

Ferntransport von persistenten Chemikalien und Verteilung über verschiedene Umweltmedien – Modelluntersuchungen

Long-range transport of persistent chemicals and distribution among various environment media – model investigations

Lammel, Gerhard; Semeena, V.S.; Feichter, Johann; Guglielmo, Francesca; Leip, Adrian

Max-Planck-Institut für Meteorologie, Hamburg

Korrespondierender Autor/in

E-Mail: lammel@dkrz.de

Zusammenfassung

Viele Schadstoffe zeichnen sich durch eine Kombination aus schwerer Abbaubarkeit (Persistenz) und hoher Mobilität aus. Sie sind mittelflüchtig, d. h. sie verteilen sich über die Umweltmedien Boden, Wasser, Luft und werden über weite Strecken transportiert. Klima und Stoffeigenschaften wirken in komplexer Weise zusammen und bestimmen globale Transportwege und Verteilung dieser Stoffe, zu denen die so genannten persistenten organischen Schadstoffe (persistent organic pollutants, POPs) und weitere Pestizide und Industriechemikalien zählen. Um Informationen über ihr Umweltverhalten, d. h. Transporte und Umwandlungen, zu gewinnen, muss man Böden, Vegetation, Luft, Ozeane und Eis mit in die Untersuchungen einbeziehen. Von der Gruppe Aerosolchemie des Max-Planck-Instituts für Meteorologie wurde Verteilung, Persistenz und Ferntransport-Potenzial (Reichweite) von einigen POPs mithilfe eines globalen Multikompartiment-Modells, das auf einem allgemeinen Zirkulationsmodell der Atmosphäre aufbaut, studiert.

Summary

Many environmental pollutants are slowly degrading (persistent) and very mobile. Results of simulations using a global multicompartiment model which is based on an atmosphere general circulation model are presented. The integration of soils, vegetation, air, ocean and ice is mandatory in order to describe the environmental fate, i.e. transports and transformations, of slowly degrading and semivolatile substances. This class of substances includes the so-called persistent organic pollutants (POPs) and other pesticides and industrial chemicals. The investigations elucidate the combined effects of climate and substance properties on transport and distribution of pollutants and allow to quantify persistence and long-range transport potential.

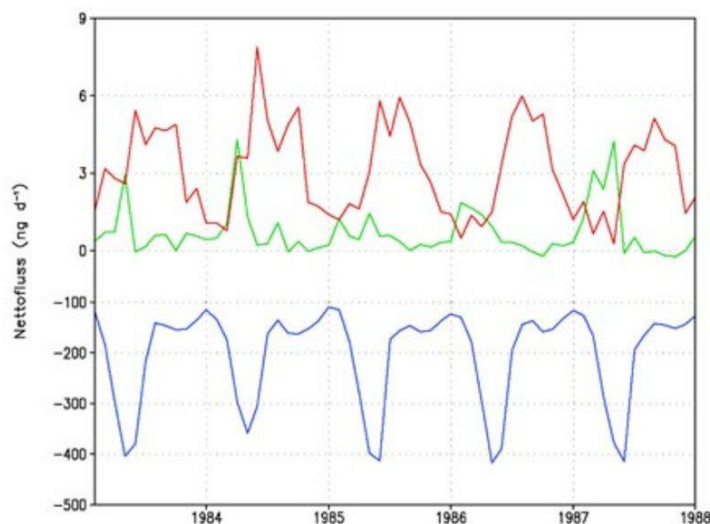
Einleitung und Ansatz

Schwer abbaubare, naturfremde Chemikalien stellen ein Gefahrenpotenzial dar, das wesentlich von den Stoffeigenschaften und vom Verhalten in der Umwelt abhängt, d.h. davon, ob und in welchen Ökosystemen oder Organismen sie sich anreichern und als Gifte wirken. Das Verständnis der weitreichenden Verfrachtung und großräumigen Zirkulation ist deswegen von Bedeutung für die Unversehrtheit der Ökosysteme (Genom-,

Organismen- und Ökosystemebenen, insbesondere im aquatischen Bereich) und die menschliche Gesundheit (Expositionspfade Ernährung, aber auch Inhalation) und notwendig zur Einschätzung von Chemikalienrisiken (nationale und internationale Chemiepolitik, Konventionsprozesse zum Schutz der maritimen Umwelt). Sehr viele bekannte Problemstoffe sind mittelflüchtig und damit Multikompartimentstoffe, d.h., sie werden über mehrere Umweltmedien verteilt und gegebenenfalls transportiert.

