

Baden Württemberg Programm
Lebensgrundlage Umwelt und ihre Sicherung (BWPlus)

Forschungsbericht FZKA - BWPLUS

**Expositionsverfahren für ein
lungenspezifisches Bioassay zur Bewertung
industrieller Feinstpartikel – Emissionen**

S. Mülhopt, H.-R. Paur, H. Seifert

Forschungszentrum Karlsruhe
Institut für Technische Chemie
Bereich Thermische Abfallbehandlung (ITC-TAB)

Die Arbeiten des Programms Lebensgrundlage Umwelt und ihre Sicherung
werden mit Mitteln des Landes Baden-Württemberg gefördert.

Förderkennzeichen: BWC 21018

April 2004

Expositionsverfahren für ein lungenspezifisches Bioassay zur Bewertung industrieller Feinstpartikel - Emissionen (BWC 21018)

Zusammenfassung

Partikelemissionen aus Industrie und Verkehr gehören zu den Hauptquellen des anthropogenen Schwebstaubs in der Umwelt. In zahlreichen epidemiologischen Studien wurde die Massenkonzentration von Feinstpartikeln mit nachteiligen Wirkungen auf die menschliche Gesundheit assoziiert. Die Inzidenz von Atemwegserkrankungen (Asthma, Bronchitis) sowie von Herz-Kreislaufkrankungen erhöht sich mit zunehmender PM₁₀-Konzentration, wobei die molekularen Mechanismen der gesundheitlichen Wirkung von Feinstpartikeln nahezu unbekannt sind. Zur Beschreibung der biologischen Wirksamkeit von Feinstpartikeln ist daher ein Bioassay mit entsprechendem Expositionssystem notwendig. Für die Beschreibung der Mechanismen ist eine Exposition an der Gas-Flüssigkeits-Grenzschicht wichtig, da die submers-Technologie die Partikeln und die Mechanismen verfälscht.

In einem Kooperationsvorhaben werden der lungenspezifische Bioassay zur Bewertung der Toxizität von Feinstpartikeln aus industriellen Quellen (s.a. BWPlus Vorhaben Nr. BWB 20013) und ein Standard-Expositionsverfahren für die Exposition von Lungenzelllinien gegenüber industriellen Aerosolen entwickelt.

Im hier beschriebenen Projekt wird das Standard-Expositionsverfahren für den Einsatz an industriellen Feinstpartikel-Emissionsquellen entwickelt und bezüglich seines Depositionsverhaltens charakterisiert. Dafür wurde mit Hilfe eines Modellaerosols ein Dosimetrie-Verfahren entwickelt, das es erlaubt die genaue Masse an deponiertem Aerosol auf der Membran bzw. Zellfläche zu bestimmen. Mit diesem Verfahren wurden die Probenahme und die Exposition auf Reproduzierbarkeit hin optimiert. Am optimierten System wurden die Parameter Partikelgröße, Durchsatz und Expositionszeit variiert und bezüglich der Effizienz der Deposition bewertet.

Es konnte gezeigt werden, dass das Expositionssystem für die Bewertung der Toxizität von Aerosolen mit dem Bioassay geeignet ist. Am Modellaerosol Flugstaub aus einer kommunalen Müllverbrennungsanlage konnte die biologische Wirksamkeit aufgezeigt werden. Mit Hilfe des Dosimetrieverfahrens wurde als Abscheidemechanismus der Feinstpartikeln auf der Zellkultur Diffusion festgestellt. Die Depositionseffizienz des Systems wurde zu 1,5 % der eingeleiteten Partikelmasse bestimmt.

Exposure technique for a lung specific bioassay for the assessment of industrial ultra fine particle- emissions (BWC 21018)

Summary

Particle emissions from industry and traffic are the main sources of anthropogenic aerosols in the environment. Numerous epidemiological studies have associated the mass concentration of fine particles with adverse health effects to the population. The incidence of pulmonary diseases (asthma, bronchitis) increases with the PM₁₀-concentration. The molecular mechanisms of the health effects of fine particles are not known. For describing the biological potential of ultra fine particles a bioassay with corresponding exposure system is required. For the description of the mechanisms an exposure at the air-liquid-interface is important, because the submers technology falsifies the particles and the mechanisms.

In a cooperation project the lung specific bioassay for the assessment of the toxicity of ultra fine particles from industrial sources (see BWPlus project Nr. BWB 20013) and a standard exposure technique for the exposure of lung cell cultures against the industrial aerosols are developed.

In this project the standard exposure technique for the application at industrial fine particle emission sources is developed and regarding to its deposition behaviour described. For this a dosimetry technique with a model aerosol was developed, which allows to determine the exact mass of deposited aerosol on the membrane or the area of the cells. With this technique the sampling and the exposure were optimised to reproducibility. At the optimised system the parameter particle size, flow rate and exposure time were varied and assessed with regard to the deposition efficiency.

It was shown that the exposure system is appropriate to assess the toxicity of aerosols by the bioassay. For the model dust fly ash from a municipal waste incinerator the biological activity was shown. By means of the dosimetry technique developed the deposition mechanism of fine particles on the cell cultures was defined as diffusion. The deposition efficiency of the system was determined for 1.5% of the fed in particle mass.

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	1
Zielsetzung und Arbeitsprogramm	2
Partikelerzeugung im Strömungsreaktor AEOLA	3
Probenahme mit Vorabscheider	4
Die Expositionseinheiten	6
Volumenstrommessung und –regelung	7
Entwicklung eines Dosimetrieverfahrens	8
Modellaerosol für die Dosimetrie	8
Analyse der exponierten Membranen	8
Ergebnisse und Diskussion	9
Schlussfolgerung und Ausblick	14
Literatur	16

Einleitung

In den letzten Jahren konnte durch epidemiologische Studien gezeigt werden, dass eine Assoziation zwischen der Konzentration von Feinstpartikeln (PM_{10} , $PM_{2,5}$) in der Atmosphäre und der Mortalitäts-, bzw. Morbiditätsrate bezüglich Atemwegs- und Herz-Kreislaufkrankungen, besteht [1],[2]. Die Ursachen der toxischen Wirkung von Feinstpartikeln auf den menschlichen Organismus sind bisher ungeklärt. Neben der chemischen Zusammensetzung werden vor allem die physikalischen Partikeleigenschaften für die Wirkung verantwortlich gemacht. Je kleiner der Partikeldurchmesser umso stärker ist die Wirkung. Ein Grund hierfür ist, dass die Verweilzeit im menschlichen Atemtrakt von der Partikelgröße abhängt. Der Großteil eingeatmeter unlöslicher Feststoffe wird durch das Selbstreinigungssystem des Atemtraktes (mukoziliärer Transport unterstützt durch Schnäuzen und Husten) innerhalb von 24 Stunden ausgeführt. Die Feinstpartikeln gelangen jedoch bis in den Alveolarbereich, in dem sie Wochen bis Monate verbleiben (Abb. 1).

Zahlreiche Versuche mit Tieren und Zellkulturen wurden durchgeführt, um zu bestimmen welche Stoffe, Partikelgrößen bzw. -formen zu krankhaften Veränderungen im Lungenbereich führen. Bisher untersuchte Quellen sind der Dieselruß und der Zigarettenrauch [3]. Neuere Untersuchungen mit menschlichen Lungenzellen ergaben, dass Flugaschepartikeln aus einer Müllverbrennungsanlage Einfluss auf Immunreaktionen von Lungenzellen haben [4],[5]. Eine Partikelexposition könnte demnach den Immunstatus des Organismus dahingehend verändern, dass die Abwehrreaktionen bei einer gleichzeitigen oder einer bestehenden bakteriellen oder virusinduzierten Lungenerkrankung (Bronchitis, Keuchhusten, u.a.) gestört werden.

