Workshop

PMx-Quellenidentifizierung:

Methoden und Ergebnisse

Universität Duisburg

12. und 13. September 2001

Ministerium für Umwelt und Naturschutz, Landwirtschaft und Verbraucherschutz des Landes Nordrhein-Westfalen

Berlin Senatsverwaltung für Stadtentwicklung

LUA Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen

iuta

Workshop

PMx-Quellenidentifizierung:

Methoden und Ergebnisse

Universität Duisburg,

12. und 13. September 2001

- Konferenzbericht -

Editoren:

Ulrich Quass und Thomas Kuhlbusch, IUTA e.V., Duisburg

Programmkomitee:

Dr. T.A.J. Kuhlbusch (Universität Duisburg, IUTA e.V.)
Prof. Dr. P. Bruckmann (Landesumweltamt NRW, Essen)
Prof. Dr.-Ing. H. Fissan (Universität Duisburg)
M. Lutz (Senatsverwaltung für Stadtentwicklung Berlin)
Prof. Dr.-Ing. K.-G. Schmidt (Universität Duisburg, IUTA e. V.)

Herausgeber:

Ministerium für Umwelt, Naturschutz,

Landwirtschaft und Verbraucherschutz Nordrhein-Westfalen

INHALT

Vorwort 1

Begrüßung der Workshop-Teilnehmer
J. Assmann, Ministerium für Umwelt, Naturschutz, Landwirtschaft und Verbraucherschutz Nordrhein-Westfalen 2

TEIL A: Kurzfassungen der Workshop-Beiträge

Einführung:
PM_X-Quellenidentifizierung: Methoden und Ergebnisse
T. Kuhlbusch, IUTA e.V., Duisburg 4

Session I: Ausbreitungsrechnungen
Chair: Heinz Fissan

Anwendungsmöglichkeiten von 3-D-Chemie-Transportmodellen für die PMx-Quellenidentifizierung.
M. Memmesheimer, EURAD, Uni Köln 19

Was können 3-dimensionale Simulationsmodelle zur Quellenidentifizierung luftgetragener Partikel beitragen?
B. Vogel, Forschungszentrum Karlsruhe 35

Identifizierung von Emissionsquellen im Rahmen der Maßnahmenplanung.
A. Brandt, LUA Essen 43

Session II: Chemisch-Analytische Methoden
Chair: T. Kuhlbusch

Biologische Aerosole: Identifizierung und Quantifizierung.
R. Jaenicke, Universität Mainz 50

Analytische Möglichkeiten der Aerosol-Quellenerkennung.
R. Nießner, TU München 51

Identifizierung luftgetragener Partikel und atmosphärischer Prozesse mittels On-line Einzelpartikelmassenspektrometrie.
Rainer Vogt; Ford FZ Aachen GmbH 57

Quellenidentifizierung auf Basis der Einzelpartikelanalyse am Beispiel des kleinen Feldbergs.
M. Ebert, Technische Universität Darmstadt 62

Elementare, chemische und physikalische Charakterisierung des Umweltaerosols in Erfurt: Versuch einer Quellenzuordnung.
J. Cyrys, GSF München 66

Session III: Rezeptorrechnungen

Chair: M. Lutz

Korngrößendifferenzierte Identifikation der Anteile verschiedener Quellgruppen an der Feinstaubbelastung.
H. Herrmann, Institut für Troposphärenforschung, Leipzig 69

Erster Versuch einer Quellenzuordnung für PM10 in Berlin.
M. Lutz, Senatsverwaltung Berlin 79

On chemical mass closure, source identification, and source apportionment of the PMx aerosol.
W. Maenhaut, Universiteit Gent, Belgien 92

Session IV. Source-Receptor-Modellierungen
Chair: P. Bruckmann
Rezeptormodellierung. zur Quellenidentifikation
G. Pohlmann, Fraunhoferinstitut Hannover 97
Integrierte Bewertungsmodelle für Feinstaub.
M. Koch, ECOFYS GmbH, Köln 101

Teil B: Ergebnisse des Workshops

B1 Ergänzende Beiträge
Source Apportionment of Fine Particulate Matter
H.J.Th. Bloemen, RIVM, Bilthoven, NL 103
Stellungnahme zum Workshop PMx-Quellenidentifizierung
W. Winiwarter, Österreichisches Forschungszentrum Seibersdorf 108
B2 Stand der Modellierungsmöglichkeiten für Feinstaubimmissionen in Deutschland 110
Karlsruher Modellsystem "KAMM/DRAIS" 110
Kölner EURAD-Modellsystem 111
Berliner REM3/Calgrid Modellsystem 112
Integrierte Bewertungsmodelle („integrated assessment models“) 113
B3 Forschungs-und Entwicklungsbedarf 116

TEIL C: Überblick zu Untersuchungsvorhaben hinsichtlich der Quellen für die Feinstaubbelastung in der Bundesrepublik

C1 Abgeschlossene Untersuchungsvorhaben 118

C2 Laufende/geplanteUntersuchungsvorhaben 120

C3 Kurzdarstellungen: Abgeschlossene Untersuchungsvorhaben 122
Bayern 1999-2000: Stand der Immissionssituation bei Feinpartikeln 122
Berlin 2000-2001: Quantifizierung der Feinstaubbildung im Nahbereich von Straßen. Literaturrecherche 124
Berlin 2000-2001: Validierung von PM10-Immissionsberechnungen im Nahbereich von Straßen und Quantifizierung der Staubbildung von Straßen: Schildhornstraße in Berlin 125
Berlin/Sachsen 2000-2001: Validierung von PM10-Immissionsberechnungen im Nahbereich von Straßen und Quantifizierung der Feinstaubbildung von Straßen 126

	Nordrhein-Westfalen 1998-1999: Korngrößenabhängige Untersuchungen von Schwebstaub und Inhaltsstoffen	127
	Sachsen 2000-2001: Validierung von PM10-Immissionsberechnungen im Nahbereich von Straßen und Quantifizierung der Staubbildung von Straßen: Lützner Straße in Leipzig	128
	FVV/FAT 1997-2000: Quellen der Partikelimmission	129
C.4 Kurzdarstellungen:Laufende/geplante Untersuchungsvorhaben		**130**
	Baden-Württemberg 2002-2003: Quantifizierung der PM10-Emissionen durch Staubaufwirbelung und Abrieb von befestigten Straßen	130
	Baden-Württemberg 2000-2003: BABII – Überprüfung der Genauigkeit von Emissionsdaten für gas- und partikelförmige Luftbeimengungen für Autobahnen	131
	Hessen: Ermittlung der Konzentration, Größenverteilung und räumlichen Ausbreitung von Partikeln und partikelgebundenen Inhaltsstoffen im Bereich Frankfurt am Main	132
	Nordrhein-Westfalen 2001-2003: Identifizierung von Quellgruppen für die Feinstaubfraktion	133
	Nordrhein-Westfalen 2001: Modellprojekt Maßnahmenplan für das Stadtgebiet Hagen“; Entwicklung und Validierung einer Modellgleichung zur Bestimmung von PM10-Emissionen aus dem Straßenverkehr	134
	Nordrhein-Westfalen 2001 Modellprojekt Maßnahmenplan für das Stadtgebiet Hagen; Herstellung der lagegetreuen Abbildung des Straßenverkehrsnetzes des Prognose- und Szenarienmoduls Straßenverkehr (PSM)	135
	Rheinland-Pfalz 2002-2003: Untersuchungen von Schwebstaub und Inhaltsstoffen zur Quellenidentifizierung	136

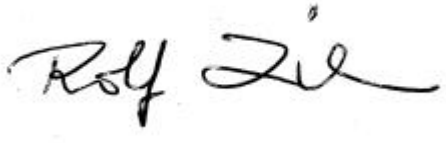
Vorwort

Durch die europäische Luftqualitätsrahmenrichtlinie und die in der 1. Tochterrichtlinie erlassenen Grenzwerte für Feinstaub-Immissionen (PM10) ergibt sich für Umweltbehörden und Verursacher von Feinstaubimmissionen aktueller Handlungsbedarf. Es gilt festzustellen, inwieweit diese Grenzwerte eingehalten werden und welche Ursachen es für Überschreitungen gibt, um damit die Grundlage für ggf. erforderliche Minderungsmaßnahmen zu schaffen. Die Ursachenanalyse erweist sich insbesondere in komplexen urban-industriell geprägten Gebieten wie dem Ruhrgebiet als besondere Herausforderung.

Das Ministerium für Umwelt und Naturschutz, Landwirtschaft und Verbraucherschutz des Landes Nordrhein-Westfalen und das Landesumweltamt NRW haben daher eine Reihe von Untersuchungsvorhaben initiiert, die sich verschiedenen Aspekten dieser Problematik widmen. Darüber hinaus wurde länderübergreifend ein Bedarf nach mehr Information über Methoden und Ergebnisse zur PMx-Quellenidentifizierung deutlich. So entstand die Idee, im Rahmen eines neuen Untersuchungsvorhabens des nordrhein-westfälischen Umwelt-ministeriums einen Workshop zu diesem Thema zu organisieren, zu dem sich schließlich ca. 70 Interessierte aus Bundes- und Landesbehörden, Forschungseinrichtungen, Universitäten, und Firmen in Duisburg zusammenfanden.

Der große Anklang, den die Veranstaltung bundesweit gefunden hat, hat uns dazu motiviert, die Beiträge zum Workshop, seine wesentlichsten Ergebnisse sowie weitere zum Thema gehörende Information der interessierten Öffentlichkeit mit diesem Bericht zugänglich zu machen.

Duisburg, im Dezember 2001



(MDgt. Dipl-Ing. Rolf Linnenkamp)
Abteilungsleiter V (Immissionsschutz, Gentechnik, Umweltmedizin)
Ministerium für Umwelt und Naturschutz, Landwirtschaft und Verbraucherschutz des Landes Nordrhein-Westfalen

Begrüßung der Workshop-Teilnehmer durch Herrn Dr. J. Assmann, Ministerium für Umwelt und Naturschutz, Landwirtschaft und Verbraucherschutz NRW

Sehr geehrter Herr Rektor Prof. Dr. Wolff,
sehr geehrte Damen und Herren!

Im Namen des Umweltministeriums NRW begrüße ich Sie herzlich zum Staub-Workshop in der Universität Duisburg.

Ich freue mich, dass dieser Workshop gerade hier stattfindet, denn damit wird die Bedeutung des Fachgebiets Prozess- und Aerosolmesstechnik von Prof. Fissan unterstrichen, der bereits in der Vergangenheit zusammen mit Dr. Kuhlbusch und mit weiteren Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern wichtige Forschungs- und Entwicklungsarbeiten auf dem Gebiet der Staubmessung geleistet hat. Weiter wird diese Fachkompetenz verstärkt durch die Zusammenarbeit mit Prof. Dr. Schmidt vom Bereich Umwelttechnik und durch das Institut für Umwelttechnologie und Umweltanalytik (IUTA), auch aus Duisburg. Damit präsentiert sich Duisburg als ein Kompetenzzentrum in Sachen Staub, das man anderswo nicht so leicht finden wird.

Die Staubreduzierung besonders hier im Ruhrgebiet ist eine Erfolgsgeschichte der Luftreinhaltepolitik in Nordrhein-Westfalen. So hat sich z. B. die Schwebstaubkonzentration im Rhein-Ruhrgebiet von 200 µg/m³ als Mittelwert im Jahr 1968 auf etwas unter 40 µg/m³ (genau: 38 µg/m³) als Mittelwert im Jahr 2000 reduziert. Trotzdem ist Staub immer noch ein aktuelles Thema. Wie Sie wissen, haben Wirkungsuntersuchungen eindeutig die Bedeutung insbesondere der feinen luftgetragenen Partikel gezeigt, die im Atemtrakt abgeschieden werden und sich dort negativ auf die menschliche Gesundheit auswirken können. Dementsprechend wird, wie Sie ebenfalls wissen, für die Beurteilung partikelförmiger Luftverunreinigungen in der ersten Tochterrichtlinie zur EU-Luftqualitätsrahmenrichtlinie nur die Größenfraktion $\leq$10 µm, d. h. PM 10, zugrunde gelegt, wobei in Zukunft auch der Weg in Richtung PM 2,5 gehen kann.

Die nationalen Rechtsgrundlagen zur Umsetzung der neuen EU-Luftqualitätsrichtlinien sind zur Zeit in Arbeit. So werden insbesondere das Bundes-Immissionsschutzgesetz und die 22. Verordnung zum Bundes-Immissionsschutzgesetz (Verordnung über Immissionswerte) z. T grundlegend novelliert. Entsprechende Entwürfe hat das Bundes-Umweltministerium vorgelegt und die betroffenen Kreise dazu angehört. Ziel ist, bis zum Ende dieser Legislaturperiode, d. h. bis zum Sommer nächsten Jahres, die Novellierungen abgeschlossen zu haben.

Aus der neuen Messgröße und den anspruchsvollen neuen Grenzwerten der ersten Tochterrichtlinie heraus ergeben sich neue Aufgaben und Herausforderungen für alle Betroffenen, d. h. für Industrie und Gewerbe, für die Verwaltung und auch für die Forschung und Entwicklung im Bereich der Messtechnik und im Bereich der Minderungstechnologien.

Die bisherigen Untersuchungen zeigen, dass die neuen Feinstaubgrenzwerte der ersten Tochterrichtlinie in größeren Teilen unseres Landes überschritten werden. Um die Grenzwerte bis zu dem von der EU gesetzten Stichtag, nämlich bis zum 1.1.2005 einzuhalten, müssen entsprechende Maßnahmenpläne aufgestellt werden.

Diese Maßnahmenpläne müssen alle anthropogenen Feinstaubquellen einbeziehen, die relevant zu der Grenzwertüberschreitung beitragen. Ein wichtiger erster Schritt ist deshalb, eine Methodik zu entwickeln, mit der sich herauszufinden lässt, woher der Feinstaub kommt, denn nur aus dieser Kenntnis heraus sind wirksame Maßnahmen an der Quelle möglich. Deshalb hat das Umweltministerium NRW Herrn Prof. Fissan und Herrn Dr. Kuhlbusch beauftragt, zusammen mit dem Landesumweltamt NRW sowie Herrn Prof. Dr. Schmidt vom Bereich Umwelttechnik, dem Institut für Umwelttechnologie und Umweltanalytik (IUTA) und anderen Partnern eine Methodik zur Identifizierung von Quellgruppen für die Feinstaubfraktionen zu entwickeln. Dabei wird die Fingerprint-Modellierung zur Anwendung kommen - eine Methode, die m. E. sehr erfolgversprechend ist und die uns einen großen Schritt auf diesem Gebiet weiterbringen kann.

Aber auch in anderen Bundesländern und in anderen Institutionen wird an dieser Problematik gearbeitet. Um die dort gewonnenen Erkenntnisse zu nutzen und um sich zur Vermeidung von Doppelarbeiten im weiteren Vorgehen abzustimmen, wird nun als erster Schritt dieses Kolloquium durchgeführt. Damit wird gleichzeitig auch dem im Länderausschuss für Immissionsschutz geäußerten Wunsch der Länder nach einer engen Zusammenarbeit auf diesem Gebiet entsprochen. Der Länderausschuss für Immissionsschutz ist das Beratungsgremium der für den Umweltschutz zuständigen obersten Behörden der Länder und des Bundes.

Ich freue mich, dass so viele Fachleute der Einladung gefolgt und auch Teilnehmer aus dem Ausland gekommen sind. Ich wünsche dem Staub-Workshop viel Erfolg und hoffe, dass damit ein guter Start für unser Forschungsvorhaben und auch für Ihre weiteren Aktivitäten auf diesem Gebiet gegeben ist.

Vielen Dank!

Workshop „PM_X-Quellenidentifizierung: Methoden und Ergebnisse“
am 12./13. September 2001 in Duisburg

Einführung:
PM_X-Quellenidentifizierung: Methoden und Ergebnisse

Dr. T.A.J. Kuhlbusch
Institut für Energie und Umwelttechnik (IUTA e.V.)
Prozeß- und Aerosolmesstechnik, GMU-Duisburg

Einleitung

Der Zusammenhang zwischen Luftinhaltsstoffen/Schadstoffen (Gase und Partikel) und der Beeinträchtigung von Umwelt und Gesundheit ist schon seit Jahrhunderten bekannt. In einem Artikel von der Zeit, 23.08.01, wurde Frau Wallström, Umweltkommissarin der EU, in Bezug auf die neuen Erkenntnisse zur Wirkung von Feinstäuben gefragt, ob der Umweltforschung und -politik noch zu trauen sei, wenn sie ständig neue Angeklagte in die Arena führen.
Ihre Antwort auf diese Frage ist meiner Meinung nach grundlegend, u.a. auch für diesen Workshop:
"*Dies ist unvermeidlich, wenn neue Forschungen und Techniken aufkommen und zu neuen, manchmal überraschenden Ergebnissen führen. Derzeit produzieren die Forscher mehr Fragen als Antworten. Aber wir können nicht sagen, sie sollten aufhören, um uns in scheinbarer Gewissheit wiegen zu können. Das wäre falsche Sicherheit. Wir müssen vielmehr so viele Forscher wie möglich einsetzen, um die Zusammenhänge zu klären und uns zu den besten Lösungen zu helfen.....*"

Die "neuen Forschungen und Techniken", mit denen - neben epidemiologischen Untersuchungen - sicherlich auch die jüngeren Entwicklungen in der Aerosolmesstechnik, der chemischen Analytik und der statistischen Auswerteverfahren in Hinblick auf Quellenidentifizierung gemeint sind, haben zu einer geänderten Bewertungssituation im Hinblick auf die Belastung unserer Atemluft mit lungengängigen Stäuben geführt. Resultat dieser Neubewertung ist die im Jahre 1999 von der EU erlassene 1. Tochterrichtlinie zur Luftqualitätsrahmenrichtlinie mit Bezug auf PM_{10} und $PM_{2.5.}$ Die darin festgeschriebenen Grenzwerte sind seit Juli diesen Jahres auch in Deutschland in Kraft (vgl. Abb.1)

Messprogramme zur Ermittlung der Belastung mit PM_{10} und $PM_{2.5}$, die seit etwa 4 Jahren an vielen Stellen in Europa, teilweise mit der Charakterisierung von physikalischen und chemischen Charakteristika, durchgeführt werden zeigen, dass insbesondere in urbanen Ballungsräumen diese Grenzwerte weiträumig überschritten werden (vgl. Abb. 2). Eine nähere Analyse der Grenzwertüberschreitungen zeigt auch, dass vor allem Überschreitungen des Tagesgrenzwertes von 50m µg/m³ für PM10 deutlich häufiger als von der Richtlinie erlaubt auftreten.

Für diesen Fall sieht die 1. Tochterrichtlinie die Pflicht der Umweltbehörden zur Erstellung von Massnahmeplänen zur Verminderung der Schwebstaub-Immissionen vor. Die Massnahmepläne sollen sicherstellen, dass
a) zukünftig keine Grenzwertüberschreitungen mehr auftreten und
b) dabei insbesondere auch die Partikelgrößenfraktion $PM_{2.5}$ berüchsichtigt wird.

Notwendige Voraussetzung zur Erstellung von Massnahmeplänen ist allerdings die Kenntnis über die quantitativen Beiträge verschiedener Feinstaub-Quellen zu einer gegebenen Immissionssituation. Da die kritische Größe nicht der Jahresmittelwert der Konzentration, sondern die episodenhafte Überschreitung der Tagesgrenzwerte ist, muss die Ermittlung der Quellenzuordnung **raum- und zeitbezogen durchgeführt werden**.

Um die auf einen gegebenen Immissionsort (Rezeptor) einwirkenden Schwebstaubquellen zu ermitteln und ihre Beiträge zu quantifizieren, bedarf es zweierlei:
1. Messdaten, die sowohl die Immissionssituation als auch die Emissionen in Frage kommender Quellen charakterisieren hinsichtlich
   - physikalischer und chemischer Eigenschaften
   - meteorologischer Bedingungen (z.B. Temperatur, Feuchte, Niederschlag)
   - Rückwärtstrajektorien, Tranportprozesse
2. geeignete statistische Methoden oder Modelle zur Auswertung und Verknüpfung der messtechnisch erhaltenen Daten.

Vor dem Hintergrund der Erstellung von Massnahmeplänen werden an solche Modelle zur Quellenidentifizierung erhebliche Anforderungen gestellt:

- hinreichende Auflösung der Quellen bzw. Quellgruppen

- Bestimmung der quantitativen Beiträge dieser Quellgruppen zur Immissionssituation
- Räumliche Zuordnung zur Identifizierung der effektivsten Massnahmen für eine belasteten Raum
- Zeitliche Auflösung der Quellenzuordnung zur Identifikation der Quellen unter den meteorologischen Bedingungen, bei denen Grenzwertüberschreitungen auftreten

Zur Zeit gibt es leider noch kein umfassendes Verfahren, welches alle aufgeführten Anforderungen erfüllt. Es existieren jedoch verschiedene aussichtsreiche Ansätze, die sich grob in folgende Gruppen kategoriseren lassen:

- Ausbreitungsrechnungen
- Rezeptormodellrechnungen
- Datenanalyseverfahren in Hinblick auf besondere Fragestellungen
- Quellen-Rezeptor-Modellrechnungen

Quellenidentifizierung - Möglichkeiten und Grenzen

Im Folgenden soll auf einzelne Aspekte der Quellenidentifizierung näher eingegangen werden.

Die Ausgangsinformationen für einen belasteten Standort sind häufig Immissionsmessungen, die die PM_X-Massenkonzentration(en) und deren chemische Inhaltsstoffe beschreiben (vgl. Abb. 3). Erste Informationen bezüglich der Quellen sind zwar bereits in der chemischen Zusammensetzung enthalten, können aber so nicht für eine quantitative Quellenzuordnung genutzt werden.

Etwas weitergehende Aussagen sind möglich, wenn man verschiedene Standorte miteinander vergleicht und Standorte mit ähnlichen chemischen "Profilen" zu einem gemeinsamen Standorttyp zuordnet. Aus einer solchen Typisierung läßt sich dann für weitere Standorte durch Übertragung der Ergebnisse eine Aussage über dominierende Quelleinflüsse machen (vgl. Abb 4). Eine in diesem Zusammenhang beispielsweise anzuwendende quantitative Methode zur Ermittlung der Übereinstimmung eines gefundenen chemischen Profils mit vorgegebenen typisierten Profilen ist die Ähnlichkeitsanalyse durch Bestimmung des Divergenz-Koeffizienten (vgl. Abb 5).

Vorausgesetzt, man hat Kenntnisse über die chemischen Profile der für einen bestimmten Immissionsstandort in Frage kommenden Emissionsquellen, so lassen sich wertvolle Informationen in Hinblick auf Quellen und Prozesse, die zu Grenzwertüberschreitungen führen, durch die Methode der Chemischen Massenbilanz (CMB) erzielen. Dieses, bisher am häufigsten (insbesondere in den USA) angewendete Verfahren kann aber nur Quellen identifiziert und quantifiziert werden, die auch gemessen und in der Emissionsbibliothek enthalten sind. Außerdem kann mittels dieser Analyse allein zunächst keine räumliche oder zeitliche Auflösung erfolgen, und auch Quellen der sekundären Aerosole können nicht identifiziert werden. Eine räumlich zeitliche Auflösung kann allerdings unter gewissen Umständen durch Kopplung der Ergebnisse mittels CMB und Windrichtungsanalysen, bzw. Rückwärtstrajektorien erzielt werden (vgl Abb. 6, 7).

Aufgrund der geschilderten Einschränkungen birgt die CMB-Methode die Gefahren, das (a) wesentliche Quellgruppen nicht erkannt werden und (b) der Beitrag nicht erfasster Quellen den anderen Quellen zumindest teilweise zugeordnet werden. Da zudem die Erhebung der notwendigen Emissionsprofile mit erheblichem messtechnischen Aufwand verbunden ist, wurden in den letzten Jahren rezeptor-orientierte Modelle weiterentwickelt, die auf der Basis von multivariater Statistik (z.B. Faktor-Analysen, Positiv-Matrix-Faktorisierung) eine Quellenzuordnung vornehmen.

Sowohl CMB als auch die auf Faktoranalyse basierenden Methoden haben gemeinsam, dass eine umfangreich Zahl von Beobachtungen (Messtagen) benötigt wird, um sinnvolle Aussagen zu ermöglichen. Diese Aussagen beziehen sich daher zwangsläufig auf größere Zeiträume und können speziell in Hinblick auf die Problematik episodenhafter Grenzwert-Überschreitungen nur bedingt eingesetzt werden. Einen Ausweg aus diesem Dilemma bietet die Charakterisierung von Episoden mit erhöhter Schwebstaubbelastung durch Ähnlichkeitsanalyse und Klassifizierung der beobachteten chemischen, physikalischen und meteorologischen Daten (vgl. Abb. 8-10).

Schlussfolgerungen und Ausblick

Aus den vorstehenden Ausführungen sollte deutlich geworden sein, dass sich durch eine einzelne Methode nur in Ausnahmefällen eine vollständige Quellenzuordnung erzielen lässt. Insbesondere in den komplexen Situationen urbaner Ballungsgebiete können nur durch eine

geschickte Kombination verschiedener Verfahren und Methoden die benötigten Informationen erhalten werden. Es ist auch offensichtlich, dass sich diese Methoden z. T. noch im Entwicklungsstadium befinden und daher eine allgemein anwendbare Methodenkombination die

- Quellen identifiziert und quantifiziert
- eine zeitliche Auflösung für die Untersuchungen von Tageswerten ermöglicht
- eine räumliche Zuordnung der relevanten Quellen liefert
- Umwandlungsprozesse von der Quelle zur Immission erfaßt

zur Zeit noch nicht vorliegt.
Im Hinblick auf die Verbesserung und Weiterentwicklung solcher Auswertungsmethoden wären vergleichende Untersuchungen zwischen verschiedenen (vorhandenen) Verfahren zur Quellenzuordnung, sowohl an synthetischen als auch an gemessenen Datensätzen, sehr wünschenswert. Zu empfehlen ist in diesem Zusammenhang auch eine systematische Zusammenstellung aller durchgeführten Quellenzuordnungen in Deutschland/Europa, um die dabei gemachten Erfahrungen zu bündeln.

Alle Auswertungs-Methoden basieren letztlich aber auf Messdaten, die in geeigneter Weise erhoben und den Modellen zur Verfügung gestellt werden müssen. Die Genauigkeit der Modellaussagen zur Quellenzuordnung ließe sich durch die Erstellung möglichst umfassender Emissions- und Immissionsdatensätze sowie die Entwicklung von Messverfahren zur Inhaltsstoffbestimmung von Partikeln mit einer höheren zeitlichen Auflösung verbessern.

In den weiteren Beiträgen zu diesem Workshop werden einzelne Methoden, Verfahren und Probleme auf der Basis des heutigen Wissensstandes zum Bereich der Quellenidentifizierung dargestellt und Lösungsansätze diskutiert.

Neue Luftreinhaltestandards

neue Luftreinhaltestandards in USA, EU

1. Tochterrichtlinie bezogen auf Grenzwerte von Schwefeldioxid, Stickoxide, Partikel und Blei in Luft (EU, 1999)

Bis 2000
Gesamtschwebstaub:
- Jahresmittelwert: < 150 µg/m³
- Tagesmittelwert: < 300 µg/m³ (max. 7 Überschreit.)

Grenzwerte (ab 2005)

PM_{10} (Messungen nach EN 12341)
- Jahresmittelwert: < 40 µg/m³
- Tagesmittelwert: < 50 µg/m³ (max. 35 Überschreit.)

$PM_{2.5}$ (EN in Arbeit)
- Orientierende Messungen

Abb. 1

Belastungssituation im Ruhrgebiet

Messungen 1997-99

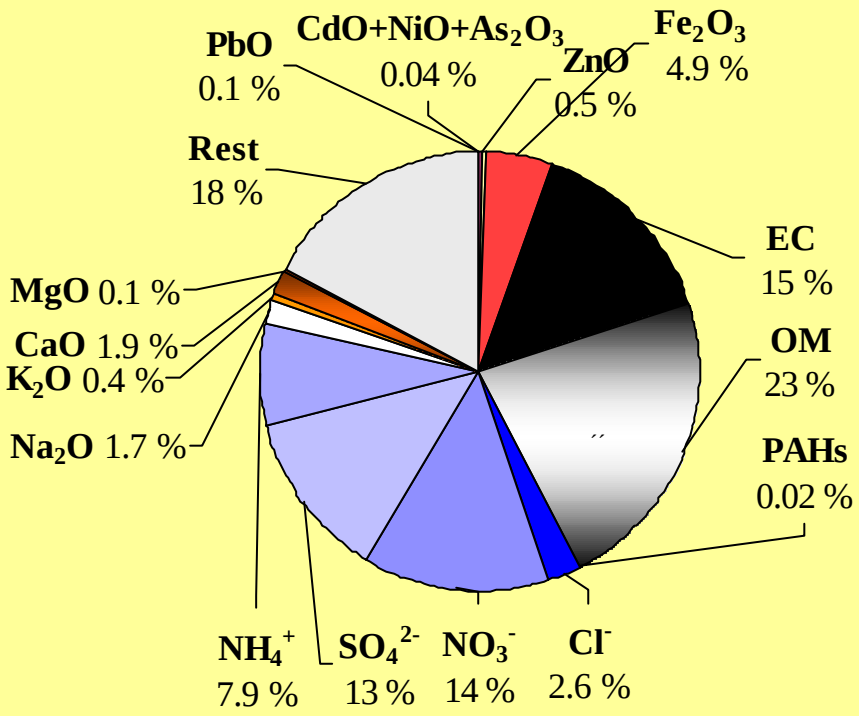
Ort	PM 10 Mittel ($\mu g/m^3$)	Überschr. pro Jahr*	PM 2.5 Mittel ($\mu g/m^3$)
ländlich, städt. beeinfl.	33±15	47	22±13
städtischer Hintergrund	46±20	182	38±20
Verkehrsstation	45±17	111	33±11

*hochgerechnet

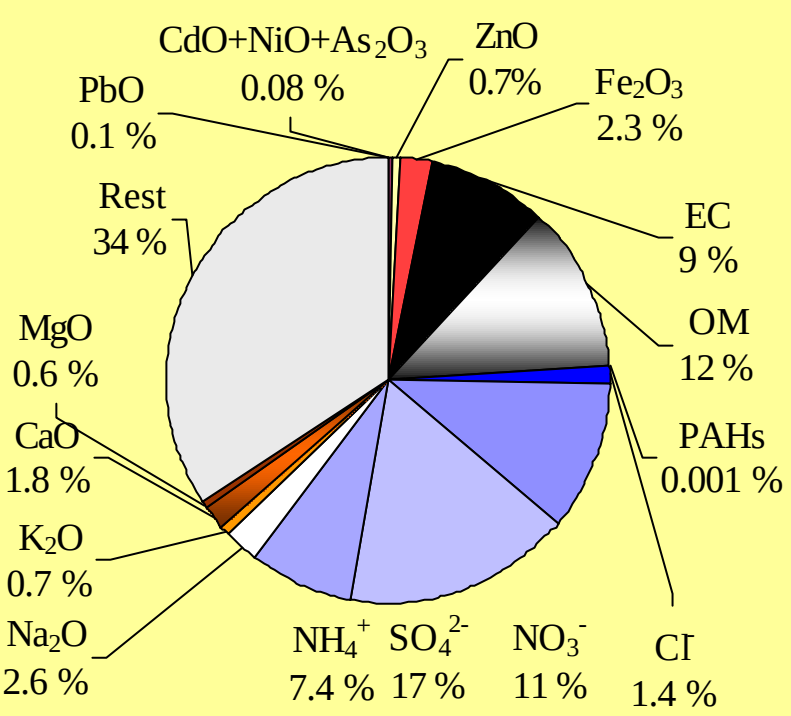
➔ Massnahmepläne, atmosphärische Prozesse, Quellen

Abb. 2

Chemische Zusammensetzung I



PM 10 = 44.9 ± 16.9 µg/m³



PM 10 = 28.7 ± 9.3 µg/m³

Düsseldorf, Nov. 1999
Verkehrsstation

Voerde-Spellen, Jul. 1998
Ländliche Station

Abb. 3

Chemische Zusammensetzung II

Städtische und städtisch geprägte, ländliche Stationen

	Oberhausen		Zürich (Hueglin et al., 2000)		Voerde-Spellen	
	PM 2.5	PM 10	PM 2.5	PM 10	PM 2.5	PM 10
Massenkonz.	39±21 µg/m³	49±16 µg/m³	20 µg/m³	23 µg/m³	20±7 µg/m³	29±9 µg/m³
Ionen	37%	38%	40%	34%	37%	35%
Kohlenstoff	31%	22%	31%	27%	23%	21%
Spurenelemente	5%	8%	4%	11%	4%	9%

