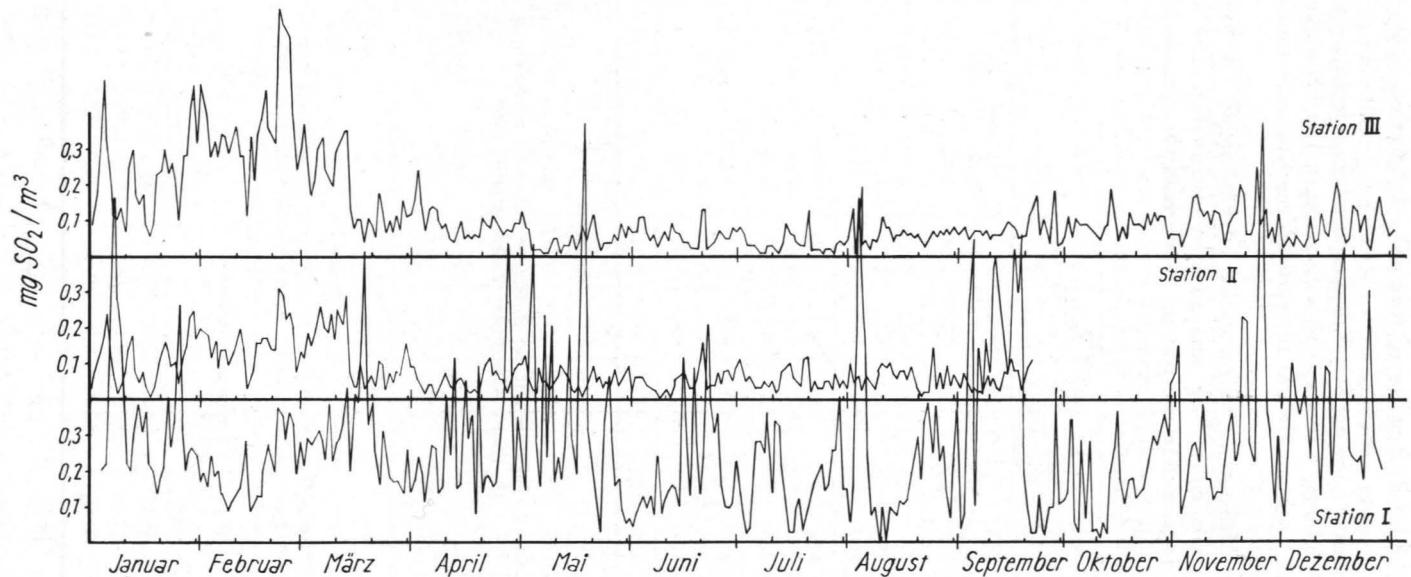


Abb. 4 I. Tagesmittelwerte der SO_2 -Konzentration 1965.

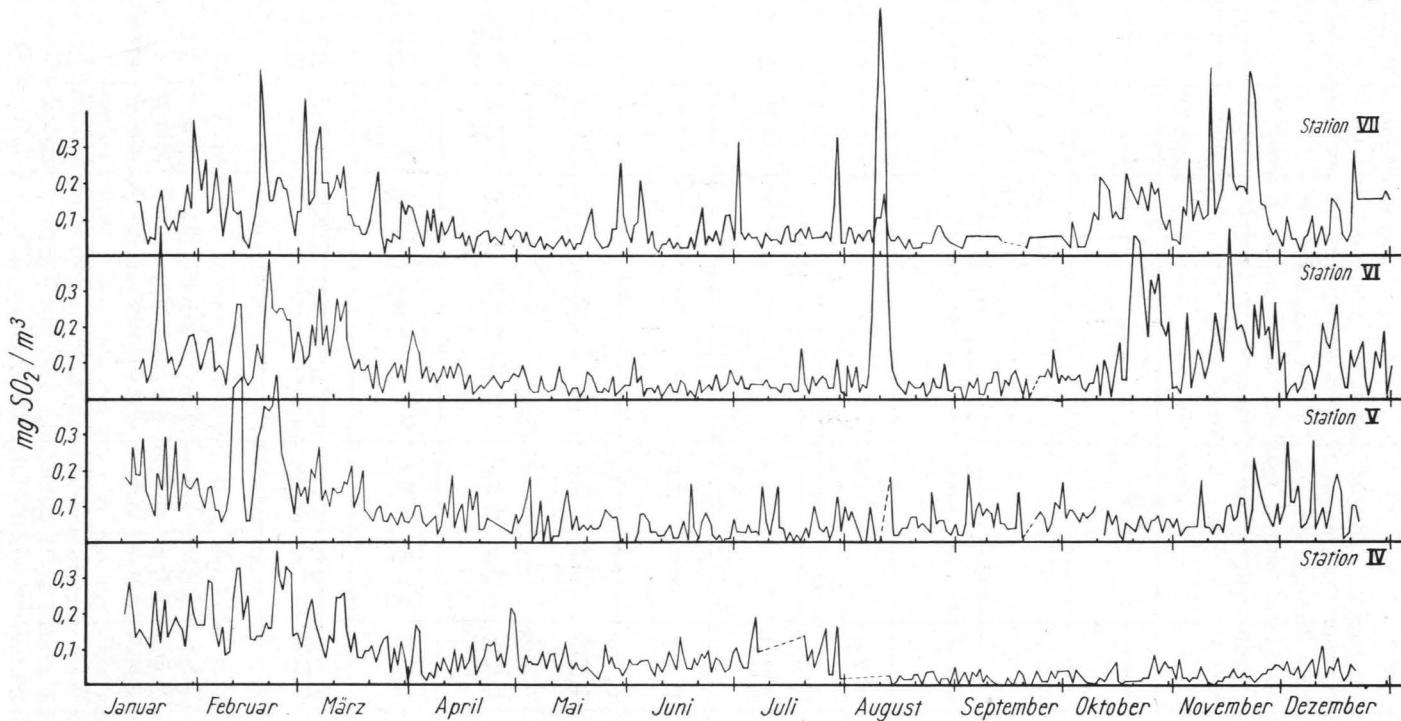


Abb. 4 II. Tagesmittelwerte der SO_2 -Konzentration 1965.

Tabelle 4

Häufigkeitsverteilung der Tagesmittelwerte der SO₂-Konzentrationen in mg/m³ bei kontinuierlichen Messungen in Mannheim/Ludwigshafen 1965

Station	Jahreszeit	Zahl der Werte	bis 0,100	0,101 bis 0,200	0,201 bis 0,300	0,301 bis 0,400	0,401 bis 0,500	0,501 bis 0,600	0,601 bis 0,700	0,701 bis 0,800	0,801 bis 0,900	0,901 bis 1,000	1,001 bis 1,100	1,101 bis 1,200
I	Sommer	178	42	53	32	17	14	10	3	1	4	1		1
	Winter	173	13	47	54	29	12	6	8	1	1	1		1
	Jahr	351	55	100	86	46	26	16	11	2	5	2		2
II	Sommer	172	155	17										
	Winter	90	35	42	12	1								
	Jahr	262	190	59	12	1								
III	Sommer	183	159	23	1									
	Winter	181	76	49	25	21	6	2	2					
	Jahr	364	235	72	26	21	6	2	2					
IV	Sommer	154	132	21	1									
	Winter	157	93	42	16	6								
	Jahr	311	225	63	17	6								
V	Sommer	172	149	23										
	Winter	159	89	51	11	4	4							
	Jahr	331	238	74	11	4	4							
VI	Sommer	179	164	10	1	1				1	1		1	
	Winter	168	75	54	31	3	5			1	1		1	
	Jahr	347	239	64	32	4	5			1	1		1	
VII	Sommer	172	155	13	3	1								
	Winter	160	59	74	19	3	4	1						
	Jahr	332	214	87	22	4	4	1						
I bis VII	Sommer	1210	956	160	38	19	14	10	3	2	5	1	1	1
	Winter	1088	440	359	168	67	31	9	10	1	1	1	1	1
	Jahr	2298	1396	519	206	86	45	19	13	3	6	2	1	2
Anteil in %		100	60,7	22,6	9,0	3,7	2,0	0,8	0,55	0,15	0,25	0,1	0,05	0,1
Überschreitungs- häufigkeit der Klassenober- grenze in %			39,3	16,7	7,7	4,0	2,0	1,2	0,65	0,5	0,25	0,15	0,1	0,1

Oktober bis Dezember) auf. Von den Meßstationen wurden an der Stelle Nr. I die höchsten Immissionen gemessen.