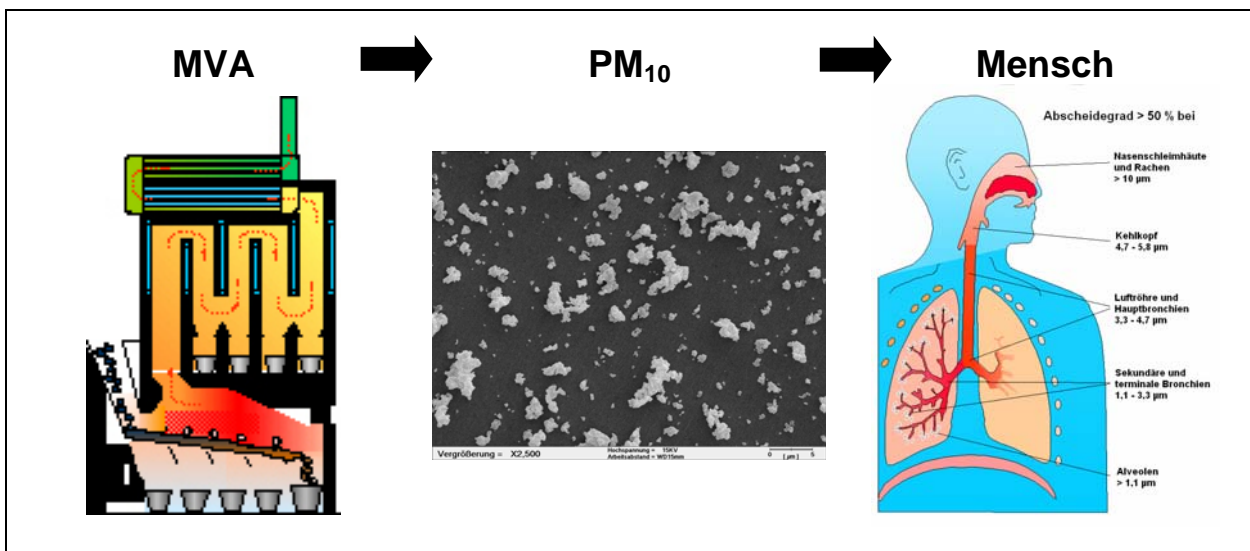


Abb. 1 Intention des Projektes: Die biologische Wirkung von Feinstpartikel-Emissionen auf den menschlichen Organismus

Für die quantitative Bewertung der Toxizität industrieller Feinststäube ist die Bestimmung von Dosis/Wirkungsbeziehungen wesentlich. In Zusammenarbeit mit dem Institut für Toxikologie und Genetik des Forschungszentrums Karlsruhe (ITG) wird hier ein Verfahren entwickelt, in dem menschliche Lungenzellen in vitro exponiert werden,

um Partikeln aus industriellen Quellen hinsichtlich ihrer Wirkung auf die menschliche Gesundheit zu bewerten. Im Rahmen der nachfolgend beschriebenen Arbeiten des Instituts für Technische Chemie wird ein im industriellen Bereich einsetzbares Expositionssystem für Lungenzellen sowie ein Messverfahren für die Partikeldosis entwickelt [6].

Zielsetzung und Arbeitsprogramm

Ziel dieses Vorhabens ist es, Feinstpartikel-Emissionen (PM₁₀, PM_{2,5}) direkt an der Quelle bezüglich ihrer lungenspezifischen Toxizität zu bewerten. Im ersten Teil des Vorhabens (Jahre 1 und 2) wird ein Standardverfahren zur Exposition immobilisierter Lungenzellen im Technikum entwickelt und charakterisiert. Im zweiten Teil des Vorhabens werden dann mit diesem Expositionsverfahren an realen Quellen, wie zum Beispiel einer kommunalen Hausmüllverbrennungsanlage, erste Bewertungen der Abgase bezüglich ihrer Toxizitäten durchgeführt.

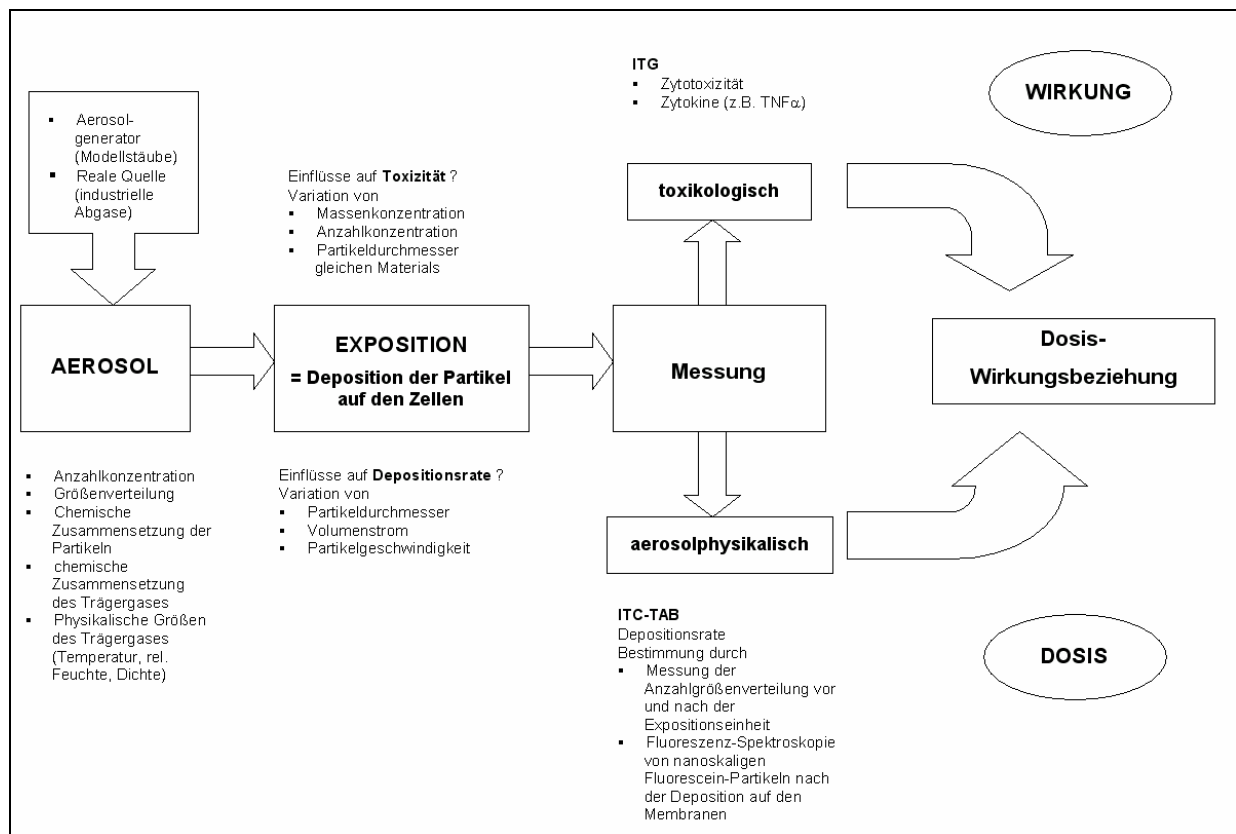


Abb. 2 Darstellung der Zusammenhänge im Kooperationsvorhaben zur Toxizität von Feinstpartikeln

Das Vorhaben wird in Zusammenarbeit mit dem Institut für Toxikologie und Genetik (ITG) des Forschungszentrums Karlsruhe durchgeführt. Das ITG entwickelt hierbei den Bioassay (s.a. BWPlus Vorhaben Nr. BWB 20013) und führt die biologischen Messungen in enger Abstimmung mit dem Institut für Technische Chemie (ITC-TAB) durch. Das ITC-TAB bearbeitet die aerosoltechnologischen Fragestellungen, die sich

im Zusammenhang mit dem Aufbau und der Charakterisierung der Expositionsapparatur ergeben. Zur Entwicklung dieses Standardverfahrens werden im ersten Teil des Vorhabens folgende Aufgaben bearbeitet:

- Auswahl der Expositions-kammer
- Modifikation der Expositions-kammer für den Einsatz mit Partikel an industriellen Quellen
- Aufbau des gesamten Expositionssystems einschließlich Aerosolgeneratoren und Partikelmess-technik im Aerosoltechnikum
- Entwicklung des Standardverfahrens für die Probenahme der Partikeln und Exposition der Zellen
- Entwicklung einer Dosimetrie für die Partikelexposition immobilisierter Lungenzellen.