Mittelflüchtige Substanzen sind, einmal abgelagert, nicht dem Kreislauf entzogen, sondern werden durch Reemission in die Atmosphäre erneut mobilisiert. Ihr Ferntransport ist dann das Ergebnis mehrerer Emissions-Transport-Depositions-Zyklen (sog. Grashüpfer-Effekt). Hier liegt ein Grundlagenforschungsinteresse, weil die Komplexität ihres Zyklierens die herkömmlicher Luft- oder Wasserschadstoffe übersteigt.

Die wissenschaftliche Beschäftigung mit Umweltchemie auf großen Raumskalen in diesem multimedialen Sinn begann vor einem Jahrzehnt. Seither wurden globale, klimatologische ein- bis zweidimensionale Multikompartimentmodelle durch Verkettung von Box-Modellen entwickelt, die jedoch keine zeitliche Variabilität (Tag/Nacht, Jahreszeiten) abbilden können [1]. Seit etwa fünf Jahren werden von einigen Arbeitsgruppen Atmosphärenmodelle und neuerdings auch Ozeanmodelle als wesentliche Bausteine von Multikompartimentmodellen eingesetzt. Die dreidimensionale, dynamische Modellierung stellt einen erheblichen Fortschritt dar, weil sie das Zusammenwirken von Klima, geographischen Eckpunkten und Stoffeigenschaften expliziter in Raum und Zeit zu erfassen vermag. Die Modellierung am MPI für Meteorologie baut auf einem allgemeinen Zirkulationsmodell der Atmosphäre (AGCM) auf, in das ein dynamisches Aerosolmodell integriert ist [2]. Dieses wird gekoppelt mit zweidimensionalen Modellen der Böden, des Meereises und der Vegetation und einem zwei- oder dreidimensionalen Modell des Ozeans (OGCM) [3, 4]. Im Folgenden wird über Modellstudien berichtet, in denen die (horizontalen) Ferntransporte im Ozean ausgespart wurden (zweidimensionales Ozeanmodell).



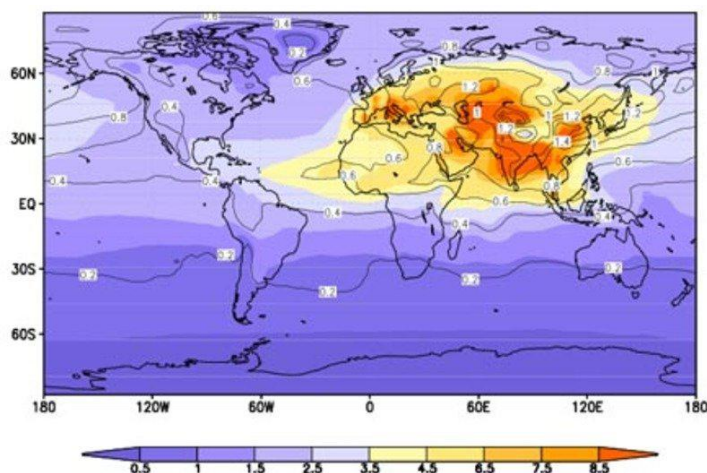
Saisonalität des Netto-Depositionsflusses von DDT, also atmosphärische Deposition abzüglich Volatilisierung (d.h. Emission einschließlich Reemission) in der Quellregion Südasien (ganzjährige Ausbringung in der Landwirtschaft, blaue Linie), und den gleich großen Rezeptorregionen (jeweils einschließlich benachbarter Meeresgebiete) indonesischer Archipel (grün) und Ostsibirien mit Alaska (rot). Monatsmittel in den Jahren 6-10 des Eintrags in die Umwelt in ng/Tag.
© Max-Planck-Institut für Meteorologie