In Abbildung 5 sind die mittleren monatlichen SO_2 -Konzentrationen für jede Meßstation sowie die Mittelwerte über alle sieben Meßstationen graphisch dargestellt. Ein deutlicher Jahresgang der SO_2 -Immissionen lässt sich insbesondere aus den mittleren Konzentrationen sämtlicher Meßstationen erkennen: der maximale Monatsmittelwert im „Sommer“ (April bis September) entspricht etwa dem minimalen „Winter“-Mittelwert.

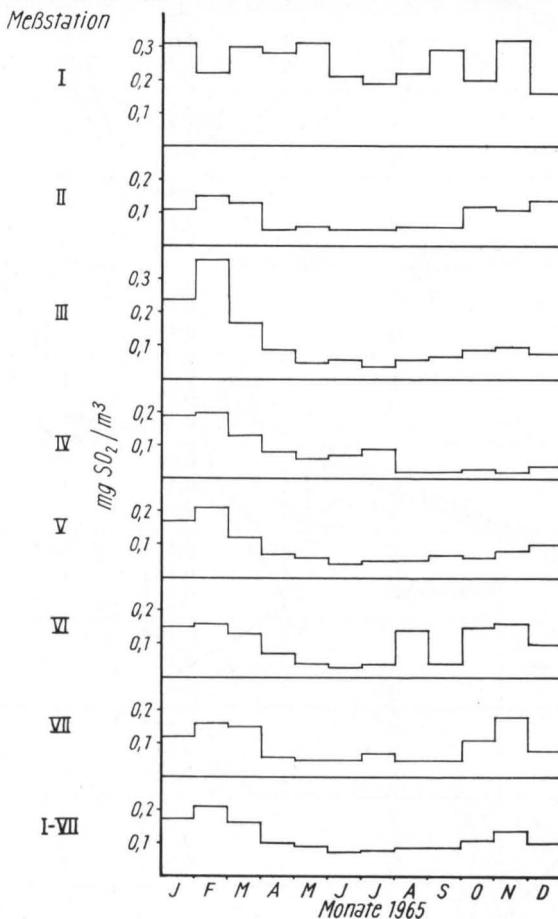


Abb. 5. Monatsmittel der SO_2 -Konzentration.

Nach der „Technischen Anleitung zur Reinhaltung der Luft“ (1) kann der Beurteilungszeitraum für die Ermittlung der Schwefeldioxidgrundbelastung von Gebieten in besonderen Fällen von einem auf ein halbes Jahr verkürzt werden, das entweder die Monate Februar bis Juli oder August bis Januar umfassen soll. (Die auf diskontinuierliche Messungen bezogene Anweisung sieht bei einer solchen Verkürzung zeitlich dichtere Probenahmen vor: statt in jeder zweiten Woche eine Stichprobe in jeder Woche; vgl. Abschnitt 3.2). In Tabelle 5 sind für jede Meßstation und für das Gesamtprogramm die Mittelwerte und die Immisionskenngrößen I_1 und I_2 zusammengestellt, die aus den Monatswerten der

Tabelle 5
Mittelwerte und Immissionskenngrößen in mg SO₂/m³ für zwei 6-Monate-Abschnitte des Jahres 1965.

Meßstation	Kenngröße	Februar bis Juli	Januar, August bis Dezember
I	\bar{x}	0,25	0,28
	I ₁	0,29	0,33
	I ₂	1,32	1,53
II	\bar{x}	0,08	0,10
	I ₁	0,09	0,11
	I ₂	0,29	0,34
III	\bar{x}	0,13	0,11
	I ₁	0,13	0,12
	I ₂	0,40	0,36
IV	\bar{x}	0,10	0,05
	I ₁	0,12	0,06
	I ₂	0,40	0,26
V	\bar{x}	0,09	0,09
	I ₁	0,10	0,10
	I ₂	0,44	0,44
VI	\bar{x}	0,08	0,12
	I ₁	0,09	0,15
	I ₂	0,32	0,80
VII	\bar{x}	0,09	0,10
	I ₁	0,10	0,11
	I ₂	0,46	0,49
I bis VII	\bar{x}	0,12	0,12
	I ₁	0,13	0,14
	I ₂	0,52	0,60
I bis VII (nur Meßwerte von 8 bis 15 Uhr)	\bar{x}	0,12	0,12
	I ₁	0,15	0,14
	I ₂	0,51	0,60
I bis V, VII	\bar{x}	0,12	0,12
	I ₁	0,14	0,14
	I ₂	0,55	0,57
I bis V, VII (nur Meßwerte von 8 bis 15 Uhr)	\bar{x}	0,13	0,13
	I ₁	0,16	0,16
	I ₂	0,55	0,59

angeführten beiden Halbjahre berechnet wurden. (Hierbei mußte natürlich der Januar 1965 mit den Monaten August bis Dezember 1965 zusammengerechnet werden. Die in Tabelle 5 angegebenen I₁- und I₂-Werte sind arithmetische Mittelwerte aus monatlich berechneten Immissionskenngrößen; sie brauchen daher nicht — wie die Mittelwerte — mit den aus dem Gesamtmaterial für das vollständige Jahr berechneten Kenngrößen genau übereinzustimmen.) Die für die beiden Halbjahre berechneten Kenngrößen stimmen gut überein, wenn die Ergebnisse der Station VI ausgeklammert werden. An dieser Meßstelle hatten herausragende Immissionen an wenigen Tagen im August insbesondere die I₂-Werte des entsprechenden Halbjahres dominierend beeinflußt.