Experimentelle Methoden

Partikelerzeugung im Strömungsreaktor AEOLA

Die AEOLA (**Aerosol-Labor-Anlage**) ist eine Technikumsanlage zur Herstellung von definierten Aerosolen in weiten Konzentrationsbereichen, an der die ersten Expositionsversuche durchgeführt werden. Als Gas können hierbei kalte und beheizte Frischluft oder Rauchgas aus einem Leichtölbrenner eingesetzt werden. Zusätzlich können dem Gas relevante Konzentrationen gasförmiger Spurenstoffe (SO₂, NO_x, Dioxin etc.) zugesetzt werden. Bei Durchsätzen von bis zu 800 Nm³/h können im Temperaturbereich von 20 - 200°C die Gas- und Partikelkonzentrationen in weiten Bereichen variiert werden. Abb. 3 zeigt ein Verfahrensfliessbild der AEOLA mit ihren wichtigsten Komponenten. Das Rauchgas wird mit einem Leichtölbrenner erzeugt. Das Gas strömt zuerst durch einen Schwebstofffilter, der gewährleistet, dass das Gas weitgehend partikelfrei ist und spätere Messungen nicht durch fremde Einträge verfälscht werden. Dann folgt ein Luftherhitzer mit dem das Gas auf die gewünschte Temperatur erwärmt werden kann. Im Anschluss besteht die Möglichkeit Flüssigkeiten zu dosieren. Danach strömt das Gas in den AEOLA-Reaktor, an dessen oberem Ende ein Bürstendosierer (MVM, Universität Karlsruhe) installiert ist. Der Bürstendosierer kann mit vorgetrockneten Stäuben (Flugasche, Monospher) beaufschlagt werden, und liefert dann einen kontinuierlichen Aerosolstrom von 20 bis 500 mg/m³ über einen Zeitraum von bis zu 8 Stunden. Der Reaktor hat einen Durchmesser von 0,5 m und ist auf seiner Gesamtlänge von 6,0 m mit ausreichend Stützen versehen, um an den verschiedensten Stellen Messungen durchführen zu können. Im unteren Drittel des AEOLA-Reaktors sind die Probenahmesonden für die unterschiedlichen Versuche (Exposition, Impaktor, Messtechnik, etc.) installiert. Danach wird das Gas durch einen Taschenfilter gereinigt. Am Ende des Kreislaufes befindet sich das Gebläse.

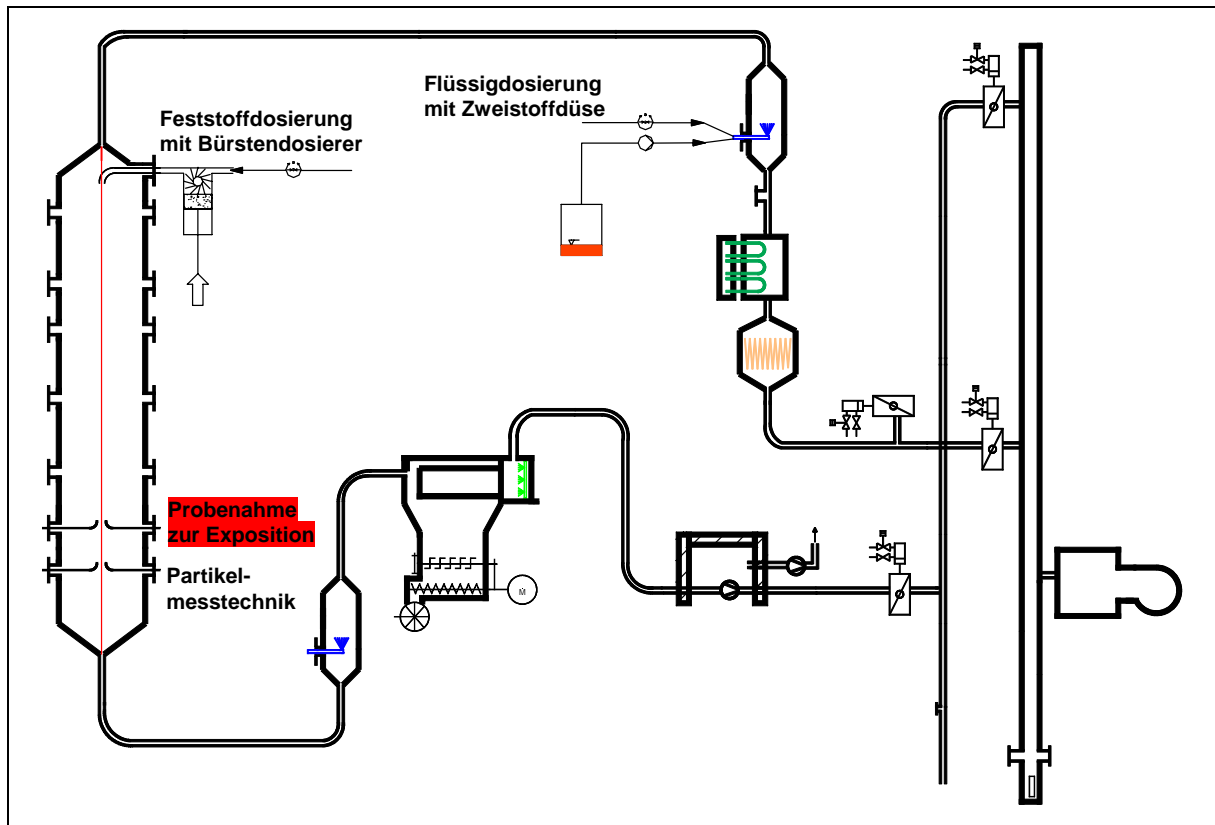


Abb. 3 Fließbild der Technikumsanlage AEOLA

Probenahme mit Vorabscheider

Um Partikeln mit einem Durchmesser $> 1 \mu\text{m}$ abzuscheiden, wird der aus AEOLA entnommene Volumenstrom zunächst über einen Zyklon geleitet (Abb. 4). Damit wird vermieden, dass einzelne große Partikeln einen nicht reproduzierbaren Beitrag zur deponierten Masse verursachen und so die Messung durch Fluoreszenz-Spektroskopie bzw. den Bioassay beeinträchtigen.

Die anschließende Probenahme erfolgt in einem dem Zyklon nachgeschaltetem Plexiglasreaktor. Dieser ist im Durchmesser an die benötigten Strömungsverhältnisse angepasst und mit ausreichend Probenahmestutzen versehen, um für jede Transwell-Membran einen isokinetischen Probenstrom zu entnehmen [8]. Damit entfallen die Strömungsverteiler im Probenstrom, die zu Ungleichverteilungen zwischen den Membranen gesorgt haben.

