

INHALTSVERZEICHNIS

1	EINLEITUNG	1
1.1	VERSCHMUTZUNG VON LUFT, WASSER UND BODEN	1
1.2	DIE VERUNREINIGUNG DER LUFT DURCH METALLE	3
1.3	DIE SELBSTREINIGUNG DER LUFT VON GAS- UND PARTIKELFÖRMIGEN VERUNREINIGUNGEN	4
2	ANALYTIK GASFÖRMIGER METALLSPEZIES	7
2.1	ARSEN-, SELEN UND QUECKSILBERDÄMPFE	9
2.1.1	Absorption in Lösung	9
2.1.2	Adsorption an Oberflächen	11
3	ZIELSETZUNG	13
4	THEORETISCHER TEIL	15
4.1	FLÜCHTIGE METALLE UND METALLVERBINDUNGEN	15
4.1.1	Quecksilber	15
4.1.2	Arsen	17
4.1.3	Selen	20
4.2	FLIEßINJEKTIONSANALYSE (FIA)	21
4.2.1	Batch- und kontinuierliche Verfahren	21
4.2.2	Prinzipien der Fließinjektionsanalyse	23
4.2.3	Dispersion bei FIA	26
4.2.4	FIA-Gradienten-Techniken	29
4.2.5	Anwendung der Fließinjektionsanalyse zur Gas-Flüssig-Extraktion	30
4.3	CHROMATOMEMBRAN-METHODE	31
4.3.1	Anwendung der Chromatomembran-Zelle in der Fließinjektionsanalyse	31
4.4	OBERFLÄCHENUNTERSUCHUNG DES PTFE-MATERIALS IM RASTER- ELEKTRONENMIKROSKOP (SEM)	36
4.5	VERWENDETE MESSMETHODEN	40
4.5.1	Die optische Atom-Emissions-Spektroanalyse mit induktiv gekoppeltem Plasma (ICP-AES)	40
4.5.2	Das UV/VIS-Spektrometer	51
4.6	KALIBRIERUNG VON ICP UND UV/VIS	54
4.6.1	Statistische Bewertung	54
4.6.2	Kalibrierung des ICP-Spektrometers	56
4.6.3	Ergebnis der Messungen im ICP-Spektrometer	62
4.6.4	Kalibrierung des UV/VIS Spektrometers	64
4.6.5	Ergebnis der Messungen im UV/VIS-Spektrophotometer	66

5	EXPERIMENTELLER TEIL I - ABSORPTION UND ANREICHERUNG	
	SCHWERMETALLHALTIGER GASE	67
5.1	ABSORPTION UND ANREICHERUNG VON SCHWERMETALLEN IN LÖSUNG AM BEISPIEL VON QUECKSILBER	67
5.1.1	Geeignete Oxidationsmittel und ihre Normalpotentiale	67
5.2	DURCHFÜHRUNG DER MESSUNG	69
5.2.1	Apparativer Aufbau zur Absorption von Quecksilberdampf mittels Waschflaschen	69
5.2.2	Absorption von Quecksilber in salpetersaurer Lösung bei verschiedenen Gasdurchflussraten	71
5.2.3	Absorption von Quecksilber in salpetersaurer Kaliumdichromat-Lösung	72
5.2.4	Absorption von Quecksilber in schwefelsaurer Kaliumpermanganat-Lösung	73
5.3	ABSORPTION VON ARSEN- UND SELENWASSERSTOFF IN SALPETERSAURER LÖSUNG	74
5.3.1	Durchführung	74
6	EXPERIMENTELLER TEIL II - EXTRAKTION UND ANREICHERUNG	
	SCHWERMETALLHALTIGER GASE	75
6.1	DURCHFÜHRUNG DER MESSUNGEN MIT DER 4-LOCH-CHROMATOMEMBRAN-ZELLE	78
6.1.1	Extraktion von Quecksilber aus Quecksilberdampf in salpetersaure Lösung mit der Chromatomembran-Methode	78
6.2	KONZENTRATIONS-ZEIT-PROFILE FÜR DIE EXTRAKTION VON QUECKSILBER	81
6.3	DURCHFÜHRUNG DER SIMULTANEN QUANTITATIVEN BESTIMMUNG VON ARSEN, SELEN UND QUECKSILBER MITTELS ICP-AES	85
6.3.1	Die simultane quantitative Bestimmung von Arsen, Selen- und Quecksilber aus einem Luft-Gasgemisch	85
6.3.2	Linearität der Ergebnisse bei variierenden Einzelkonzentrationen Verlässlichkeit der Methode	90
7	AUSWERTUNG UND ZUSAMMENFASSUNG	93
7.1	AUSWERTUNG DER ERGEBNISSE AUS DEN ABSORPTIONSVERSUCHEN	93
7.2	AUSWERTUNG DER ERGEBNISSE AUS DEN EXTRAKTIONSVERSUCHEN	96
7.3	ZUSAMMENFASSUNG	100
	LITERATURVERZEICHNIS	103
	ANHANG	105
	ANHANG 1: DATENTABELLEN ZUR KALIBRIERUNG DES ICP	
	ANHANG 2: DATENTABELLEN ZUR KALIBRIERUNG DES UV/VIS	
	ANHANG 3: DATENTABELLEN ZU DEN ABSORPTIONSEXPERIMENTEN	
	ANHANG 4: DATENTABELLEN ZU DEN EXTRAKTIONSEXPERIMENTEN	
	ANHANG 5: VERWENDETE CHEMIKALIEN UND GERÄTE	