Verkehrsstationen

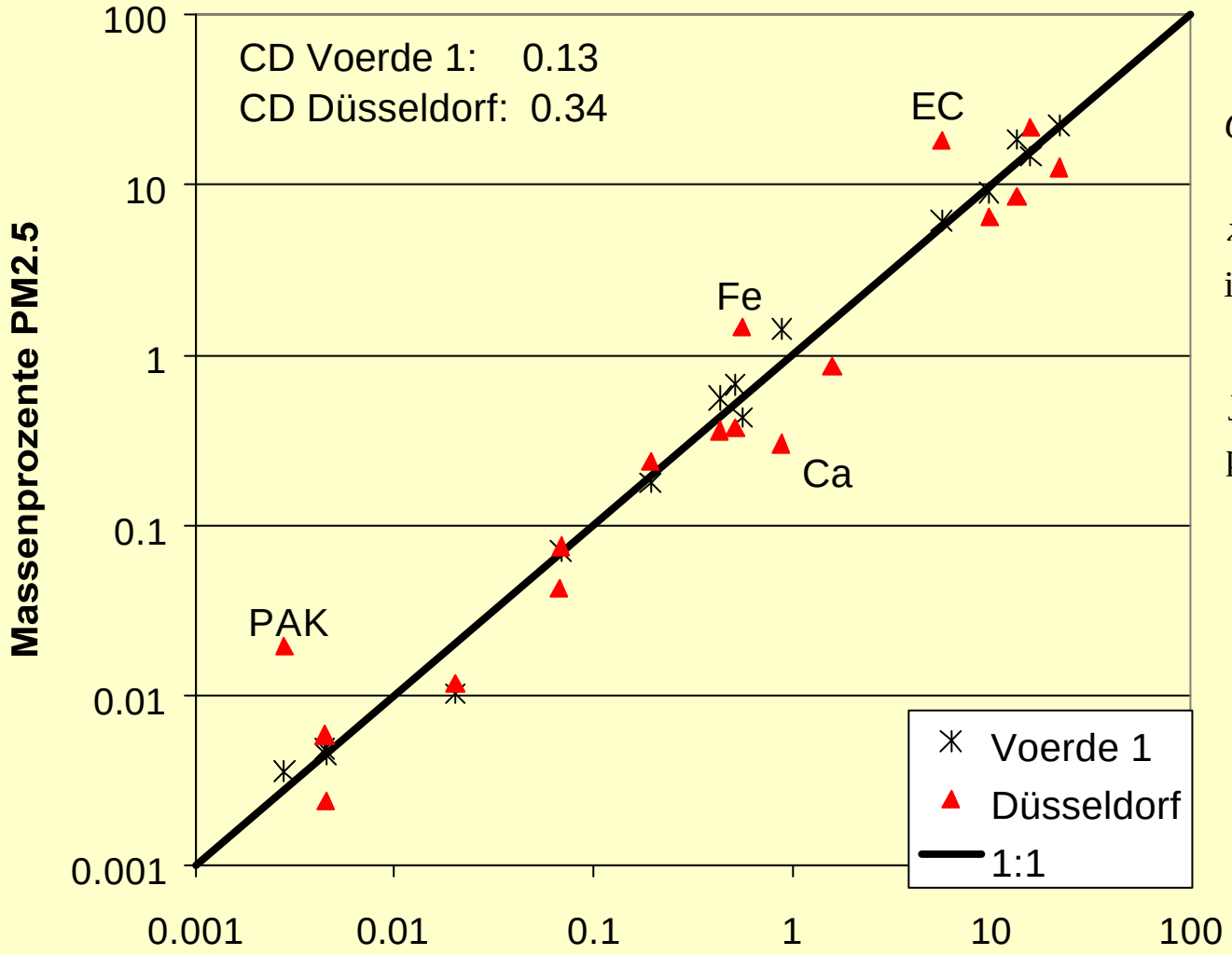
	Düsseldorf		Bern (Hueglin et al., 2000)	
	PM 2.5	PM 10	PM 2.5	PM 10
Massenkonz.	32±11 µg/m³	45±17 µg/m³	23 µg/m³	37 µg/m³
Ionen	28%	35%	26%	20%
Kohlenstoff	41%	38%	43%	35%
Spurenelemente	4%	10%	6%	20%

Ionen: Ammoniak, Nitrat, Sulfat

Abb. 4

Chemische Zusammensetzung III

Ähnlichkeitsanalyse



$$CD_{jk} = \sqrt{\frac{1}{p}\sum_{p_{i=1}}^{p}\left(\frac{x_{ij} - x_{ik}}{x_{ij} + x_{ik}}\right)^2}$$

x : Konzentrat ion oder Prozente

i : physikalis che oder chemische Messgröße

j, k : Messstando rt oder Messtag

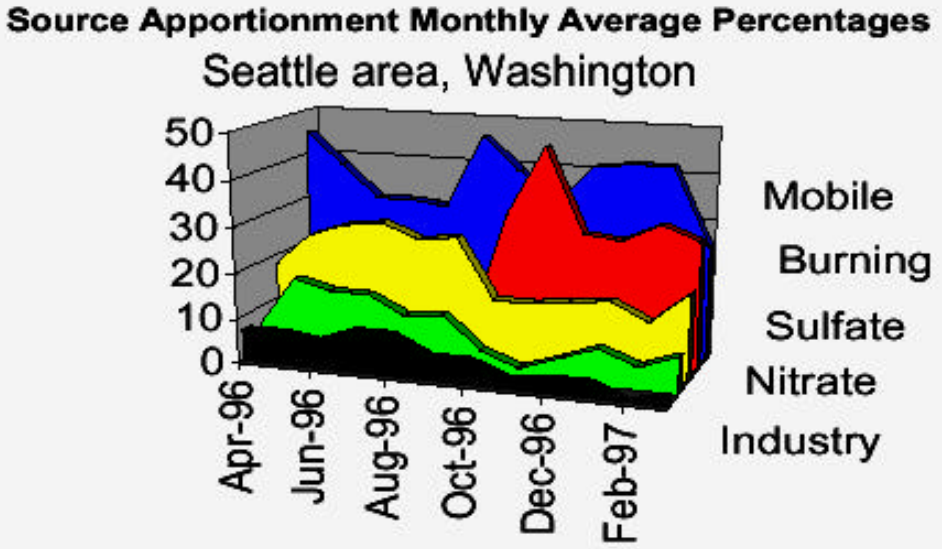
p : Anzahl der Variablen i

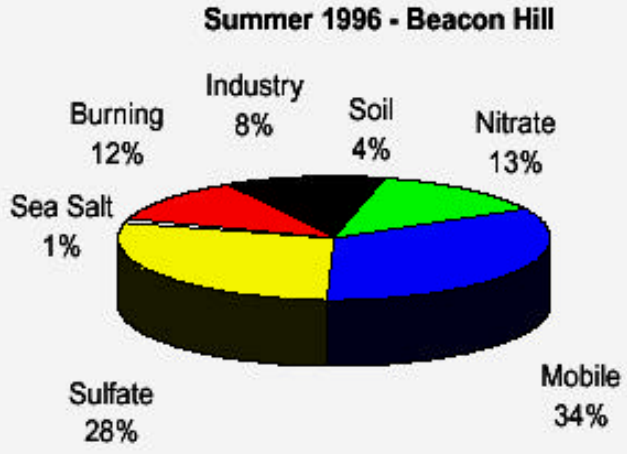
Abb. 5

Chemische Massenbilanz II

- Source apportionment example for the Seattle, Washington area for 1996-1997 using $PM_{2.5}$ data.
- Note seasonal differences in monthly average $PM_{2.5}$ source contribution percentages of burning (fall/winter) and secondary sulfate (summer).
- Differences in winter and summer burning contributions are also noticeable using pie charts for the data

s





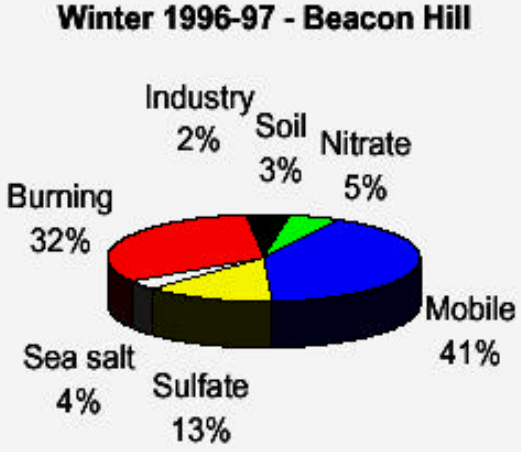


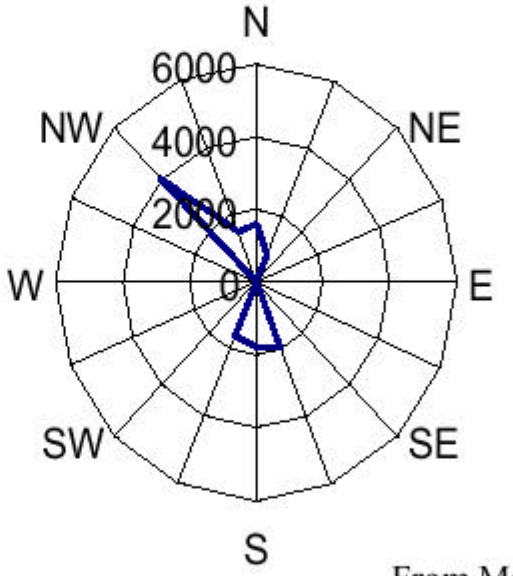
Abb.6

From Maykut et al. (1998)
Figures made using Excel.

Chemische Massenbilanz III

- Three Kraft paper mills in the Washington state study area are located to the south, north, and northwest of the monitoring site.
- Agreement between the wind directions associated with specific profiles and the actual locations of the sources adds credibility to the source apportionment results.

Kraft Paper Mill - Beacon Hill 1996-97



From Maykut et al. (1998)
Radar Plot: nanograms of PM attributed to the source by wind direction.

Abb. 7

Episodenanalyse I

Voerde 2

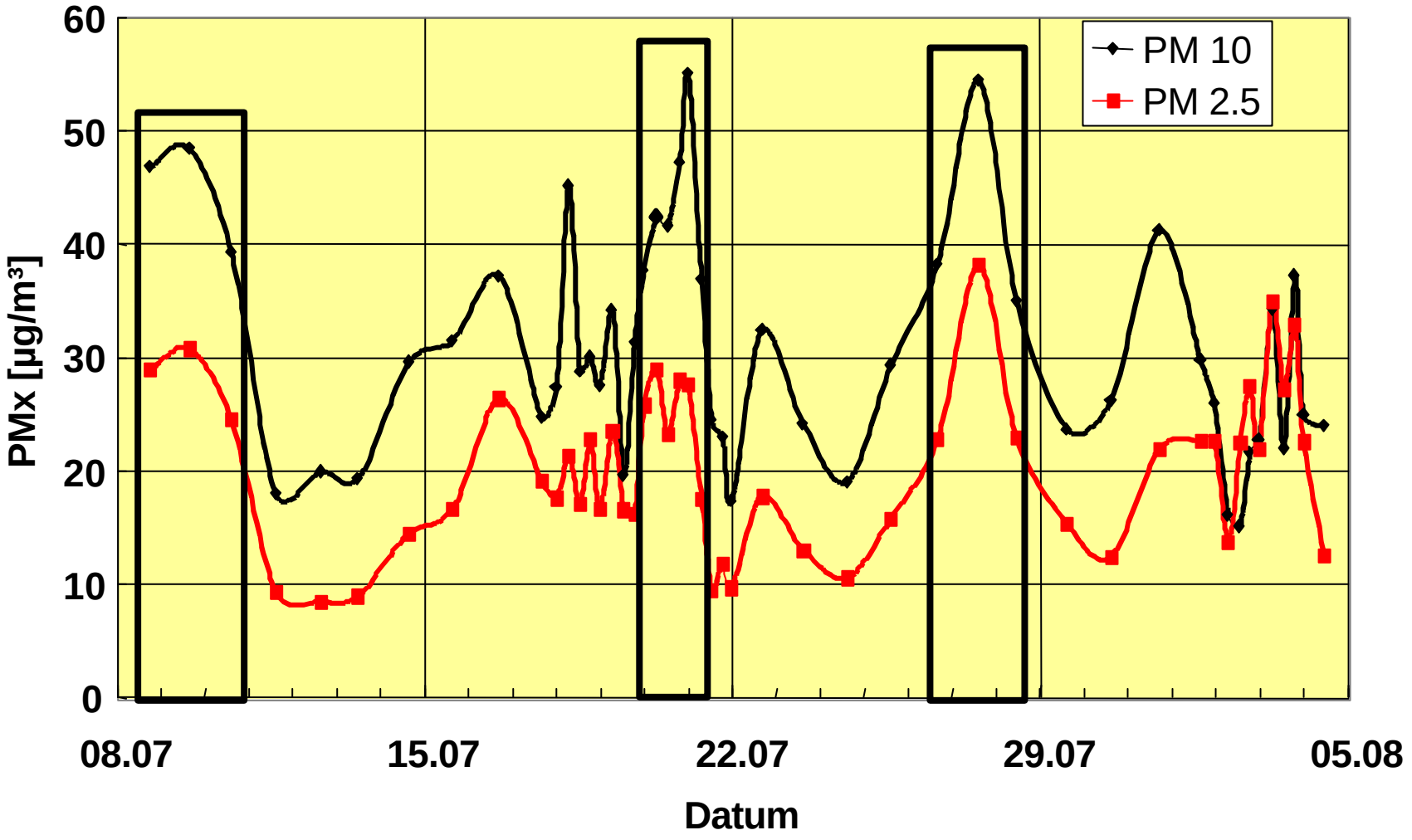


Abb. 8

Episodenanalyse II

Voerde 2

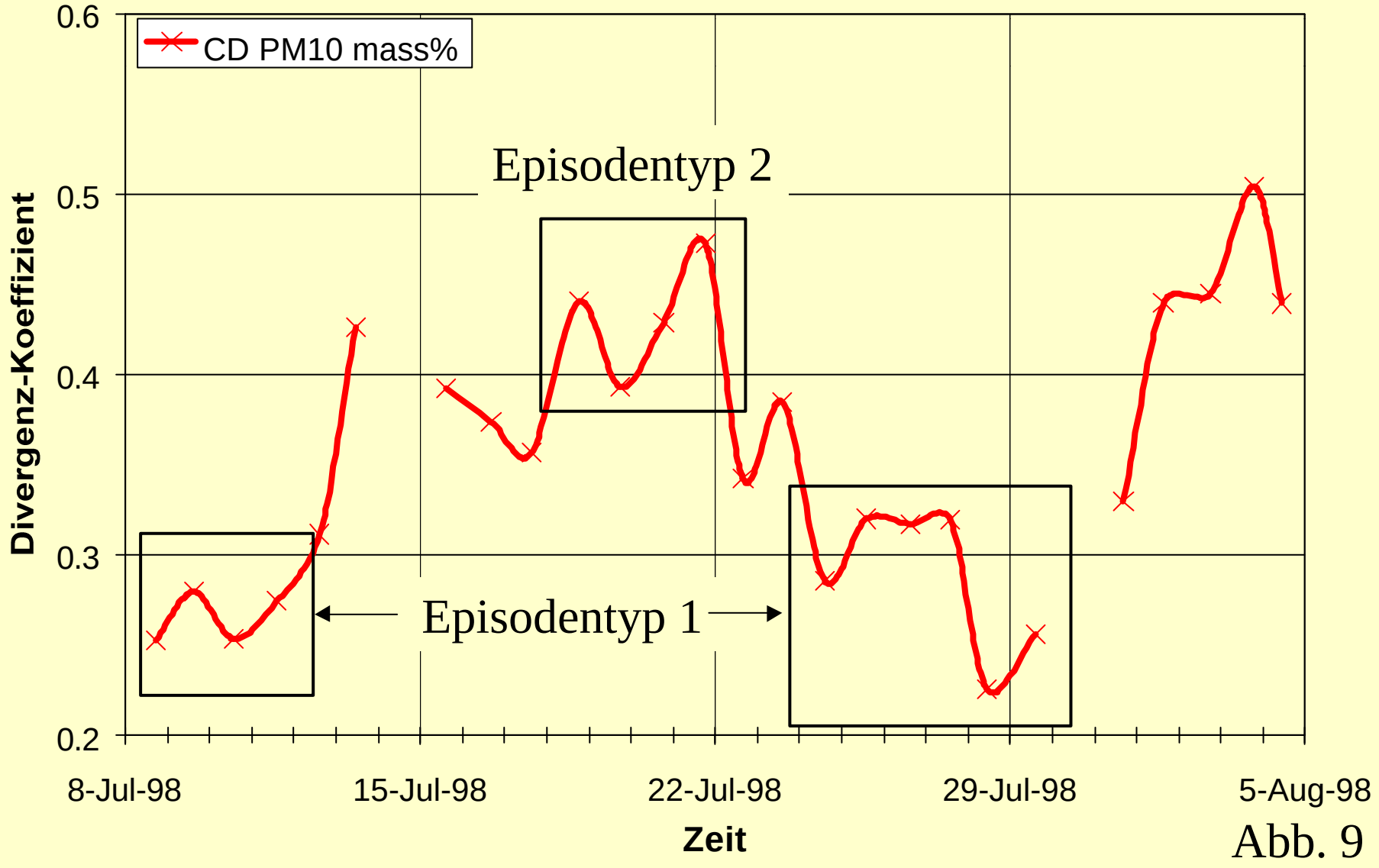


Abb. 9

Episodenanalyse III

Tageswerte mit > 50 µg/m³ (ohne Verkehrstation)

Episode		Phy.	Chemie						Meteorologie		
Tage (Anzahl)	% der Zeit	2.5/10 Verh.	NO_3^- NH_4^+ Mass-%	SO_4^{2-} PM10	S ion	EC	Fe, Zn	Ca, Mg	Wind m/s	24 h Transp km	Misch. sch. % 72h
23	72	> 0.6	-	–	>40	–	–	–	–	179	21
6	19	< 0.5	–	–	<30	-	-	-	–	480	26

mittels Korrelationsanalysen in Episodentypen klassiert

Typ 1: dominiert durch photochemische Prozesse

Typ 2: dominiert durch Winderosion

Abb. 10

Anwendungsmöglichkeiten von 3–D–Chemie–Transport–Modellen für die PM_x–Quellenidentifizierung

M. Memmesheimer, E. Friese, H.J. Jakobs, A. Ebel

EURAD–Projekt
Förderverein des Rheinischen Instituts für Umweltforschung an der Universität zu Köln e.V.

1 Einleitung

Das EURAD–Modellsystem besteht aus den drei Hauptkomponenten MM5, EEM und CTM2 (siehe Abb. 1). Das Chemie-Transport Modell CTM2 (*Hass et al.*, 1995) verwendet die vom meso–skaligen meteorologischen Modell MM5 (*Grell et al.*, 1993) bereitgestellten meteorologischen Felder und die vom Emissionsmodell EEM (*Memmesheimer et al.*, 1991) gelieferten Emissionsraten für numerische Simulationen des Transports, der chemischen Umwandlung und der Deposition atmosphärischer Spurenstoffe über Europa. Die numerische Behandlung von Aerosolen erfolgt innerhalb des CTM2 durch das Aerosol–Dynamik–Modell MADE (**M**odales **A**erosol–**D**ynamik Modell für **E**uropa; *Ackermann et al.* (1998)).
Durch zielorientierte Emissionszenarien kann dieses Modellsystem eine wertvolle Hilfe bei der PM_x–Quellenidentifizierung leisten. Beispielsweise kann die Wirkung unterschiedlicher Quellgruppen auf die Aerosolzusammensetzung und die Herkunft von Partikelbestandteilen untersucht werden.

2 Modelltechnik

Im Aerosol–Dynamik–Modell MADE wird die modale Technik (*Whitby*, 1978; *Whitby et al.*, 1991) zur Beschreibung der Größenverteilung und chemischen Zusammensetzung von Aerosolen verwendet. Sie beruht auf der Annahme, daß sich ein Aerosol in verschiedene intern gemischte Populationen – sogenannte Moden – unterteilen läßt, die jeweils durch eine analytische Verteilungsfunktion (hier Log–Normalverteilung) beschrieben werden können. In MADE werden Feinpartikel mit Durchmessern kleiner als ca 2.5 μm durch zwei wechselwirkende Moden (Aitken– und Akkumulationsmode) beschrieben. Grobpartikel bilden einen dritten Mode. Der kleinere der beiden Feinpartikelmoden repräsentiert frische Partikel, die entweder durch Nukleation – parametrisiert im Schwefelsäure/Wasser System – entstehen oder direkt in die Atmosphäre emittiert werden. Gealterte Partikel werden durch den größeren Mode repräsentiert. Beide Moden stehen über Koagulation in Wechselwirkung und können eine Massenänderung durch Kondensation und Evaporation gasförmiger Vorläufer erfahren. Grobpartikel werden durch Sedimentation im Schwerefeld der Erde aus der Atmosphäre entfernt. Chemisch setzt sich das Aerosol im Modell aus sekundären organischen und anorganischen Komponenten (SO_4^{2-}, $NO3^-$, $NH4^+$), primärem organischen und elementarem

Kohlenstoff in den beiden Feinpartikelmoden, sowie nicht identifizierbaren Partikeln anthropogenen Ursprungs in allen drei Moden zusammen (siehe Abb. 2). Die Behandlung der sekundären organischen Aerosolkomponenten erfolgt durch das Modul SORGAM (*Schell*, 2000). Zur Simulation der Gasphasenchemie, die u.a. die Vorläufersubstanzen der sekundären Partikelkomponenten liefert, stehen die Mechanismen RADM2 (*Stockwell et al.*, 1990), ein modifizierter Euro-RADM (*Stockwell und Kley*, 1994; *Zimmermann und Poppe*, 1996) oder RACM (*Stockwell et al.*, 1997) zur Verfügung.
Zwischen Aerosolpartikeln und Wolken besteht eine Vielzahl von Wechselwirkungen. Einerseits bilden gequollene Aerosolpartikel Kondensationskerne für die Entstehung von Wolkentropfen. Andererseits werden Größenverteilung und chemische Zusammensetztung eines Aerosols innerhalb einer Wolke durch verschiedene Prozesse modifiziert. Wasserlösliche gasförmige Substanzen dringen in Wolkentropfen ein. Ozon und Wasserstoffperoxid reagieren in der Flüssigphase irreversibel mit Schwefel in der Oxidationsstufe IV zu Sulfat. Das gebildete Sulfat verbleibt in der Partikelphase. Weitere zu nennende Prozesse sind die Auswaschung von Aerosolpartikeln oder die vertikale Durchmischung von Aerosolen in einer konvektiven Wolke. Im Wolkenmodul des CTM2 werden die Prozesse Auswaschung, vertikale Durchmischung, Naßpahsenchemie (siehe Abb. 3) und nasse Deposition parametrisiert (*Binkowski*, 1999; *Roselle und Binkowski*, 1999).

3 Anwendungen

Das Modellsystem wurde anhand von Episoden im Sommer bzw. Winter 1997 erprobt. Sowohl die Rechnungen für die Sommerepisode (13. und 14. August) als auch für die Winterepisode (13. bis 20. Januar) wurden zunächst mit einer Horizontalauflösung von 125 km auf einem Modellgebiet durchgeführt, das ganz Europa überdeckt (N0–Gebiet). Die Fähigkeit des Modells zur Nestung wurde verwendet um Mitteleuropa mit einer Horizontalauflösung von 25 km abzudecken (N1–Gebiet). Für beide Modellrechnungen wird die Atmosphäre vertikal in 23 Schichten unterteilt. Das Aerosol besteht in diesen Modellrechnungen aus sekundären organischen und anorganischen Komponenten (SO_4^{2-}, NO_3^-, NH_4^+), elementarem Kohlenstoff, primärem organischen Kohlenstoff und nicht identifizierbaren Partikeln anthropogenen Ursprungs.
Grobpartikelemissionen und Emissionen nicht identifizierbarer Partikel anthropogenen Ursprungs wurden einem Datensatz des TNO *Institute for Environmental Sciences* entnommen. Dieser Datensatz enthält jährliche Mittelwerte der Emissionsstärke von Partikeln anthropogenen Ursprungs mit einem Durchmesser kleiner als 10 μm (PM_{10}) und kleiner als 2.5 μm ($PM_{2.5}$) im Jahr 1993 mit einer horizontalen Auflösung von 1 x 0.5 Grad jeweils für 12 verschiedene Verursachergruppen. In Abb. 4 oben sind die dem TNO–Datensatz entnommenen und auf das N1–Gebiet transformierten Emissionsstärken von Grobpartikeln und nicht identifizierten Feinpartikeln anthropogenen Ursprungs dargestellt. Die Emissionsstärke elementaren Kohlenstoffs wurde mit einem Proportionalitätsfaktor 0,005 an die Emissionsstärke von Kohlenmonoxid gekoppelt. Diese Vorgehensweise ist durch die Tatsache motiviert, daß sowohl Kohlenstoffpartikel als auch Kohlenmonoxid Rückstände unvollständiger Verbrennungsprozesse sind. Die Emissionen sonstiger organischer Partikel werden aus einem mittleren in der Atmosphäre beobachteten Verhältnis von organischem Kohlenstoff zu elementarem Kohlenstoff von 1,5 abgeleitet. Durch dieses Verfahren erhalten die Emissionen kohlenstoffhaltiger Partikel eine räumliche und zeitliche Auflösung, die auch für Modellrechnungen auf

der urbanen Skala geeignet ist. Abb. 4 unten zeigt die Emissionsstärken für elementaren Kohlenstoff und primäre organische Partikel für das N1–Gebiet der Sommerepisode. Im Vergleich zu den TNO–Daten zeigt sich die verbesserte räumliche Auflösung. Abb. 5 bzw. Abb. 6 zeigt exemplarisch die PM_{10}–Massenkonzentration in der untersten Modellschicht in zeitlichen Abständen von vier Stunden am 14. August 1997 bzw. 18. Januar 1997 beginnend mit 2:00 UTC. Zur Modellvalidierung wurden zunächst prognostizierte PM_{10}–Konzentrationen mit stündlichen Messungen an 46 Stationen des Landesumweltamtes von Nordrhein Westfalen verglichen. PM_{10}–Meßwerte wurden durch Multiplikation der gemessenen Schwebstaubkonzentrationen mit dem Faktor 0,83 gewonnen. Abb. 7 bzw. Abb. 8 zeigt Zeitreihen gemessener und prognostizierter PM_{10}–Konzentrationen an den Stationen Dortmund Hörde, Köln Chorweiler und Eggegebirge für die Sommer- bzw. Winterepisode. Spitzenkonzentrationen, wie z.B. in Dortmund Hörde am 14., 15. und 16. Januar können vom Modell mit einer Horizontalauflösung von 25 km nicht wiedergegeben werden.

In einer weiteren Anwendung als Beispiel für den Einsatz des Modells bei der PM_x–Quellenidentizierung wurden in einem Emissionszenario alle Emissionen von Gasphasenkomponenten in der bodennächsten Modellschicht über einem Gebiet, das ungefähr Bayern abdeckt, ausgeblendet. Dies ist exemplarisch für SO_2 in Abb. 9 dargestellt. Anhand von Rückwärtstrajektorien (Abb. 10) zeigt sich, daß Luftmassen, die am 13.8. in Essen eintreffen, ihren Ursprung in Bayern haben. Abb. 11 links zeigt die PM_{10}–Konzentration in der bodennächsten Schicht am 13.8. als Ergebnis der Referenzsimulation ohne Emissionsreduktion. Auf der rechten Seite sind die absoluten Differenzen zwischen der Simulation mit Emissionsreduktion und der Referenzsimulation dargestellt.

Danksagung

Das EURAD-Projekt wird vom BMBF gefördert (AFO2000, AFS, TFS). Die hier vorgestellten FuE–Anwendungen wurden durch die Förderung durch das Landesumweltamt NRW ermöglicht. Die Simulationsrechnungen wurden durch das RRZK der Universität zu Köln, das Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln sowie das Forschungszentrum Jülich (ZAM, ICG2, ICG3) unterstützt. Dem Ford Forschungszentrum Aachen danken wir für die Unterstützung bei den Arbeiten an den Aerosolmodulen SORGAM und MADE. Emissionsdaten wurden von der TNO, dem Umweltbundesamt und EMEP zur Verfügung gestellt. Meteorologische Daten wurden vom ECMWF und NCEP zur Verfügung gestellt.

Literatur

Ackermann, I. J., H. Hass, M. Memmesheimer, A. Ebel, F. S. Binkowski und U. Shankar, Modal aerosol dynamics model for Europe: Development and first applications, *Atmos. Environ.*, *32*, 2981–2999, 1998.

Binkowski, F. S., Aerosols in Models–3 CMAQ, in *Science Algorithms of the EPA Models–3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling System, EPA 600/R-99-030*, herausgegeben von D. W. Byun und J. K. S. Ching, U.S. Environ. Prot. Agency, Research Triangle Park, N.C., 1999.

Grell, G. A., J. Dudhia und D. R. Stauffer, A description of the fifth generation Penn State/NCAR mesoscale model (MM5); NCAR TN-398+IA, technical report, National Center for Atmospheric Research, Boulder, Colorado, 1993.

Hass, H., H. Jakobs und M. Memmesheimer, Analysis of a regional model (EURAD) near surface gas concentration predictions using observations from networks, *Meteorol. Atmos. Phys.*, *57*, 2981–2999, 1995.

Memmesheimer, M., J. Tippke, A. Ebel, H. Hass, H. J. Jakobs und M. Laube, On the Use of EMEP Emission Inventories for European Scale Air Pollution Modelling with the EURAD Model, in *Proceedings of the EMEP Workshop on Photooxidant Modelling for Long–Range Transport in Relation to Abatement Strategies*, herausgegeben von J. Pankrath, 307–324, Umweltbundesamt, Berlin, 1991.

Roselle, S. und F. S. Binkowski, Cloud Dynamics and Chemistry, in *Science Algorithms of the EPA Models–3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling System, EPA 600/R-99-030*, herausgegeben von D. W. Byun und J. K. S. Ching, U.S. Environ. Prot. Agency, Research Triangle Park, N.C., 1999.

Schell, B., *Die Behandlung sekundärer organischer Aerosole in einem komplexen Chemie–Transport Modell*, Dissertation, Universität zu Köln, 2000.

Stockwell, W. R., P. Middleton und J. S. Chang, The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling, *J. Geophys. Res.*, *95 (D10)*, 16343–16367, 1990.

Stockwell, W. R., F. Kirchner, M. Kuhn und S. Seefeld, A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling, *J. Geophys. Res.*, *102 (D22)*, 25847–25879, 1997.

Stockwell, W. R. und D. Kley, The Euro-RADM mechanism. A Gas–Phase Chemical Mechanism for European Air Quality Studies, technical report, Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre 2: Chemie der belasteten Atmosphäre, Forschungszentrum Jülich GmbH, 52425 Jülich, 1994.

Whitby, K. T., The physical characteristics of sulfur aerosols, *Atmos. Environ.*, *12*, 135–159, 1978.

Whitby, E. R., P. H. McMurry, U. Shankar und F. S. Binkowski, Modal Aerosol Dynamics Modelling. Rep. 600/3-91/020, (NTIS PB91-161729/AS Natl. Tech. Inf. Serv., Springfield, Va.), Atmos. Res. and Exposure Asses. Lab., technical report, U.S. Environ. Prot. Agency, Research Triangle Park, N.C., 1991.

Zimmermann, J. und D. Poppe, A supplement for the RADM2 chemical mechanism: The photooxidation of isoprene, *Atmos. Environ.*, *30*, 1255–1269, 1996.