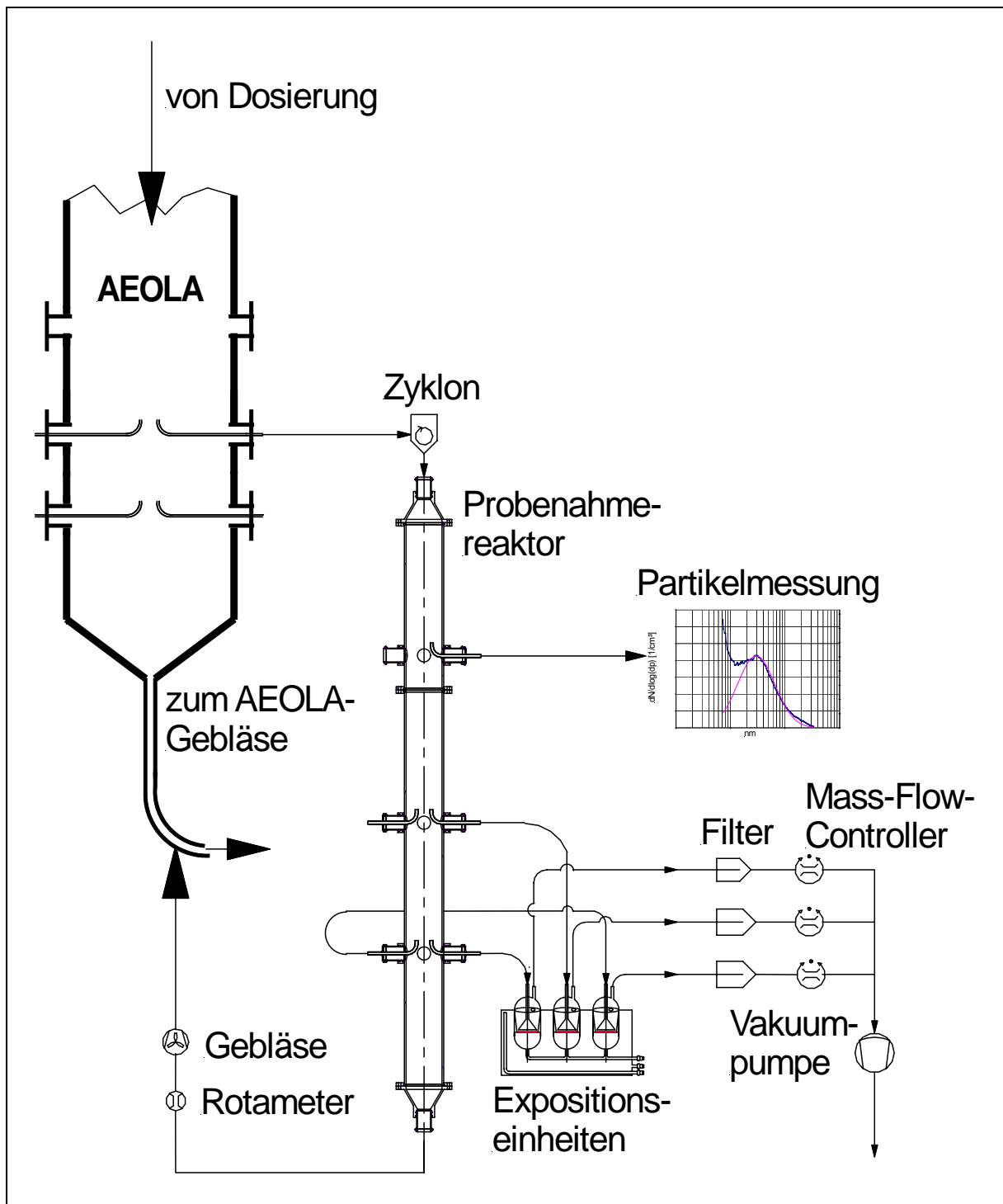


Abb. 4 Fließbild der optimierten Probenahme von Feinstpartikeln für die Exposition

Im Probenahmerekaktor wird die Anzahlgrößenverteilung durch Messung mit dem SMPS bestimmt. Es findet durch den Zyklon eine leichte Verschiebung zu kleineren Partikeln statt, die Anzahlkonzentration geht nur wenig zurück. Die Partikeln größer $1 \mu\text{m}$ werden durch das SMPS nicht erfasst (Messbereich $13 - 800 \text{ nm}$). Nach dem Zyklon liegt eine Anzahlkonzentration von ca. 10^6 1/cm^3 vor, der Modalwert liegt bei ca. 120 nm (Abb. 5).

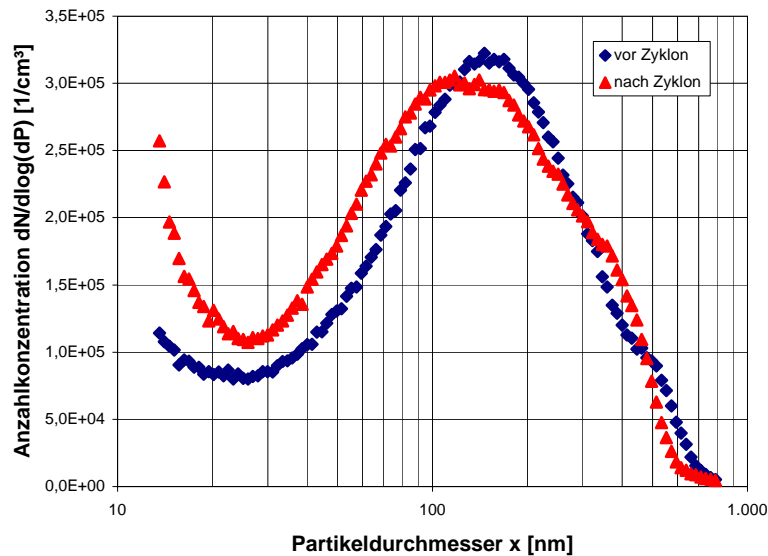


Abb. 5 Anzahlgrößenverteilung von Fluorescein-Natrium-Aerosol vor und nach dem Zyklon

Die Expositionseinheiten

Das Kernstück des Verfahrens sind die Expositionseinheiten für jeweils drei Zellkulturen [9],[14] (Fa. Vitrocell). Diese Expositionseinheiten bestehen aus einer oberen Einheit, in der das Aerosol strömt, und der unteren Einheit, in die die Zellkulturen eingesetzt werden. Die Zellkulturen befinden sich in Kulturtöpfchen des Typs „Transwell-Clear 3460“ (Fa. Costar). Der Aerosolstrom wird durch zentrische Teflonröhrchen genau mittig über der Zellmembran eingeleitet. Er strömt dann über die Zellen nach außen und verlässt die Expositionskammer durch den Deckel zur Abgasleitung.

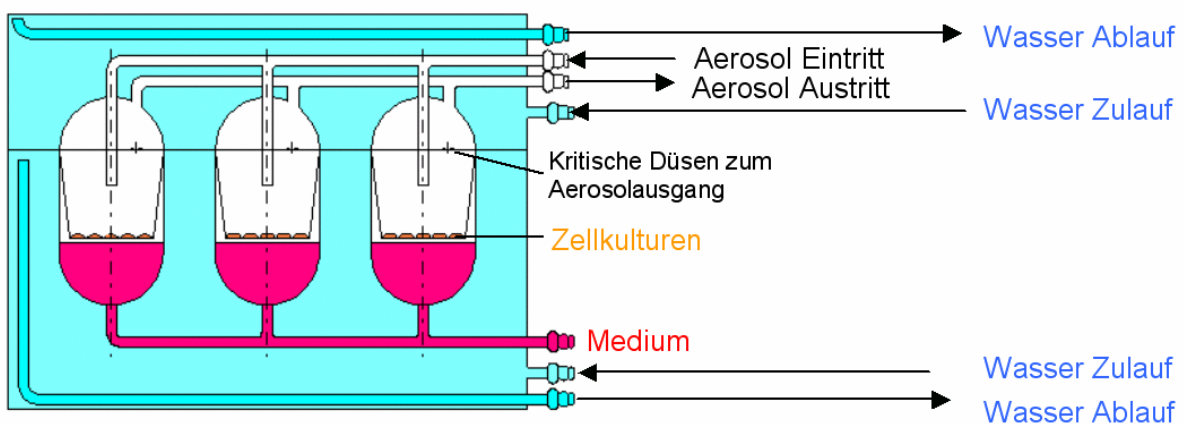


Abb. 6 Aufbau der Expositionseinheiten vor Verbesserung des Aerosolteils

Die untere Einheit der Expositionseinheit nimmt die Transwell-Töpfchen mit der Zellkultur auf. Das Nährmedium benetzt die Zellmembran von der Unterseite. Die eingesetzten Zellkulturen aus dem Alveolarbereich müssen auf Körpertemperatur

gehalten werden. Daher werden die Gehäuse beider Einheiten mit 37 °C temperiertem Wasser durchströmt, das die Expositionseinheiten vollständig umgibt.

Die Expositionseinheiten wurden im Laufe des Projektes durch neue ersetzt, die den Einsatz großer Transwell-Kulturschalen erlauben. Anstelle von Typ 3460 mit einem Durchmesser von 12 mm werden nun Membranen Typ 3450 mit einem Durchmesser von 24 mm verwendet. Durch die Verdoppelung des Durchmessers wird die Fläche und in Folge auch die pro Versuch deponierte Partikelmasse vervierfacht. Diese Erhöhung der Partikelmasse erleichtert die Analyse mittels Fluoreszenz-Spektroskopie bzw. Bioassay.