ABBILDUNGSVERZEICHNIS

Abb. 1-1: Kreislauf der Schadstoffemissionen	1
Abb. 1-2: Schematische Darstellung der Oxidation von Schwefeldioxid zu Sulfat mittels schwermetallkatalysierter Prozesse in der Atmosphäre	3
Abb. 2-1: Gebräuchliche Probenahmetechniken	8
Abb. 2-2: Absorption in Waschflaschen	9
Abb. 2-3: Absorption, Extraktion, Reaktion	11
Abb. 2-4: Probenahme von Quecksilber durch einen Silberkollektor	12
Abb. 4-1: Der biologische Zyklus des Quecksilbers in der Umwelt	17
Abb. 4-2: Der biogeochemische Zyklus des Arsens in der Umwelt	19
Abb. 4-3: Konzentrations-Zeit-Profil bei FIA	23
Abb. 4-4: Schematischer Aufbau eines FIA-Systems	25
Abb. 4-5: Die Chromatomembran-Zelle	31
Abb. 4-6: Vier-Loch-Zelle	33
Abb. 4-7: Drei-Loch-Zelle	35
Abb. 4-8: Funktionsprinzip eines Raster-Elektronenmikroskopes	36
Abb. 4-9: PTFE 1	37
Abb. 4-10: PTFE 2	38
Abb. 4-11: PTFE 3	38
Abb. 4-12: Aufbau eines Spektralapparates	40
Abb. 4-13: Schematischer Aufbau eines ICP-Atomemissions-Spektrometers	42
Abb. 4-14: Zerstäuber zur Probeninjektion	43
Abb. 4-15: Fackeleinheit mit Argonplasma	44
Abb. 4-16: Die Fackeleinheit	44
Abb. 4-17: Spektrometer mit Echelle-Monochromator	45
Abb. 4-18: IRIS/AP-Spektrometer der Firma Thermo Jarrel Ash	46
Abb. 4-19: Messfenster für Wellenlänge:Pb-261.418	48
Abb. 4-20: Full-Frame Image für Hg, Pb, Se und As	49
Abb. 4-21: Subarray Plot für As	50
Abb. 4-22: Aufbau des UV/VIS-Spektrophotometers	52
Abb. 4-23: Schematischer Aufbau eines FIA-Systems mit UV/VIS-Spektrometer	52
Abb. 4-24: UV/VIS-Spektralphotometer Lambda 2 (Perkin-Elmer)	53
Abb. 4-25: Kalibriergerade für Arsen im UV/VIS. Extinktion bei 517 nm	64
Abb. 4-26: Kalibriergerade für Selen im UV/VIS. Extinktion bei 513 nm	65
Abb. 4-27: Kalibriergerade für Quecksilber im UV/VIS. Extinktion bei ca. 478 nm	65
Abb. 5-1: Absorption von Gas in Waschflaschen	69
Abb. 6-1: Injektion von Hg-Dampf in die Chromatomembran-Zelle	75
Abb. 6-2: FIA-System mit CMZ	76
Abb. 6-3: Flussratenverhältnisse (polare-/unpolare Phase) für Messungen 1-12 (CMZ)	79
Abb. 6-4: Simultane Messung bei steigenden Quecksilberkonzentrationen	90
Abb. 6-5: Simultane Messung bei steigenden Arsenkonzentrationen	91
Abb. 6-6: Simultane Messung bei steigenden Selenkonzentrationen	91
Abb. 7-1: Absorption und Konzentration von HNO ₃	94
Abb. 7-2: Absorption bei verschiedener Flussrate	95
Abb. 7-3: Extraktion bei verschiedenen Quecksilberkonzentrationen	98