5.1.4 Korrelation der SO₂-Immissionen zu Windrichtungen

Aufschlußreiche Informationen für Maßnahmen zur Luftreinhaltung erhält man bei gleichzeitigen kontinuierlichen SO₂-Immissions- und Windmessungen. Man kann dann die mittleren SO₂-Konzentrationen für jede Windrichtung grafisch darstellen und somit Hinweise auf die Herkunft von Immissionen gewinnen (14, 15). Derartige Darstellungen der im Raum Manheim/Ludwigshafen durchgeföhrten Messungen sind in Abbildung 6 wiedergegeben. Aus diesen Auswertungen lassen sich u. a. folgende Schlußfolgerungen ziehen:

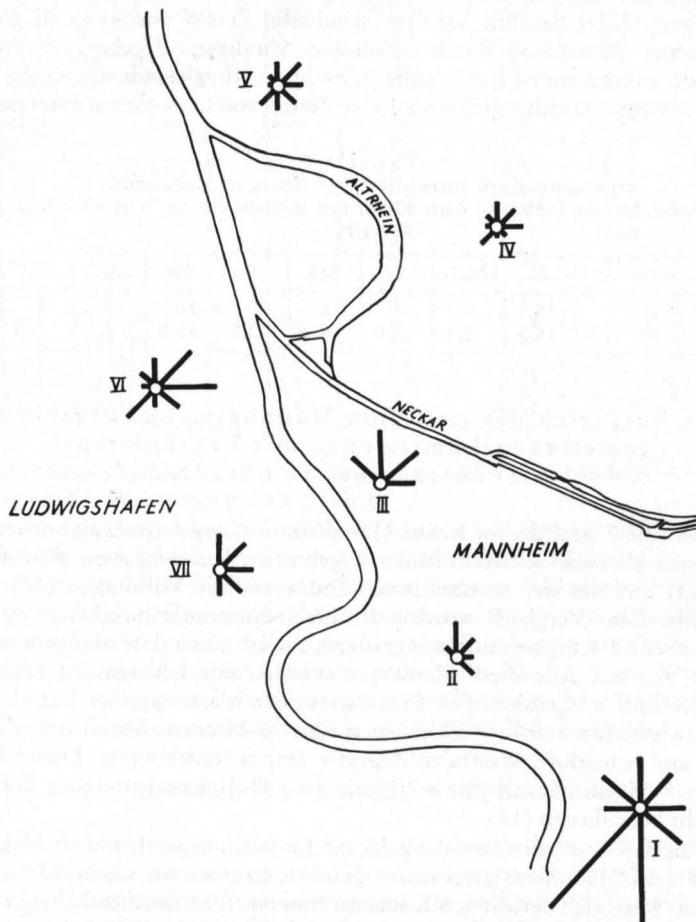


Abb. 6. Windrichtungsabhängigkeit der SO₂-Immissionen.
Die Länge der Äste entspricht der mittleren SO₂-Konzentration bei der entsprechenden Windrichtung.

Die hohen SO₂-Konzentrationen an der Meßstelle I werden durch eine in südlicher bis südwestlicher Richtung gelegene Abgasquelle (deren Identität bei den hier darzustellenden Meßergebnissen nicht interessiert) verursacht. Die auf diese Quelle zurückzuföhrenden Immissionen wirken sich jedoch bei den übrigen Meßstationen nicht mehr aus. Daher wäre eine Berechnungsweise unbillig, bei

der die Spitzenvwerte von der Meßstation I die Immissionskenngrößen eines größeren Gebietes dominierend beeinflussen würden.

Sieht man von der Beurteilungsvorschrift für „kleinere Gebiete“ (1) ab, so gibt es ohnehin bisher keine allgemeingültige Konvention, die eine zusammenfassende Beurteilung größerer Gebiete durch alleinige Angaben von je einem Zahlenwert der beiden vorgesehenen Kenngrößen I_1 und I_2 festlegt.

In Tabelle 6 ist die prozentuale Windrichtungsverteilung während des Untersuchungsjahres 1965 den mittleren Beobachtungen in Mannheim über einen Zeitraum von 50 Jahren (16) gegenübergestellt. Während sich für die meisten Windrichtungen eine gute Übereinstimmung der beiden Daten ergab, wurden im langfristigen Mittel deutlich häufiger windstille Zeiten und etwa in gleichem Maße seltener südwestliche Winde verzeichnet. Zu diesem Ergebnis sei vermerkt, daß gerade windschwache bzw. -stille Perioden lufthygienisch wegen des geringen Luftmassenaustausches während dieser Zeiten von besonderem Interesse sind.

Tabelle 6
Prozentuale Windrichtungsverteilung in Mannheim.
a) im Kalenderjahr 1965; b) nach 50jährigen Beobachtungen herrschende mittlere Verteilung.

	N	NO	O	SO	S	SW	W	NW	C
a)	16	6	3	6	20	20	9	10	10
b)	15,5	5,0	3,5	5,2	22,0	10,0	8,1	9,0	2,7

5.1.5 Vergleich der im Raum Mannheim/Ludwigshafen gemessenen Immissionen mit Ergebnissen aus anderen deutschen Städten

In Tabelle 7 sind die im Raum Mannheim/Ludwigshafen gemessenen SO_2 -Immissionen kürzlich veröffentlichten Ergebnissen aus nordrhein-westfälischen Städten (4) und aus der saarländischen Industriestadt Völklingen (17) gegenübergestellt. Zum Vergleich wurden die Überschreitungshäufigkeiten verschiedener Konzentrationsgrenzen herangezogen, die bei allen drei Meßprogrammen berechnet wurden. Alle diese Messungen wurden mit Ultragas-3-Geräten der Firma Wösthoff ausgeführt. Die Einzelwerte der Messungen im Raum Mannheim/Ludwigshafen und in Völklingen stellen 30-Minuten-Mittel dar, die Einzelwerte aus Nordrhein-Westfalen dagegen Stundenmittelwerte. Dieser Unterschied im Meßzeitintervall dürfte jedoch die Häufigkeitsverteilung der Meßwerte nicht beeinflussen (11).

Die an der — durch eine nahe gelegene Emmissionsquelle beaufschlagten — Meßstelle I in Mannheim gemessenen Immissionen wiesen gegenüber den aus Nordrhein-Westfalen berichteten Konzentrationen einen deutlich höheren Anteil von Werten über $0,5 \text{ mg SO}_2/\text{m}^3$ auf. Die Immissionen an den übrigen Meßstationen im Raum Mannheim/Ludwigshafen lagen überwiegend erheblich niedriger als in den angeführten nordrhein-westfälischen Großstädten. Zu diesen Vergleichen ist jedoch zu vermerken, daß erstens die im Rahmen des „Smog-Warndienstes“ (4) in Nordrhein-Westfalen eingerichteten Meßstationen nicht repräsentative Ergebnisse für das jeweils gesamte Gebiet von Großstädten erwarten lassen können und daß zweitens die an den gleichen Stationen von Oktober 1964 bis September 1965 kontinuierlich gemessenen Immissionen nach einer kürzlichen Mitteilung (18) 10 bis 47% niedriger lagen als während des vor-

Tabelle 7

Überschreitungshäufigkeiten von Konzentrationsgrenzen in Prozent der Meßzeit bei kontinuierlichen SO₂-Immissionsmessungen in Mannheim/Ludwigshafen (1965), in Großstädten Nordrhein-Westfalens (November 1963 bis Oktober 1964) und in Völklingen (Oktober 1962 bis September 1965).