Bei dieser Umstellung wurde auch die Aerosolführung verbessert. Jede Membran wird mit einer eigenen Sonde und Aerosolzuführung versehen, die Zuführung wurde trompetenförmig bis direkt über die Membran geführt (Abb. 7).

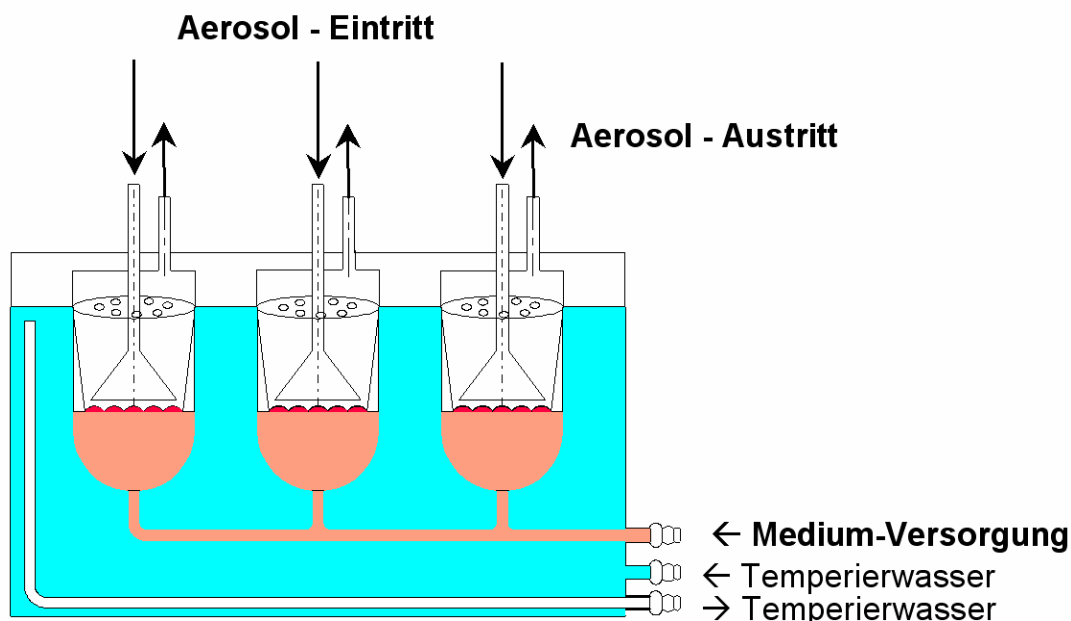


Abb. 7 optimierte Aerosolzuführung an den Expositionseinheiten

Volumenstrommessung und -regelung

In der Originalapparatur [6],[9] wurden die einzelnen Volumenströme des Expositionssystems durch abluftseitige Nadelventile eingeregelt. Diese Verfahrensweise hatte jedoch neben der schlechten Kontrolle während des Versuches den Nachteil, dass Druckschwankungen im Reaktor oder im Expositionssystem Schwankungen der Volumenströme in den einzelnen Expositionskammern verursachten. In Extremfällen wurde die Kammer mit Medium geflutet, was zum Verlust der Zellkultur führte. Daher wurden die Nadelventile durch Mass-Flow-Controller ersetzt, die den Volumenstrom ständig überwachen und bei Schwankungen auf den Sollwert automatisch nachregeln. Der Volumenstrom jeder Expositionskammer wird somit mit einer Genauigkeit von $\pm 1\%$ geregelt.

Entwicklung eines Dosimetrieverfahrens

Modellaerosol für die Dosimetrie

Zur Messung der deponierten Partikeldosis soll ein sehr empfindliches Verfahren eingesetzt werden, das über einen weiten Konzentrationsbereich anwendbar ist und relativ leicht ausgeführt werden kann. Fluorescein-Natrium-Aerosol wurde in einem Aerosolgenerator nach VDI 3491 hergestellt. Die Größenverteilung der entstehenden Partikel wurde mit den Messsystemen EMS und SMPS bestimmt. Beispielhaft sind in Anzahlgrößenverteilungen des Fluorescein-Natrium-Aerosols gezeigt. Sie zeigen in Abhängigkeit von der versprühten FNA-Lösung Modalwerte von $x_{\text{mod}} = 38$ nm bzw. 110 nm (geometrische Standardabweichung $\sigma_g = 2$). Durch Variation der Fluoresceinkonzentration, des Volumenstroms der versprühten Lösung sowie des Vordrucks der Zweistoffdüse im Aerosolgenerator konnte der Modalwert im Bereich von 28 nm bis 120 nm variiert werden.

Analyse der exponierten Membranen

Zur Analyse der deponierten Masse an Fluorescein-Natrium werden die Membranen mit einem Skalpell aus den Töpfen herausgelöst und in einer Probendose mit 10 ml Wasser (LiChrosolv → für Chromatographie, VWR) für 5 min im Ultraschall extrahiert. Je nach Konzentration wird die Lösung so verdünnt, dass die Spektroskopie im Bereich der Kalibrationsgeraden durchgeführt werden kann. Die Lösung wird im Fluoreszenz-Spektrometer (Aminco Bowman Series 2) analysiert und mittels der gemessenen Kalibrationsgerade die extrahierte Menge ermittelt.

Die Wiederfindungsrate von Fluorescein-Natrium auf Transwell-Membranen wurde ermittelt. Hierfür wurden Fluorescein-Natrium-Lösungen mit bekannter Einwaage auf die Membran aufpipettiert und diese Membran anschließend getrocknet. Anschließend wurde die Membran im oben beschriebenen Verfahren extrahiert und analysiert. Die Wiederfindungsrate WF beträgt 30 ± 5 % und wird bei der Berechnung der deponierten Masse wie folgt berücksichtigt:

$$m = m_F / WF$$

Gl. (1)

Ergebnisse und Diskussion

Unter Anwendung des beschriebenen Verfahrens wurden Parameteruntersuchungen durchgeführt. Dabei wurden die Expositionsdauer und die Volumenströme variiert, während das Aerosol bezüglich der Anzahlgrößenverteilung stabil gehalten wurde. Aus der Anzahlgrößenverteilung wird durch Integration über die Kurve die Gesamtanzahlkonzentration ermittelt. Mit der Dichte von Fluorescein-Natrium wird die Massenkonzentration pro Milliliter Gas (1 atm, 20°C) bestimmt. Durch Multiplikation mit dem Volumenstrom und der Expositionsdauer ergibt sich die über eine Membran geleitete Partikelmasse (= maximal deponierbare Masse). Als Bewertungsgröße für die Qualität einer Exposition wurde der Quotient aus der abgeschiedenen Partikelmasse und der maximal deponierbaren Partikelmasse bestimmt:

$$\text{Depositionseffizienz} = \frac{\text{deponierte Masse}}{\text{maximal deponierbare Masse}} \quad \text{Gl. (2)}$$

Der Effekt liegt an der Überlagerung von 2 verschiedenen Abscheidemechanismen:

- Impaktion der größeren Partikeln
- Diffusionsabscheidung für die kleineren Partikeln

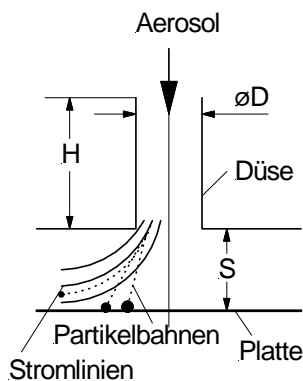


Abb. 8 Prinzip eines Impaktors

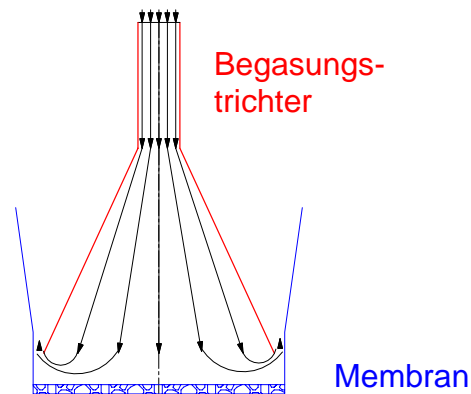


Abb. 9 Strömungsverhältnisse über der Membran

Das Verhalten ähnelt dem eines Impaktors: durch Umlenkung der Strömungsbahnen um 90 bis 180 Grad werden die Partikeln, die auf Grund ihrer Masse zu träge sind dieser Stromlinie zu folgen, auf der Grundplatte abgeschieden. Die Abscheidecharakteristik ist abhängig von der Geschwindigkeit, je höher die Anströmung, desto größer die Abscheideleistung. Da aber in der Expositionseinheit mit extrem niedrigen Geschwindigkeiten gearbeitet wird (Tabelle 1), um dem Lungenmodell nahe zu sein und ein Austrocknen der Zellkulturen zu vermeiden, werden hier nur wenige größere Partikel gemäß ihrer Trägheit abgeschieden. Die kleineren Partikeln werden aufgrund der Diffusion abgeschieden. Wird die Gasgeschwindigkeit zu groß ist die Verweilzeit der Feinstpartikeln im

Expositionssystem zu kurz um sich auf der Membran abzulagern. Aus diesen Mechanismen ergibt sich ein Bereich der optimalen Depositionseffizienz.