Zusammenwirken von Klima und Stoffeigenschaften

Die Verweilzeiten in den einzelnen Umweltkompartimenten und die Verhältnisse der darin gespeicherten Frachten sind für unterschiedliche Stoffe aufgrund von Unterschieden in der Reaktivität, Wasserlöslichkeit, Dampfdruck und weiterer Eigenschaften selbstverständlich verschieden. Wie stark die Umwelt in emissionsfernen Gebieten kontaminiert wird hängt vom Zusammenspiel der Stoffeigenschaften einerseits und der Gegebenheiten in den Regionen und den Transporten von den Quellregionen dorthin andererseits ab. In **Abbildung 1** wird beispielhaft das Pestizid DDT in einer Quell- und zwei Rezeptorregionen herausgegriffen. Die quellfernere Region um Alaska und Ostsibirien ist stärker betroffen als der quellnähere indonesische Archipel. Zwar halten die Böden, die Vegetationsoberflächen und die Mischungsschicht des Ozeans in dieser tropischen Region DDT im Mittel länger zurück als in der borealen Vergleichsregion. Die Transporte in die Region geschehen aber vor allem aus dem tropischen Pazifik, also einer Reinluftregion, während Ostsibirien und Alaska stark von Luftmassen beeinflusst werden, die auf ihrem Weg Quellregionen Ostasiens passieren. In beiden Rezeptorregionen wird DDT über die Jahre angereichert, weil die Depositionsraten die Reemissionsraten übersteigen (Abb. 1). Dies geschieht in Ostsibirien und Alaska rascher als im indonesischen Archipel. Tatsächlich gibt es sogar Jahreszeiten, in denen dieser Teil Südostasiens aufgrund verzögerter Reemissionen aus Böden und der ozeanischen Deckschicht zur Quellregion für DDT wird. Diese Stoffflüsse unterliegen dabei einer hohen interannuellen Variabilität, die stärker ist als die wichtiger Klimavariabler, etwa der Niederschläge [4].

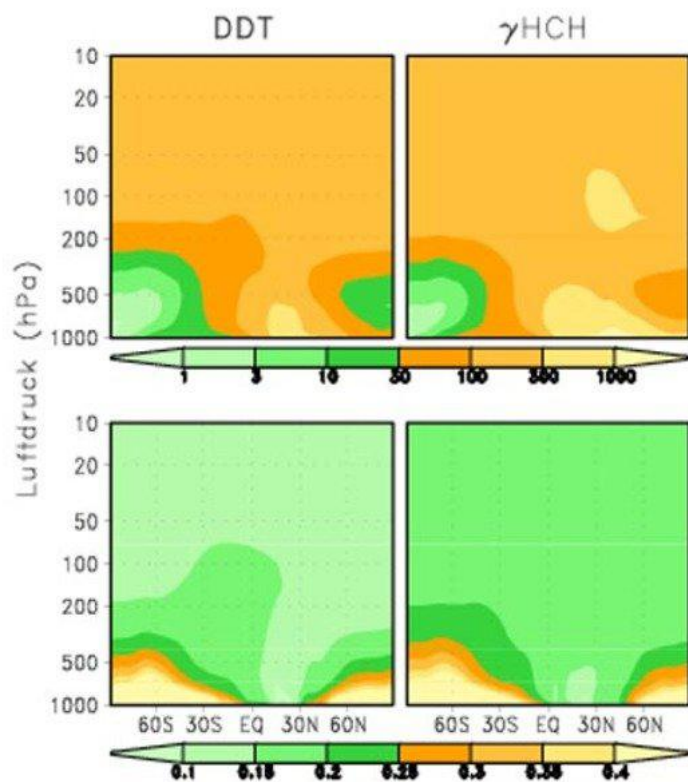
Untersuchung von Emissions-Transport-Depositions-Zyklen (sog. Grashüpfer-Effekt)

Eine wichtige Hypothese der Umweltchemie besagt, dass die beobachtete Anreicherung von vielen persistenten und bioakkumulativen Schadstoffen in den Polargebieten, fernab der Anwendungsgebiete, eine Konsequenz des Grashüpfer-Effekts sei [5]. Die Bedeutung des Grashüpfer-Effekts auf das Ferntransport-Potenzial von organischen Stoffen, DDT und Hexachlorcyclohexan (HCH), im Gegensatz zu einmaligem Transport, wurde durch Separation der beiden Transportmodi im Modellexperiment erstmals von Semeena und Lammel [6] untersucht. DDT und HCH sind historisch gesehen die weltweit bedeutendsten Insektizide. Während DDT wegen seiner chronischen „Nebenwirkungen“ für Nichtzielorganismen nur noch in tropischen Ländern und fast ausschließlich in Gesundheitsprogrammen (Vorbeugung gegen Wirte des Malaria-Erregers) eingesetzt wird und das Isomere α -HCH, weil ohnehin nicht insektizid wirksam, heute verboten ist, ist γ -HCH (Lindan) ein in sehr vielen Landwirtschaften, auch von Industriestaaten, bedeutsames Pestizid. Der Grashüpfer-Effekt verändert die Verteilung über die verschiedenen Umweltmedien und erhöht die Persistenz von DDT und HCH. Lindan ist, wenn auf Landoberflächen deponiert, flüchtiger, wird aber durch Niederschlag auch rascher aus der Atmosphäre entfernt als DDT. Entsprechend der geografischen Verteilung der in der Landwirtschaft verbrauchten Mengen der beiden Insektizide resultieren unterschiedliche Ausbringungsverteilungen.