Meßstation	Konzentrationsgrenze mg SO ₂ /m ³				
	0,2	0,4	0,5	0,75	1,0
Mannheim I	36,5	19,0	15,2	9,8	5,9
Mannheim II	8,5	0,9	0,3	0,04	0,03
Mannheim III	17,3	4,6	2,4	0,5	0,1
Mannheim IV	10,6	1,9	0,7	0,1	0
Mannheim V	11,3	3,5	1,6	0,4	0,1
Ludwigshafen VI	12,3	3,2	2,0	1,1	0,7
Ludwigshafen VII	10,2	2,5	1,6	0,7	0,4
Düsseldorf	26,0	5,6	2,4	0,45	0,07
Duisburg	32,0	9,0	4,7	0,88	0,15
Oberhausen	46,2	18,4	12,5	5,12	1,63
Essen-Mitte	43,1	18,5	12,9	4,88	1,84
Gelsenkirchen	42,5	16,9	11,3	3,73	1,23
Bochum	38,0	12,4	7,3	1,69	0,58
Dortmund	37,9	10,4	6,4	2,08	0,85
Völklingen I 1962/63	30,2	13,1	7,4		0,12
Völklingen I 1963/64	4,6	1,1	0,35		0
Völklingen I 1964/65	17,2	2,0	0,56		0
Völklingen II 1962/63	22,6	8,6	5,0		0,19
Völklingen II 1963/64	10,1	1,7	0,73		0,01
Völklingen II 1964/65	6,3	1,2	0,41		0

angegangenen Meßjahres. Dieser Befund wird auf eine veränderte Verteilung meteorologischer Parameter zurückgeführt.

Die aus Völklingen berichteten Meßergebnisse schwankten in den drei dargestellten Jahren erheblich. Im Zeitabschnitt 1962/1963 waren die Immissionen infolge meteorologischer Einflüsse deutlich am höchsten. Für einen Vergleich mit den im Jahre 1965 im Raum Mannheim gemessenen SO₂-Konzentrationen ist es jedoch realer, die im Zeitabschnitt Oktober 1964 bis September 1965 angefallenen Meßwerte heranzuziehen. Hierbei ergeben sich für den Raum Mannheim/Ludwigshafen häufigere Überschreitungen höherer SO₂-Konzentrationsgrenzen als bei den beiden Meßstationen in der saarländischen Industriestadt.

5.2 Ergebnisse der diskontinuierlichen SO₂-Bestimmungen

Von 100 Meßpunkten (siehe Abb. 1) im Untersuchungsgebiet fielen insgesamt 2574 Werte von diskontinuierlichen Probenahmen an. Gegenüber der theoretischen Zahl von 2600 Meßergebnissen (26 Meßperioden an 100 Stellen) war also ein Ausfall von 1 % durch Störungen bei Probenahme oder Analyse zu verzeichnen. Die Häufigkeitsverteilung aller Einzelwerte auf verschiedene Konzentrationsklassen ist in Tabelle 8 wiedergegeben.

5.2.1 Räumliche Verteilung der SO₂-Immissionen

Die Ergebnisse von diskontinuierlichen SO₂-Bestimmungen nach einem vorgegebenen Stichprobenschema (vgl. Abschnitt 3.2) sollen die Beurteilung von SO₂-Immissionen in mehr oder weniger großen Gebieten ermöglichen (1). Hierzu

Tabelle 8
Häufigkeitsverteilung von diskontinuierlich gemessenen SO₂-Konzentrationen (in mg/m³) und Überschreitungshäufigkeiten von Konzentrationsgrenzen. Zahl der Einzelwerte: 2574.

	Konzentrationsbereich mg SO ₂ /m ³							
	bis 0,10	0,11 bis 0,20	0,21 bis 0,30	0,31 bis 0,40	0,41 bis 0,50	0,51 bis 0,75	0,76 bis 1,00	über 1,00
Anzahl der Werte	1963	412	120	38	19	12	3	7
Häufigkeit in %	76,2	16,0	4,7	1,5	0,7	0,5	0,1	0,3
Überschreitungshäufigkeit der Klassenobergrenze in %	23,8	7,8	3,1	1,6	0,9	0,4	0,3	

sind aus den Einzelwerten eines Meßprogramms die bereits (Abschnitt 4) beschriebenen Kenngrößen I₁ (für Dauerbelastungen) und I₂ (für Kurzzeitbelastungen) zu berechnen.

In Nordrhein-Westfalen ermittelt man bei sehr umfangreichen diskontinuierlichen Schwefeldioxidimmissionsmessungen die Kenngrößen I₁ und I₂ für jeden Quadratkilometer des Untersuchungsgebietes (5). Als Einzelwerte werden dabei jeweils die an den vier (mindestens jedoch drei) Eckpunkten der 1-km²-Flächen gemessenen SO₂-Konzentrationen herangezogen (maximal also 4 · 26 = 104 Einzelmessungen). Da die SO₂-Belastung fortlaufend für jeden einzelnen Quadratkilometer des Meßgebietes angegeben wird, gehen somit in der Regel die Einzelwerte jedes Meßpunktes in vier aneinandergrenzende Flächen ein. Die Immissionen in größeren Gebieten (Städten oder Landkreisen) werden dann als arithmetische Mittelwerte der Immissionskenngrößen für die zugehörigen Quadratkilometer angegeben. Mit dieser Berechnungsweise lassen sich Ergebnisse von Pegelmeßprogrammen tabellarisch und kartographisch gut darstellen. Die für Gebiete durch arithmetische Mitteilung der Kenngrößen von Teilflächen berechneten Immissionskenngrößen können jedoch von denjenigen Werten abweichen, die nach der Anweisung in der Technischen Anleitung zur Reinhaltung der Luft zur Ermittlung der SO₂-Grundbelastung von Gebieten direkt aus sämtlichen Einzelwerten der in Frage kommenden Meßpunkte zu berechnen sind. Für gesicherte quantitative Aussagen über diese durch die Berechnungsweise der Immissionskenngrößen hervorgerufenen Differenzen war das Untersuchungsgebiet Mannheim/Ludwigshafen noch nicht groß genug. Bei 100 Meßpunkten in diesem Gebiet lassen sich nur vier „Blöcke“ bilden, die je eine etwa gleich große Zahl von verschiedenen Meßstellen aufweisen, wie sie z.B. in der „Technischen

Tabelle 9
Vergleich der Werte für Immissionskenngrößen (in mg SO₂/m³) in Gebieten a) bei Berechnung aus allen Einzelwerten; b) bei arithmetischer Mittelung der für 1 km²-Teilflächen berechneten Immissionskenngrößen.

Stadtgebiet	Immissionskenngröße			
	I ₁ a)	I ₁ b)	I ₂ a)	I ₂ b)
Ludwigshafen	0,08	0,12	0,38	0,40
Mannheim	0,10	0,14	0,62	0,51
Mannheim, nördliche Stadtteile	0,12	0,16	0,67	0,57
Mannheim, Stadtmitte	0,13	0,14	0,73	0,48
Mannheim, südliche Stadtteile	0,09	0,13	0,50	0,47

Anleitung zur Reinhaltung der Luft“ zur „Ermittlung der Grundbelastung kleiner Gebiete, auch als Unterlage für die Berechnung der Schornsteinmindesthöhe“ mit 28 Meßstellen gefordert wird. In Tabelle 9 sind die Werte für I_1 und I_2 für verschiedene Teilgebiete des Untersuchungsraumes gegenübergestellt, die zum einen aus sämtlichen Einzelergebnissen und zum anderen durch arithmetische Mittelung der I_1 - und I_2 -Werte der zugehörigen Quadratkilometer errechnet wurden. Aus den aufgeföhrten Vergleichen zeichnen sich folgende Tendenzen ab: Die arithmetische Mittelung ergibt regelmäßig höhere I_1 -Werte als die Berechnung aus den Einzelwerten. Die I_2 -Werte wurden bei der Mittelung von Quadratkilometerwerten gegenüber der Berechnung aus Einzelwerten nivelliert; die arithmetische Mittelung führte in Gebieten, in denen mit einer gewissen Häufigkeit Spitzenkonzentrationen auftraten, zu deutlich erniedrigten I_2 -Werten.