Tabelle 1: Geschwindigkeiten in m/s über der Membran bzw. am Außenring des Begasungstrichters

	Membran [m/s]	Abluft Außenring [m/s]
Fläche in mm ²	452,39	72,26
Volumenstrom in ml/min		
100	0,0037	0,0231
200	0,0074	0,0461
300	0,0111	0,0692
400	0,0147	0,0923
500	0,0184	0,1153

Ergänzend wird durch Messung der Anzahlgrößenverteilung mit dem SMPS sowohl vor wie auch hinter der Expositionseinheit der Fraktionsabscheidungsgrad bestimmt (Abb. 7). Diese Messung wird für den Betriebspunkt $V = 300$ ml/min durchgeführt. Dieser Volumenstrom entspricht dem Probenstrom des SMPS. Da die Probenströme in den Expositionseinheiten in der gleichen Größenordnung liegen ist somit eine Bestimmung hinter der Expositionseinheit nur möglich, wenn das SMPS direkt in Reihe geschaltet wird und damit den Volumenstrom bestimmt.

Die Expositionseinheit kann wie ein Abscheider betrachtet werden, in dem die mit dem Rohgas zugeführten Partikeln in mindestens zwei Teilmengen aufgeteilt werden: die abgeschiedene Fraktion, die in der Expositionseinheit verbleibt und das Reingas, das noch Partikeln enthält (Emission). Die Menge und die Partikelgrößenverteilung der abgeschiedenen bzw. im Reingas vorhandenen Partikeln hängen von den charakteristischen Eigenschaften des Abscheiders, bzw. der Expositionseinheit ab. Die charakteristische Eigenschaft des Abscheiders wird durch die **Trenngradkurve** und den **Gesamtabscheidungsgrad** beurteilt.

Beim Abscheider wird der Trenngrad oft **Fraktionsabscheidungsgrad** genannt und mit $T_r(\bar{x}_i)$ bezeichnet. Der Trenngrad

$$T_r(\bar{x}_i) = \frac{\Delta M_{r,a}(\bar{x}_i) - \Delta M_{r,f}(\bar{x}_i)}{\Delta M_{r,a}(\bar{x}_i)} = 1 - \frac{\Delta M_{r,f}(\bar{x}_i)}{\Delta M_{r,a}(\bar{x}_i)} \quad \text{Gl. (3)}$$

gibt für jede Größenklasse i mit einem mittlerem Partikeldurchmesser von \bar{x}_i das Verhältnis der abgeschiedenen Partikelmenge bezogen auf die im Rohgas enthaltene Partikelmenge an. Dabei sind $\Delta M_{r,f}(\bar{x}_i)$ und $\Delta M_{r,a}(\bar{x}_i)$ die gemessenen Mengenkonzentrationen für die Größenklasse i im Reingas (Index „f“ Feingut) und im Rohgas (Index „a“ Aufgabegut).

$T_r(\bar{x}_i)$ kann Werte zwischen 0 (keine Partikel abgeschieden) und 1 (alle Partikel abgeschieden) annehmen:

$$0 \leq T_r(\bar{x}_i) \leq 1 \quad \text{Gl. (4)}$$

Mit Gl. (3) kann der Verlauf von $T_r(\bar{x}_i)$, die **Trenngradkurve oder Trennkurve**, berechnet werden. Aus der Trenngradkurve ergibt sich die Abhängigkeit der Trenngrade von den Partikelgrößen. Bei der Auswertung der SMPS-Daten wird die Trenngradkurve verwendet.

Der Gesamttrenngrad oder **Gesamtabscheidegrad** ist wie folgt definiert:

$$E_r = \frac{\sum_{x_{\min}}^{x_{\max}} \Delta M_{r,a}(\bar{x}_i) - \sum_{x_{\min}}^{x_{\max}} \Delta M_{r,f}(\bar{x}_i)}{\sum_{x_{\min}}^{x_{\max}} \Delta M_{r,a}(\bar{x}_i)} = 1 - \frac{\sum_{x_{\min}}^{x_{\max}} \Delta M_{r,f}(\bar{x}_i)}{\sum_{x_{\min}}^{x_{\max}} \Delta M_{r,a}(\bar{x}_i)} \quad \text{Gl. (5)}$$

Dabei sind $\sum_{x_{\min}}^{x_{\max}} \Delta M_{r,f}(\bar{x}_i)$ und $\sum_{x_{\min}}^{x_{\max}} \Delta M_{r,a}(\bar{x}_i)$ die gesamte Menge aller Partikel im Reingas (Index „f“) bzw. im Rohgas (Index „a“).

Der Unterschied zwischen Trenngrad und Gesamtabscheidegrad liegt im Bewertungsbereich. Während die Abscheideleistung für einen großen Partikelbereich oder für alle Partikel durch den Gesamtabscheidegrad bewertet wird, sind die Abscheideergebnisse von einzelnen Partikelklassen durch den Trenngrad bestimmt [10],[11].

Die Trenngradbestimmung erfolgt im Gegensatz zur massebezogenen Untersuchung der Depositionseffizienz nicht nur unter trockenen Gasbedingungen, sondern wird auch auf den Einfluss der erhöhten Feuchte bei temperiertem Medium untersucht. Die ermittelten Trenngradkurven zeigen für beide Zustände ähnliche Verläufe.

In Abhängigkeit der Partikelgröße sind drei Bereiche erkennbar (Abb. 10, Abb. 11):

In den Bereichen 50 - 300 nm und 600 - 800 nm liegt der Trenngrad etwas höher, dazwischen liegt ein Abscheideminimum im Bereich von 300 und 600 nm in dem der Trenngrad absinkt. Die kleineren Partikel werden wie beschrieben durch Diffusion abgeschieden, die größeren Partikel werden durch Trägheit abgeschieden. Ein vergleichbares Verhalten ist charakteristisch für filternde Abscheider [11].