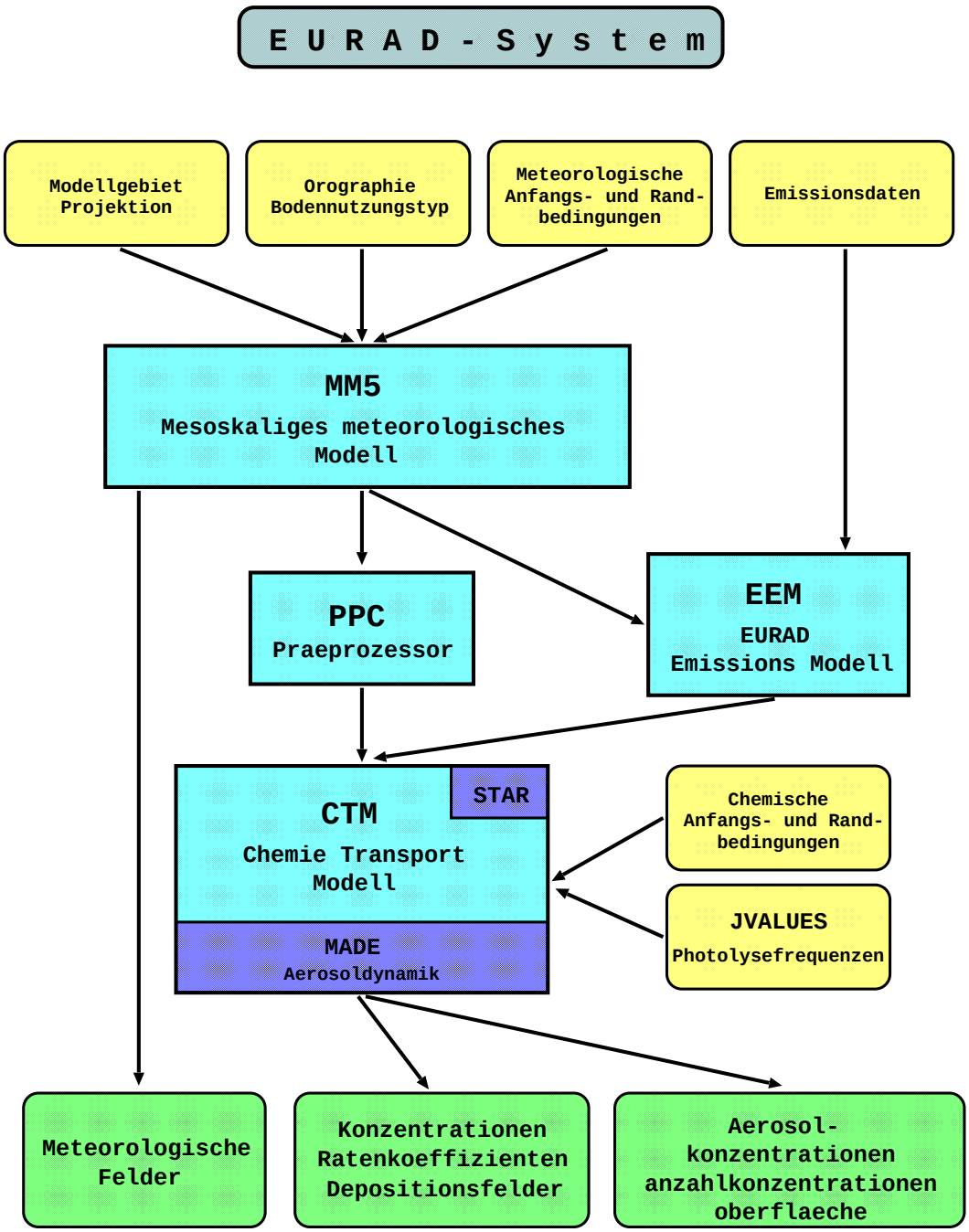


Abbildung 1: Das EURAD–Modellsystem

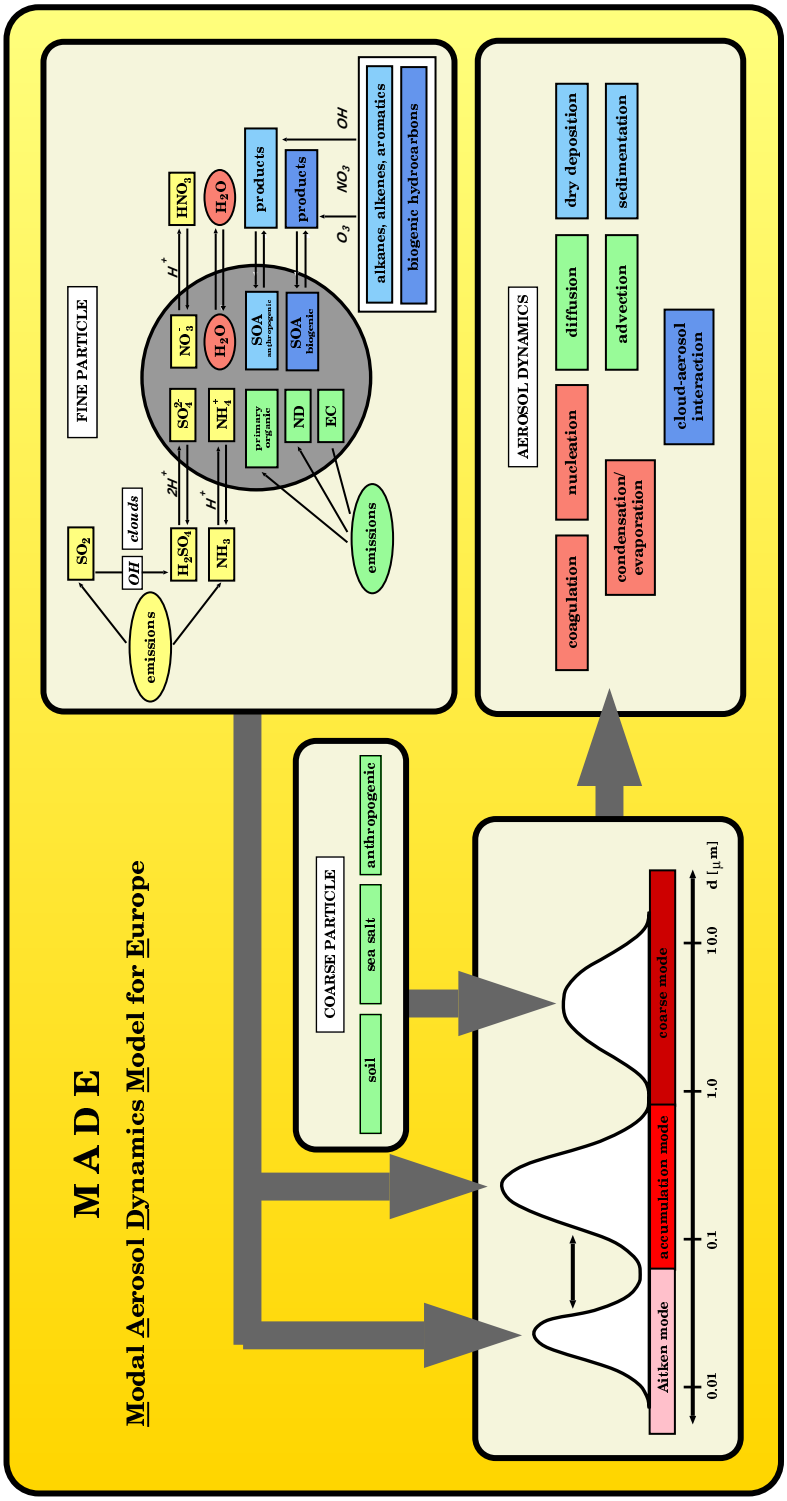


Abbildung 2: Das Aerosol–Dynamik Modell MADE

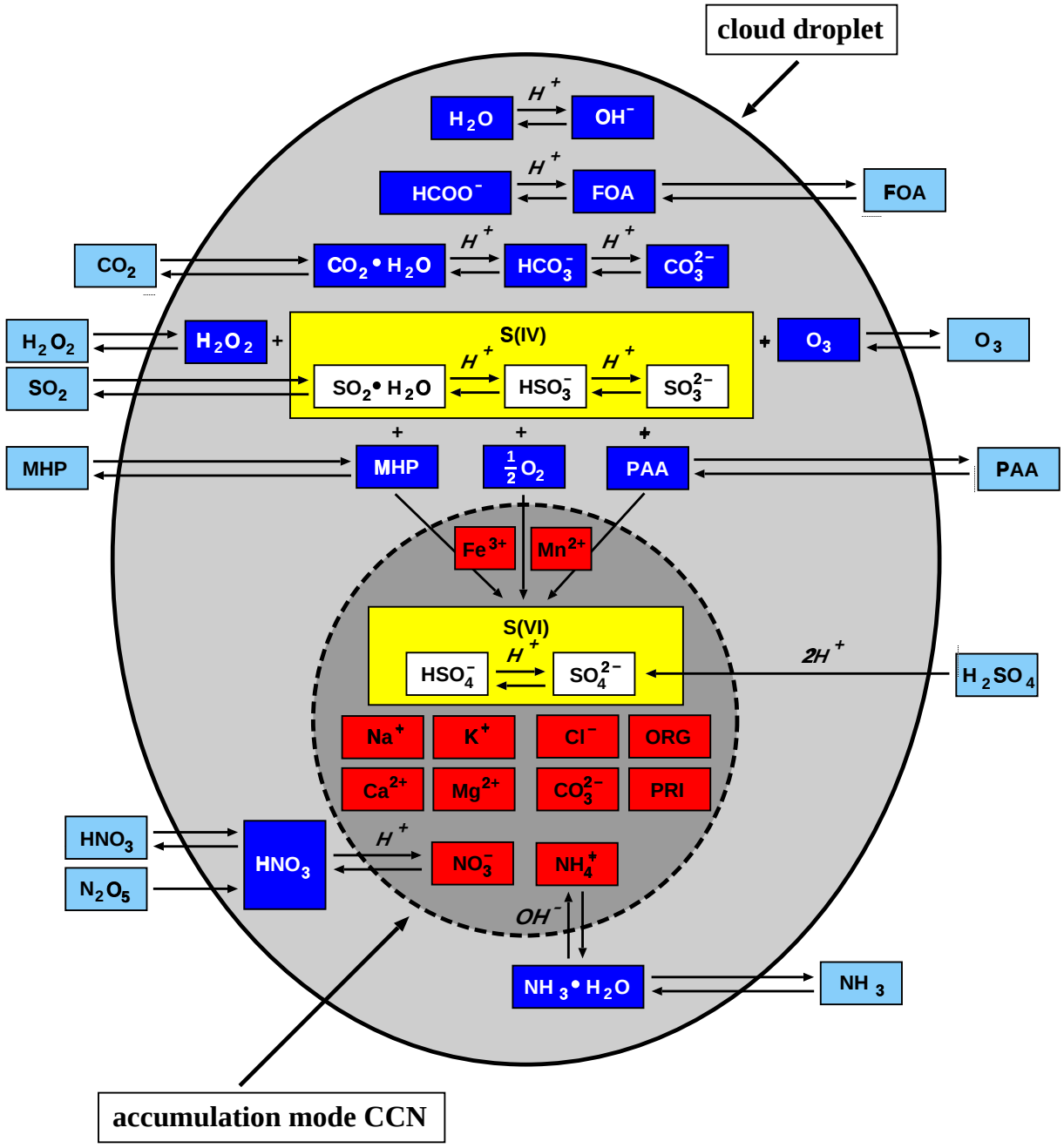


Abbildung 3: Schematische Darstellung der Naßphasenchemie im Wolkenmodul des CTM2

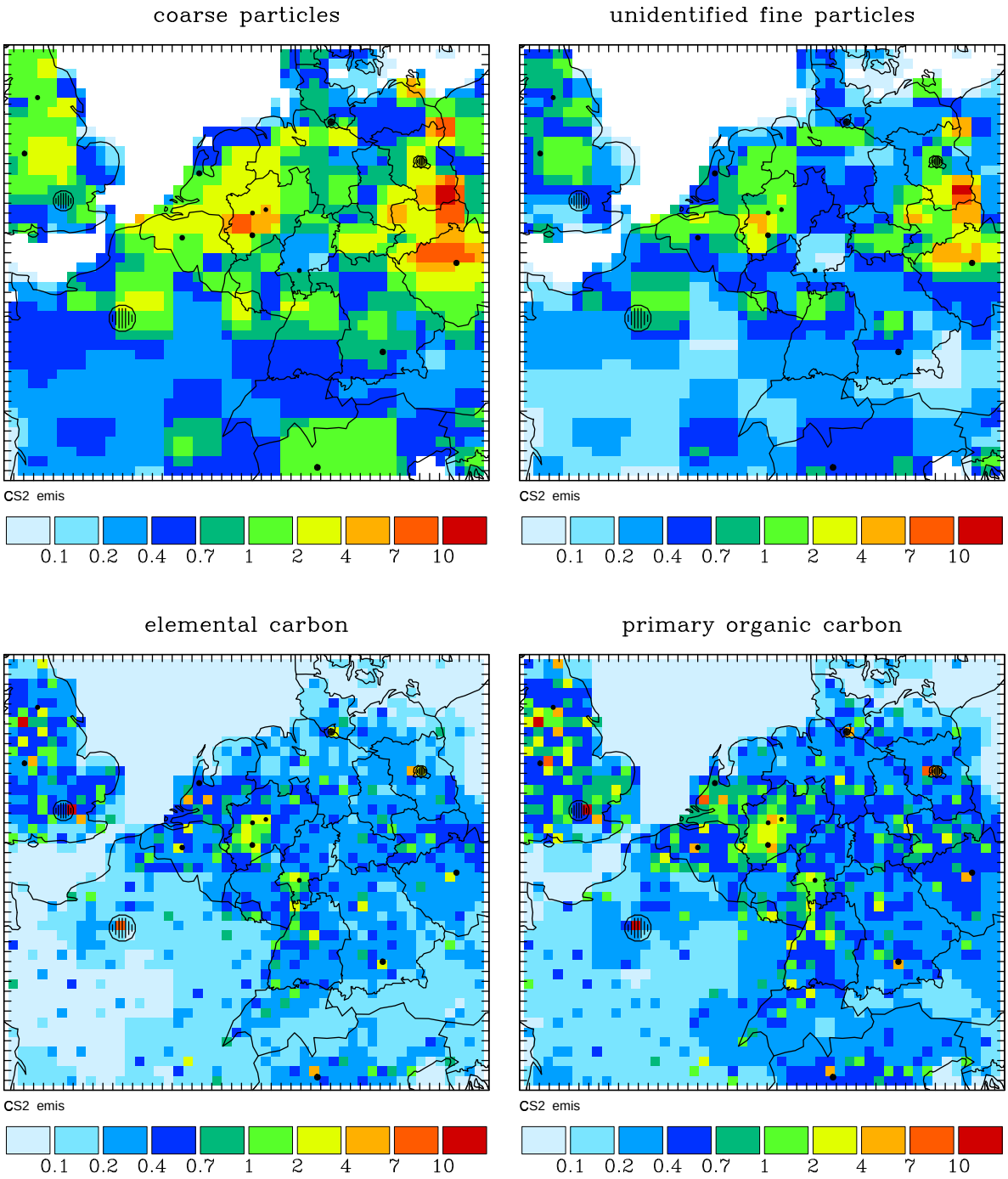


Abbildung 4: Partikelemissionen für das N1–Gebiet der Sommerepisode 1997 in Tonnen pro Tag. Oben links: Grobpartikel, oben rechts: nicht identifizierbare Feinpartikel, unten links: elementarer Kohlenstoff, unten rechts: primärer organischer Kohlenstoff.

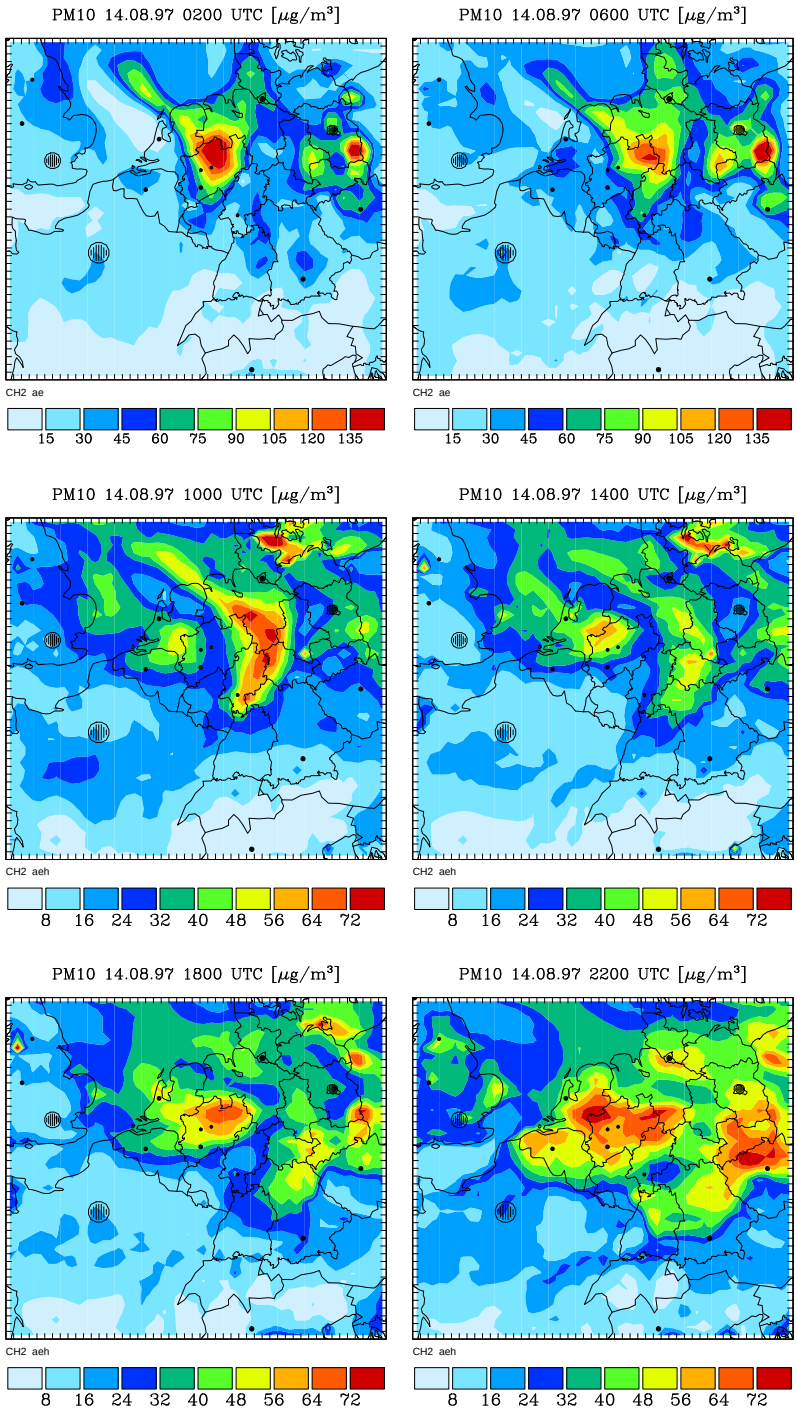


Abbildung 5: PM_{10}–Konzentrationen in der oberflächennächsten Modellschicht für den 14.8.1997 in Zeitabständen von 4 Stunden, beginnend mit 02:00 UTC (oben links).

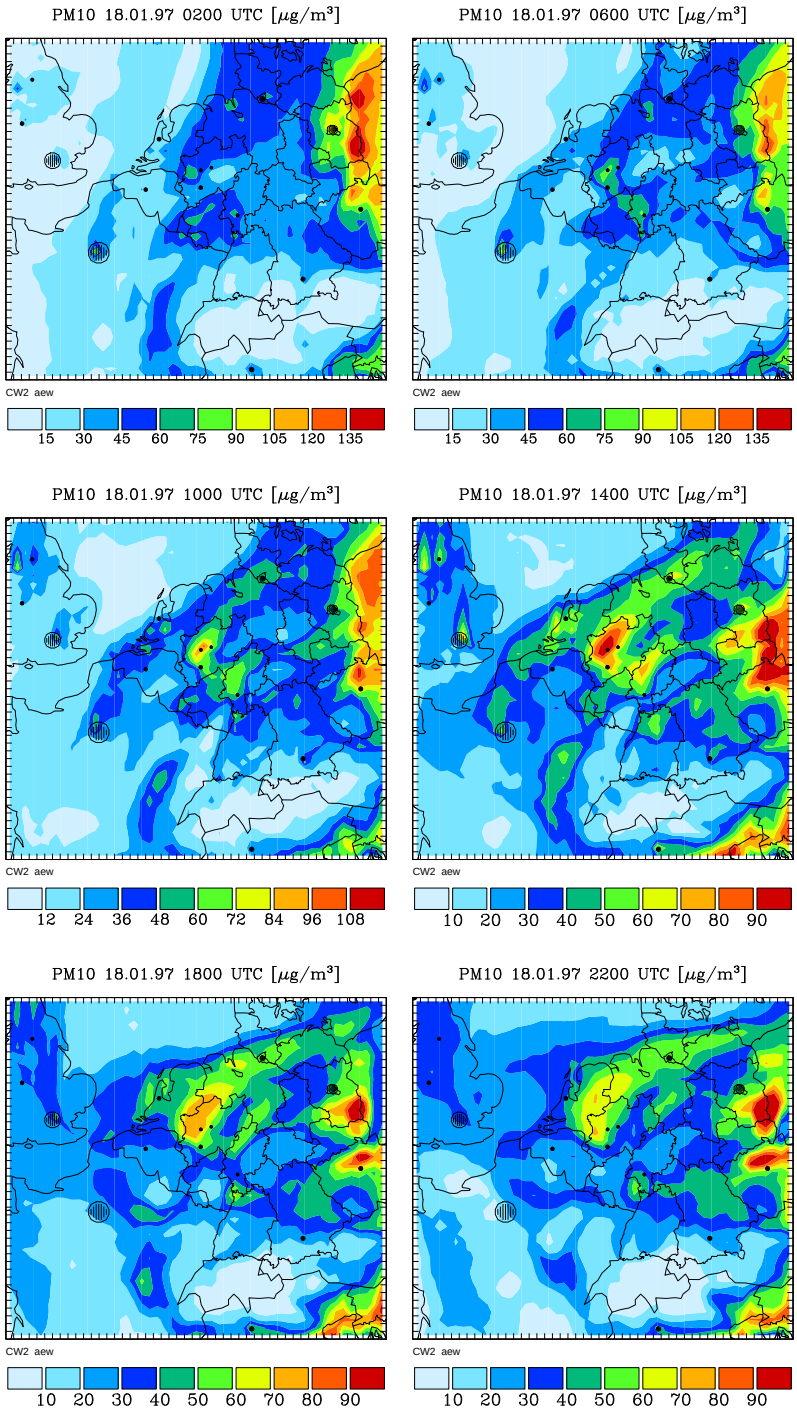


Abbildung 6: PM_{10}–Konzentrationen in der oberflächennächsten Modellschicht für den 18.1.1997 in Zeitabständen von 4 Stunden, beginnend mit 02:00 UTC (oben links).

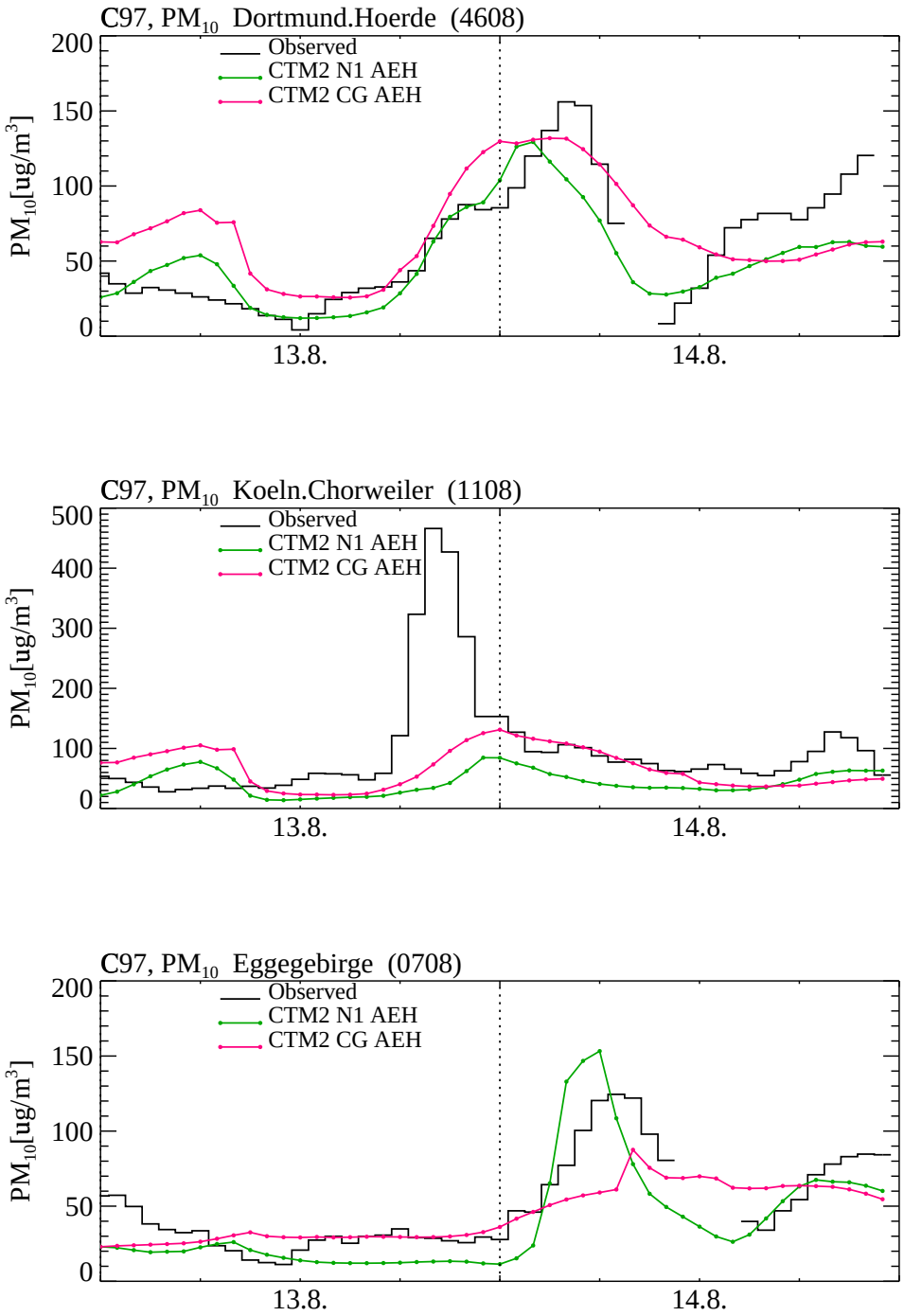


Abbildung 7: Zeitreihen gemessener (schwarz) und prognostizierter (rot: N0–Simulation, grün: N1–Simulation) PM_{10}– Konzentrationen vom 13.8.1997 00:00 UTC bis zum 14.8.1997 24:00 UTC für die Meßstationen des Landesumweltamtes Nordrhein Westfalen Dortmund Hörde (oben), Köln Chorweiler (mitte) und Eggegebirge (unten).

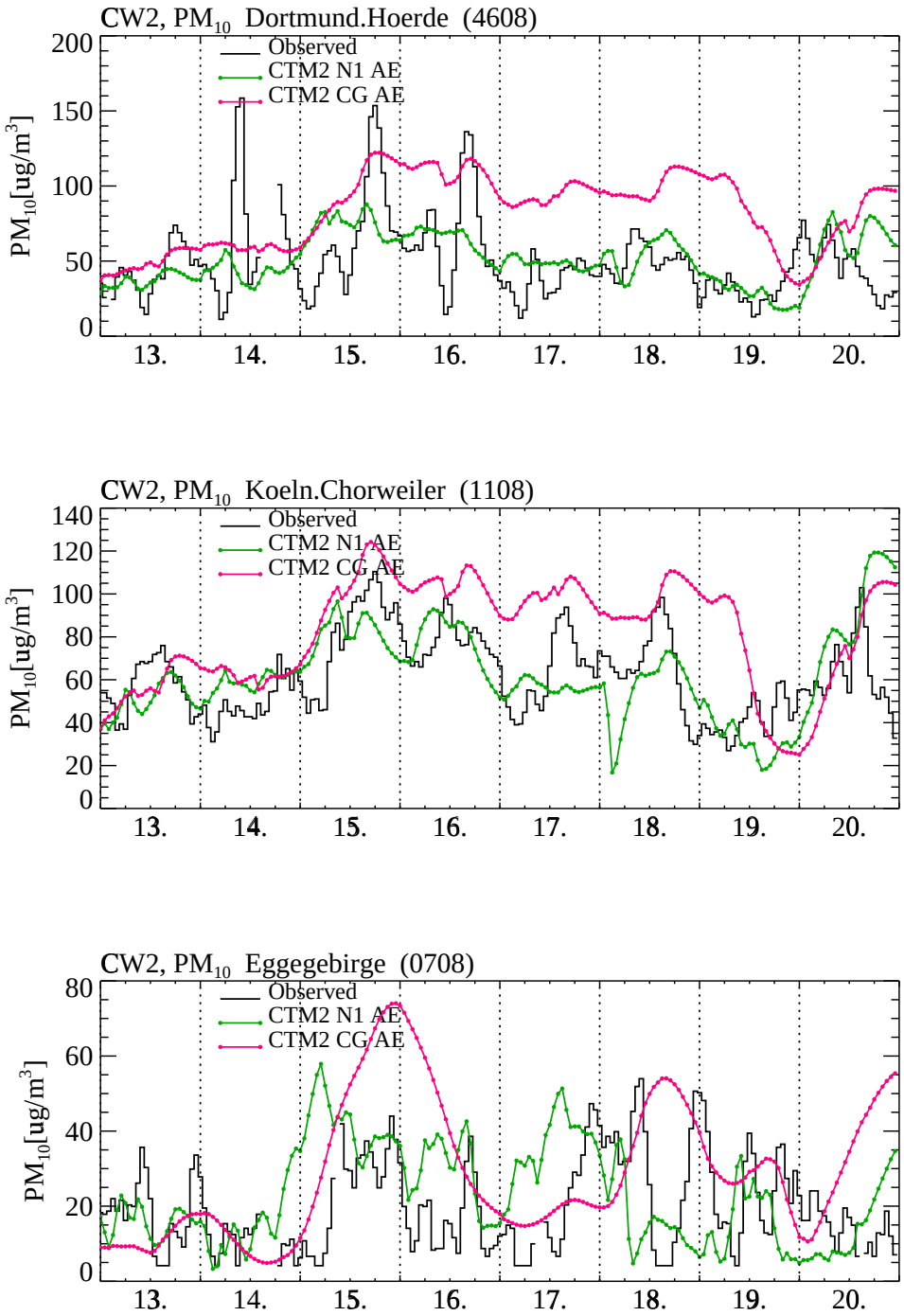


Abbildung 8: Zeitreihen gemessener (schwarz) und prognostizierter (rot: N0–Simulation, grün: N1–Simulation) PM_{10}– Konzentrationen vom 13.1.1997 00:00 UTC bis zum 20.1.1997 24:00 UTC für die Meßstationen des Landesumweltamtes Nordrhein Westfalen Dortmund Hörde (oben), Köln Chorweiler (mitte) und Eggegebirge (unten).