Tabelle 10
Mittelwerte und Immissionskenngrößen für Teilflächen von 1 km²
des Untersuchungsgebietes Mannheim/Ludwigshafen.

Für die Auswertungen herangezogene Meßpunkte	\bar{x}	n	z	I_1	I_2
1, 2, 5	0,07	78	24	0,12	0,41
2, 3, 6	0,08	77	28	0,11	0,29
3, 4, 6, 7	0,09	102	37	0,12	0,32
4, 7, 8	0,08	77	29	0,11	0,30
5, 9, 73	0,06	78	19	0,11	0,35
6, 7, 10	0,09	75	31	0,12	0,33
7, 8, 11	0,09	78	24	0,16	0,55
8, 11, 12	0,08	78	20	0,16	0,59
10, 13, 14	0,10	76	26	0,15	0,47
10, 14, 15	0,09	76	29	0,12	0,31
11, 15, 16	0,10	78	25	0,16	0,55
11, 12, 16, 17	0,08	104	29	0,14	0,53
13, 14, 18, 19	0,08	104	37	0,12	0,39
14, 15, 19, 20	0,09	104	31	0,15	0,54
15, 16, 20, 21	0,09	103	31	0,15	0,54
16, 17, 21, 22	0,08	103	32	0,12	0,37
17, 22, 23	0,07	78	25	0,11	0,36
18, 19, 24, 25	0,11	103	27	0,21	0,84
19, 20, 25, 26	0,12	104	27	0,23	0,91
20, 21, 26, 27	0,10	103	33	0,16	0,58
21, 22, 27, 28	0,09	102	36	0,13	0,39
22, 23, 28, 29	0,11	103	25	0,30	1,46
24, 25, 30, 31	0,14	100	23	0,28	1,10
24, 30, 85	0,12	75	25	0,21	0,74
25, 26, 31, 32	0,12	101	34	0,20	0,76
26, 27, 32, 33	0,09	102	39	0,12	0,37
27, 28, 33	0,09	77	27	0,13	0,38
28, 29, 34	0,13	76	13	0,49	1,97
30, 31, 35, 89	0,10	100	30	0,17	0,67
31, 32, 35, 36	0,10	99	31	0,14	0,42
32, 33, 36, 37	0,08	100	34	0,11	0,33
33, 37, 38	0,07	78	26	0,10	0,31
34, 38, 39	0,07	77	27	0,10	0,27
35, 36, 40, 93	0,08	102	30	0,12	0,39
36, 37, 40, 41	0,07	102	35	0,11	0,36
37, 38, 41, 42	0,07	104	31	0,10	0,29
38, 39, 42	0,07	78	28	0,09	0,27
40, 43, 93	0,08	78	24	0,11	0,33

Tabelle 10 (Fortsetzung)

Für die Auswertungen herangezogene Meßpunkte	\bar{x}	n	z	I_1	I_2
40, 41, 43, 44	0,07	104	30	0,12	0,40
41, 42, 44, 45	0,07	104	32	0,11	0,39
42, 45, 46	0,08	78	22	0,12	0,37
43, 47, 48	0,10	78	16	0,25	1,11
43, 44, 48, 49	0,07	104	36	0,11	0,32
44, 45, 49, 50	0,08	104	35	0,11	0,37
45, 46, 50, 51	0,07	104	32	0,11	0,40
47, 52, 53	0,08	78	15	0,32	1,37
47, 48, 53, 54	0,08	104	25	0,22	1,07
48, 49, 54, 55	0,07	103	37	0,09	0,24
49, 50, 55, 56	0,07	103	39	0,10	0,30
50, 51, 56, 57	0,07	104	33	0,10	0,35
51, 57, 58	0,07	78	23	0,11	0,37
56, 57, 60	0,07	78	26	0,11	0,34
57, 58, 60, 61	0,07	104	33	0,10	0,33
58, 59, 61, 62	0,07	104	33	0,10	0,34
59, 62, 63	0,07	78	21	0,14	0,50
60, 61, 64, 65	0,08	103	33	0,11	0,34
61, 62, 65, 66	0,07	104	35	0,10	0,31
62, 63, 66, 67	0,06	104	33	0,10	0,41
64, 65, 68, 69	0,08	102	31	0,11	0,34
65, 66, 69, 70	0,07	103	34	0,10	0,33
66, 67, 70	0,06	78	26	0,10	0,33
71, 72, 74, 75	0,06	102	34	0,09	0,27
72, 73, 75	0,06	76	25	0,09	0,29
73, 1, 5	0,07	78	21	0,12	0,43
74, 75, 76, 77	0,06	102	29	0,09	0,28
76, 77, 78, 79	0,05	102	31	0,08	0,26
78, 79, 80, 81	0,05	103	35	0,07	0,24
79, 81, 82	0,08	77	24	0,12	0,35
80, 81, 83	0,05	78	31	0,07	0,20
81, 82, 83, 84	0,09	102	32	0,13	0,39
82, 84, 85	0,10	76	30	0,14	0,40
83, 84, 86, 87	0,08	103	28	0,12	0,40
84, 85, 87, 88	0,10	103	31	0,17	0,63
85, 88, 89, 90	0,11	101	27	0,21	0,82
86, 87, 90	0,09	78	17	0,17	0,56
87, 88, 90, 91	0,10	104	26	0,19	0,74
88, 89, 91, 92	0,10	102	26	0,18	0,67
89, 92, 93, 95	0,08	102	30	0,11	0,33
90, 91, 94, 95	0,09	104	29	0,14	0,48
91, 92, 95, 96	0,07	103	29	0,11	0,38
92, 93, 96	0,07	77	22	0,11	0,34
94, 95, 97, 98	0,07	104	39	0,09	0,25
95, 96, 98	0,07	78	26	0,10	0,28
97, 98, 99, 100	0,07	104	36	0,09	0,25
98, 100, 52	0,06	78	33	0,08	0,22

In Tabelle 10 sind entsprechend der Darstellungsweise in Nordrhein-Westfalen — insbesondere zum Vergleich mit Meßergebnissen von dort — für die von den diskontinuierlichen Immissionsmessungen im Raum Mannheim/Ludwigshafen erfaßten Flächen jeweils quadratkilometerweise die Anzahl der vorliegenden Einzelwerte (n), die Zahl der über dem Mittelwert liegenden Einzelwerte (z), die Mittelwerte (\bar{x}) und die Immissionskenngrößen I_1 und I_2 zusammen-

gestellt. Hierzu ist zu bemerken, daß bei nur 104 (oder sogar weniger) Einzelwerten die Kenngröße I_2 durch exponierte Maximalwerte stark beeinflußt werden kann. Da aber bei der geschilderten Berechnungsweise in der Regel jeder Einzelwert in vier benachbarte Teilstücke eingeht, können lokale Immissions-Schwerpunkte vorgetäuscht, überbetont oder in ihrer Lage innerhalb eines Gebietes verschoben werden.