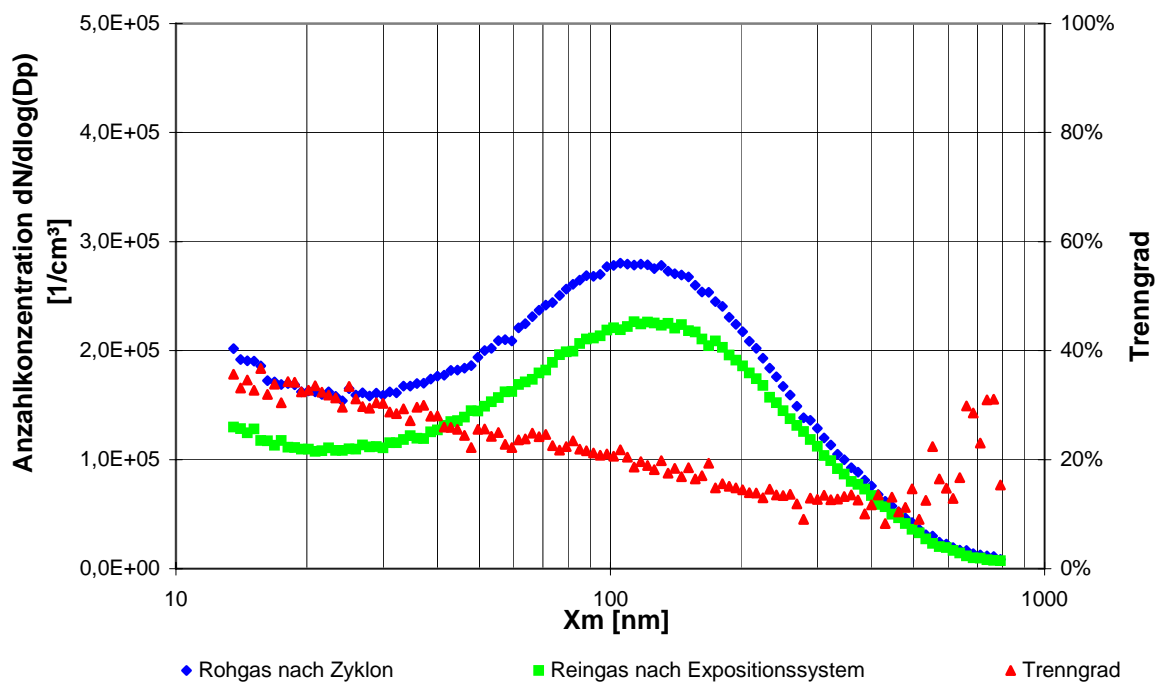


Abb. 10 Anzahlgrößenverteilung von Fluorescein-Natrium vor und nach der Expositionseinheit, sowie der Trenngrad über der Expositionseinheit in Abhängigkeit von der Partikelgröße bei einem Volumenstrom von 300 ml/min unter trockenen Bedingungen.

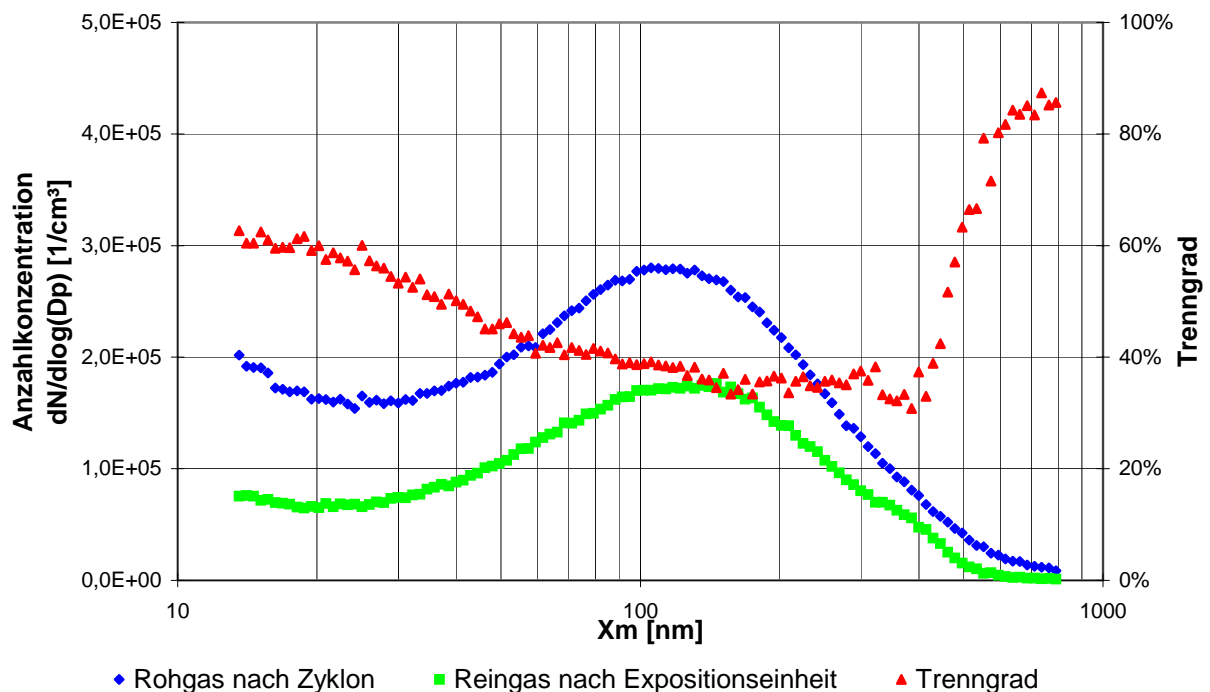


Abb. 11 Anzahlgrößenverteilung von Fluorescein-Natrium vor und nach der Expositionseinheit, sowie der Trenngrad über der Expositionseinheit in Abhängigkeit von der Partikelgröße bei einem Volumenstrom von 300 ml/min unter feuchten Bedingungen.

Aus den in Abb. 10 dargestellten Werten wird der massenbezogene Gesamtabscheidegrad nach Gl. (5) zwischen Probenahme und Ausgang der Expositionseinheit mit $E = 0,16 = 16\%$ im Messbereich von 13 – 800 nm für trockenen Bedingungen bestimmt. In diesen Wert gehen alle Partikelverluste zwischen der Probenahme im Plexiglas - Reaktor und dem Messgerät SMPS ein, also Verluste in der Sonde und den Rohrleitungen sowie Depositionen auf den Wandflächen der Kulturschalen und dem Begasungstrichter. Demgegenüber wird bei der Analyse der deponierten Masse durch Fluoreszenz-Spektroskopie ausschließlich die Membran betrachtet. Damit erklärt sich der Unterschied von ca. 1,5 % auf der Membran gegenüber 16 % im Gesamtsystem.

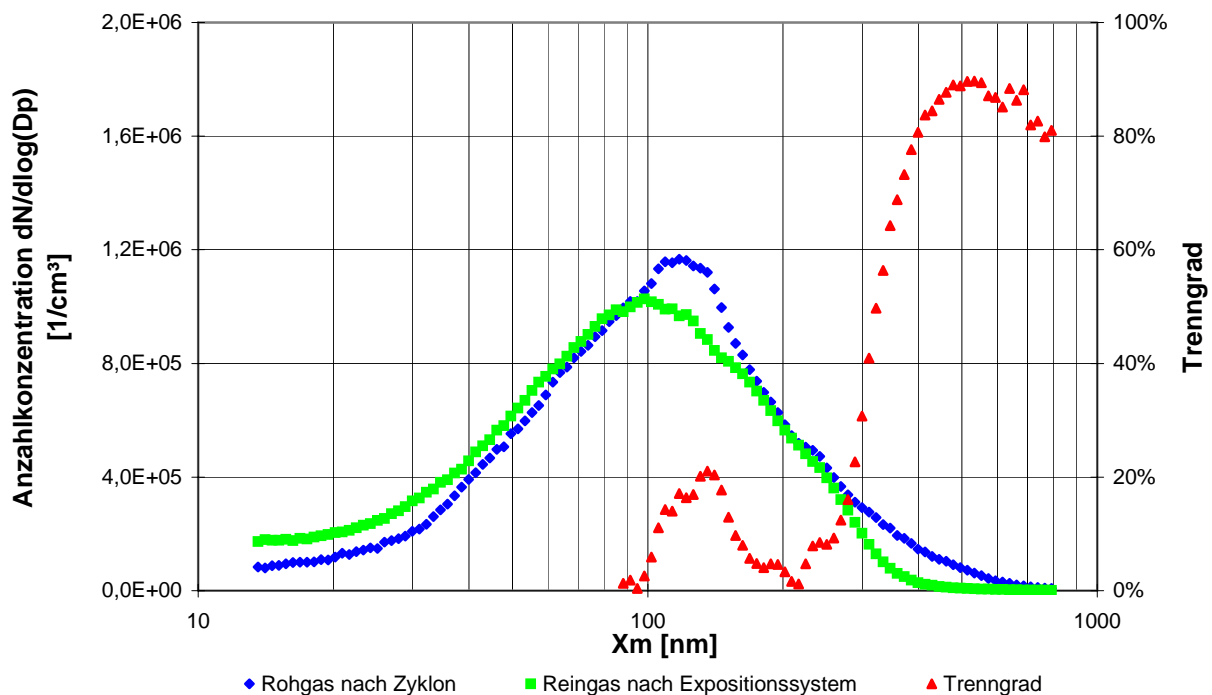


Abb. 12 Anzahlgrößenverteilung von MVA-Flugstaub vor und nach der Expositionseinheit, sowie der Trenngrad über der Expositionseinheit in Abhängigkeit von der Partikelgröße bei einem Volumenstrom von 300 ml/min unter feuchten Bedingungen.