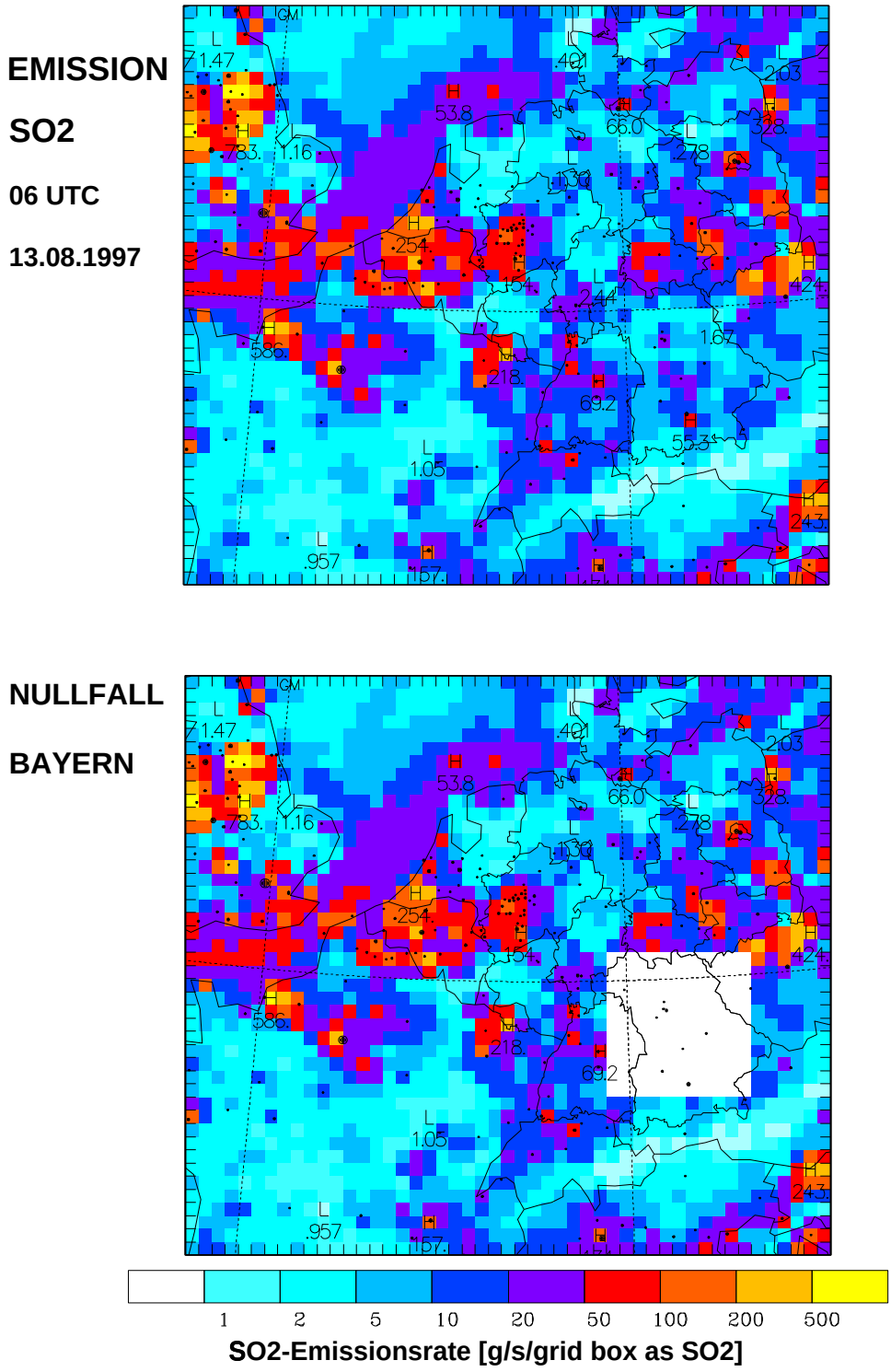


Abbildung 9: SO_2–Emissionen für das N1–Gebiet mit (unten) und ohne (oben) Emissionsreduktion über Bayern in g/s pro Gitterbox.

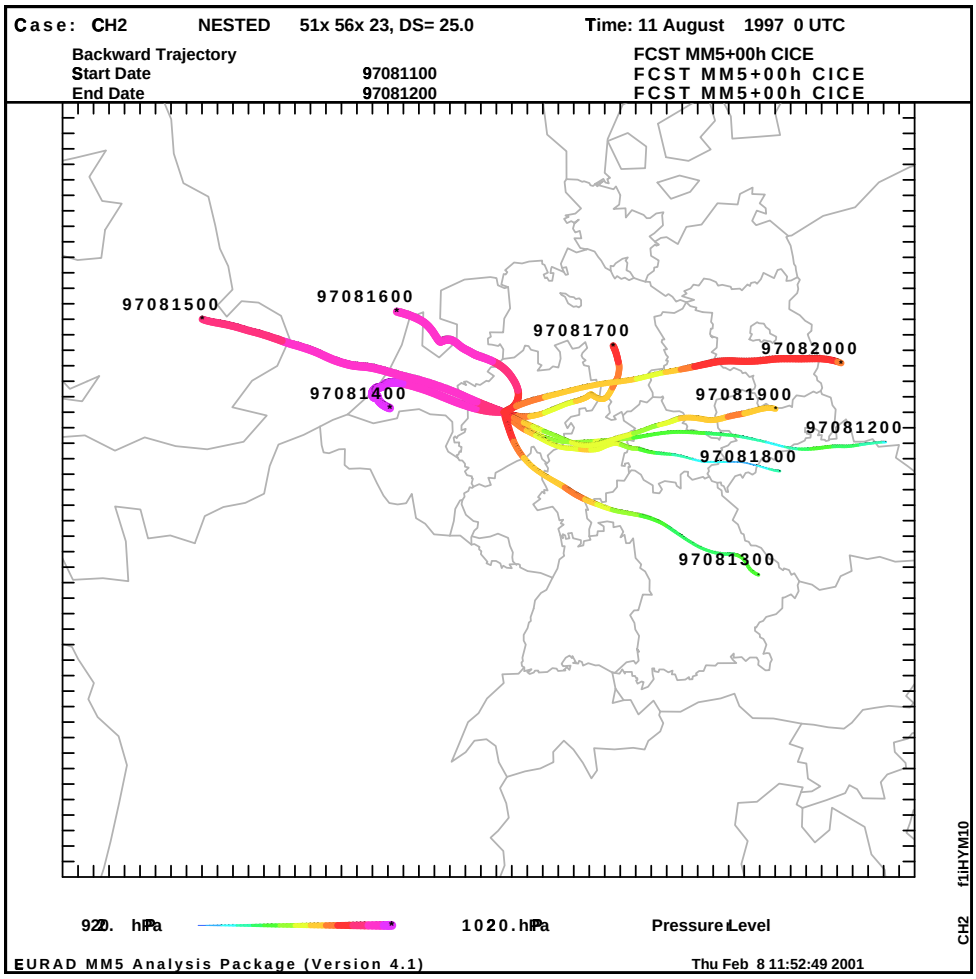


Abbildung 10: Rückwärtstrajektorien für Essen für den 12.8. bis 20.8.1997 jeweils 00:00 UTC.

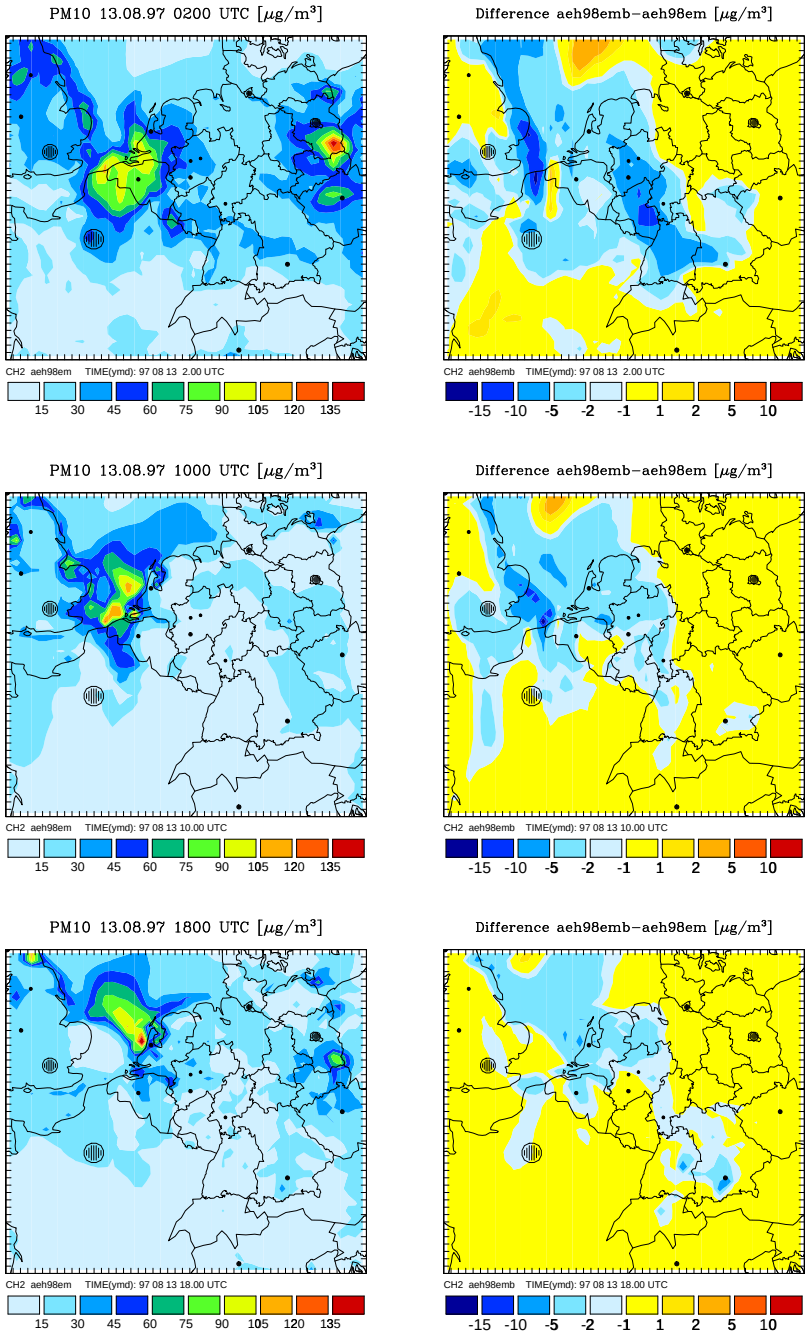


Abbildung 11: PM_{10}–Konzentration in der oberflächennächsten Modellschicht als Ergebnis des Referenzlaufs (links) und absolute Differenzen in der PM_{10}–Konzentration zwischen Simulation mit Emissionsreduktion über Bayern und Referenzlauf (rechts) für den 13.8.1997 in Zeitabständen von 6 Stunden, beginnend mit 02:00 UTC.

Was können 3-dimensionale Simulationsmodelle zur Quellidentifizierung luftgetragener Partikel beitragen?

Bernhard Vogel, Nicole Riemer, H. Vogel

Institut für Meteorologie und Klimaforschung
Forschungszentrum Karlsruhe/Universität Karlsruhe
Postfach 3640, 76021 Karlsruhe
bernhard.vogel@imk.fzk.de

1 Einleitung

Die Modellierung der gasförmigen Luftbeimengungen in der Atmosphäre hat in der Zwischenzeit einen Stand erreicht, der es gestattet, ähnlich wie bei der Wettervorhersage, eine belastbare tägliche Prognose der räumlichen und zeitlichen Verteilung der Photooxidantien und deren Vorläufersubstanzen durchzuführen. Anders verhält es sich bei der Modellierung partikelförmiger Luftbeimengungen und insbesondere bei den sekundären Aerosolen. Hier haben wir es auf der einen Seite mit erheblichen Wissenslücken zu tun. Auf der anderen Seite stellen numerische Simulationsmodelle und deren Ergebnisse ein wichtiges Instrumentarium dar, um den Beitrag anthropogener Emissionen an der Gesamtbelastung der Atmosphäre mit Aerosolen zu quantifizieren. Interessant ist in diesem Zusammenhang nicht nur die mögliche gesundheitliche Beeinflussung, sondern auch die Modifikationen des atmosphärischen Strahlungsfeldes, sowie Prozesse, die bei der Wolkenbildung eine Rolle spielen. Da Aerosole auch in Wechselwirkung mit gasförmigen Luftbeimengungen treten, können Gase und Partikel nicht getrennt voneinander betrachtet werden. Dies stellt erhebliche Anforderungen an die verwendeten numerischen Modelle, die alle relevanten Vorgänge in adäquater Weise berücksichtigen müssen.

Die wesentlichen Ziele, die mit der Modellierung verfolgt werden, sind:

1. die Quantifizierung der beteiligten Prozesse,
2. die Quantifizierung des Einflusses der partikelförmigen Luftbeimengungen auf den physikalischen und chemischen Zustand der Atmosphäre,
3. die Quantifizierung des anthropogenen Beitrages zur Gesamtbelastung,
4. die Prognose des räumlichen und zeitlichen Verhaltens partikelförmiger Luftbeimengungen analog zur täglichen Wettervorhersage.

Im folgenden wird ein Überblick über das Modellsystem KAMM/DRAIS (Vogel et al., 1995) gegeben und eine Anwendung vorgestellt. Diese Anwendung soll beispielhaft zeigen, in welcher Weise das Modellsystem verwendet werden kann, um den Beitrag einzelner Quellen zur Gesamtbelastung der Atmosphäre mit Partikeln zu quantifizieren.

2 Das Modellsystem KAMM/DRAIS

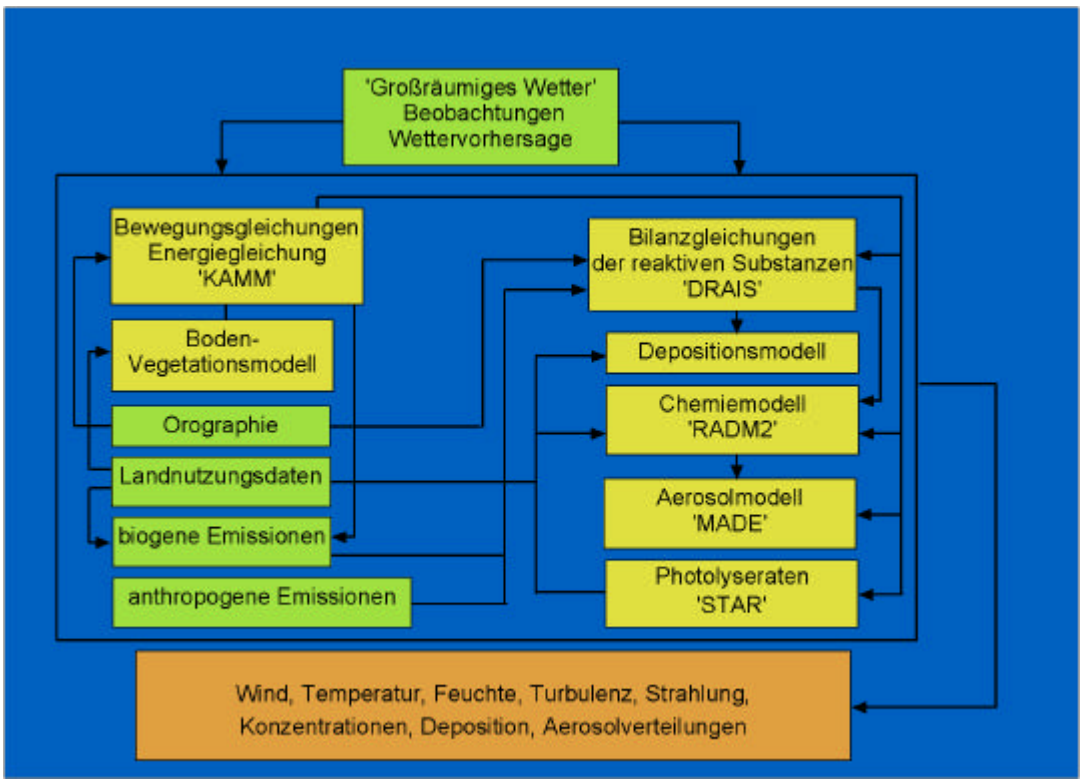


Abbildung 1: Das Modellsystem KAMM/DRAIS

Die Abbildung 1 zeigt den schematischen Aufbau des Modellsystems KAMM/DRAIS. Das Modell kommt hauptsächlich in der regionalen Skala zum Einsatz. Typische Gebietsgrößen haben eine horizontale Ausdehnung von 200x200 km^2. Die horizontalen Maschenweiten betragen bei der hier vorgestellten Modellanwendung 4 km. Simuliert wurde ein typischer Sommertag. In der Vertikalen arbeitet das Modell mit 25 Schichten. In Bodennähe beträgt die vertikale Auflösung 20 m, am Oberrand des Modells, der in 8 km Höhe liegt, beträgt die vertikale Maschenweite 400 m. Die verwendeten Zeitschritte bewegen sich im Sekundenbereich. Alle Modellteile werden synchron bearbeitet.

Die Behandlung der Aerosole erfolgt mit dem Modell MADE (Ackermann, 1998) welches um die Behandlung von Dieselruß erweitert wurde (Riemer et al., 2000). Bei MADE handelt es sich um ein sogenanntes modales Modell, das heißt die Partikelverteilungen werden durch drei Log-Normalverteilungen beschrieben. Die Partikelneubildung durch Nukleation von Schwefelsäuredampf wird in stark vereinfachter und parametrisierter Form behandelt. Bis auf den Dieselruß liegen die Bestandteile der Partikel (Nitrat, Sulfat, Amonium) stets als interne Mischung vor. Dieselruß ist, wenn er emittiert wird, zunächst extern gemischt, kann jedoch durch Koagulation und Aufkondensieren von Schwefelsäuredampf in die interne Mischung übergeführt werden.

3 Eingabedaten und Modellergebnisse

Wichtige Eingabegrößen für die Modellsimulationen sind die anthropogenen Emissionen. Die Abbildung 2 zeigt für das Simulationsgebiet, welches große Teile von Baden-Württemberg, Teile der Nordschweiz, des Elsasses sowie von Reinland-Pfalz und dem Saarland abdeckt, die horizontale Verteilung der Emissionen von SO_2, NO_x, NH_3 und Ruß zum Zeitpunkt 8 Uhr.

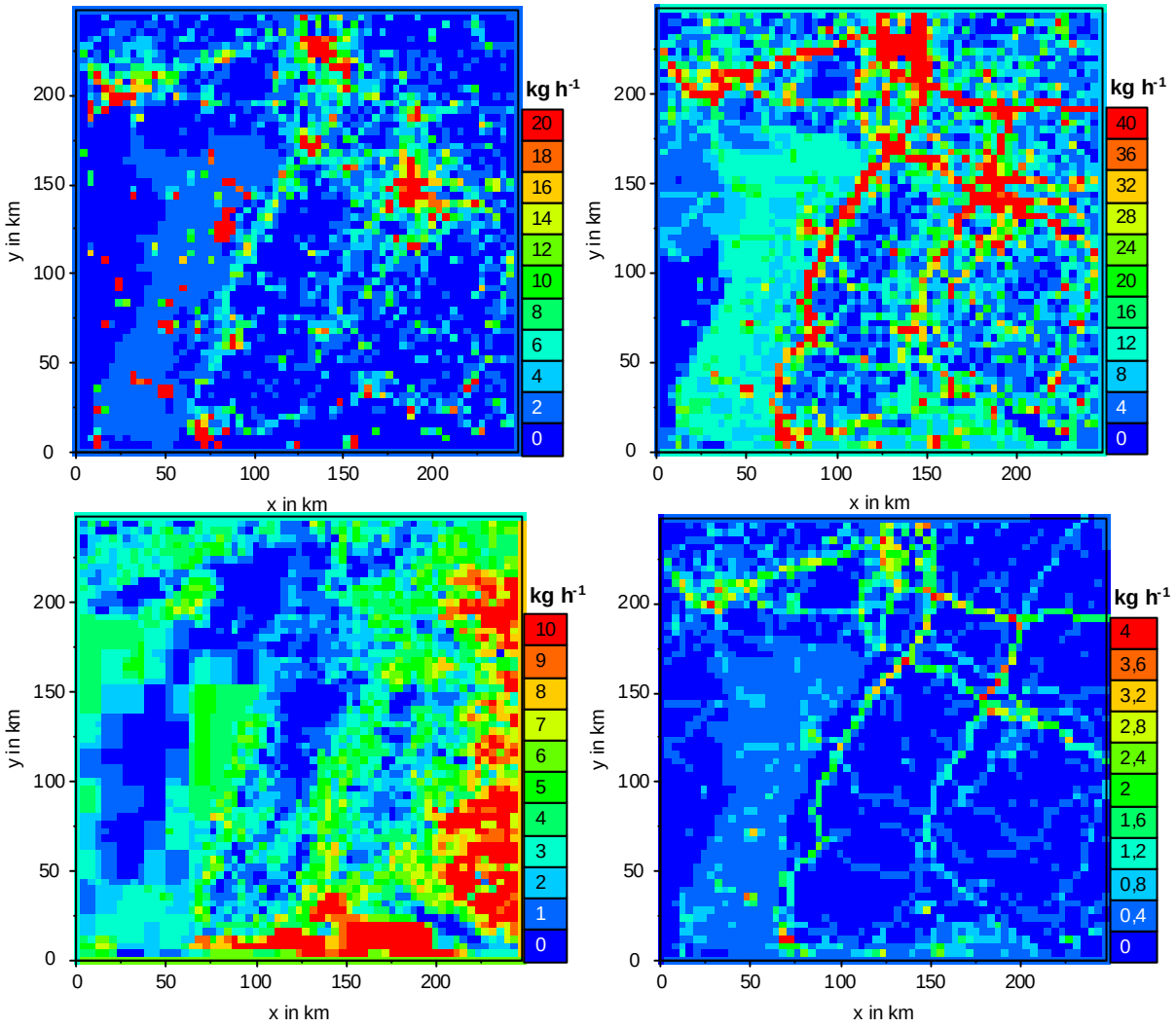


Abbildung 2: Horizontalverteilungen der anthropogenen Emissionen von SO_2, NO_x, NH_3 und Ruß um 8 Uhr (von links oben nach rechts unten). (Quelle: B. Wickert, T. Pregger, R. Friedrich, IER, Universität Stuttgart)

Die Abbildung 2 zeigt die unterschiedlichen Emissionsstrukturen für einzelne Komponenten. Während SO_2 hauptsächlich in den Ballungszentren emittiert wird, erkennt man in den Emissionsverteilungen von NO_x und Ruß die Hauptverkehrswege als wichtige Emittenten. Im Gegensatz hierzu finden die NH_3 Emissionen im überwiegend im ländlichen Raum statt. Zusätzlich werden die Emissionen von anthropogenen und biogenen Kohlenwasserstoffen sowie biogene NO Emissionen berücksichtigt.

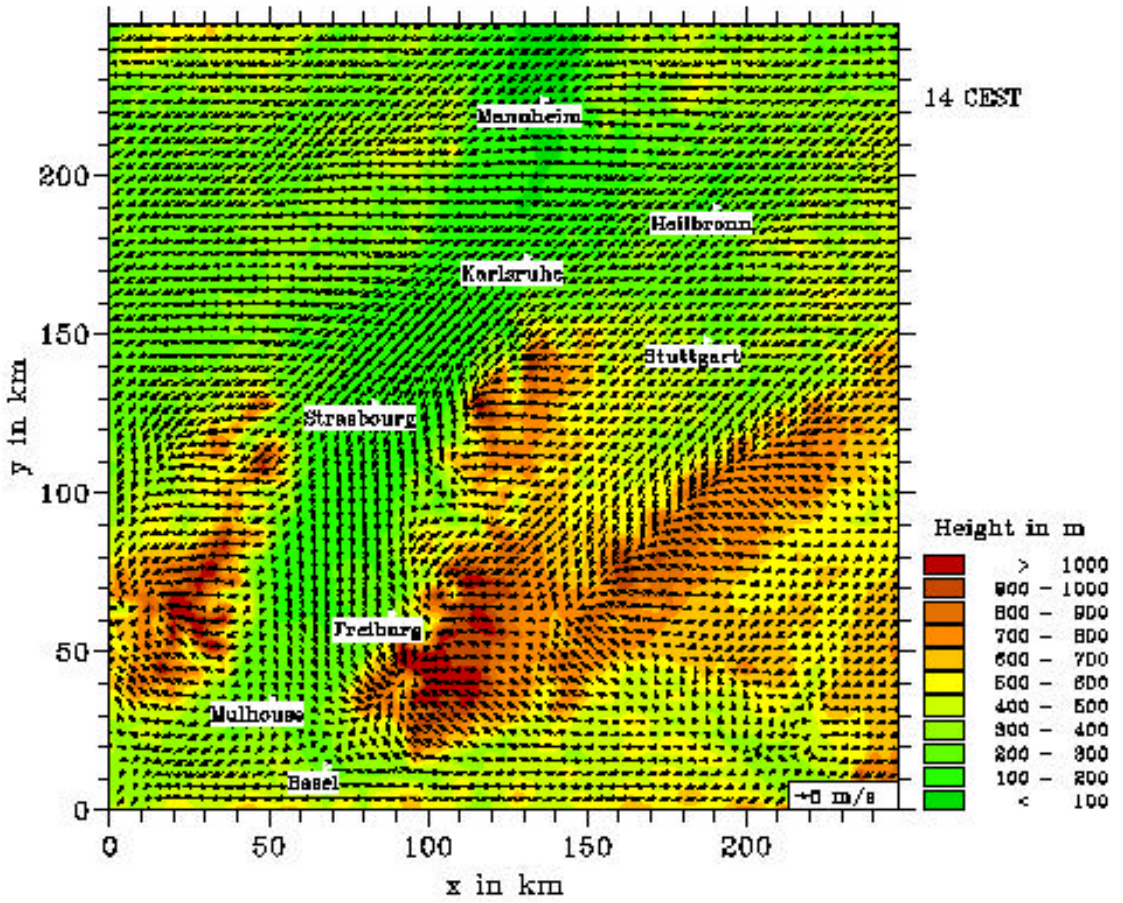


Abbildung 3: Simuliertes Windfeld in 20 m über Grund um 14:00 Uhr.

Wesentlich für die Ausbreitung von gas- und partikelförmigen Luftbeimengungen ist die Kenntnis des Windfeldes. Die Abbildung 3 zeigt für die betrachtete Situation exemplarisch das bodennahe Windfeld. Während in der ungestörten höheren Atmosphäre östliche Anströmungsverhältnisse vorliegen, wird das Windfeld in der Grenzschicht durch die topographischen Gegebenheiten modifiziert. Insbesondere im Rheintal erkennt man die Kanalisierung der Strömung. In Hangnähe machen sich thermische Sekundärzirkulationen bemerkbar.

Die Abbildungen 4 und 5 zeigen simulierte Horizontalverteilungen der Gesamtpartikelmasse und des extern gemischten Rußes in Bodennähe. Während der extern gemischte Ruß noch die Emissionsstruktur erkennen lässt, zeigt die Verteilung der Gesamtpartikelmasse wenig offensichtlichen Zusammenhang zur Lage der Quellen. Dieses Ergebnis unterstreicht die Notwendigkeit des Einsatzes numerischer Simulationsmodelle, wenn es um die Abwägung des Erfolges von Emissionsminderungsmaßnahmen zur Reduktion der Belastung der Atmosphäre mit Aerosolen geht.

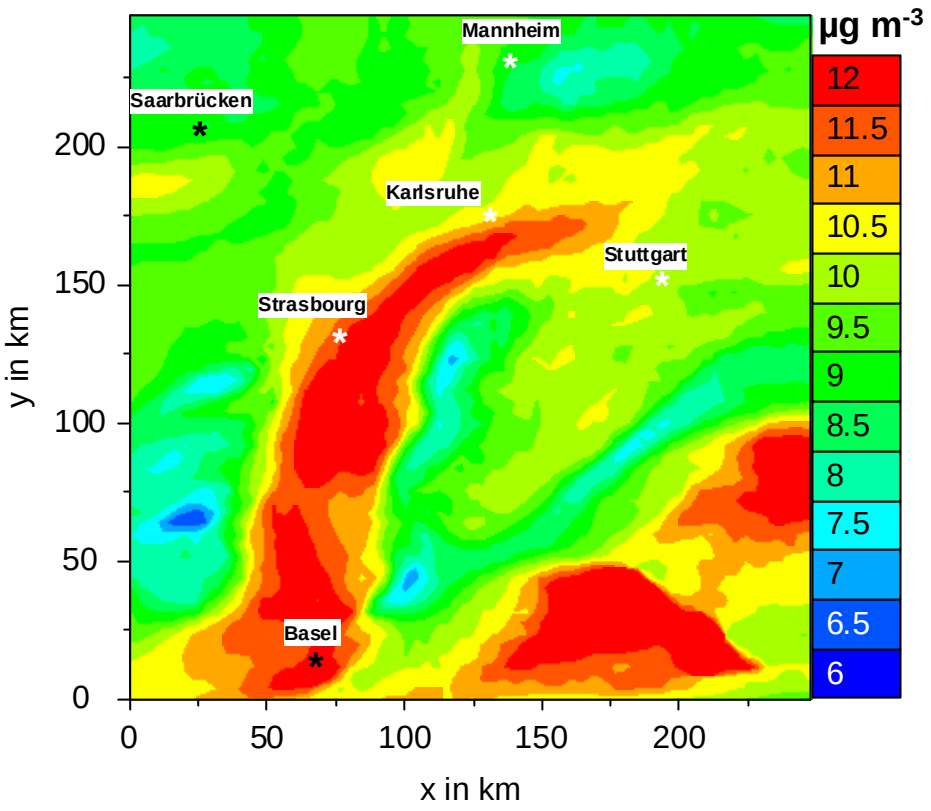


Abbildung 4: Simulierte Horizontalverteilung der Gesamtpartikelmasse in 20 m über Grund um 14 Uhr.

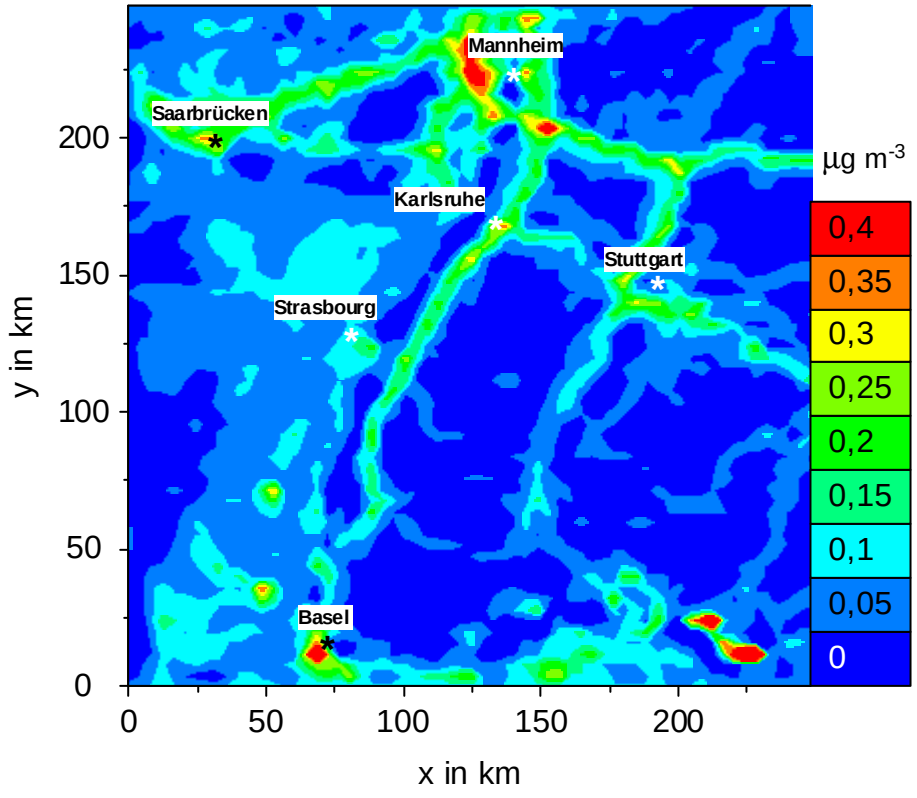


Abbildung 5: Simulierte Verteilung des extern gemischten Rußes in 20 m über Grund m 14 Uhr

4 Auswirkungen zweier Emissionsmiderungsmaßnahmen

Ausgehend von dem oben beschriebenen Referenzlauf wurden zwei weitere Modellsimulationen durchgeführt, bei denen unter Beibehaltung der meteorologischen Situation und der übrigen Eingabegrößen jeweils im Stadtgebiet von Karlsruhe im ersten Fall sämtliche Emissionen von SO_2, im zweiten Fall sämtliche Emissionen von NO_x abgeschaltet wurden. In den Abbildungen 6 und 7 sind für die beiden Fälle die Änderung der Gesamtpartikelmasse im Vergleich zum Ausgangsfall (Abb. 4) dargestellt. Wenn die Emissionen von SO_2 abgeschaltet werden (Abb. 6) zeigt sich wie erwartet ein Rückgang der Partikelmasse, wobei das Maximum des Rückgangs (1.3 $\mu g\ m^{-3}$) in einer Entfernung von etwa 50 km hinter der Quelle auftritt. Werden hingegen die NO_x Quellen von Karlsruhe abgeschaltet erhält man sogar einen Anstieg der Partikelkonzentration und zwar im Maximum um 1.7 $\mu g\ m^{-3}$. Auch hier befindet sich das Maximum des Anstieges in einer Entfernung von etwa 50 km hinter der Quelle. Im Falle des Abschaltens der SO_2 Emissionen führt die geringere Bildung von Schwefelsäuredampf zum Rückgang der Partikelkonzentration, im Falle der NO_x Reduktion führt die Erhöhung der OH Konzentration zur verstärkten Bildung von Schwefelsäuredampf und somit zur Erhöhung der Partikelkonzentration.