5.2.2 Vergleich der im Raum Mannheim/Ludwigshafen gemessenen Immissionen mit Ergebnissen aus Nordrhein-Westfalen

In Tabelle 11 sind die in Mannheim und Ludwigshafen durch diskontinuierliche Stichproben gemessenen SO_2 -Immissionen gleichartig erzielten Ergebnissen aus Städten Nordrhein-Westfalens (5) gegenübergestellt. Für diesen Vergleich mußte die Darstellungsweise der Ergebnisse von Nordrhein-Westfalen übernommen werden: In der bereits angeführten Weise wurden die Immissionskenngrößen I_1 und I_2 für einzelne Quadratkilometer berechnet und dann für Stadtgebiete arithmetisch gemittelt sowie als Häufigkeitsverteilung auf verschiedene Konzentrationsklassen angegeben. Die jeweils zwölfmonatigen Untersuchungsabschnitte begannen in beiden Meßräumen nur mit relativ geringen Zeitunterschieden: Ende August 1964 im Raum Mannheim/Ludwigshafen, Anfang November 1964 in Nordrhein-Westfalen. Im Rhein-Neckar-Gebiet lag insbesondere die Dauerbelastung, aber auch in der Regel die Kurzzeitbelastung niedriger als in den in Tabelle 11 angeführten Großstädten Nordrhein-Westfalens. Es wurden in Mannheim jedoch auch Spitzenwerte gemessen, die denen in Städten des Ruhrgebietes entsprachen.

5.2.3 Zeitlicher Verlauf der SO_2 -Immissionen

Der Tagesverlauf der SO_2 -Immissionen läßt sich aus einer begrenzten Zahl von Stichprobenmessungen, wie sie bei Untersuchungsprogrammen der hier dargestellten Arten anfallen, praktisch nicht ablesen. Bei einer Aufteilung der über 2500 vorliegenden Einzelwerte auf die 10 Tagesstunden der Probenahmen (über 97% der Probenahmen wurden in der Zeit von 8 bis 18 Uhr ausgeführt) ergab sich weder bei der Darstellung von Mittelwerten noch von 90- oder 95 %-Werten der Summenhäufigkeit ein interpretierbarer Tagesgang. Diese drei Kenngrößen zeigten zwar bei den in der Stunde von 8 bis 9 Uhr gezogenen Proben die jeweils höchsten Werte; während der übrigen Tagesstunden schwankten sie relativ gering und unsystematisch.

Der Jahresverlauf der SO_2 -Konzentrationen läßt sich aus Stichprobenmessungen zwar nur in begrenztem Maße als bei kontinuierlichen Bestimmungen verfolgen; die Jahreszeitabhängigkeit der SO_2 -Konzentrationen trat jedoch bei den hier dargestellten Untersuchungen deutlich hervor: Das Gesamtmittel der Analysen während der „Sommer“-Monate (April bis September; 13 Meßperioden) betrug 0,060, dasjenige der „Winter“-Monate jedoch 0,099 mg SO_2/m^3 .

In Tabelle 12 sind die Häufigkeitsverteilungen der mittleren SO_2 -Konzentrationen an den 100 Meßpunkten (jeweils Mittelwerte aus in der Regel 26 Einzelbestimmungen) und der 104 Mittelwerte der einzelnen Untersuchungstage aufgeführt. Letztere Mittelwerte wurden in der Regel aus 25 Einzelwerten gebildet. Sie verteilten sich auf einen deutlich breiteren Konzentrationsbereich als die Mittelwerte der 100 Meßpunkte. Aus den beiden Verteilungen wurden die

Tabelle 11
Vergleich von SO₂-Immissionen (1964/1965) im Rhein-Neckar-Gebiet
mit Ergebnissen aus Großstädten Nordrhein-Westfalens (5).

Stadt	Arithmetische Mittelwerte der Immissions- kenngrößen		Gesamt- fläche km ²	Ausge- messene Fläche km ²	Prozentualer Flächenanteil des ausgemessenen Gebietes mit Belastungen von											
					I ₁ =					I ₂ =						
	I ₁	I ₂			bis 0,10	0,11 bis 0,20	0,21 bis 0,30	0,31 bis 0,40	über 0,40	bis 0,40	0,41 bis 0,60	0,61 bis 0,75	0,76 bis 1,10	über 1,10		
Mannheim	0,14	0,51	121	60	21,7	63,3	11,6	1,7	1,7	61,7	20,0	3,3	8,3	6,7		
Ludwigshafen	0,12	0,40	37	25	40	56	4			72	12	12	4			
Köln*)	0,16	0,46	251	242	1,6	70,7	3,7		0,4	40,1	35,5	0,4		0,4		
Düsseldorf	0,16	0,47	159	115		83,5	16,5			40,8	42,6	15,7	0,9			
Recklinghausen	0,21	0,53	66	67		41,8	58,2			7,5	74,6	14,9	3,0			
Mülheim (Ruhr)	0,21	0,57	88	88		59,1	40,9			5,7	53,4	35,2	5,7			
Dortmund	0,23	0,58	272	216		30,6	66,6	2,8		2,8	55,1	34,7	7,4			
Bochum	0,23	0,60	121	119	0,8	26,9	68,9	3,4		3,4	51,3	35,3	10,0			
Duisburg	0,23	0,61	144	142		31,0	62,0	7,0		8,4	45,8	31,0	14,1	0,7		
Essen	0,23	0,64	189	193		37,8	54,9	7,3		5,7	38,3	29,5	24,9	1,6		
Leverkusen*)	0,25	0,75	46	42		45,2	31,0	9,5	9,5	21,4	21,4	14,3	26,2	11,9		
Gelsenkirchen	0,25	0,62	104	101		8,9	85,1	6,0		1,0	58,4	26,7	13,9			
Oberhausen	0,26	0,72	77	76		10,5	82,9	6,6			11,8	56,6	31,6			

*) Ein Teil der ausgemessenen Fläche (Köln 23,6, Leverkusen 4,8 %) wurde nach Angaben in der Originalarbeit (5) nicht ausgewertet.

empirischen Kenngrößen I_1 und I_2 berechnet, indem die 100 bzw. 104 Mittelwerte als Einzelwerte eingesetzt wurden. Dabei ergeben sich (in Milligramm SO_2/m^3):

für die räumliche Verteilung (100 Meßpunkte):

$$I_1 = 0,085 \quad I_2 = 0,134;$$

für die zeitliche Verteilung (104 Meßtage):

$$I_1 = 0,090 \quad I_2 = 0,172.$$

6. Diskussion

Über die Vor- und Nachteile einerseits diskontinuierlicher Stichproben und andererseits kontinuierlicher SO_2 -Messungen zur Luftüberwachung wird in Deutschland viel diskutiert. Zu diesem Thema können die Ergebnisse der hier dargestellten Messungen einen Beitrag geben. Weitere als die angeführten Auswertungen sind in Bearbeitung und bedürfen noch einiger Zeit. Der Aktualität halber sollten jedoch die Meßergebnisse aus einem bedeutenden Industriegebiet der Bundesrepublik nicht solange zurückgehalten werden.

Die Zweckmäßigkeit eines Meßschemas wird durch eine Reihe von Faktoren bedingt: Aufgabenstellung für ein Untersuchungsprogramm, geographische und orographische Verhältnisse, Bedeutung von verschiedenen Abgasquellen für die Luftverunreinigung im Untersuchungsraum, Konzentrationsbereich und -schwankungen der auftretenden Immissionen u. a.; im einzelnen soll hier darauf nicht näher eingegangen werden. In der Regel sind überdies die technischen, apparativen und personellen Möglichkeiten für die Durchführung von Meßprogrammen begrenzt und müssen optimal eingesetzt werden.