Schlussfolgerung und Ausblick

Mit Hilfe des beschriebenen Verfahrens konnte das Expositionssystem so modifiziert werden, dass nun ein System zur Verfügung steht, das auch an einer technischen Anlage stabil betrieben werden kann. Durch Ermittlung der Parameter, die für die hier eingesetzten ultrafeinen Partikeln aus Fluorescein-Natrium die höchste Effizienz bezüglich der Deposition auf den Membranen bieten, ist der optimale Betriebspunkt mit einem Volumenstrom von 300 ± 100 ml/min festgelegt worden. Durch Variation der Fluorescein-Natrium-Dosierung soll untersucht werden, in wieweit eine Verschiebung des Modalwerts der Anzahlgrößenverteilung den optimalen Betriebspunkt beeinflusst.

Aus den für Fluorescein-Natrium-Aerosol ermittelten Größen

- **Massenbezogene Depositionseffizienz** η_M auf der Transwell-Membran, durch Fluoreszenz-Spektroskopie bestimmt, und
- Trenngrad zwischen 13 und 800 nm im gesamten Probenahmesystem, durch SMPS bestimmt
- **Gesamtabscheidegrad des Systems** η_S durch Rechnung aus den SMPS-Daten ermittelt

soll im Folgenden die applizierte Dosis von realen Stäuben auf die Membranen abgeleitet werden.

Setzt man die ermittelten Größen in Relation, so zeigt sich, dass von der im Gesamtsystem verbliebenen Masse nur ca. 10 % auf der Membran deponiert werden, der Rest sind Verluste an den Wänden und in den Schläuchen. Das Verhältnis kann als Faktor $f = \frac{\eta_M}{\eta_S}$ beschrieben werden. Dieser Faktor ist abhängig von den

verfahrenstechnischen Parametern relative Feuchte r.F. und vom Volumenstrom \dot{V} . Für diese beiden Parameter muss die Abhängigkeit bestimmt werden. Anschließend muss der Parameter f, der bisher für Fluorescein-Natrium bestimmt wurde, für weitere Aerosole bestimmt werden.

Für die Übertragung von idealen Modellstäuben wie Fluorescein-Natrium und eventuell Aerosil auf reale industrielle Aerosole ist Flugstaub aus einer kommunalen Hausmüllverbrennungsanlage ausgewählt worden. Der Flugstaub ist ein Gemisch mit einem hohen Anteil an Salzen (ca. 70 %), besitzt eine Dichte von ca. $0,8$ g/cm³ und einen Modalwert von ~ 120 nm. Flugstaub ist aufgrund seiner komplexen Zusammensetzung und seiner mechanischen Eigenschaften (fließend aber backend, da stark hygroskopisch) ein gutes Beispiel für reale Anwendungen.

Nach der Dosis-Ermittlung wird in Kooperation mit den Institut für Toxikologie und Genetik (ITG) unter Einsatz des Bioassays, der mit dem Flugstaub entwickelt wird, die Nachweisgrenze und die Reproduzierbarkeit des Verfahrens ermittelt. Anschließend ist der Einsatz an der Hausmüllverbrennungsanlage TAMARA geplant, um den Einsatz an großtechnischen Anlagen zu erproben.

Danksagung

Wir bedanken uns bei den Herren Weinfurtnner und Seidenstricker für die Untersuchung der Wiederfindung und bei Frau Langguth für die Durchführung der Spektrometrie.

Literatur

- [1] Wichmann, H.E., Spix, C., Tuch, T., Wölke, G., Peters, A., Heinrich, J., Kreyling, W.G., Heyder, J.: Daily Mortality and Fine and Ultrafine Particles in Erfurt, Germany, Part I: Role of Particle Number and Particel Mass, Research Report Number 98, Health Effects Institute, Nov. 2000
- [2] Wichmann H.E., Peters A., Epidemiological evidence of the effects of ultrafine particle exposure. Phil. Trans. R. Soc. London A 358:2751-2769 (2000).
- [3] Peters, A., Wichmann, H.E., Tuch, T., Heinrich, J., Heyder, J.: Respiratory effects are associated with the number of ultra-fine particles. (1997); Am.J.Respir.Crit.Care.Med. 155: 1376-1383
- [4] Diabaté, S., Mühlhopt, S., Paur, H.-R., W., Krug, H.F.: Effects of waste incinerator fly ash on proinflammatory responses of pulmonary macrophages and epithelial cells. Arch. Pharmacol. 363, p. 585 (2001).
- [5] Diabaté, S., Wottrich, R. Zwischenbericht zum BW-Plus-Projekt BWB 20013: Gesundheitseffekte durch inhalierbare Feinststäube aus technischen Verbrennungsanlagen: In vitro Untersuchungen zur Wirkung feiner und ultrafeiner Partikel auf kultivierte Lungenzellen, Toxikologie von Feinststäuben, 2001
- [6] Mühlhopt, S., Paur, H.-R., Seifert, H.: Zwischenbericht zum BW-Plus-Projekt BWC 21018. Expositionsverfahren für ein lungenspezifisches Bioassay zur Bewertung industrieller Feinstpartikel-Emissionen, Karlsruhe, 11.–12. März 2003; <http://bwplus.fzk.de>
- [7] Kursunterlagen „Staubabscheiden“, Universität Karlsruhe, Institut für Mechanische Verfahrenstechnik und Mechanik, Karlsruhe, 1995
- [8] VDI-Richtlinie 2066: Messen von Partikeln, Staubmessung in strömenden Gasen
- [9] Aufderheide, M. and Moor, U.: CULTEX – an alternative technique for cultivation and exposure of cells of the respiratory tract to airborne pollutants at the air/liquid interface. Exp. Toxic. Pathol. 52, 265-270 (2000)
- [10] Cheng, X., Baumann, W., Hauser, M.; Mätzing, H., Paur, H.-R.: AEOLA – Bericht Nr. 22: Auswertung der SMPS-Daten, Karlsruhe, September 2001
- [11] Löffler, F.: Staubabscheiden, Georg Thieme Verlag, 1988
- [12] Mühlhopt, S.; Diabaté, S.; Krug, H.F.; Seifert, H.; Paur, H.R.: Expositionsverfahren für einen lungenspezifischen Bioassay zur Bewertung industrieller Feinstpartikel-Emissionen. AHEMA 2003: 27. Internat. Kongress für Chemische Technik, Umweltschutz und Biotechnologie, Frankfurt, 19.-24.Mai 2003 (Poster)
- [13] Mühlhopt, S.; Diabaté, S.; Krug, H.F.; Seifert, H.; Paur, H.R.: Exposure technique for a lung specific bioassay for the assessment of industrial ultra fine particle emissions. 14th Congress of the International Society for Aerosols in Medicine (ISAM), Baltimore, Maryland, 14.-18. Juni 2003 (Poster)
- [14] Aufderheide, M.; Ritter, D.; Knebel, J. W. and Scheerer, G.: A method for in vitro analysis of the biological activity of complex mixtures such as sidestream cigarette smoke. Exp. Toxic. Pathol. 53, 141-152 (2001).
- [15] DIN 66141 Darstellung von Korngrößenverteilung.
- [16] DIN 66142 Darstellung und Kennzeichnung von Trennung disperser Güter.
- [17] VDI-Richtlinie 3491, Blatt 3: Messen von Partikeln, Herstellung von Latex-Aerosolen unter Verwendung von Düsenzerstäubern, Nov. 1980
- [18] Mühlhopt, S.; Seifert, H.; Paur, H.-R.: Exposure technique for a lung specific bioassay for the assessment of industrial ultra fine particle emissions. Nano 2004 - 7th International Conference on Nanostructured Materials, Wiesbaden, 20.-24. Juni 2004 (Vortrag)