5 Zusammenfassung

Die simulierten Aerosolverteilungen dürfen nicht darüber hinwegtäuschen, dass im Hinblick auf die Modellierung atmosphärischen Aerosols noch erhebliche Wissenslücken existieren. In diesem Zusammenhang sind die Nukleation, chemische Reaktionen und die für deren Behandlung notwendigen kinetischen Daten zu nennen. Mit dieser Einschränkung lassen sich die gezeigten Ergebnisse wie folgt zusammenfassen.

1. Basierend auf den Arbeiten zur Simulation der Photooxidantien ist es möglich, die räumliche und zeitliche Verteilung von Sekundäraerosolen zu simulieren.
2. Eine gleichzeitige Behandlung der atmosphärischen Variablen sowie der gas-, und partikelförmigen Luftbeimengungen ist notwendig.
3. Gleiches gilt für die Flüssigphase. Im Vergleich zur Gasphase herrscht ein Mangel an Beobachtungsdaten, die zum Vergleich mit Modellergebnissen herangezogen werden können.
4. Komplexe numerische Simulationsmodelle sind neben den Feldmessungen ein wichtiges Instrument zur Quellidentifizierung luftgetragener Partikel. Die Messungen erlauben es den Istzustand der physikalischen Eigenschaften und der chemischen Zusammensetzung der Partikel mit hohem Detaillierungsgrad zu erfassen. Die numerischen Simulationsmodelle ermöglichen es, durch gezieltes An- bzw. Abschalten von Emissionen einzelner Emissionsgebiete bzw. einzelner Emittentengruppen die Effizienz verschiedener Emissionsminderungsmaßnahmen zu quantifizieren.

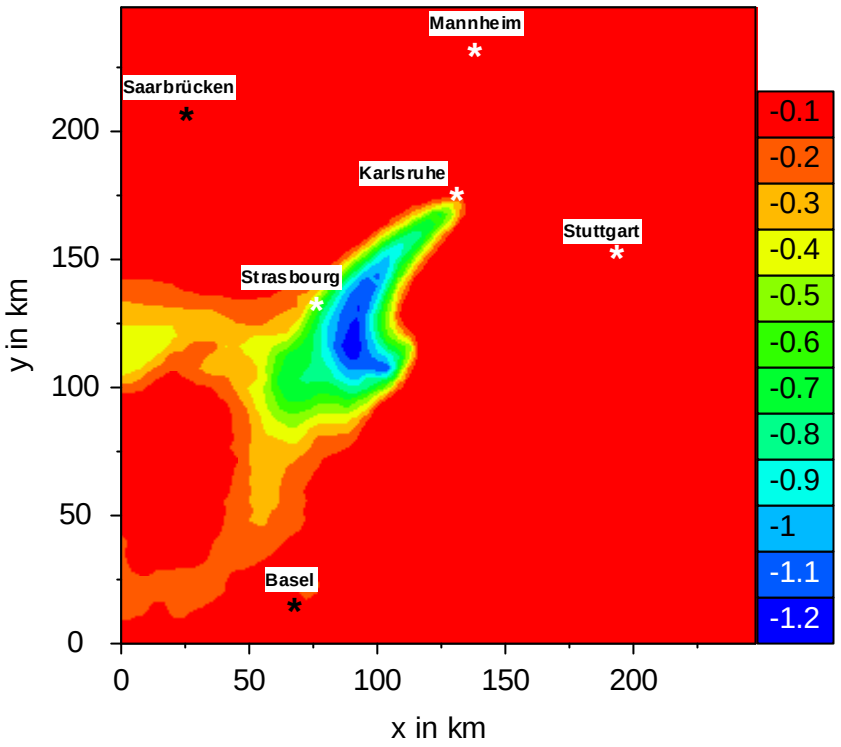


Abbildung 6: Simulierte Differenz der Gesamtpartikelmasse in 20 m über Grund um 14 Uhr bei Abschalten der SO_2 Emissionen im Stadtgebiet von Karlsruhe .

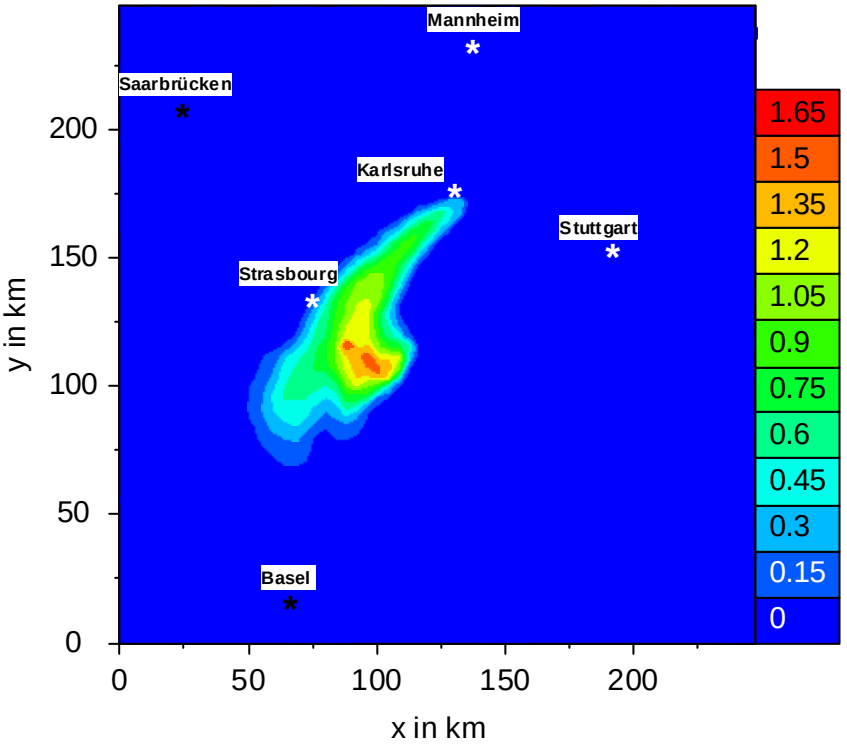


Abbildung 7: Simulierte Differenz der Gesamtpartikelmasse in 20 m über Grund um 14 Uhr bei Abschalten der NO_x Emissionen im Stadtgebiet von Karlsruhe .

6 Literatur

Ackermann, I.J., H. Hass, M. Memmesheimer, A. Ebel, F.S. Binkowski, U. Shankar, Modal aerosol dynamics model for Europe: development and first applications, *Atmospheric Env*., **32**, 17, 2981-3000, 1998.

Hass, H., H. J. Jakobs, M. Memmesheimer, Analysis of a regional model (EURAD) of near surface gas concentration predictions using observations from networks, *Meteorol. Atmos. Phys., 57*, 173-201, 1995.

Riemer, N., H. Vogel, B. Vogel, F. Fiedler, Modelling of tropospheric soot aerosol in the Regional Scale, in *Proceedings of the EC/EUROTRAC-2 CMD Joint Workshop*, Lausanne, 257-260, 2000.

Schell, B., I.J. Ackermann, H. Hass, F.S. Binkowski, A. Ebel, Modeling the formation of secondary organic aerosol within a comprehensive air quality model system, accepted for publication in *J. Geophys. Res.*, 2001.

Vogel, B., F. Fiedler, H. Vogel, Influence of topography and biogenic volatile organic compounds emission in the state of Baden-Württemberg on ozone concentrations during episodes of high air temperatures, *J. Geophys. Res.*, 100, 22907-22928, 1995.

Identifizierung von Emissionsquellen im Rahmen der Maßnahmenplanung

Brandt, A.; Hoffmann, V.; Schulz, T.[1]

Einleitung

Auf Basis des Art. 8, Abs. 3, der Richtlinie 96/62/EG des Rates vom 27.09.1996 über die Kontrolle und Beurteilung der Luftqualität (Luftqualitäts-Rahmenrichtlinie) sind für die Gebiete und Ballungsräume, in denen bestimmte Grenzwerte überschritten werden, Maßnahmenpläne nach Anhang IV der Richtlinie zu erstellen, deren Umsetzung innerhalb einer festgelegten Frist zur Einhaltung der Grenzwerte führen soll. Die Grenzwerte sind in den Tochterrichtlinien 1999/30/EG (SO_2, NO_X, $PM_{10/2,5}$, Pb) sowie 2000/69/EG (Benzol, CO) festgelegt. Die nationale Umsetzung erfolgt durch Anpassung des BImSchG und Novellierung der 22. BImSchV.

In NRW und anderen Bundesländern werden die Grenzwerte für PM_{10} großflächig überschritten, so dass Maßnahmenpläne erstellt werden müssen. Zur Entwicklung von Vorgehensweisen und zum Sammeln von Erfahrungen für diese Maßnahmenpläne wurde ein Modellprojekt initiiert, dass insbesondere zu folgenden Punkten Erkenntnisse liefern soll:

- erforderliche Emissions- und Immissionsdaten sowie Ausbreitungsrechnungen (u.a. zur Ursachenanalyse und Beurteilung von Maßnahmen),
- Aufwand zur Erarbeitung konkreter Maßnahmen,
- Zusammenarbeit der betroffenen Behörden auf kommunaler und Landesebene.

Wegen der dortigen besonderen Verkehrsproblematik (NO_X, PM_{10}) und umfangreicher Vorarbeiten durch die kommunalen Behörden wurde die Stadt Hagen als Modellgebiet ausgewählt. Der Abschluss des Projekts ist für Ende des Jahres vorgesehen.

Im Folgenden werden einige Probleme und neue Erkenntnisse bei der Bereitstellung von Emissionsdaten für Ausbreitungsrechnungen vorgestellt, wie sie im Rahmen von Maßnahmenplänen durchgeführt werden müssen.

[1] Dr.-Ing. Andreas Brandt, Dipl.-Ing. Volker Hoffmann, Dipl.-Ing. Thomas Schulz: Landesumweltamt NRW, Postfach 10 23 63, 45023 Essen

PM_{10}-Emissionen in Hagen aus wichtigen Emittentengruppen

Die Gesamtstaub- und die PM_{10}-Emissionen aus den Emittentengruppen Industrie, Kleinfeuerungsanlagen und Verkehr sind in Tabelle 1 zusammengestellt.

	Gesamtstaub [t/a]	PM_{10} [t/a]
Industrie	154	144
Kleinfeuerungsanlagen	28,5	24,1
Verkehr insgesamt (**nur Motorpartikel)**	128	128
Straßenverkehr	100	100
Schienenverkehr	4,5	4,5
Offroad-Verkehr	23,1	23,1

Tabelle1: Gesamtstaub- und PM_{10}-Emissionen in Hagen

Im Bereich der Industrie liegen bisher nur in beschränktem Umfang Messergebnisse für PM_{10} vor, so dass die Ermittlung dieser Emissionen im Rahmen einer Abschätzung durch Rechnung mit Hilfe der Gesamtstaubemissionen erfolgt. Die Gesamtstaubemissionen werden den Emissionserklärungen 1996 nach der 11. BImSchV entnommen; die PM_{10}-Emission wird anhand der dort ebenfalls enthaltenen Informationen zur Abgasreinigungstechnik und mittels Anteilsfaktoren für den PM_{10}-Anteil am Gesamtstaub berechnet. Diese Anteilsfaktoren wurden aus Angaben von Anlagenbauern, Betreibern und sonstigen Untersuchungen hergeleitet. Sie werden zukünftig anhand der Ergebnisse aus PM_{10}-Emissionsmessungen aktualisiert. Branchenbezogen ergibt sich für die Industrie in Hagen folgendes Bild 1.

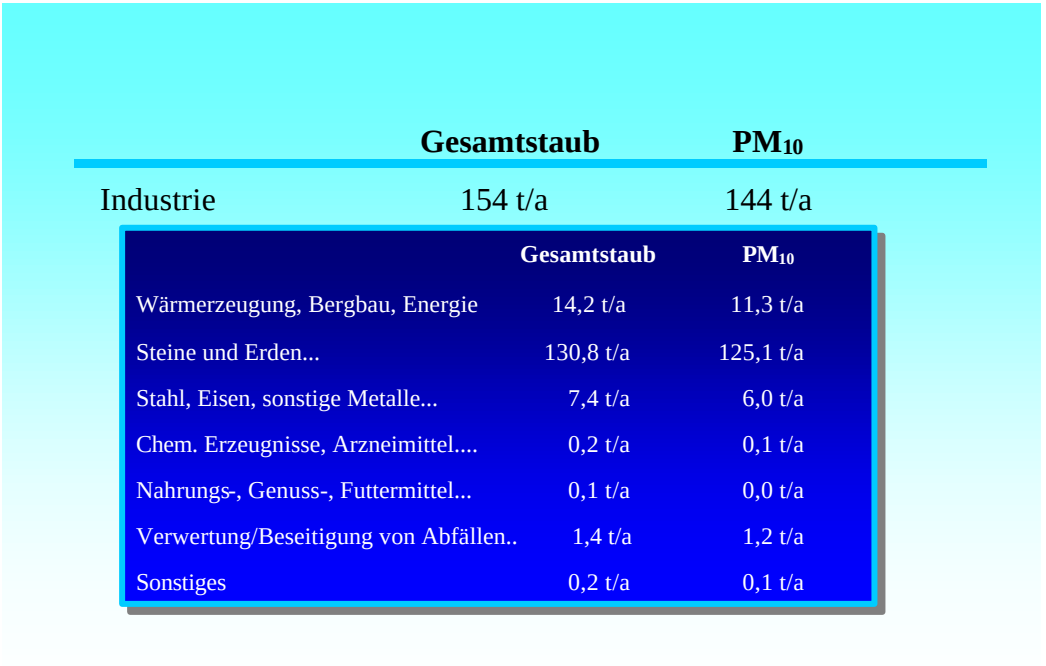


Bild 1: Branchenbezogene Emissionen in Hagen

Die weitaus höchsten Emissionen weist der Bereich Steine und Erden mit ca. 125 t/a auf, gefolgt vom Bereich Wärmeerzeugung, Bergbau, Energie mit ca. 11 t/a. Die Metallindustrie emittiert ca. 6 t/a, andere Bereiche sind von untergeordneter Bedeutung.

Die Emissionen der Kleinfeuerungsanlagen sind ebenfalls in Tabelle 1 aufgeführt. Fast 90% der PM_{10}-Emissionen stammen aus den Feuerungen für feste Brennstoffe (Kohle, Koks, Holz), für die ein Anteil von ca. 80% PM_{10} am Gesamtstaub angenommen wird. Für flüssige und gasförmige Brennstoffe (Heizöl EL und Erdgas) wird davon ausgegangen, dass der emittierte Staub vollständig als PM_{10} vorliegt.

Die Emissionen der dritten wichtigen Emittentengruppe, des Straßenverkehrs, werden mittels eines quellenfeinen Prognose- und Szenarienmodells, abgeschätzt. Auf der Grundlage verkehrsspezifischer Kenngrößen, wie Verkehrsstärke und Fahrleistung, können unter Verwendung von Emissionsfaktoren in Abhängigkeit von kraftfahrzeugspezifischen Einflussfaktoren die PM_{10}-Emissionen modelliert und berechnet werden. Insgesamt ergibt sich für das Stadtgebiet Hagen die in Tabelle 1 dargestellte Situation.

Da die gesamte Staubfraktion des Verkehrs nur Motorpartikel enthält - die verwendeten Emissionsfaktoren des UBA-Handbuchs [1] beschreiben ausschließlich die Motoremissionen - und alle Partikel der Motoremissionen < 10µm sind, betragen Gesamtstaub und PM_{10} 128 t/a. Sie setzen sich in der dargestellten Weise aus den Emissionen des Straßen-, Schienen- und Offroadverkehrs zusammen.
Beim Schienenverkehr wurde nur der dieselbetriebene Verkehr, einschließlich der Rangiertätigkeiten, betrachtet [2].
Der Offroad-Verkehr umfasst den nicht straßengebundenenVerkehr der Bereiche Baumaschinen, Landwirtschaft, Forstwirtschaft, Gartenpflege und Hobby, Industrie, ausschließlich der Triebfahrzeuge, und das Militär [3]. Der Verkehr ist mit ca. 43 % an den gesamten PM_{10}-Emissionen beteiligt.
Die Emissionen werden auf Rasterquadrate in 1 km^2-Auflösung aufgeteilt und für eine Ausbreitungsrechnung für das Modellgebiet Hagen herangezogen. Ein Vergleich der Simulation mit Messergebnissen zeigt das folgende Bild 2.

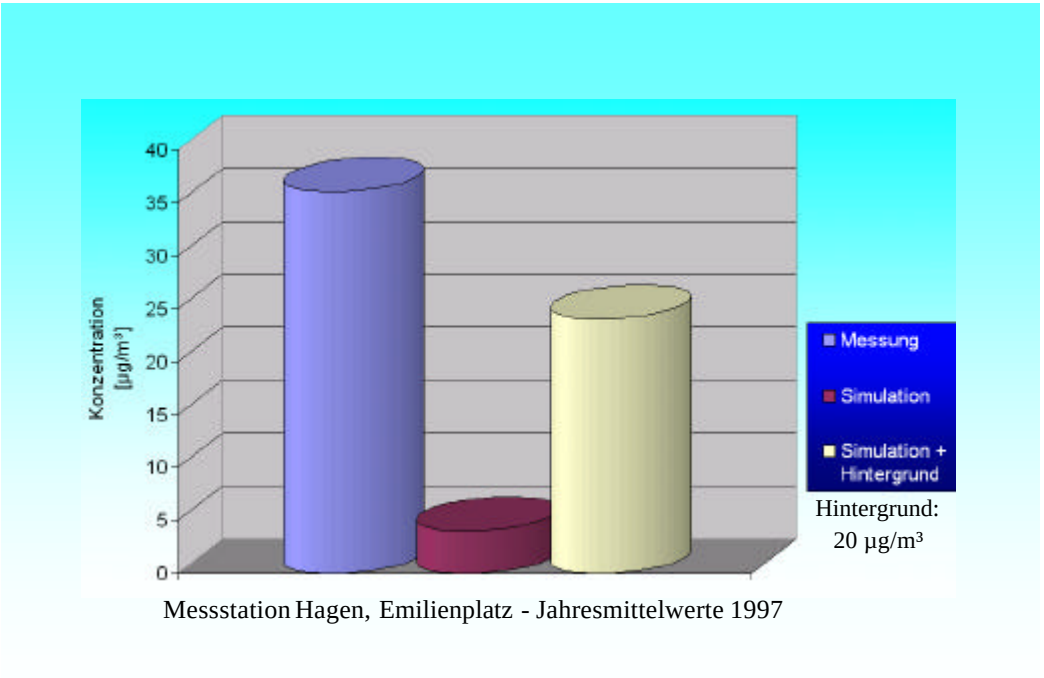


Bild 2: Vergleich Immissionsmessung mit Simulationsberechnung

Der Jahresmittelwert 1997 der PM_{10}-Konzentration beträgt an der verkehrsnahen Messstation Emilienplatz ca. 36 µg/m^3. Die Simulation dagegen ergibt nur eine Belastung von etwa 4 µg/m^3. Addiert man die Hintergrundbelastung von 20 µg/m^3 hinzu, weicht das Ergebnis immer noch etwa 12 µg/m^3 vom Zielwert ab. Die Motoremissionen allein reichen also nicht aus, die gemessene Konzentration zu realisieren. Im nächsten Schritt wurde deshalb der Einfluss von Reifenabrieb, Bremsabrieb und Abrieb der Straßenoberfläche näher untersucht. Die in der Aufwirbelung zusammengefassten Größen sind in der Literatur bereits in ersten Ansätzen untersucht worden.
Ausgehend von der "EPA"-Formel [4], die in verschiedenen anderen Studien modifiziert wurde [5,6,7], konnte die Aufwirbelung abgeschätzt werden.
Die Berechnungsgrundlage bildet der folgende funktionale Zusammenhang in Bild 3.

$$\dot{A} = AF \cdot FL$$

$$AF = f(k, sL, W, r)$$

$\dot{A}$	= Aufwirbelung [g/a]
AF	= Aufwirbelungsfaktor [g/km]
FL	= Jährliche Fahrleistung [km/a]
k	= Basisfaktor der EPA [g/km]
sL	= PM75-Fraktion der Staubbelegung der Straße [g/m²]
W	= Mittleres Gewicht der Fahrzeuge der betrachteten Fahrzeugflotte [t]
r	= Mittlerer Anteil der Regentage eines Jahres

Bild 3: Berechnungsgrundlage für die Staubaufwirbelung im Straßenverkehr

Bei der Staubbelegung wurde für sL bei Innerortstraßen 0,2 g/m^2 und im Fall der Autobahnen und Außerortstraßen 0,1 g/m^2 angesetzt. Der formelmäßige Zusammenhang beinhaltet zahlreiche Unsicherheiten, so ist z. B. der Einfluss von Regentagen (r) berücksichtigt, o. g. Studien stellen aber fest, dass dadurch keine bis 30-50 % Reduktion der Aufwirbelung erwartet werden können.

Auch Venkatram [5] weist auf sehr große Unsicherheiten hin. So liegen trotz Modifikation der EPA-Formel in 60 % der untersuchten Fälle die Abweichungen um Faktor 2 neben den Messergebnissen. Trotz dieser offensichtlichen Mängel wurde eine erste und grobe Abschätzung der Aufwirbelung aus dem Straßenverkehr vorgenommen.

Tabelle 2 stellt die modifizierten Resultate dar.

	Gesamtstaub [t/a]	PM_{10} [t/a]
Industrie	154	144
Kleinfeuerungsanlagen	28,5	24,1
Verkehr insgesamt **(incl. Aufwirbelung)**	722	536
Straßenverkehr	694	508
Schienenverkehr	4,5	4,5
Offroad-Verkehr	23,1	23,1

Tabelle 2: Gesamtstaub- und PM_{10}-Emissionen in Hagen

Die PM_{10}-Emissionen weisen nunmehr eine Größe von 536 t/a auf, wobei der Straßenverkehr mit 508 t/a, davon sind 408 t/a der Aufwirbelung zuzuordnen, aufweist. In Anbetracht des hohen Aufwandes sind beim Schienen- und Offroad-Verkehr keine entsprechenden Berech-

nungen vorgenommen und nur die Ergebnisse aus den Motoremissionen übernommen worden.
Der Verkehr rückt mit 76 % an den gesamten PM_{10}-Emissionen damit zum Hauptemittent auf.

Eine erneute Simulationsberechnung führte zum folgenden Ergebnis:

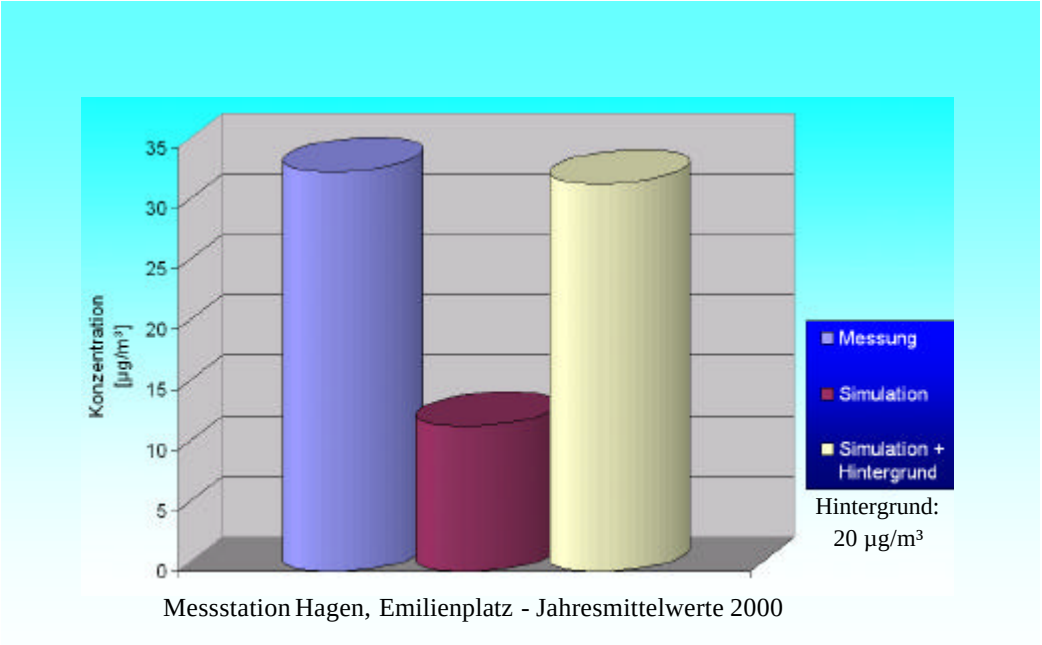


Bild 4: Vergleich Immissionsmessung mit Simulationsberechnung (incl. Aufwirbelung)

Messung und (Simulation + Hintergrund) weichen an der Messstation Emilienplatz nur noch geringfügig voneinander ab. Allerdings stimmt die Situation an anderen Vergleichsstandorten weniger optimistisch. Tendenziell werden die Immissionen (Simulation + Hintergrund) besser abgebildet. Dies unterstreicht allerdings nur die Notwendigkeit zu weiteren Untersuchungen im Hinblick auf die Quantifizierung der Staubaufwirbelung.

Eine Prognoseberechnung für das Jahr 2005 zeigte, dass die Motoremissionen von 100 t/a im Jahr 2000 auf 64 t/a (- 36 %) hauptsächlich als Folge verbesserter Motor- und Katalysatortechnik abnehmen werden. Die Aufwirbelung, einschließlich des Reifenabriebs, steigt von 408 t/a auf 434 t/a (+ 6 %), Folge der weiter zunehmenden Fahrleistung im Straßenverkehr. Trotz der noch unsicheren Datenlage ist im Hinblick auf die Richtlinie 1999/30/EG innerhalb der Maßnahmenplanung nicht mit einem Rückgang der PM_{10}-Emissionen zu rechnen.

Ausblick

Abschließend bleibt festzustellen, dass die Datenlage bei allen Emittentengruppen verbessert oder wenigstens um Fehlerangaben ergänzt werden sollten. Ebenso ist die räumliche Auflösung der Emissionskataster zu optimieren und Siedlungsstrukturen, gerade im Fall des Straßenverkehrs, einzuarbeiten.
Nicht zuletzt müssen die Kenntnisse zum Thema Aufwirbelung ausgeweitet werden. So sind detaillierte Untersuchungen zum Straßenabrieb und die Einarbeitung weiterer Parameter (z. B. Straßenoberfläche, Alter der Fahrbahn) in die Berechnungsgleichung zur Aufwirbelung notwendig.

Literatur

[1] Hassel, D.; Weber, F.; Sonnborn, K.: Ermittlung von Pkw-Emissionsfaktoren von Fahrzeugen der Baujahre 1991 bis 1994 in der Bundesrepublik Deutschland und Fortschreibung des Handbuchs – Teil 1, TÜV Rheinland, Forschungsbericht 205 06 100/01, im Auftrag des Umweltbundesamtes, Köln, 1997

[2] Schulz, T.; Brandt, A.: Emissionsmodellierung des mit Verbrennungsmotoren betriebenen Schienenverkehrs, EI-Eisenbahningenieur (49) 5, S. 60-65, 1998

[3] Grosch, N.; Heykamps, T.; Niederau, A.: Ermittlung der Brennstoffverbräuche und der Luftschadstoffemissionen für die Offroad-Kategorien „Baumaschinen, Forstwirtschaft, Gartenpflege/Hobby, Industrie und Militär in NRW“, Schlußbericht, AVISO GmbH im Auftrag des Landesumweltamtes NRW, Aachen, 1999

[4] EPA: Emission factor documentation for AP-42. Section 13.2.1, Paved Roads. EPA contract No. 68-D0-0123, Work Assignment No. 44, MRI project No. 9712-44, 1993

[5] Venkatram, A.: A critique of empirical emission factor models: a case study of the AP-42 model for estimating PM_{10} emissions from paved roads. Atmospheric Environment 34, pp. 1-11, 2000

[6] Rauterberg-Wulff, A.: Beitrag des Reifen- und Bremsabriebs zur Rußemission an Straßen. Fortschr.-Ber. VDI Reihe 15 Nr. 202, VDI-Verlag, Düsseldorf, 1998

[7] Düring, I.; Lohmeyer, A.: Validierung von PM10-Immissionsberechnungen im Nahbereich von Straßen und Quantifizierung der Feinstaubbildung von Straßen. Projekt 2286/C. Ingenieurbüro Dr.-Ing. Achim Lohmeyer im Auftrag der Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Berlin, und des Sächsischen Landesamtes für Umwelt und Geologie, Dresden, 2001

Biologische Aerosole: Identifizierung und Quantifizierung

Ruprecht Jaenicke, Institut für Physik der Atmosphäre, Universität Mainz

Biologische Aerosole, die offensichtliche hygienische Bedeutung haben (Pollen, Sporen, Bakterien und alle anderen lebensfähigen Formen) werden seit vielen Jahren ausführlich dokumentiert und untersucht. Allerdings ist ihre Masse und ihre Anzahl in der Atmosphäre, von besonderen Ereignissen abgesehen, relativ gering – verglichen zum gesamten atmosphärischen Aerosol. Die Menge an „totem" biologischem Aerosol ist praktisch nicht untersucht. In der Definition der Primary Biological Aerosol Particles sind beide Formen erfaßt. PBAP spielen potentiell eine große Rolle im Klimasystem und in der Atmosphäre. Bislang sind nur Teilchen größer als 0.2 µm untersucht. Kleinere Teilchen werden durchaus vermutet (Form der Größenverteilung).

Die Bedeutung der PBAP insgesamt für die Hygiene ist meines Erachtens nicht untersucht und in ihrer Relevanz unbekannt. In der Atmosphäre sind PBAP besonders geeignete Wolken- und Eiskondensationskerne. Auch besteht die Vermutung, daß reaktive chemische Verbindungen in diesen Teilchen sich „verstecken" können und sich so einer raschen chemischen Umwandlung in der Atmosphäre entziehen.

Messungen von verschiedenen Gruppen in den letzten Jahren in vielen Teilen der Welt, in der Vertikalen und auch im Eis (und damit als Indikator für frühere Zeiten und weit entfernte Regionen) haben gezeigt, daß PBAP (mit Radien größer als 0.2 µm) zwischen 15 und 25% der Massen- und der Anzahlkonzentration umfassen und daher ein nicht zu vernachlässigender Anteil des atmosphärischen Aerosols sind.

Weltweit kann man die Quelle der PBAP mit etwa 7000 Tg/yr abschätzen. Das sind sehr große Werte verglichen zu der Quellstärke der Wüsten mit etwa 2000 Tg/yr und der Ozeane in der gleichen Größenordnung.

Es liegt in der Natur des derzeitigen Engagements der Forschung um diese Teilchen, daß die in diesem Workshop gestellten Fragen (Methoden, Vergleichbarkeit, Zuordnung etc) bislang nur begrenzt zu beantworten sind. Es erscheint dringend erforderlich, diesen Anteil des atmosphärischen Aerosols, über den so wenig bekannt ist, verstärkt zu untersuchen! Wohl auch deshalb, weil auf der einen Seite, in den EC/OC-Angaben die PBAP nach entsprechender Korrektur enthalten sind, auf der anderen Seite, weil häufig mit der ausschließlichen Zuweisung von EC/OC zu organischen Verbindungen den Verkehrsbeiträgen in den PMx ein übermäßig großer Anteil zugeordnet wird.

Literatur:

Matthias-Maser, S., S. Gruber, B. Bogs, R. Jaenicke (2001): The Primary Biological Aerosol in a Multiphase System. In: Jaenicke, R. (ed), Dynamics and Chemistry of Hydrometeors. Deutsche Forschungsgemeinschaft Collaborative Research Centers. Wiley-VCH, 186-195

Folien zum Vortrag

"Analytische Möglichkeiten der Aerosol-Quellenerkennung"

R. Nießner, TU München

Voraussetzungen

* Quelle produziert eine ihr eigene physikalische und/oder chemische Charakteristik, welche über den Transmissionspfad erhalten bleibt oder in einer definierten Weise rückführbar ist.

* Diese muß statistisch signifikant am Meßort von den Eigenschaften anderer Aerosolanteile unterscheidbar sein.

* Meteorologie stützt Plausibilität der chemisch/physikalischen Befunde.