Die Ergebnisse von Luftuntersuchungen sollten nicht nur die Immissionssituation in einem Gebiet ausreichend genau wiedergeben, sondern auch möglichst schlüssige Informationen über die Ursache des Auftretens höherer Fremdstoffkonzentrationen liefern. Letzterer Zweck wird am besten durch kontinuierlich betriebene Messungen erfüllt, deren Ergebnisse zu gleichzeitig gemessenen Wetterdaten in Beziehung gesetzt werden. Das für solche Untersuchungen wichtigste meteorologische Element ist naturgemäß die Windrichtung, deren Messung insbesondere Aussagen über die Lage dominierender Emissionsquellen zur Meßstelle ermöglicht. Darüberhinaus lässt die gleichzeitige Messung von SO_2 -Immissionen und der Windrichtung an mehreren nicht zu weit auseinander gelegenen Meßstationen auch die Größe des Auswirkungsbereiches von Emissionsquellen abschätzen. So konnten z. B. die an der Meßstelle I in Mannheim gemessenen hohen SO_2 -Konzentrationen schon an der nächstgelegenen Meßstation nicht mehr festgestellt werden. Sie traten also lokal nur begrenzt auf. Diese Aussage stimmt mit den Ergebnissen der diskontinuierlichen Messungen im Mannheimer Süden überein, bei denen in diesem Gebiet kein Immissionsschwerpunkt festgestellt werden konnte.

Auf die Darstellung des Einflusses weiterer meteorologischer Faktoren außer der Windrichtung auf die SO_2 -Immissionen im Raum Mannheim/Ludwigshafen mußte hier verzichtet werden. Es lag zwar eine Vielzahl von Wetterdaten aus dem Untersuchungsraum vor; ihre Auswertung und Korrelation zu den gemessenen Immissionskonzentrationen erfordert jedoch — auch bei Einsatz moderner Methoden der Datenverarbeitung — noch einige Zeit.

Tabelle 12
Häufigkeitsverteilungen von mittleren SO₂-Konzentrationen (in mg/m³).

	mg SO ₂ /m ³												
	bis 0,020	0,021 bis 0,040	0,041 bis 0,060	0,061 bis 0,080	0,081 bis 0,100	0,101 bis 0,120	0,121 bis 0,140	0,141 bis 0,160	0,161 bis 0,180	0,181 bis 0,200	0,201 bis 0,220	0,221 bis 0,240	0,241 bis 0,260
a) Mittelwerte an 100 Meßpunkten													
Anzahl von Einzelwerten		2	29	28	24	7	5	4				1	
Anteil in %		2	29	28	24	7	5	4				1	
Überschreitungshäufigkeit der Klassenobergrenze in %		98	69	41	17	10	5	1	1	1	1	1	
b) Mittelwerte an 104 Meßtagen													
Anzahl von Einzelwerten	6	11	24	26	13	9	4	3	3	2	1		2
Anteil in %	5,8	10,6	23,1	25,0	12,5	8,6	3,8	2,9	2,9	1,9	1,0		1,9
Überschreitungshäufigkeit der Klassenobergrenze in %	94,2	83,6	60,5	35,5	23,0	14,4	10,6	7,7	4,8	2,9	1,9	1,9	

Bei mehrjährigen Messungen in Nordrhein-Westfalen und im Saarland verursachten meteorologische Einflüsse erheblich schwankende Immissionen. Derartige durch die Wittersituation bedingte Immissionsunterschiede können sogar bis zu 100 % betragen (19). Sollen die Ergebnisse einjähriger Meßreihen weittragende Folgerungen begründen, müßten daher die Einflüsse der wesentlichsten meteorologischen Elemente auf das Ergebnis weit mehr berücksichtigt werden, als dies bisher im allgemeinen der Fall ist. Die Frage der Normierbarkeit von Jahresmeßreihen auf ein meteorologisches „Normaljahr“ läßt sich jedoch nur aus den Ergebnissen langjähriger Meßreihen klären. Arbeiten in dieser Richtung wurden bereits an einigen Stellen begonnen (19, 20, 21). Wenn sich zur Zeit auch noch nicht abschätzen läßt, mit welcher Zuverlässigkeit sich der Zusammenhang zwischen meteorologischen Parametern und Schadstoffkonzentrationen erfassen läßt, so werden sich auch auf diesem Gebiet Konventionen treffen lassen können, wie es bei anderen Maßnahmen zur Reinhaltung der Luft bisher der Fall war. Eine solche Konvention dürfte zumindest befriedigendere Ergebnisse erwarten lassen als eine Schematik, bei der die meteorologische Situation bei der Angabe von Immissionsbelastungen fast völlig unberücksichtigt bleibt. Den meteorologischen Parametern dürfte nicht dadurch ausreichend Rechnung getragen werden, daß vor der Ermittlung von Immissionskenngrößen diejenigen Meßdaten ausgeschieden werden, die während langfristiger Inversionswetterlagen anfielen.

Bei den diskontinuierlichen Stichprobenmessungen, deren Vorteil normalerweise in der Ermittlung der räumlichen Verteilung von Immissionen liegt, waren die räumlichen Schwankungen der mittleren SO₂-Konzentrationen im Untersuchungsgebiet deutlich geringer als die zeitlichen Schwankungen während der Messungen über 12 Monate. Insofern kam den Ergebnissen von den kontinuierlich betriebenen Meßstationen, deren Vorteil gegenüber diskontinuierlichen Messungen gerade die Verfolgung des zeitlichen Verlaufs der SO₂-Immissionen ist, eine besondere Bedeutung zu.

In Tabelle 13 sind die Mittelwerte und die Immissionskenngrößen I₁ und I₂ an den sieben Meßstationen den aus den diskontinuierlichen Stichprobenmessungen ermittelten Werten für diejenigen Quadratkilometer gegenübergestellt, in denen sich die Meßstationen befanden. Mit Ausnahme der Meßstationen I und

Tabelle 13
Mittelwerte und Immissionskenngrößen bei kontinuierlichen und diskontinuierlichen SO₂-Bestimmungen am gleichen Ort (vgl. Abb. 1).

Meßstation Nr.	Kontinuierliche Messungen			Zur Auswertung herangezogene Meßpunkte Nr.	Diskontinuierliche Messungen		
	\bar{x}	I ₁	I ₂		\bar{x}	I ₁	I ₂
I	0,27	0,28	1,42	60, 61, 64, 65	0,08	0,11	0,34
II	0,09	0,10	0,32	43, 44, 48, 49	0,08	0,11	0,32
III	0,12	0,12	0,54	31, 32, 35, 36	0,10	0,14	0,42
IV	0,08	0,08	0,38	11, 12, 16, 17	0,08	0,14	0,53
V	0,09	0,09	0,49	1, 2, 5	0,07	0,12	0,41
VI	0,10	0,11	0,67	81, 82, 83, 84	0,09	0,13	0,39
VII	0,10	0,10	0,51	90, 91, 94, 95	0,09	0,14	0,48