Atmosphärische Fracht (Gesamtsäulendichte in $\mu\text{g}/\text{m}^2$) von γ -HCH (Schattierung) und reemittierter Anteil davon (Isolinien). Jahresmittel im zehnten Jahr des Eintrags in die Umwelt.
© Max-Planck-Institut für Meteorologie

Modellergebnisse zeigen, dass sowohl der Grashüpfer-Effekt als auch die Verteilung nach Erstemission für den Ferntransport bedeutsam sind. Der Grashüpfer-Effekt bewirkt eine Anreicherung in den Polargebieten. Darüber hinaus sagt das Modellexperiment eine Anreicherung von γ -HCH, nicht aber von DDT, in der Arktis und Antarktis sogar ohne dem Grashüpfer-Effekt voraus, allein aufgrund des Transports in der Atmosphäre, der einer Erstemission folgt. Innerhalb der atmosphärischen Grenzschicht und nahe der Ausbringungsregionen überwiegt der Grashüpfer-Transportmodus (**Abb. 2, 3**). Die Wahrscheinlichkeit in der freien Troposphäre und in noch höheren Luftschichten bereits reemittierte γ -HCH-Moleküle anzutreffen ist höher als für DDT-Moleküle, was mit rascherer Auswaschung und Reemission von γ -HCH an den Oberflächen zusammenhängt.

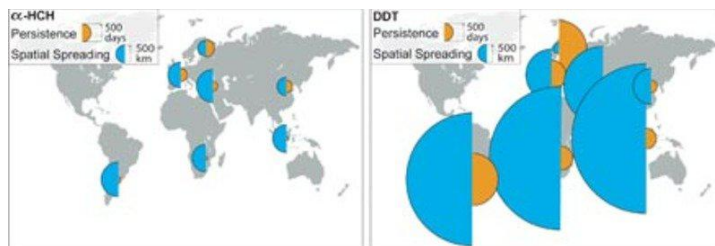


Zonal gemittelte globale Verteilungen der atmosphärischen Konzentrationen von DDT und γ -HCH gesamt (oben) und reemittierter Anteil (unten). Jahresmittel im zehnten Jahr des Eintrags in die Umwelt in pg/kg.

© Max-Planck-Institut für Meteorologie

Ferntransport-Potenzial und Persistenz

Das Schicksal einer Chemikalie, ausgedrückt in Ferntransport-Potenzial und Persistenz, wird neben Klima und Stoffeigenschaften auch davon kontrolliert, wann und wo die Substanz in die Umwelt gelangt. Das wurde am Beispiel der Simulation des Umweltverhaltens der Insektizide DDT und α -HCH unter Szenarien der Emission in ausgewählten Ländern deutlich (**Abb. 4**; [7]): DDT erwies sich als der generell langlebigere Stoff, doch das nicht überall und zudem mit sehr unterschiedlichem Abstand zu α -HCH. Ein Indikator für das Ferntransportpotenzial, die effektive Ausbreitungstendenz [7], zeigt eine ähnlich starke Abhängigkeit vom Ausbringungsort. Infolge des Verbots von DDT in den Landwirtschaften vieler Länder, zunächst in den mittleren Breiten und später auch in den Subtropen und Tropen, war auch das Umweltverhalten dieses Stoffes einem historischen Wandel unterworfen, wobei das Ferntransportpotenzial bis 1990 zunahm [8].