Möglichkeiten allgemeiner Art

*** Partikel werden diskret emittiert und werden durch die Art der Erfassung räumlich bzw. flächig zuordenbar detektiert:**

- **x, y, f: LIDAR, versagt bei kleinen Teilchen, Substanzselektivität gering; dito Satellitenbeobachtung,**
- **Hochparallele, flächige Erfassung im engmaschigen Koordinatennetz: Aktiv- bzw. Passivsammlung.**

*** Partikel werden diskret emittiert, transmittiert und über ihre originären Eigenschaften (chemisch und/oder physikalisch) an einer oder wenigen Probenahmestellen erfasst: Aktiv- bzw. Passivsammlung, Kombination meteorologische Beobachtung und Trajektorienberechnung, Rezeptor- modellierung, hochstabile Analytik notwendig oder einzigartige Kenntnisse einer Quelle notwendig.**

*** Festgelegter Quellort wird für Ausbreitungsexperiment mit unterscheidbarem Traceraerosolherangezogen: Quellstärke analog abschätzbar.**

Visionen

* **Emittent erhält unterscheidbare Aerosolsignatur (z.B. über zugeführte Brennstoffe)**

* **Humandosimetrie**

* **On-line-Aerosol-Chip:**
  - **Probenahme durch phoretischen Effekt, Transfer in Flüssigkeit, elektroosmotischer Transport auf dem Chip, Detektion á la Coulter-Counter**

* **Bestehendes Meßnetz wird Hochdurchsatz-Analytik-kompatibel gestaltet**
  - **z.B. Laserplasmadiagnostik am Filterband bringt Analyse nahezu des gesamten Periodensystems**
  - **z.B. IR-Puls am Filterband in Kopplung mit photoakustischer Gasanalyse zur Messung organischer Spurenstoffe im Aerosol**

Hochparallele, flächige Erfassung im engmaschigen Koordinatennetz

Voraussetzungen:

* **Maximale, hinreichende Kenntnis der Quellaerosoleigenschaften**

* **Zahlreiche Meßstellen durch finanziell tragbare Screening-Analytik**

Welche Eigenschaften sind nutzbar?

* **Zeitlich auflösbare Quelldynamik physikalischer und/oder chemischer Art: z.B. kurzfristige Aerosolkonzentrationspulse in einem Größenintervall**

* **Biologischer Response bei andauernder Emission, Transmission und Deposition:**
z.B. metabolisch zuordenbare Aktivitäten eines Rezeptors (Pflanze, Mensch oder Tier)

Welche Probenahmetechniken kommen dafür in Frage?

* **Miniaturisierte Aktivsammeltechnik in Massenfertigung:**
Telemetrisch erfasste Teilchenzählung

* **Miniaturisierte Passivsammler in Massenfertigung:**
Telemetrisch erfasste Massensammlung

* **Biological Monitoring & Epidemiologie**

Literaturzitate zu den Fallbeispielen einer Massenanalytik für flächiges Screening

Schnelle Aerosolerfassung zur Quellenerkennung:
L. Krämer, Z. Bozoki and R. Niessner (2001) Anal. Sci. 17 , S 563- S 566

Schnelle Multielementerfassung mittels Laserplasmaatomemissionsspektroskopie (unter Einbezug von Echelle-Monochromator:
C. Haisch, U. Panne & R. Nießner (1998) Spectrochim. Acta B 53 , 1657-1666

Anwendung klinisch-chemischer Hochdurchsatz-Analytik:

a) 1-Nitropyren als Dieselabgas-Tracer: B. Fröschl, D. Knopp & R. Nießner (1998) Fres. J. Anal. Chem. 360 , 689 – 692
b) Protein-Erkennung im Aerosol: B. Fall, M. Schedl, M. Weller and R. Niessner (2001) The Application of the PASA System in the Field of Allergy Diagnosis. Proc. Biochem. Sensor Conf. Tübingen
c) PAH im Aerosol: T. Scharnweber, M. Fisher, M. Suchànek, D. Knopp & R. Nießner (2001) Fres. J. Anal. Chem., im Druck

Der Mensch als Spiegelbild seiner Aerosolbelastung:
D. Knopp, M. Schedl, S. Achatz, A. Kettrup & R. Niessner (1999) Anal. Chim. Acta 399 , 115-126

Anwendung der Faktorenanalyse & chemische Aerosolcharakterisierung zur Quellenerkennung:
G. Pohlmann, W. Koch, M. Theisen, R. Nießner und G. Groß (2000) Quellen der Partikelimmission. Abschlußbericht, Heft 695, 122 Seiten, Forschungsvereinigung Verbrennungskraftmaschinen e.V., Frankfurt

Identifizierung luftgetragener Partikel und atmosphärischer Prozesse mittels On-line Einzelpartikelmassenspektrometrie

Rainer Vogt, Ulf Kirchner, Volker Scheer, Klaus-Peter Hinz*), Achim Trimborn*), Bernhard Spengler*)

*Ford Forschungszentrum Aachen GmbH, Suesterfeldstrasse 200, D-52072 Aachen, Germany (rvogt@ford.com); *) Universität Gießen, Germany*

Introduction

Single Particle Mass Spectrometry is a promising technique to determine the origin and history of particles. The instrument used in this study determines size-resolved chemical composition of the surface shell of individual particles in real time without sample preparation and the associated risk of sample contamination. The chemical composition of individual particles allows attribution to sources such as mineral dust, combustion soot, sea salt, or biogenic particles. Comparison of individual particles sampled from ambient air with particles sampled directly from a well-defined particle source, such as the tailpipe of a diesel or gasoline car, may allow more detailed attribution. The influence of atmospheric transport and aging can be investigated by sampling near a source and for comparison at a larger distance from that source, e.g. close to a busy road in comparison to a rural location.

Results

The LAMPAS-2 (Laser Mass Analyzer for Particles in the Airborne State) system was designed as a transportable system for physical and chemical analysis of aerosols in the size range 0.2 µm – 10 µm (Trimborn *et al.*, 2000) (Fig. 1). Soot aerosol from a graphite spark generator was exposed to NO_2 at concentrations in the range from 20 ppbv to 2 ppmv in a Teflon bag reaction chamber and analysed. Compared to fresh soot particles, additional peaks are contained in the mass spectra of reacted soot which are assigned to CN^-, CNO^-, NO_2^- and NO_3^- ion fragments. These results demonstrate the capability of single particle mass spectrometry to sensitively probe the surface chemical composition of airborne particles during heterogeneous reaction (Kirchner et al., 2000). To obtain reference MS-spectra the exhaust particles where sampled from a typical diesel passenger car directly from the exhaust plume into the LAMPAS-2 instrument.

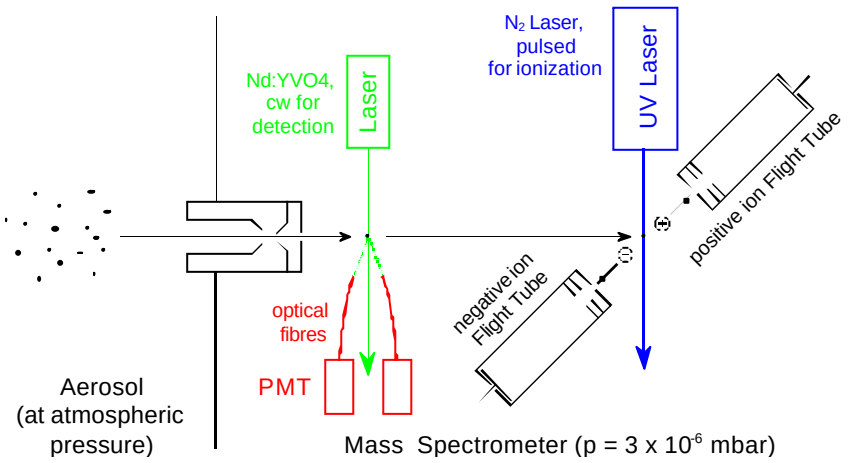


Fig. 1: Simplified schematic diagram of the instrument: particle detection and ionization. Sizes and distances, especially between inlet, particle detection laser and ionization laser are not to scale.

Three locations for size resolved particle characterization in ambient air were chosen: 1.) a parking lot adjacent to the Autobahn A4, a high speed highway near Aachen (Germany) with typically significant heavy-duty diesel traffic, 2.) a more rural site about 3 km downwind from the highway, and 3.) the parking lot of the Ford Forschungszentrum Aachen research facility, which is a site that is more characteristic for urban air.

On May 6th, 1999, from 12:18 h to 12:33 h, 333 particles of 0.5 µm aerodynamic diameter were measured by the LAMPAS-2 and grouped into five classes of spectra. In Fig. 2 spectral patterns are displayed as an example of a typical classification. The spectral patterns in Fig. 2a, b, d represent particles with high carbon content but significantly different composition. The spectral pattern in Fig. 1a is characteristic for neat black carbon particles. These particles match well diesel engine exhaust particles sampled from the tailpipe. A slightly higher nitrogen content (CN^- at 26 amu, NO_2^- at 46 amu, and NO_3^- at 62 amu) of the particles sampled at the Autobahn might indicate an aging process in the atmosphere. This would be comparable to the reaction of graphite spark generator soot with NO_2 which was observed in a laboratory aerosol chamber study indicated by the additional occurrence of CN^-, NO_2^-, and NO_3^- ion fragments (Kirchner et al., 2001).

In the negative MS spectrum in Fig. 2b a similar carbon pattern as Fig. 2a is shown, but with a much higher nitrogen content (CN^- at 26 amu, NO_2^- at 46 amu, and NO_3^- at 62 amu). In combination with the strong potassium and phosphate signal (K^+ at 39 and 41 amu and PO_x^- at 79 and 97) this indicates a biogenic origin (Andreae, 1983; Artaxo et al., 1994). Additionally, a significant amount of water can be seen (OH^- at 17 amu). The pattern of particles shown in Fig. 1c is mainly mineral with a higher Na than K signal, a significant carbon content and strong Ca^+ signal and is assigned to 'mineral 3'.

The pattern in Fig. 2d contains similar C signals as the pattern of diesel soot in Fig. 2a, but the intensity of N containing fragments (CN^- at 26 amu, NO_2^- at 46 amu, and NO_3^- at 62 amu) is higher and OH^- at 17 amu and NH_4^+ at 18 amu are additionally present. Although the classified peak intensities are comparably small, this represents a substantial amount of ions because the sensitivity of the instrument for NH_4^+ and OH^- is small (Hinz et al., 1999; Gross et al., 2000) and the noise in this region of the spectrum is low. Therefore, these particles can be attributed to an internal mixture of diesel soot with ammonium sulfate and nitrate as result of atmospheric aging processes, such as condensation or coagulation with other aerosol particles. The signal of OH^- probably results from adsorbed or condensed water present on the particles.

A comparison of particles detected directly at the highway A4 with particles detected at a rural site 3 km downwind may yield information on the atmospheric fate of vehicle exhaust particles. Atmospheric dilution or aging of particles could be observed. Several measurement series were performed at the two locations between May 3rd, 1999 and May 6th, 1999. In general, particle classes were similar to those observed as shown in Fig. 2. The percentage of particles belonging to the classes as described above is shown in Fig. 3.

On March 26, 1999 particles were sampled at an urban site in Aachen, Germany. The statistical evaluation of three measured sizes (0.5, 1, and 2 µm aerodynamic diameter) gave spectral patterns, which were very similar at all sizes, so that a reliable comparison between the different sizes could be done. For clarification, some of the classes were combined to yield only three main particle classes: 1.) sum of soot containing particles, 2.) sum of mineral particles (squares) and 3.) sum of Inorganic Salt 1 & 2. As shown in Fig. 4, carbonaceous particles are most abundant at small diameters (< 1 µm) whereas mineral salt particles are typically more prominent in the larger size range (> 1 µm) in agreement with prior investigations (Trimborn et al., 2000 and reference therein).

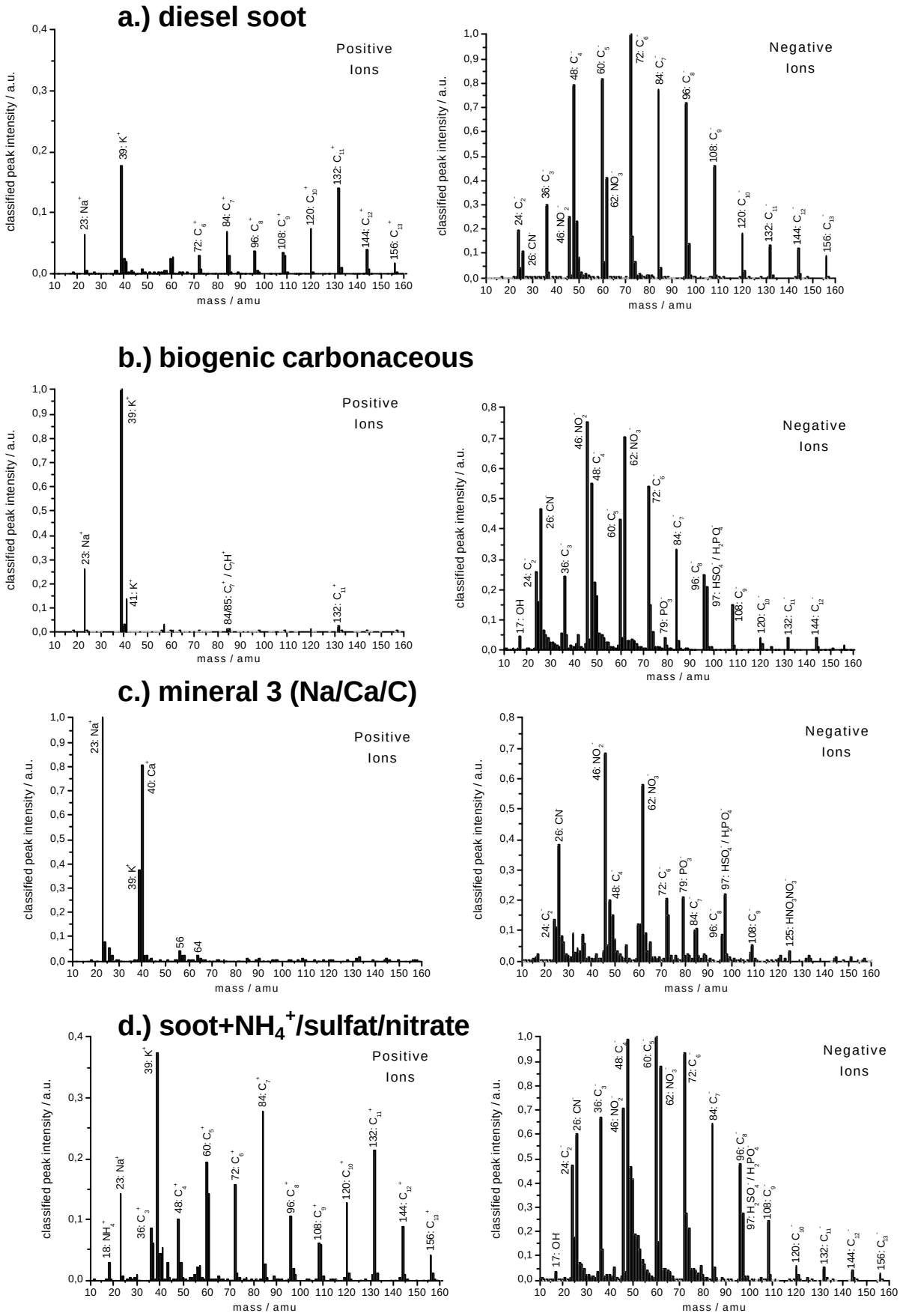


Fig. 2: Classes of 0.5 µm particles collected at a parking lot close to the Autobahn A4 and at the rural site: a.) attributable to black carbon (diesel soot), b.) biogenic carbonaceous aerosol, c.) mineral 3, mixed with carbon, d.) soot and ammonium sulfate/nitrate.

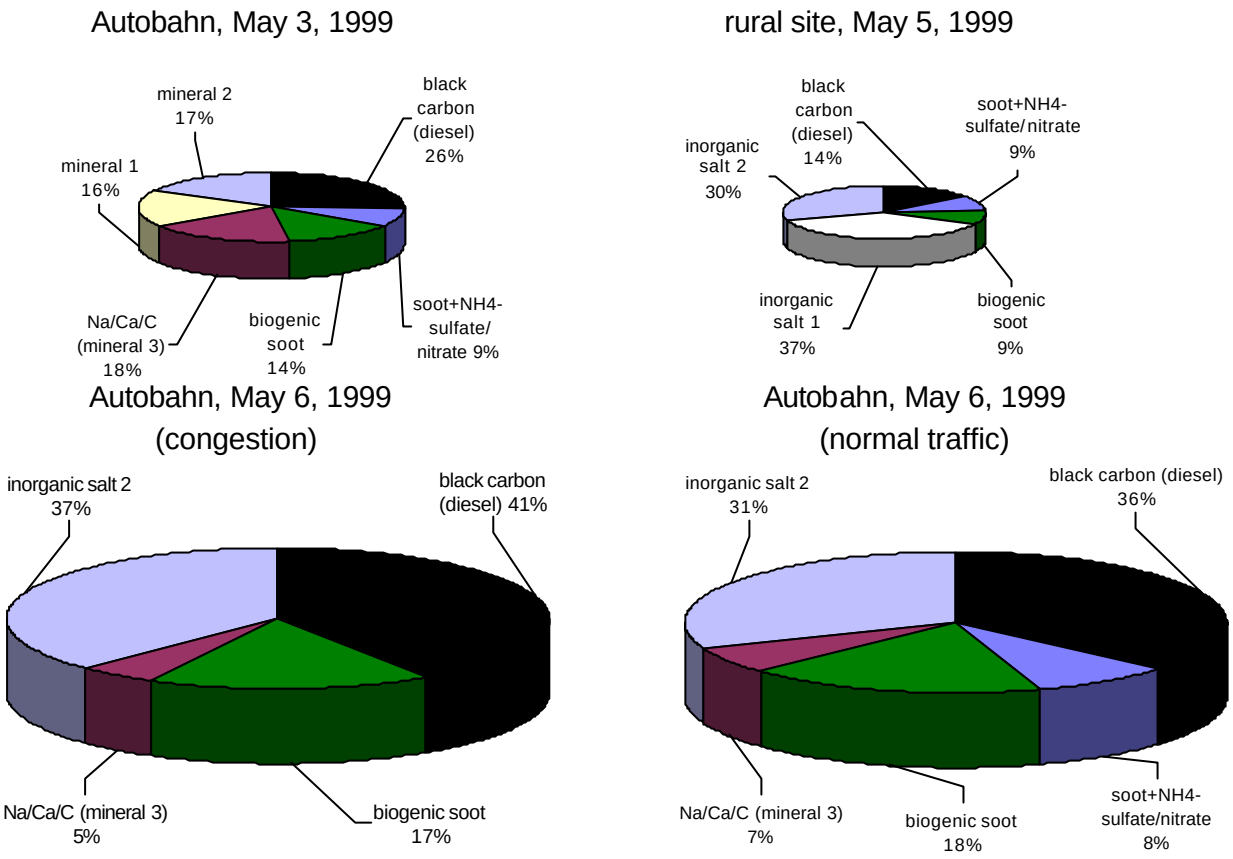


Fig. 3: Percentage of 0.5 µm aerodynamic diameter particles in the different classes. All particle distributions measured close to the Autobahn contain ~50 – 60% carbonaceous particles, whereas at the rural site only ~30% carbonaceous particles are observed. On May 6 congestion (10:53 – 11:04 h, left chart) and normal traffic (12:18 – 12:33 h, right chart) were observed. Chart areas are scaled with the absolute concentration of particles at the different locations as measured with the APS. Particle concentrations at ~0.5 µm were ~100 particles cm^{-3} (May 3,1999) and ~50 particles cm^{-3} (May 5, 1999) at the rural site and ~400 particles cm^{-3} (May 6, 1999) at the Autobahn.

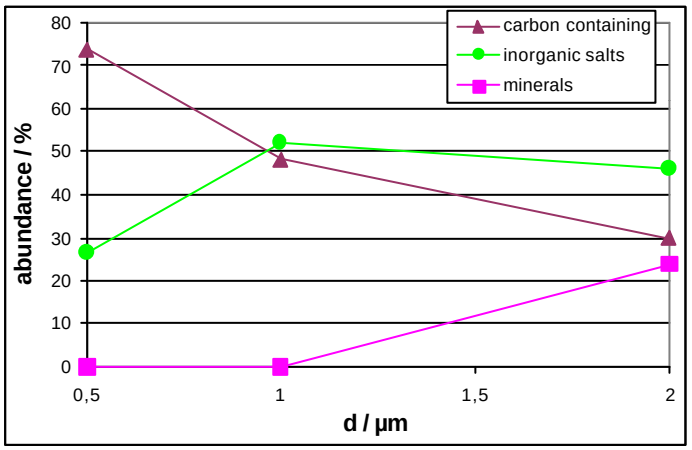


Fig. 4: Size dependent relative amount of particles occurring in the three main particle classes: sum of soot containing particles (triangles), sum of mineral particles (squares) and sum of Inorganic Salt 1 & 2 (circles). Sampled on March 26th, 1999 between 10:53 and 15:36 h at the urban site.

Conclusions

The single-particle mass spectrometric measurements presented here allow differentiation between mineral and inorganic salt particles and different types of carbonaceous particles. Reference spectra for source attribution were determined by analyzing exhaust particles from a diesel passenger car. Similar, but not exactly the same spectral pattern as of the diesel source aerosol were observed in ambient air. For example, soot spectra always contained small signals of nitrogen compounds, while fresh unreacted soot, which is typical for the reference diesel exhaust, was not observed. The difference may be due to the altered surface composition, which may occur in the ambient atmosphere by NO_2 reaction and which is very sensitively probed by single particle mass spectrometry.

Measurements of single particles using the LAMPAS-2 instrument yielded characteristic differences in the chemical particle composition depending on the location of the measurement site, the size of the measured particles, and the local conditions, such as ongoing construction work, strength of the wind, or traffic density. For example, at the urban site during a windy day 78 % of the particles at 0.5 µm aerodynamic size could be attributed to mineral and inorganic particles, while during a calmer day, however with heavy construction vehicles in operation the number of diesel soot and other carbonaceous particles were dominant at the same size. Under stable meteorological conditions the chemical composition of the particles was also found to vary significantly by size. During the conditions of ongoing construction activity the small particles (< 1 µm) were mainly carbonaceous particles (> 70% at 0.5 µm), whereas larger particles (> 1 µm) were typically mineral and inorganic salt particles (70% at 2.0 µm).

The atmospheric behavior of 0.5 µm particles was characterized by comparison of particle composition close to the Autobahn with that of a rural site several kilometers downwind the road. The total number of particles was a factor of 4 – 8 lower. The relative amount of mineral and inorganic salt particles at the rural site was significantly higher and the relative contribution of diesel soot particles was a factor of 5-6 smaller. The reason is most likely dilution and mixing with surrounding air during transport of the air mass. Within experimental precision, chemically altered particles were not observed. However, soot particles containing ammonium sulfate and nitrate indicated aging of the soot particles by condensation or coagulation at both, the autobahn and the rural site.

References

Andreae, M.O.; Soot carbon and Excess fine potassium: Long-range transport of Combustion-derived aerosols" *Science 220, (1983) 1148-1151.*

Artaxo, P., Gerab, F.; Yamasoe, M.A.; Martins, J.V.; Fine mode aerosol composition at three long-term atmospheric monitoring site in the Amazon Basin, J. Geophys. Res. 99, (1994) 22,857-22,868.

Gross, D. S.; Gälli, M. E.; Silva, P. J. and Prather, K. A.; Relative Sensitivity Factors for Alkali Metal and Ammonium Cations in Single-Particle Aerosol Time-of-Flight Mass Spectra, *Anal. Chem. 72*, (2000) 416-422.

Hinz, K. P.; Greweling, M.; Drews, F. and Spengler, B.; Data Processing in On-line Laser Mass Spectrometry of Inorganic, Organic, or Biological Airborne Particles, *J. Am. Soc. Mass Spectrom. 10,* (1999) 648-660.

Kirchner, U., Scheer, V. , Vogt, R.; Heterogeneous Reactions of Soot with Nitrogen Oxides: An Investigation by In-situ Single Particle Mass Spectrometry", *Proceedings of the EUROTRAC Symposium 2000,* Ed. P. M. Midgley, M. Reuter, M. Williams (in press).

Trimborn , A., K.-P. Hinz and B. Spengler; Online analysis of atmospheric particles with a transportable laser mass spectrometer, *Aerosol Sci. Technol. 33 (2000) 191-201.*

Quellenidentifizierung auf Basis der elektronenmikroskopischen Einzelpartikelanalyse

Martin Ebert, Stephan Weinbruch
Technische Universität Darmstadt, Umweltmineralogie, Schnittspahnstr.9, D-64287 Darmstadt, Germany

Mit Hilfe der elektronenmikroskopischen Einzelpartikelanalyse kann die Größe, die chemische Zusammensetzung, die Morphologie, der Grad der Vermischung und der Phasenbestand einzelner Partikel bestimmt werden (siehe Abb.1).

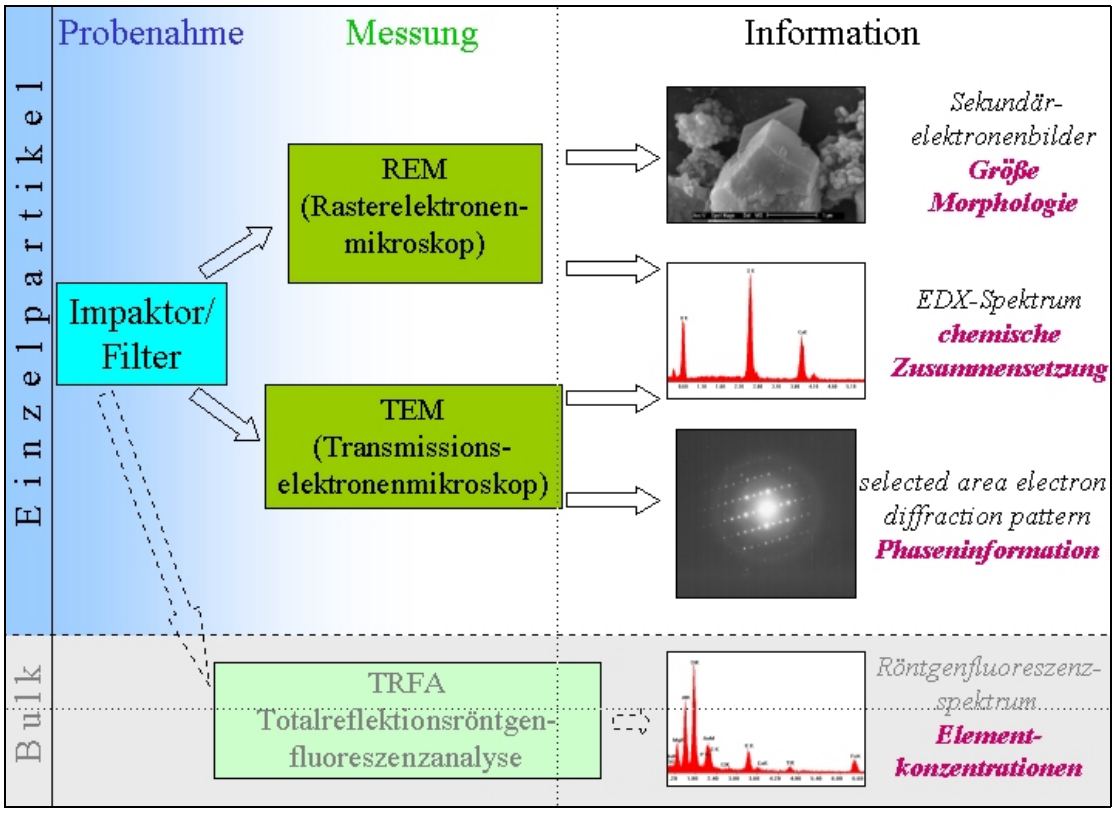


Abbildung 1: Informationsgehalt des an der TU Darmstadt durchgeführten Gesamtanalyseverfahrens.

Auf Grund von chemischer Zusammensetzung und Morphologie kann eine Gruppeneinteilung des atmosphärischen Aerosols erreicht werden. Die zehn Hauptgruppen, die hierbei unterschieden werden, sind in Abb.2 zusammengefasst.

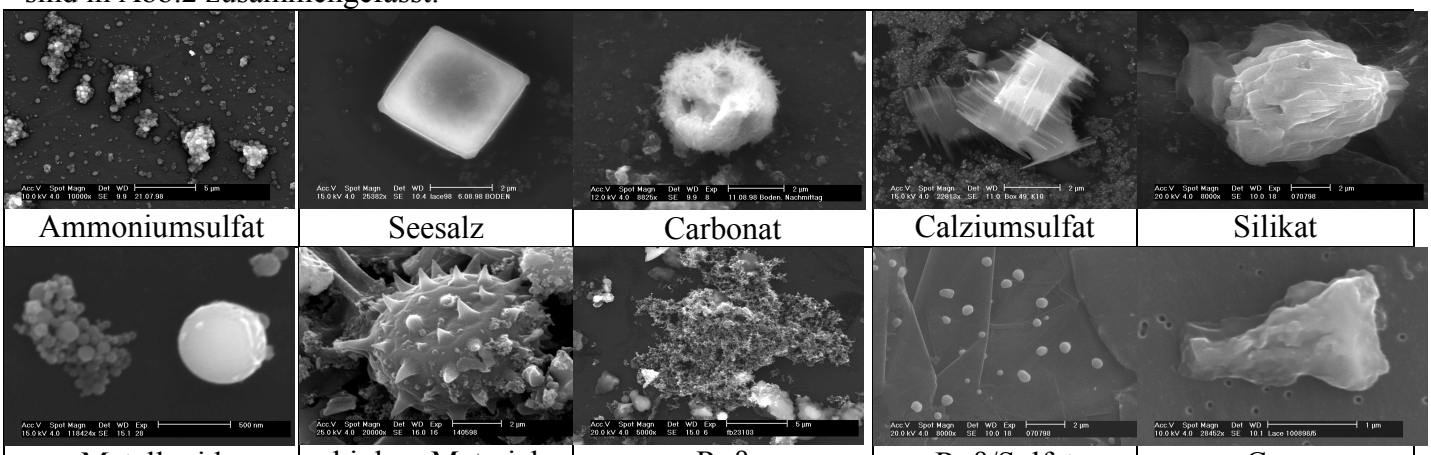


Abbildung 2: Sekundärelektronenbilder verschiedener Partikelgruppen

Durch die Analyse einiger hundert bis einiger tausend Partikel innerhalb einer Probe können die prozentualen Anteile der verschiedenen Komponenten größenaufgelöst ermittelt werden (Abb.3).

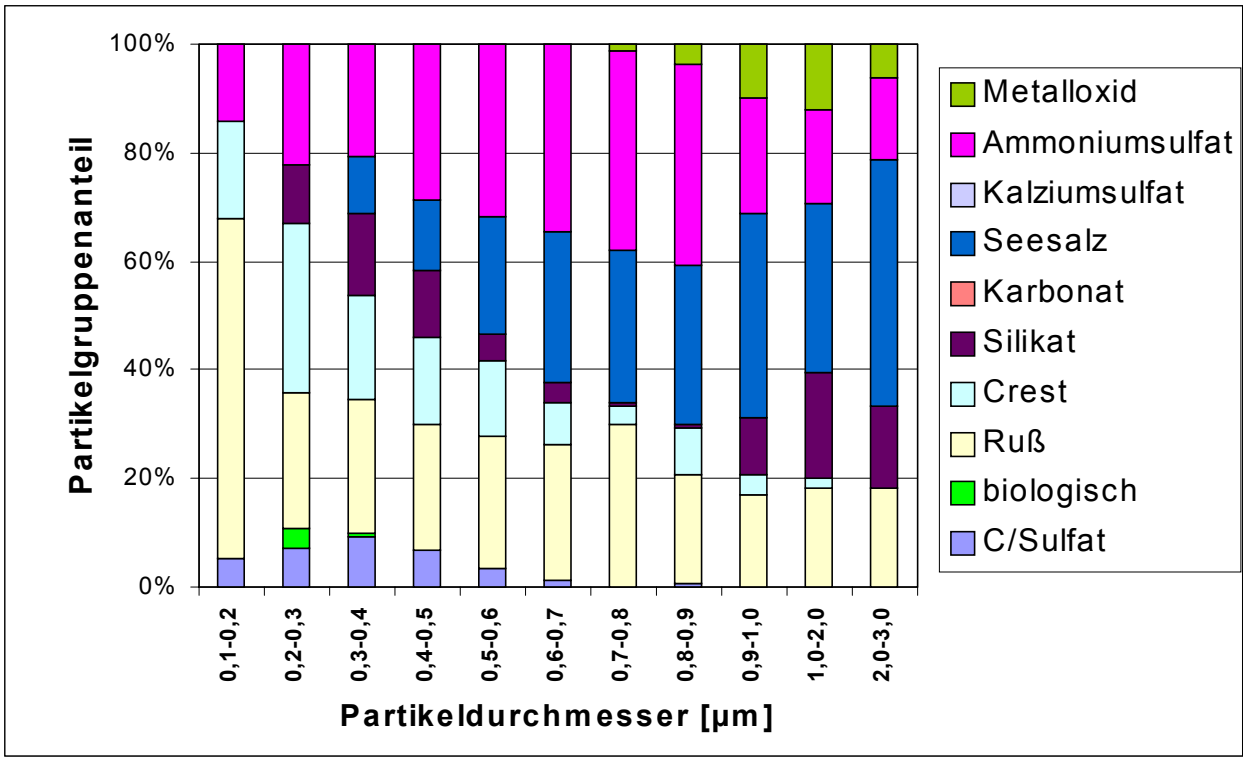


Abbildung 3: größenaufgelöste prozentuale Partikelgruppenanteile (Bsp: 6.08.1998 in Falkenberg).