VI, an denen sich lokal begrenzte sowie kurzzeitig hohe Immissionen stark auf die kontinuierlich gemessenen Ergebnisse auswirkten, war die Übereinstimmung befriedigend. Immerhin können Unterschiede in den Meßergebnissen der beiden Verfahren schon in der Analytik begründet sein. Zum Vergleich mit den an der Meßstelle III (in der Mannheimer Innenstadt, wo auch in Zukunft kontinuierliche SO₂-Bestimmungen vorgesehen sind) ermittelten Werten für I₁ (0,12 mg SO₂/m³) und I₂ (0,54 mg/m³) wurden die entsprechenden Immissionskenngrößen zusätzlich aus sämtlichen diskontinuierlich gemessenen Einzelwerten von den 16 Meßpunkten 24 bis 27, 30 bis 33, 35 bis 37, 40, 41, 89, 92 und 93 berechnet. Diese Meßpunkte liegen innerhalb bzw. am Rande eines Gebietes von 9 km², in dessen ungefährem Zentrum die Meßstation III liegt. Hierbei betrug I₁ 0,13 und I₂ 0,60 mg SO₂/m³. Insbesondere der Wert für I₂ wurde durch die an den Punkten Nr. 24 und 25 gemessenen hohen Immissionen stark beeinflußt. Bei einer arithmetischen Mittelung der Immissionskenngrößen für jeden der 9 Quadratkilometer (siehe Tab. 10) ergibt sich für I₁ 0,15 und für I₂ 0,41 mg/m³. Auch für den gesamten Untersuchungsraum lassen sich aus den Ergebnissen der kontinuierlichen Messungen — bei Zurückstellung der lokal bedingten Immissionen an der Meßstation I — die Immissionskenngrößen I₁ und I₂ unter befriedigender Übereinstimmung mit diskontinuierlich nach der Anweisung in der „Technischen Anleitung zur Reinhaltung der Luft“ ermittelten Werten darstellen.

7. Zusammenfassung

Es wird über die Ergebnisse von SO₂-Immissionsmessungen berichtet, die im Raum Mannheim/Ludwigshafen an sieben Meßstationen kontinuierlich und an 100 Meßpunkten durch diskontinuierliche Stichproben ausgeführt wurden.

Die mittleren SO₂-Konzentrationen zeigten deutlich größere Schwankungen im Jahresverlauf als innerhalb des Untersuchungsraumes. Somit konnte auch die mittlere räumliche Belastung des Untersuchungsgebietes mit Schwefeldioxid aus kontinuierlichen Messungen an einer begrenzten Zahl von Meßstationen beurteilt werden.

Gleichzeitige Windrichtungsmessungen bei kontinuierlichen SO₂-Bestimmungen ermöglichen Aussagen über die Herkunft der an den Meßstationen gemessenen Immissionen sowie über die räumliche Ausbreitung des Schwefeldioxids.

Im Jahresverlauf traten im Winter und im Tagesverlauf in der Zeit von 8 bis 10 Uhr die höchsten mittleren SO₂-Konzentrationen auf.

Die in Mannheim und Ludwigshafen gemessenen SO₂-Immissionen lagen deutlich niedriger als die in Großstädten Nordrhein-Westfalens, jedoch höher als die in der saarländischen Industriestadt Völklingen gemessenen Konzentrationen.

Literatur

1. Allgemeine Verwaltungsvorschriften über genehmigungsbedürftige Anlagen nach § 16 der Gewerbeordnung (Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft). Gemeinsames Ministerialbl., Ausgabe A, 15 (1964), Nr. 26, 433—448.
2. VDI-Handbuch Reinhaltung der Luft: Maximale Immissions-Konzentrationen — Schwefeldioxid (VDI 2108), VDI-Verlag GmbH, Düsseldorf 1961.
3. VDI-Handbuch Reinhaltung der Luft: Messung gasförmiger Immissionen. Messung der Schwefeldioxid-Konzentration (VDI 2451), Düsseldorf 1963 (2. Auflage in Vorbereitung).

4. STRATMANN, H., und S. KÜLSKE: Smogwarndienst im Lande Nordrhein-Westfalen. Erste Mitteilung der Ergebnisse des II. Meßprogrammes nach § 7 des Immissionsschutzgesetzes NW für die Zeit vom 1.10.1963—30.9.1964. Schriftenreihe der Landesanstalt für Immissions- und Bodennutzungsschutz des Landes Nordrhein-Westfalen H. 2 (1966), 7—19.
5. STRATMANN, H., und M. BUCK: Schwefeldioxid-Immissionsmessungen im Lande Nordrhein-Westfalen. Erste Mitteilung der Ergebnisse des III. Meßprogrammes nach § 7 des Immissionsschutzgesetzes NW für die Zeit vom 2.11.1964—28.10.1965. Schriftenreihe der Landesanstalt für Immissions- und Bodennutzungsschutz des Landes Nordrhein-Westfalen H. 3 (1966).
6. Gesetz zum Schutz vor Luftverunreinigungen, Geräuschen und Erschütterungen — Immissionsschutzgesetz. Gesetzbl. für Baden-Württemberg H. Nr. 3 (1964), 55—58.
7. STRATMANN, H.: Eine mikroanalytische Methode zur Bestimmung von Schwefeldioxid in der Atmosphäre. Mikrochim. Acta (1954), 668—678.
8. GRUPINSKI, L.: Gas-Immissionsmessungen nach dem Leitfähigkeitsverfahren. Wasser, Luft u. Betrieb 9 (1965), 38—40.
9. HÖSCHELE, K.: Ergebnisse von Messungen des Schwefeldioxidgehaltes der Luft in Karlsruhe. Staub 25 (1965), 102—111.
10. STRATMANN, H.: Schwefeldioxid-Immissionen eines Heizkraftwerkes in München. Staub 19 (1959), 352—360.
11. LAHMANN, E.: Meßzeitintervalle und Ergebnisse von SO₂-Immissionsmessungen. Gesundh.-Ing. 86 (1965), 69—72.
12. BUCK, M.: Der Einfluß des Meßzeitintervalls auf Kenngrößen der Schwefeldioxid-Immission. Staub 25 (1965), 112—119.
13. STRATMANN, H., und D. ROSIN: Untersuchungen über die Bedeutung einer empirischen Kenngröße zur Beschreibung der Häufigkeitsverteilung von SO₂-Konzentrationen in der Atmosphäre. Staub 24 (1964), 520—525.
14. GRÄFE, K., H. O. HETTCHE und K. H. PETERS: SO₂-Gehalt der Stadtluft in Beziehung zur Gesundheit und zum Wetter. Gesundh.-Ing. 81 (1960), 302—308.
15. BREUER, W.: Die Aussagekraft kontinuierlicher Immissionsmessungen. IWL Forum Band 3 (1965), 381—400. Institut für gewerbliche Wasserwirtschaft und Luftreinhaltung, Köln.
16. Klimakunde des Deutschen Reiches, Band II, 231. Verlag Dietrich Reimer, Berlin 1939.
17. RUMLER, F., H. NEIS, R. HERBOLSHIMER und L. HOFFMANN: Ergebnisse der Schwefeldioxidmessungen an den stationären Meßstellen in Völklingen (1962—1965). Schriftenreihe, herausgeg. vom Minister für Arbeit und Sozialwesen des Saarlandes, H. 1 (1966), 5—23.
18. Jahresbericht 1965. Schriftenreihe der Landesanstalt für Immissions- und Bodennutzungsschutz des Landes Nordrhein-Westfalen H. 4 (1966), 9.
19. HÖSCHELE, K.: Der zeitliche Verlauf und die örtliche Verteilung der SO₂-Konzentrationen in einem Stadtgebiet mit einer Analyse der Einflußgrößen. Meteorol. Rdschau 19 (1966), 14—22.
20. HÖSCHELE, K.: Vortrag beim Meteorol. Colloquium der Universität Frankfurt am 24.11.1966. Variationen der Klimaelemente und Luftverunreinigungen. Veröffentlichung in Vorbereitung.
21. OBLÄNDER, W.: Veröffentlichung in Vorbereitung.