Indikatoren zur Charakterisierung räumlicher und zeitlicher Aspekte des Umweltverhaltens von DDT und α -HCH: Effektive Ausbreitungstendenz (spatial spreading in km), und Gesamtverweildauer in der Umwelt (persistence in Tagen). Jahresmittel im zweiten Jahr des Eintrags in die Umwelt.
© Max-Planck-Institut für Meteorologie

Schlussfolgerung und Ausblick

Die Ergebnisse unterstreichen die Notwendigkeit der Anwendung hochentwickelter Transportmodelle für die Untersuchung der Umweltchemie auf großen Raumskalen. Zwar bestehen noch erhebliche Unsicherheiten in der Beschreibung einiger Prozesse, denen diese Stoffe in der Umwelt unterliegen, und sogar bezüglich der Stoffeigenschaften. Dennoch gewähren diese Untersuchungen wesentliche Einblicke in die Zyklen wichtiger Spurenstoffe und damit Fortschritte in der noch jungen Disziplin Umweltchemie auf globaler Skala. Derzeit werden in Modellexperimenten kombinierte Verteilungen von Mutter- und Tochterverbindungen (Metaboliten) untersucht – wichtig, weil solche oftmals ebenso oder noch toxischer und persistenter sind. Die Bedeutung gleichzeitiger Transporte in Atmosphäre und Ozean wird mittels einer Modellversion studiert, in der ein dreidimensionales Ozean-Modell (OGCM) integriert ist.

Vermerk Drittmittel:

Diese Forschung wurde 2001-2006 in Kooperation von MPI für Meteorologie und dem Meteorologischen Institut der Universität Hamburg durchgeführt und erfuhr anfänglich eine Förderung durch die Behörde für Wissenschaft und Forschung des Landes Hamburg.

Originalveröffentlichungen



[Nach](#) [Erweiterungen](#) [suchen](#)[Absatz](#)[Bilder](#)[weiterung](#)[Datei](#)[liste](#)[HTML-](#)[Erweiterung](#)[Job](#)[ticker](#)[Kalender](#)[erweiterung](#)[Linker](#)[erweiterung](#)[MPG.PuRe](#)-[Referenz](#)[Mitarbeiter](#) [\(Employee](#)[Editor\)](#)[Mitarbeiter](#)[liste](#)[erweiterung](#)[Personen](#)[erweiterung](#)[Publikation](#)[erweiterung](#)[RSS](#)
[ticker](#)[Tag](#)[liste](#)[erweiterung](#)[Teaser](#) [mit](#)
[Bild](#)[Text](#)[blocker](#)[erweiterung](#)[Veranstaltung](#)[sticker](#)[erweiterung](#)[Video](#)[erweiterung](#)[YouTube](#)-[Erweiterung](#)

[1] **F. Wania, D. Mackay:**

The evolution of mass balance models of persistent organic pollutant fate in the environment.
Environmental Pollution **100**, 223-240 (1999).

[2] **P. Stier, J. Feichter, S. Kinne, S. Kloster, E. Vignati, J. Wilson, L. Ganzeveld, I. Tegen, M. Werner, M. Schultz, Y. Balkanski, O. Boucher, A. Minikin, A. Petzold:**

The aerosol-climate model ECHAM5-HAM.
Atmospheric Chemistry and Physics **5**, 1125-1156 (2005).

[3] **G. Lammel, J. Feichter, A. Leip:**

Long-range transport and global distribution of semivolatile organic compounds: A case study on two modern agrochemicals.

Report Max-Planck-Institut für Meteorologie Nr. **324**, Hamburg, 44 S. (2001).

[4] **V.S. Semeena, J. Feichter, G. Lammel:**

Significance of regional climate and substance properties on the fate and long-range transport of persistent organic pollutants – examples of DDT and γ -HCH.

Atmospheric Chemistry and Physics Discussions **5**, 12569-12615 (2005).

[5] **F. Wania, D. Mackay:**

Global fractionation and cold condensation of low volatility organochlorine compounds in polar regions.

Ambio **22**, 10-18 (1993).

[6] **V.S. Semeena, G. Lammel:**

The significance of the grasshopper effect on the atmospheric distribution of persistent organic substances.

Geophysical Research Letters **32**, L07804, doi:10.1029/2004GL022229 (2005).

[7] **A. Leip, G. Lammel:**

Indicators for persistence and long-range transport potential as derived from multicompartment chemistry-transport modelling.

Environmental Pollution **128**, 205-221 (2004).

[8] **V.S. Semeena, G. Lammel:**

Effects of various scenarios upon entry of DDT and γ -HCH into the global environment on their fate as predicted by a multicompartment chemistry-transport model.

Fresenius Environmental Bulletin **12**, 925-939 (2003).