In Kombination mit einer ebenfalls mit Hilfe der Einzelpartikelanalyse oder extern bestimmten Gesamtanzahlverteilung lassen sich hieraus auch direkt die Anzahlverteilungen der einzelnen Partikelgruppen ermitteln (Abb.4).

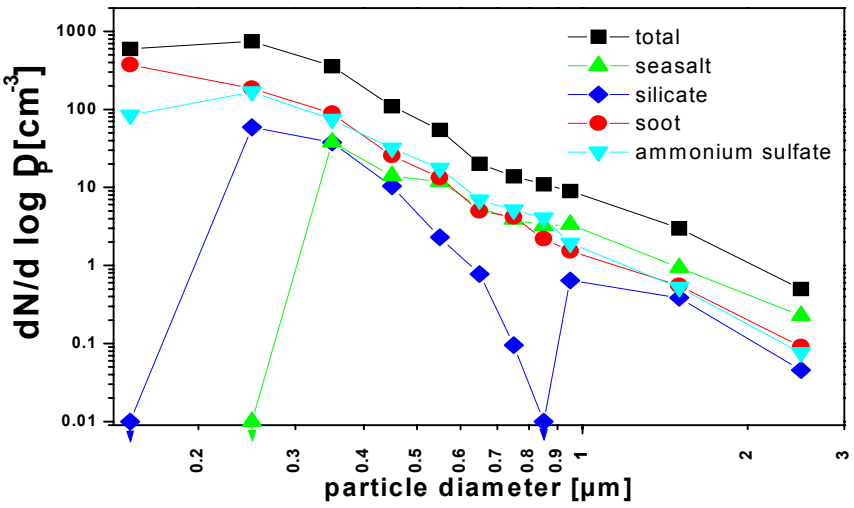


Abbildung 4: Anzahlgrößenverteilung des Gesamtaerosols und der wichtigsten Einzelkomponenten (Bsp: 6.08.1998 in Falkenberg).

Auf Basis der elektronenmikroskopischen Ergebnisse (Raster- und Transmissionselektronenmikroskop) sind weitgehende Aussagen über Quelle, hygroskopisches Verhalten, optische Eigenschaften und Gesundheitsrisiko des Aerosols möglich.
Im Hinblick auf die Quellenidentifizierung stellt die morphologische Information eine wichtige, in sonst keiner Methode erhaltene, Zusatzinformation dar. So können z.B. chemisch nicht zu

unterscheidende Silikatpartikel aufgrund morphologischer Details klar unterschiedlichen Quellen zugeordnet werden.

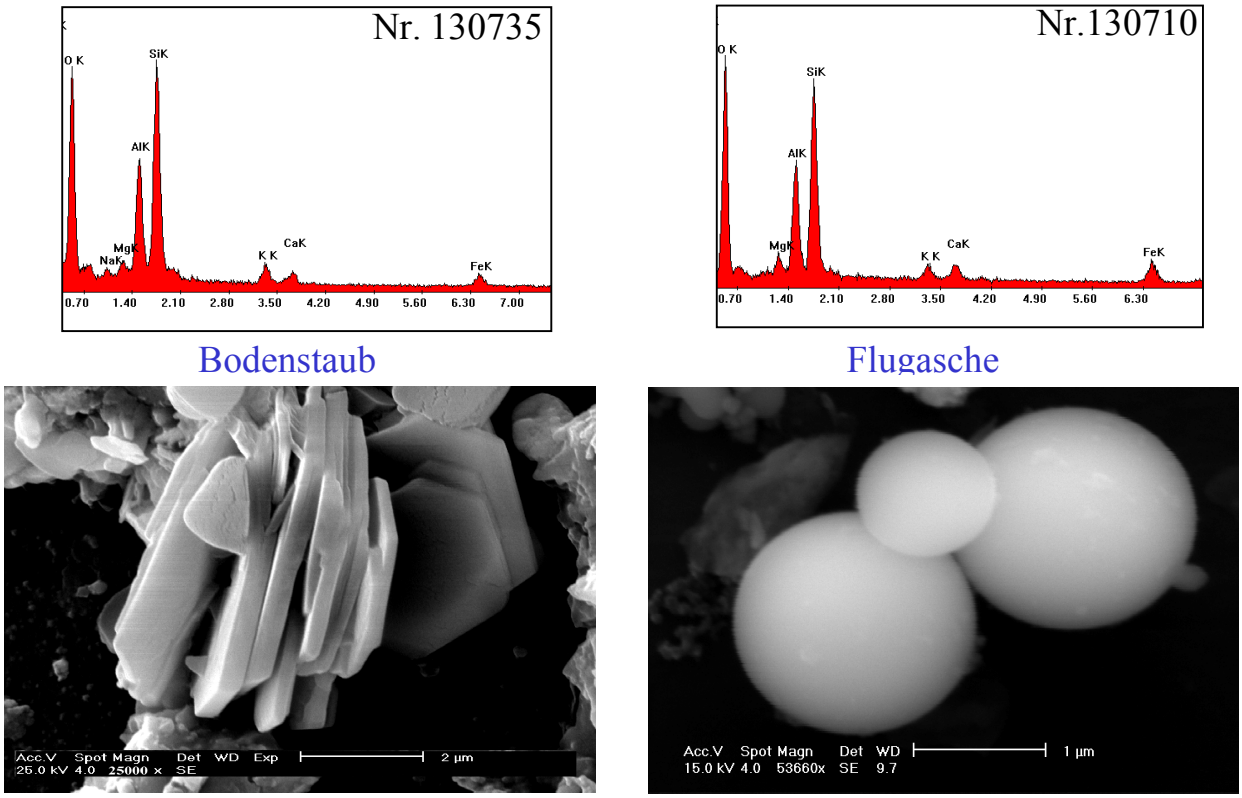


Abbildung 5: EDX-Spektren (oben) und Sekundärelektronenbilder zweier Silikatpartikel.

So erlauben die Ergebnisse der Einzelpartikelanalyse in den meisten Fällen eine direkte Abschätzung des Anteils natürlicher und anthropogener Partikel und zumindest teilweise auch eine Abschätzung des primären und sekundären Anteils.

Da wenige hundert Partikel an Probenmaterial ausreichen um Aussagen zu treffen, konnten bei vergangenen Messungen auch Proben mit Hilfe dieser Methode charakterisiert werden, die aufgrund der geringen Probenmenge keiner Bulkanalyse zugänglich waren (Bsp: Kurzzeit-Flugzeugsammlungen).
Methodenvergleiche mit massenspektrometrischen Einzelpartikelverfahren (LAMMA, LAMPAS) und Bulkmethoden (CE, TRFA) zeigen eine sehr gute Übereinstimmung der ermittelten Gruppenanteile (unter Berücksichtigung der methodenspezifischen Unterschiede).

Gerade im Hinblick auf die Abschätzung des Gesundheitsrisikos durch Aerosolpartikel besitzt die elektronenmikroskopische Einzelpartikelanalyse gravierende Vorteile. Während Bulkmethoden Massen bestimmen, werden bei der Einzelpartikelanalyse direkt die Anzahl bestimmter Partikel ermittelt. Weiterhin wird die Zusammensetzung der einzelnen real wirksamen Partikel und keine Misch- oder Sammelzusammensetzung ermittelt. Hinzu kommt, daß in der Transmissionselektronenmikroskopie auch die vorliegenden Phasen bestimmt werden können und Aussagen über deren Mischungszustand (Agglomerate, heterogene Einschlüsse, interne/externe Vermischung) getroffen werden können (Abb.6).

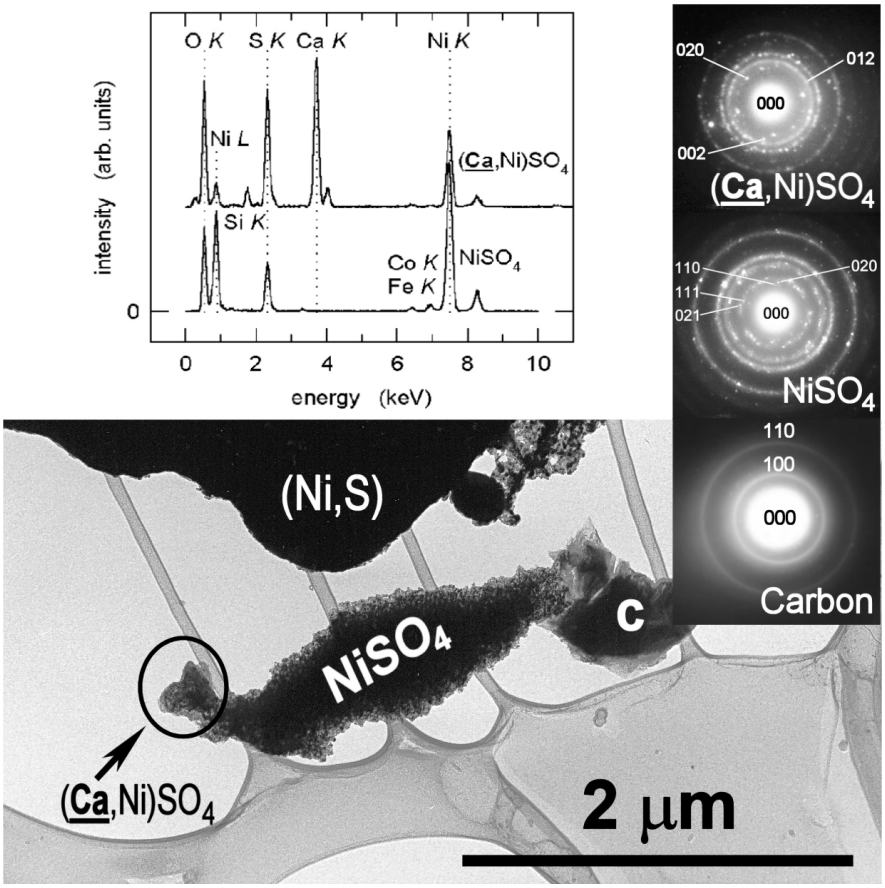


Abbildung 6: transmissionselektronenmikroskopische Aufnahme (neben SAED pattern) von Arbeitsplatzaerosolen.

Der reichhaltige Informationsgehalt dieser Methode rechtfertigt daher in vielen Anwendungen den hohen Zeitaufwand, den die statistisch abgesicherte Analyse mehrerer hundert Partikel pro Probe erfordert. So kann im Routinebetrieb z.B. eine regelmäßige Probenahme erfolgen und nur in ausgwählten Proben (zB. bei Grenzwertüberschreitungen), in denen eine spezielle Information benötigt wird (Phasenbestand, Morphologie etc.) eine Einzelpartikelanalyse erfolgen. Eine begrenzte Fragestellung (z.B. Hauptkomponente) kann hierbei auch sehr schnell bearbeitet werden.
Einen Nachteil den konventionelle Rasterelektronenmikroskope besitzen ist der Verlust an flüchtigen Komponenten (Nitrate, Organika, Wasser) aufgrund des Hochvakuumsystems. An der TU-Darmstadt arbeiten wir seit ca. 1 Jahr an einem Environmental SEM, welches auch bei Drücken bis ca. 50 Torr arbeiten kann. Unter diesen Bedingungen bleiben die genannten flüchtigen Komponenten stabil, so daß z.B. auch das hygroskopische Verhalten dieser Partikel untersucht werden kann.

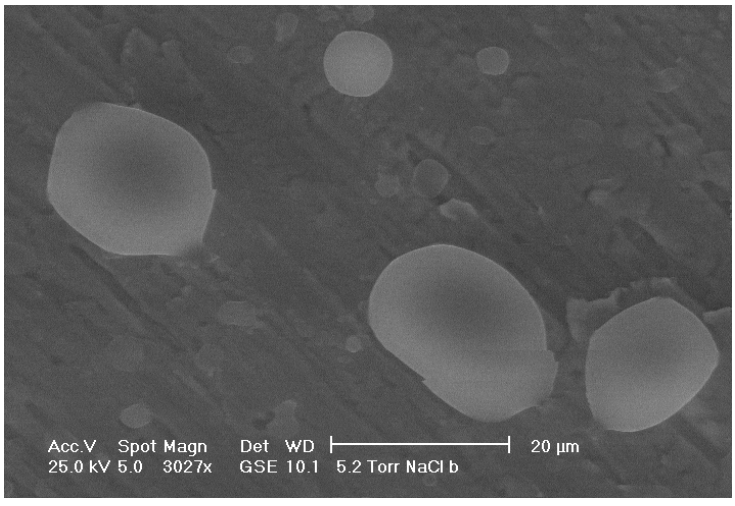


Abbildung 7: NaCl-Tropfen bei einen Druck von 5,2 Torr im ESEM.

Elementare, chemische und physikalische Charakterisierung des Umweltaerosols in Erfurt: Versuch einer Quellenzuordnung

Cyrys J., Stölzel M., Peters A., Wittmaack K., Wichmann H.-E., Heinrich J.

GSF – Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Neuherberg

Hintergrund: Epidemiologische Studien zur Kurzzeiteffekten von Luftschadstoffen haben einen Zusammenhang zwischen erhöhten Partikelmassekonzentrationen und ansteigender Mortalität, Krankenhausanweisungen und respiratorischen Symptomen gezeigt (Dockery and Pope, 1994; Brunekreef et al., 1995). Unstrittig ist, dass diese Gesundheitseffekte insbesondere auf feine Partikelmasse (PM2.5) zurückzuführen ist (Dockery et al., 1992; Schwartz et al., 1996). In jüngster Zeit gibt es vermehrt Hinweise darauf, dass die Partikelanzahlkonzentration im ultrafeinen Bereich (Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser < 100 nm) maßgeblich die Gesundheitseffekte verursachen (Peters et al., 1997, Penttinen et al., 1998, Wichmann et al., 2000).

Von 8/1995 bis 12/1998 wurde die Studie ‚Partikelförmige Luftverunreinigungen und tägliche Mortalität' in Erfurt durchgeführt. Der im Rahmen dieser Studie erhobene Datensatz bietet die Möglichkeit, eine umfassende physikalische und chemische Charakterisierung des Umwelt-aerosols in Erfurt vorzunehmen, insbesondere im Hinblick auf die Quellenzuordnung.

Methoden: . Eine Übersicht der gemessenen Komponenten und der verwendeten Messmethoden ist in folgender Tabelle dargestellt:

Komponente	Messperiode	Auflösung	Dauer der Probenahme
Partikelanzahl 0.01-0.5 µm (TSI30713760 DMA/CPC)	9/95-12/98	stündlich, jeden Tag	5 Min
Partikelanzahl 0.1-2.5 µm (PMS LAS-X OPC)	9/95-12/98	stündlich, jeden Tag	5 Min
$PM_{2.5}$ (Harvard Impactor)	9/95-2/96 3/96-12/98	jeden zweiten Tag jeden Tag	24 Std
PM_{10} (Harvard Impactor)	9/95-2/96 3/96-12/98	jeden zweiten Tag jeden Tag	24 Std
$PM_{2.5}$ für Bestimmung von Sulfaten und Acidität (Harvard Impactor mit Denudar)	9/95-12/98	jeden zweiten Tag	24 Std
PIXE Phase 1 für elementare Zusammensetzung (Berner Impactor)	9/95-7/97	einmal pro Woche	24 Std
PIXE Phase 2 für elementare Zusammensetzung (Berner Impactor)	8/97-12/98	6 mal pro Woche	24 Std
SO_2	9/95-12/98	stündlich, jeden Tag	10 Min
NO_2	6/97-12/98	stündlich, jeden Tag	10 Min
NO	6/97-12/98	stündlich, jeden Tag	10 Min
Windgeschwindigkeit, -richtung Temperatur, relative Feuchte	9/95-12/98	stündlich, jeden Tag	10 Min

Ergebnisse: Die mittlere Partikelanzahlkonzentration in den Jahren 1995-98 war 18 000 1/cm^3. Die mittlere PM2.5-Konzentration betrug 25.8 µg/m^3. 58 % der Partikelanzahl war zwischen 0.01 und 0.03 µm, 88 % waren ultrafeine Partikel (0.01 µm – 0.1 µm). Im Gegensatz dazu, machen Partikel kleiner 0.1 µm nur 3 % der Massenkonzentrationen aus. Der Korrelationskoeffizient zwischen Partikelanzahl und Partikelmasse betrug 0.64. Betrachtet man die Tagesgänge der Partikelanzahlkonzentrationen an Werktagen and am Wochenende, fällt der starke Anstieg der Partikelanzahl zwischen 7.00 und 10.00 Uhr auf, der am Wochenende nicht zu beobachten ist. Auffallend ist die starke Ähnlichkeit der Tagesgänge von Partikelanzahl mit NO (Abbildung 1). Dies deutet auf den Kfz-Verkehr als die maßgebliche Quelle für Partikelanzahlkonzentration. Die Partikelmassekonzentration zeigt dagegen einen deutlichen schwächeren Abfall am Wochenende (Daten nicht gezeigt).

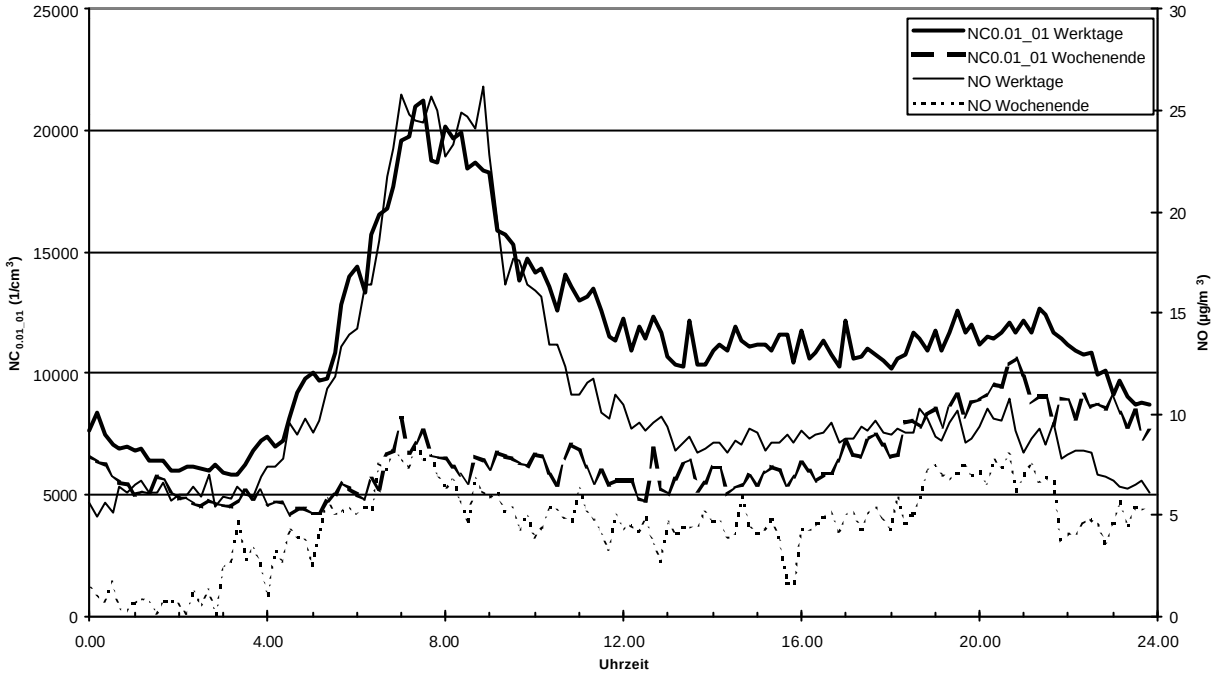


Abbildung 1: Tagesgang der Partikelanzahl- und NO-Konzentrationen an Werktagen und am Wochenende (1997)

Die Hauptkomponentenanalyse der Daten ergab 4 Hauptfaktoren, die ca. 70 % der Varianz erklären. Die drei ersten Faktoren wurden anhand von Leitelementen folgenden Quellen zugeordnet: Aufwirbelung von Staub (Si, Al, Ti, Fe), Kfz-Verkehr (Cu, Pb, Zn) und Verbrennung von fossilen Brennstoffen (V, Ni). Der vierter Faktor weist vor allem hohe Ladungen für Schwefel auf. Die Partikelanzahl, NO und CO wurden im Kfz-Faktor wiedergefunden. Während die Erdkrustenelemente (Al, Si, Ti, Fe) im Erfurter Feinstaub nicht angereichert sind, sind die Konzentrationen von Verbrennungsindikatoren (V, Ni) sowie Kfz-Verkehrsindikatoren (Cu, Pb, Zn) im Vergleich zur natürlichen Zusammensetzung der Erdkruste stark erhöht (20 bis 3000 mal).

Schlussfolgerungen und Ausblick: Die Analyse der Erfurter Daten zeigte, dass die Partikelanzahl, im Vergleich zur Partikelmasse, stärker durch den Kfz-Verkehr bestimmt wird. Die Hauptkomponentenanalyse zeigte die Aufwirbelung von Staub, den Kfz-Verkehr und Verbrennungsprozesse (hauptsächlich Hausbrand) als die Hauptquellen für das Erfurter Aerosol.

Die Limitierung dieser Analyse besteht in der relativ kurzen Messreihe für die elementare Zusammensatzung der Partikel (PIXE Phase 2, siehe Tabelle). Eine Validierung der Analyse

könnte nach Erweiterung des Datensatzes erfolgen. Eine andere Möglichkeit bestünde darin, die Emissionsquellen (z.B. den Kfz-Verkehr) genauer zu erfassen und mit den gemessenen Komponenten zu vergleichen.

Literatur:

Brunekreef B, Dockery DW, Krzyzanowski M, 1995. Epidemiologic studies of short-term effects of major ambient air pollution components. Environ. Health Perspect. 103 (Suppl. 2), 3-13

Dockery DW, Schwartz J, Spengler JD. 1992. Air pollution and daily mortality: Association with particulates and acid aerosols. Environ. Res. 59:362-373.

Dockery DW, Pope CA 1994. Acute respiratory effects of particulate air pollution. Annu. Rev. Public Health 15:107-132.

Penttinen P, Timonen KL, Tiittanen P, Mirme A, Ruuskanen J, Pekkanen J. 1998. Fine and ultrafine particulate matter in ambient air are associated with peak flow decreases in adult asthmatic subjects. Am. J Respir. Crit. Care Med. 157: A878

Peters A, Wichmann HE, Tuch T, Heinrich J, Heyder J. 1997a. Respiratory effects are associated with the number of ultra-fine particles. Am.J.Respir.Crit.Care.Med. 155:1376-1383.

Schwartz J, Dockery DW, Neas LM. 1996. Is daily mortality associated specifically with fine particles? J. Air. Waste. Manage. Assoc. 46:927-939.

Wichmann H.-E, Spix C, Tuch T, Wölke G, Peters A, Heinrich J, Kreyling WG, Heyder J. 2000. Daily Mortality and Fine and Ultrafine Particles in Erfurt, Germany. Part I: Role of Particle Number and Particle Mass. Research Report 98. Health Effects Institute, Cambridge MA

Korngrößendifferenzierte Identifikation der Anteile verschiedener Quellgruppen an der Feinstaubbelastung

E. Brüggemann[a], U. Franck[b], Th. Gnauk[a], K. Müller[a], Ch. Neusüß[a],A. Plewka[a], G. Spindler[a], H.-J. Stärk[b] und R. Wennrich[b] und H. Herrmann[a]

a) Institut für Troposphärenforschung e.V., Permoserstr. 15, 04318 Leipzig
b) UFZ-Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH (UFZ), Permoserstr. 15, 04318 Leipzig

1. Einleitung

Gesundheitsrisiken durch Staubbelastungen sind seit langem vor allem aus der Industrie bekannt. Während an den Arbeitsplätzen diese in den letzten Jahrzehnten durch Einsatz moderner Entstaubungstechniken minimiert worden, wird der Belastung durch atmosphärische Stäube natürlichen Ursprungs und aus anthropogenen Quellen nun auch durch die Europäische Union in den Mittelpunkt des Interesses gerückt. Es wurden Luftqualitätsstandards zur zulässigen Partikelbelastung festgelegt (European Council Directive 1999/30/EC, 1999), deren Einhaltung vor allem in Städten mit hoher Verkehrsbelastung problematisch werden kann.
Die größenaufgelöste Charakterisierung der Partikel im städtischen und ländlichen Aerosol innerhalb einer Winter- und einer Sommermesskampagne soll Beiträge zur Quellenzuordnung der Partikelbestandteile ermöglichen, um in Zukunft gegebenenfalls zielgerichtete Maßnahmen zur Reduzierung der anthropogen verursachten Einflüsse auf die Partikelimmissionssituation ergreifen zu können.
Wichtige Ziele des Vorhabens waren die Erfassung der partikelgrößendifferenzierten Beiträge des Hausbrandes und des Verkehrs (Schwerlastverkehr, PKW) auf die Art und Charakteristik der untersuchten Partikel. Dazu wurden meteorologisch möglichst einheitliche Messtage ausgewählt, die nicht durch einen Luftmassenwechsel oder bedeutende Niederschlagsereignisse gekennzeichnet waren. Angesichts der Zahl von nur neun Winter- und acht Sommermesstagen wurde versucht die Ergebnisse in vorhandene lange Datenreihen einzuordnen.
An insgesamt 17 Messtagen wurden größenselektiert Partikel an zwei Standorten in Leipzig (Leipzig-Zentrum in Nähe des Hauptbahnhofes, und Leipzig-Nordost auf der Messplattform des IfT) sowie in Melpitz bei Torgau an der Forschungsstation des IfT gesammelt und charakterisiert. Die Verbindung von chemischer und physikalischer Charakterisierung liefert einen Datensatz, der den Stand der Wissenschaft reflektiert. Die Ergebnisse zeigen jedoch auch, dass vor allem statistisch gesicherte Betrachtungen aus der geringen Zahl von Messtagen nicht immer abgeleitet werden können. So bleiben zahlreiche Erkenntnisse in Anbetracht fehlender differenzierter Quellenstudien und der geringen Anzahl von Messtagen Wahrscheinlichkeitsaussagen.
Die ausgewählten Probenahmetage entsprachen in allen wesentlichen Parametern den selbstgestellten Vorgaben, wobei der letzte Messtag der Sommerkampagne mit seiner sehr niedrigen Partikelbelastung sehr auffällig und ungewöhnlich war.
Durch die kurze Projektlaufzeit waren zeitliche Grenzen gesetzt, die der Realisierung des Forschungsvorhabens einige Einschränkungen auferlegten:
Das Warten auf stabile osteuropäische Hochdruckgebiete, die eine kontinentale Anströmung von längerer Dauer zur Folge haben, führte zu keinem Erfolg. Weder im Winter 1999/2000 noch im Sommer 2000 kam es zu einer derartigen, nicht untypischen Wetterlage im vorgesehenen Beprobungszeitraum.
Der Winter war kaum durch typisches Winterwetter gekennzeichnet, denn es herrschten durchgängig westliche Anströmungen (NW bis SW). Es gab einige kühle Tage, aber keine typischen Wintertage in Nordwestsachsen. Bei für den Winter relativ guter Durchmischung der Grenzschicht kam es nur zu niedrigen Partikelbelastungen. Im Sommer (Messmonate

sollten Juli und August sein) war es nicht heiß. Der Juli war sogar zu kalt und brachte auch ein deutliches Defizit an Sonnenstunden mit sich, dafür waren der Mai und Juni zu warm und sonnenscheinreich. Die Gesamtniederschlagsmenge wich vom langjährigen Mittel nicht auffällig ab, aber es gab sehr viele Niederschlagsereignisse.

Die Auswahl der Messstationen erfolgte in Absprache mit dem Auftraggeber:

Station B: Leipzig-Zentrum (in Bahnhofsnähe), sehr verkehrsreiche Straßenkreuzung Tröndlinring/Am Halleschen Tor (Probeneinlass ca. 4 m über Grund)

Station IfT: Nordöstlicher Stadtrand (IfT-Gebäude Permoserstr. 15, Probeneinlass ca. 16 m über Grund)

Station M: IfT-Forschungsstation Melpitz bei Torgau (Probeneinlass ca. 4 m über Grund)

Die Probenahme erfolgte an allen drei Stationen mit identischer Technik:

a) fünfstufiger Berner-Niederdruck-Kaskaden-Impaktor (Durchfluss 75 l min^{-1}), Sammlung auf TEDLAR für Schwermetallbestimmung und wasserlösliche Ionen, Sammlung auf Aluminium für Massebestimmung und OC/EC-Analytik (OC-organischer Kohlenstoff; EC-elementarer Kohlenstoff), Sammlung auf Ni/Fe-Folie für Curie-Punkt-Pyrolyse-GC-MS (GC-MS – Gaschromatographie-Massenspektrometrie).

Impaktorstufen:
1: d_p= 0,05-0,14 µm,
2: d_p= 0,14-0,42 µm,
3: d_p= 0,42-1,2 µm und
4: d_p= 1,2-3,5 µm

b) Digitel-DHA80 Filtersammler (500 l min^{-1} auf Munktell-Quarzfaserfilter)

c) Nuclepore-Filter (0,43 µm, 4 x 10 min, 2 m^3 Luftvolumen) mit laminarer Probenahme für REM (Rasterelektronenmikroskopie).

2. Ergebnisse

Die Mittelwerte der Partikelmassen ergeben für beide Kampagnen, Maximalwerte für die City-Station am Leipziger Hauptbahnhof mit abfallenden Massekonzentrationen am IfT und in Melpitz. Bedeutsame Winter-Sommer-Unterschiede zeigen vor allem die Stufen 2 und 3 der Impaktorproben, die in hohem Maße vom Hausbrand beeinflußt sind.
Ionische Komponenten der Partikel sind vor allem Nitrat, Sulfat und Ammonium, die etwa 90% der Ionen liefern. In den Winterproben sind deutlich höhere Konzentrationen wasserlöslicher Ionen als im Sommer gefunden worden. Seesalzanteile spielen in Sachsen eine untergeordnete Rolle. Alkali- und Erdalkaliionen kommen sowohl aus Aschen, wie auch aus dem reemittierten Krustenmaterial. Auf der massereichsten Stufe 3 finden sich auch die größten Salzmengen, wobei in den zurückliegenden Jahren eine Verschiebung vom Sulfat zum Nitrat eingesetzt hat, was auf den starken Rückgang der SO_2-Emissionen aus Industrie, Kraftwerken und Haushalten zurückzuführen ist. Im winterlichen Aerosol ist Nitrat das vorherrschende Ion, während im Sommer weiterhin Sulfat die größten Masseanteile aufweist.

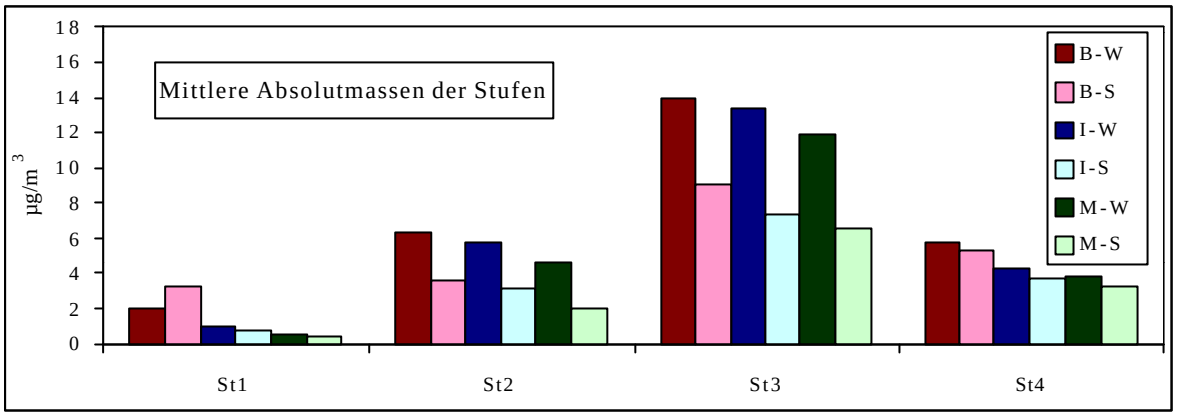


Abbildung 1: Mittlere Absolutwerte der Massen der Impaktorstufen 1 bis 4 in µg/m^3 für Winter (W) und Sommer (S) an den Standorten Bahnhof (B), IfT (I) und Melpitz (M)

Das Verhältnis Chlorid/Natrium beträgt im Seesalz 1,79. Besonders im sommerlichen Aerosol wird Chlorid durch Nitrat oder Sulfat ausgetauscht, wenn sich die Luftmasse längere Zeit über Landmassen befindet, diese Befunde konnten in allen Proben bestätigt werden.

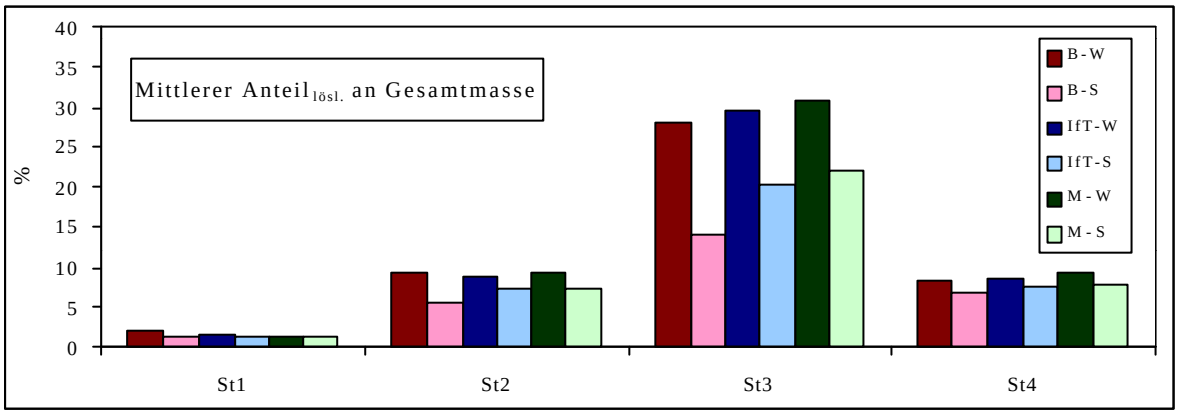


Abbildung 2: Mittlerer Anteil der löslichen Masse auf den Stufen an der Gesamtmasse im Winter (W) und Sommer (S) für Bahnhof (B), IfT und Melpitz (M)

Während der Vergleich der drei verschiedenen Messstationen Bahnhof, IfT und Melpitz die Möglichkeit der Differenzierung zwischen verschieden belasteten Standorten eröffnet, soll der Vergleich der Winter- und Sommerkampagne Informationen über saisonale Abhängigkeiten von Quellen und Quellstärken liefern. Die Hauptquellen für die Kohlenstoffbelastung in der Troposphäre Sachsens sind ohne Zweifel Verkehrsemissionen (im Umfang Sommer und Winter in etwa gleichzusetzen) sowie Abgase aus dem Hausbrand (nur in der kalten Jahreszeit). Biogene Emissionen sind dagegen hauptsächlich auf die Vegetationsperiode beschränkt und spielen im Winter keine Rolle. Kraft- und Heizwerke arbeiten das ganze Jahr über, im Winter jedoch mit erhöhter Leistung und damit auch stärkerer Emission. Industrieemissionen, die früher einen Hauptteil an der Gesamtemission ausmachten, sind durch großflächige Stilllegungen und Modernisierungen praktisch bedeutungslos geworden.

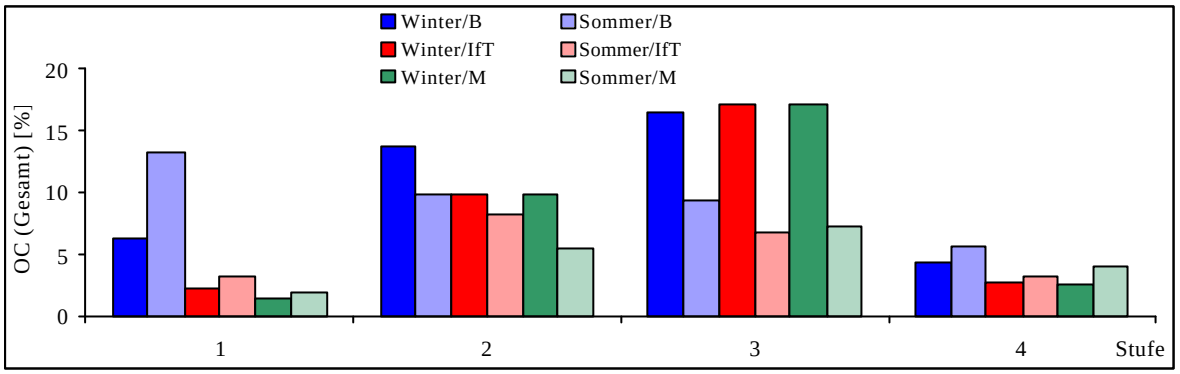


Abbildung 3: Prozentanteil (TC) der einzelnen Stufen an der Gesamtpartikelmasse

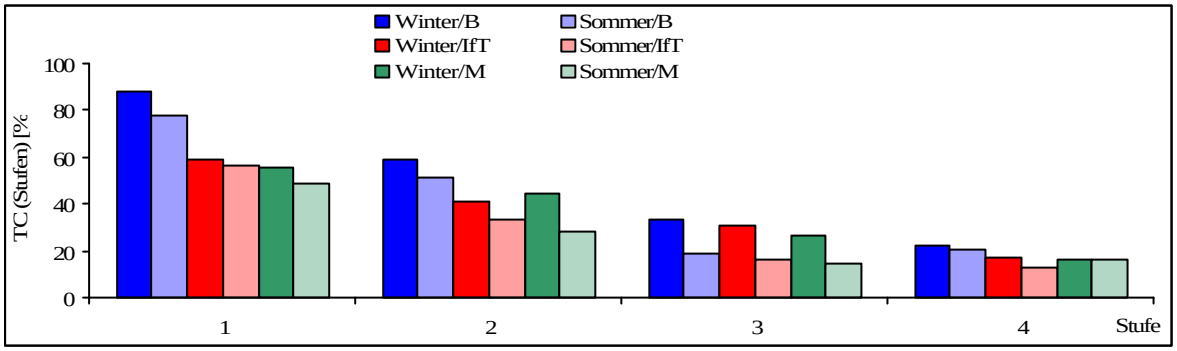


Abbildung 4: Prozentanteil (TC) an den einzelnen Stufenpartikelmassen

Die nicht zu unterschätzende Reemission vor allem gröberer Partikel (Krustenmaterial, Straßenstaub) dürfte im Sommer höher sein als im Winter, da hierbei die Feuchtigkeit eine bedeutende Rolle spielt und trotz im Mittel höherer Windgeschwindigkeiten im Winter mehr Partikel am Boden bindet. Im Sommer kommen außerdem noch die Aufwirbelungen durch landwirtschaftliche Aktivitäten hinzu. Der Beitrag des Ferntransports ist sehr stark von der Herkunft der Luftmasse abhängig, aus der die Proben genommen wurden. Sog. "Sekundäres organisches Aerosol" bzw. sekundäre Aerosolbestandteile als Teil der Kohlenstofffraktion können durch Aufkondensieren bzw. Adsorbieren organischer gasförmiger Emissionen entstehen, die sowohl anthropogene als auch biogene Quellen haben können.

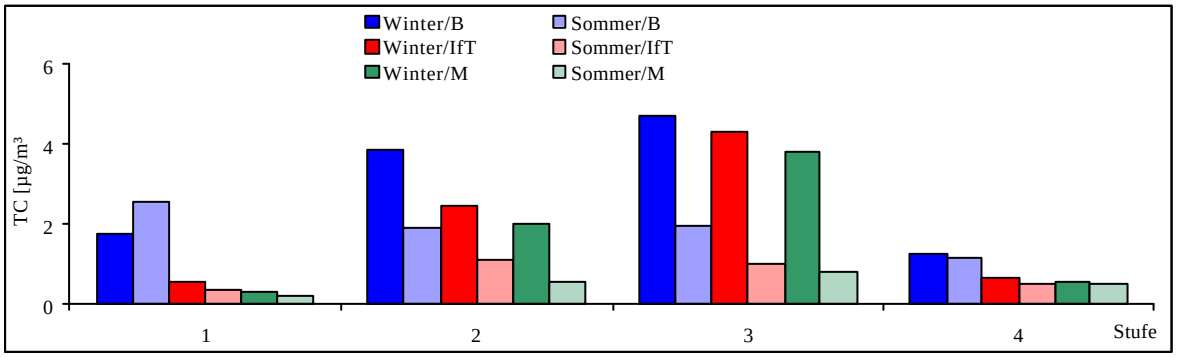


Abbildung 5: Mittlere Luftkonzentration an TC [µg/m³] der einzelnen Stufen an den drei Stationen

Die Analytik ausgewählter organischer Einzelspezies mit besonderer Bedeutung für die Umwelt bzw. auch für die Chemie des atmosphärischen Aerosols ergab, wie die Tabelle 1 verdeutlicht, für die besonders toxischen PAK (**P**olyzyklische **A**romatische **K**ohlenwasserstoffe) drastische Winter-Sommer-Unterschiede, die auf die noch vorhandenen Individualheizungen auf Brikettbasis zurückgeführt werden. Das Niveau der PAK-Belastungen ist aber gegenüber unseren Messungen von 1993/94 deutlich zurückgegangen. Der starke sommerliche Konzentrationsabfall zwischen den Stationen Bahnhof und IfT/Melpitz zeigt die Quelle Kfz-Verkehr deutlich an, die vornehmlich vom Diesel stammt.

Tabelle 1: Konzentration der PAK (Summe aller 19 Einzelspezies) auf den Digitelfiltern

Standort	Winter [ng/m^3]	Sommer [ng/m^3]
Bahnhof	16,41	2,82
IfT	15,56	0,49
Melpitz	15,51	0,35

Sommerliche Emissionen biogenen Materials tragen ebenfalls zum OC-Anteil des Aerosol bei, was aus den Alkanbestimmungen hervorgeht. Während im winterlichen Aerosol ein CPI_{odd}-Wert (**C**arbon **P**reference **I**ndex = c_{odd}/c_{even}) um 1 auf allen Stufen gemessen wird, steigt dieser im Sommer auf Stufe 3 und besonders Stufe 4 auf Werte zwischen 3 und 6 an.
Der Größenverteilungsschwerpunkt der EC/OC-Anteile liegt dabei für die Verkehrsemissionen auf der Stufe 1, für die Hausbrandemissionen auf Stufe 3 und für die sommerlichen biogenen Aerosolanteile auf Stufe 4.

Die Untersuchungen zum Schwermetallgehalt der Partikelproben führten zu wenigen, aussagekräftigen Ergebnissen:

1. Für einige Elemente konnte eine ausgeprägte Saisonalität in der Partikelkonzentration nachgewiesen werden: Blei, Kadmium, Zink, Vanadium und Thallium haben höhere Winterkonzentrationen, die aus den Filterproben deutlicher nachweisbar sind als aus den Impaktorproben, wo die zur Verfügung stehenden Substanzmengen häufig zu Ergebnissen unter der Nachweisgrenze führten.
2. Blei- und Zinkquelle ist die Kohleverbrennung, was auch für Kadmium und Thallium angenommen wird, während für Vanadium die Ölverbrennung als Quelle bekannt ist.
3. Leicht erhöhte Sommerwerte für Mangan lassen den Schluß auf die Resuspension von Krustenmaterial zu.

Die elektronenmikroskopische Charakterisierung der Partikel (Abbildungen 6 und 7) erbrachte wichtige Zusammenhänge, die deutlich über die Identifizierung einzelner Partikel als Ruß oder Bodenbestandteile hinausgehen.
Neben der direkten optische Charakterisierung wird über die Verteilung der mittleren Durchmesser und Formfaktoren eine weitere Partikelkollektivbewertung vorgenommen, deren Ergebnisse letztendlich Rückschlüsse über den Alterungszustand der Partikel einer Luftmasse gestatten und Rückschlüsse auf Quellen im Nah- oder Fernbereich ermöglichen. Außerdem kann bei gleichzeitiger Probenahme an verschiedenen Standorten über die Auswertung der Histogramme auch auf die Gleichartigkeit der Luftmasse geschlossen werden.
Die Röntgenmikroanalyse (EDX) ausgewählter Partikel ermöglichte es, wesentliche Elemente (Silizium, Aluminium und Eisen) einzelner Partikel zu identifizieren und damit deren Herkunft zu erklären (Abbildung 8). Qualitativ konnte so in den meisten Fällen bestätigt werden, dass silikatische und metallhaltige Teilchen für den nicht identifizierten Rest der größeren

Partikel verantwortlich sind. Eine quantitative Aussage war auf Grund der geringen Anzahl aufgenommener Spektren je Probe nicht möglich.

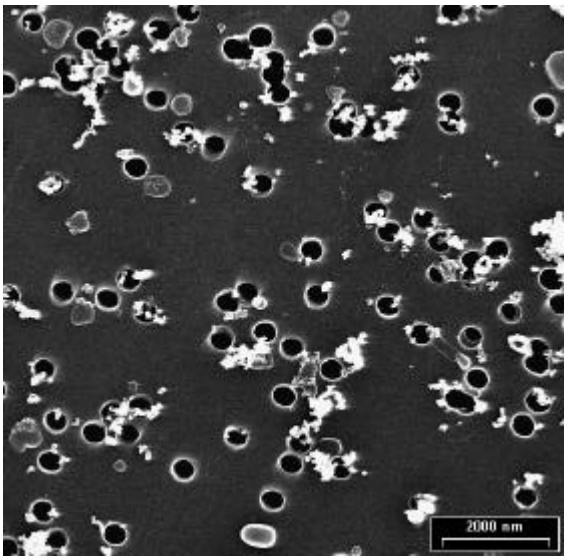


Abbildung 6: Probe (22.12.99) vom Standort Leipzig-Zentrum, durch zahlreiche kleine Rußpartikel gekennzeichnet

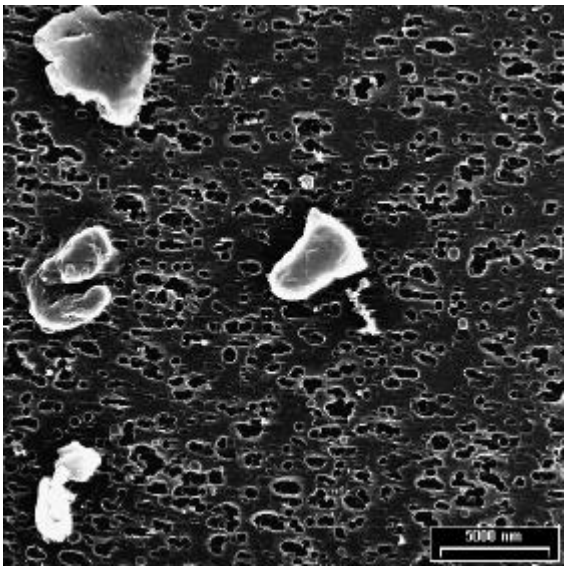


Abbildung 7: Probe vom Standort Melpitz (16.08.00) mit mehreren groben mineralischen Partikeln

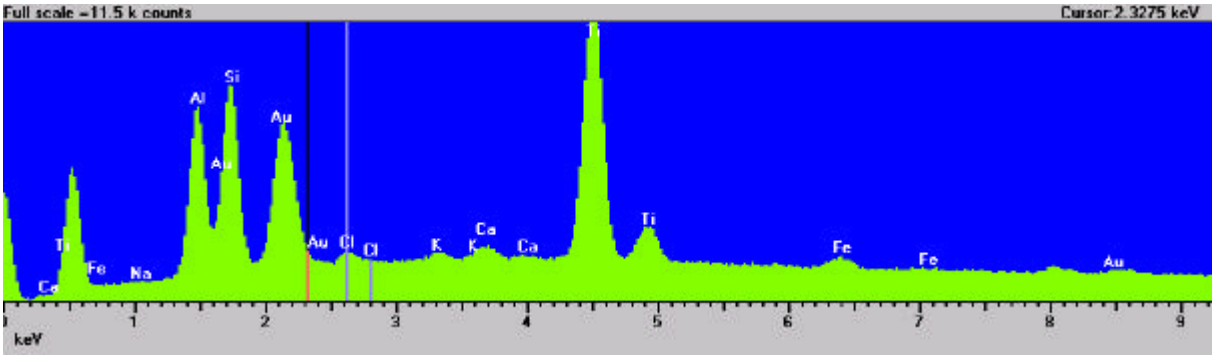


Abbildung 8: EDX-Spektrum eines silikatischen Partikels (Gold- und Titanpeaks stammen von der Probenpräparation)

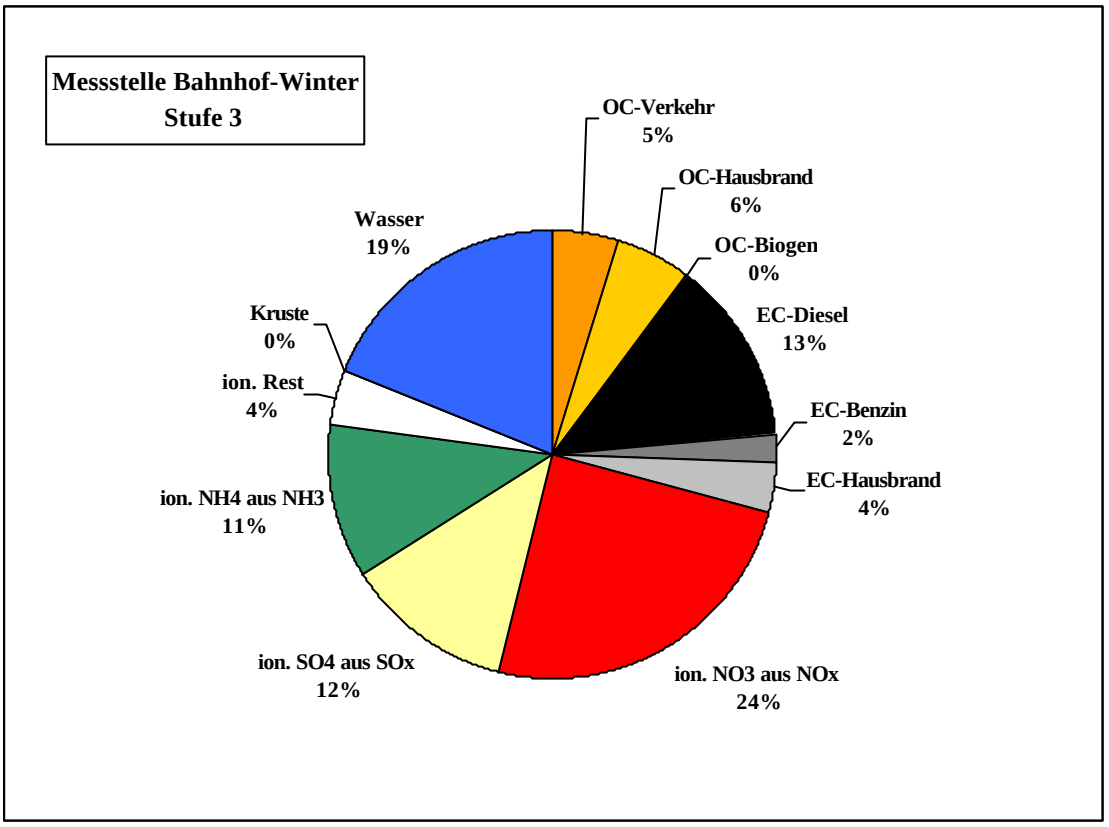
3. Wertung der Ergebnisse und Ausblick

Aus all den Einzelanalysen und unter Berücksichtigung der meteorologischen Gegebenheiten sowie der Rückwärtstrajektorien und der Spurengasmessungen sind Anteile verschiedener wesentlicher Partikelquellen quantifiziert worden. In den Abbildungen 9, 10 und 11 sind drei Beispiele dargestellt, die den Unterschied zwischen der Sommer- und Winterbelastung mit Partikeln der bedeutendsten Größenklasse (0,42 µm bis 1,2 µm) an allen drei Standorten aufzeigen. Diese Kreisdiagramme liegen für alle Standorte und alle vier Größenklassen von Partikeln vor.
Auffällig sind beim Sommer-Winter-Vergleich die Sulfat- und Nitratkonzentrationen sowie die Verteilung der OC/EC-Quellen auf die gemessenen Gesamtbelastungen. Die sommerlich hohen Anteile an Krustenmaterial fallen ebenfalls ins Auge.
Natürlich muß angesichts der geringen Zahl von Probenahmen die statistische Sicherheit der Aussagen infragegestellt werden. Jedoch zeigen die Ergebnisse deutlich, dass ein nicht unerheblicher Anteil der Feinstaubbelastung anthropogenen Ursprung ist und mit einer weiteren Reduzierung der Brikett- und Holzverbrennung in Einzelfeuerstätten sowie der Einführung von Partikelfiltern für Dieselfahrzeuge, hier vor allem für die schweren Lastkraftwagen, eine Senkung der Partikelbelastung erreicht werden kann.
Die günstigen meteorologischen Randbedingungen während dieses Projektes dürfen nicht darüber hinwegtäuschen, dass in austauschärmeren Wetterlagen bzw. bei stabilen winterlichen Hochdruckwetterlagen die Partikelbelastung deutlich höher sein wird, was daraufhin deutet, dass in sächsischen Ballungsräumen Überschreitungen der EU-Richtlinien wahrscheinlich sind.

In der Zukunft sollten ähnliche Projekte mit einer weiterentwickelten Metallanalytik sowie einer weiterentwickelten Einzelpartikelcharakterisierung durchgeführt werden. Ebenfalls wünschenswert ist die Einbeziehung der Analytik organischer Einzelsubstanzen als charakteristische Tracer bestimmter Quellen und/oder bestimmter troposphärischer Umwandlungsprozesse. Die organische Partikelanalytik dieser Einzelsubstanzen ist jedoch mit bedeutendem Aufwand verbunden. Falls möglich, sollte auch die Anzahl der untersuchten Proben ausgeweitet werden, um statistisch möglichst belastbare Aussagen zu erhalten.

4. Danksagung

Die technische Realisierung der Probenpräparation und Analytik lag in den Händen zahlreicher technischer Mitarbeitern des IfT und des UFZ, denen wir unseren Dank ausdrücken wollen. Für die Unterstützung unserer Forschungsarbeiten sind wir dem Sächsischen Landesamt für Umwelt und Geologie für die finanzielle Unterstützung und die Bereitstellung ausgewählter Messdaten zu Dank verpflichtet. Der UBG danken wir für die zeitweilige Überlassung eines Filtersammlers und die Möglichkeit der Mitnutzung des Messcontainers am Halleschen Tor.



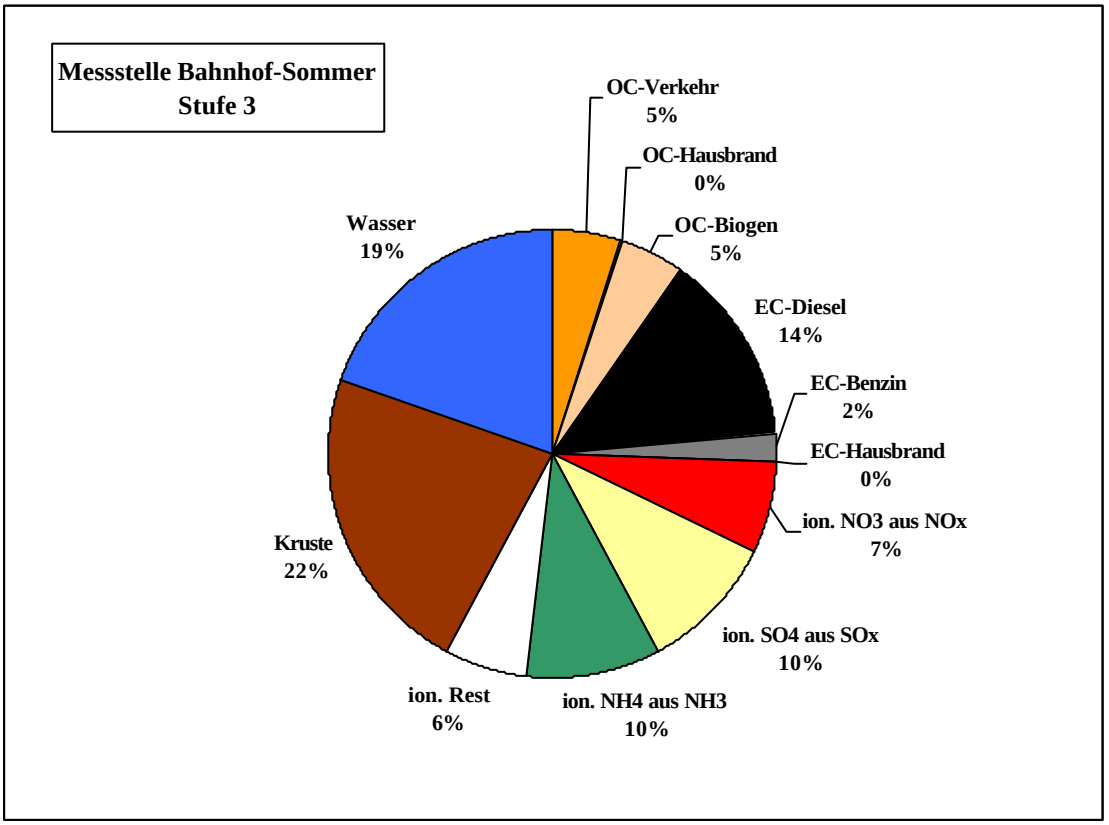
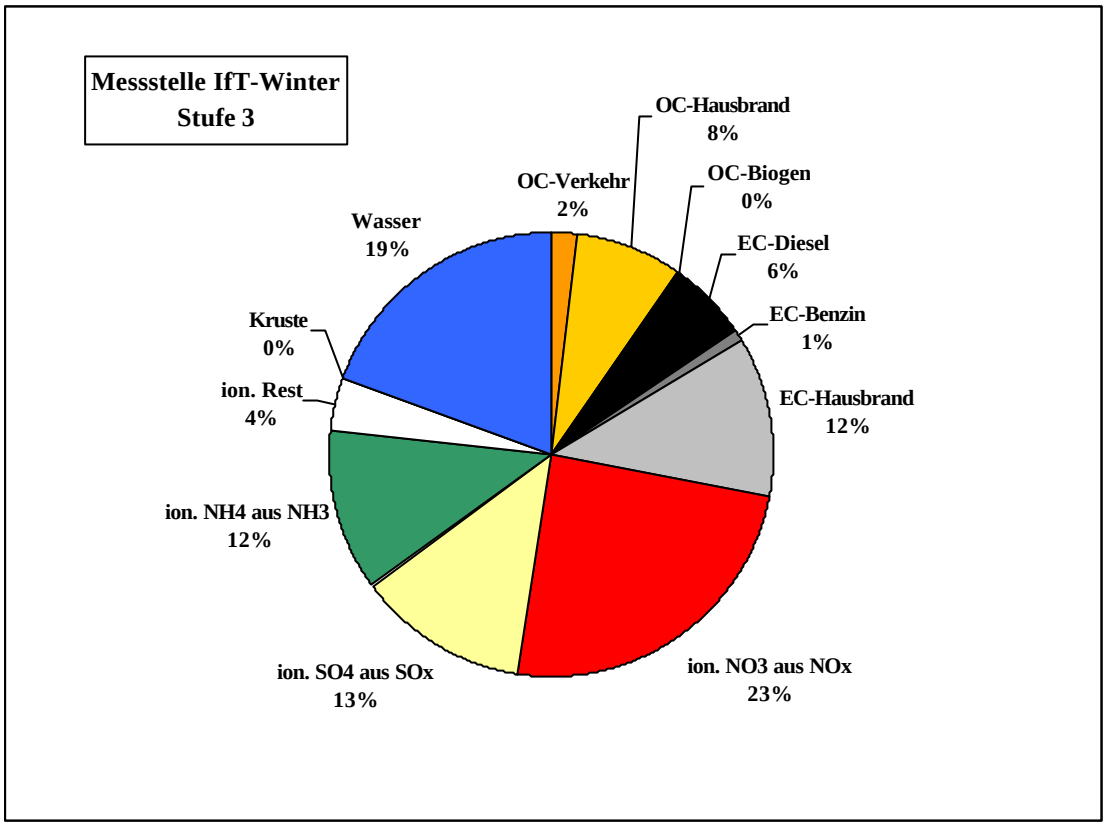


Abbildung 9: Quellenzuordnung der Partikel der Stufe 3 für die Station Leipzig Bahnhof für beide Messkampagnen



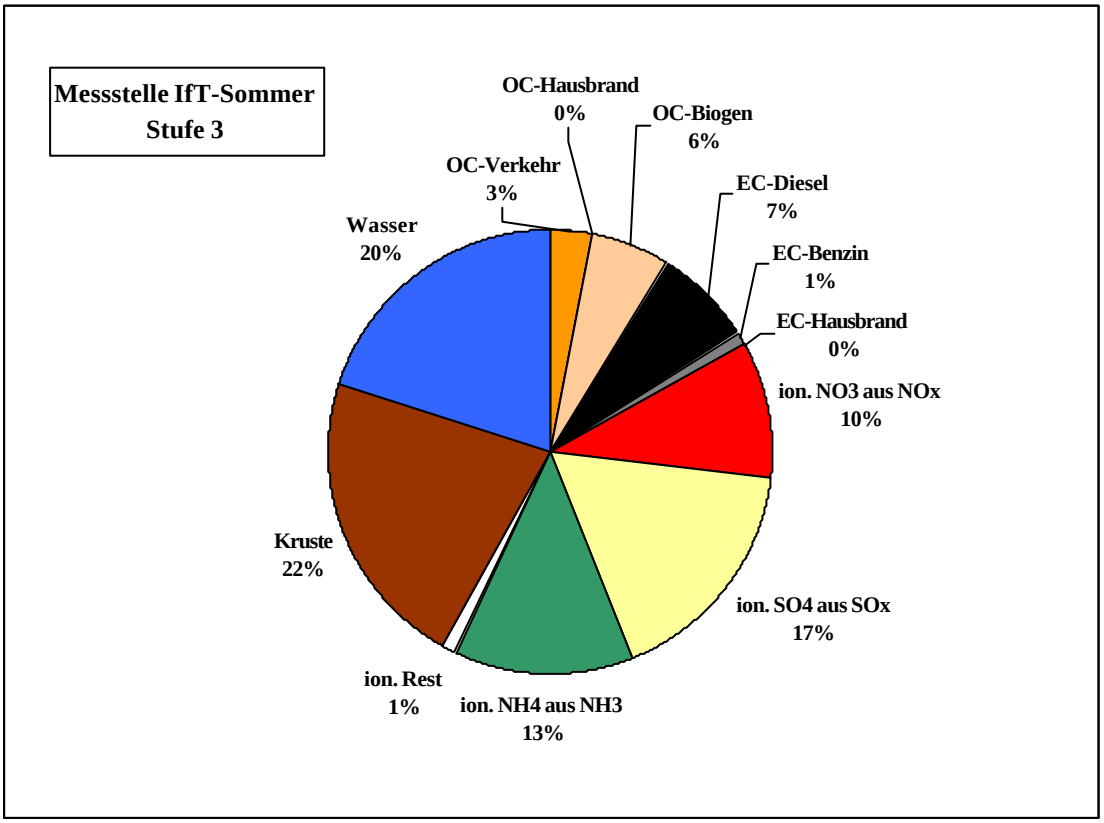
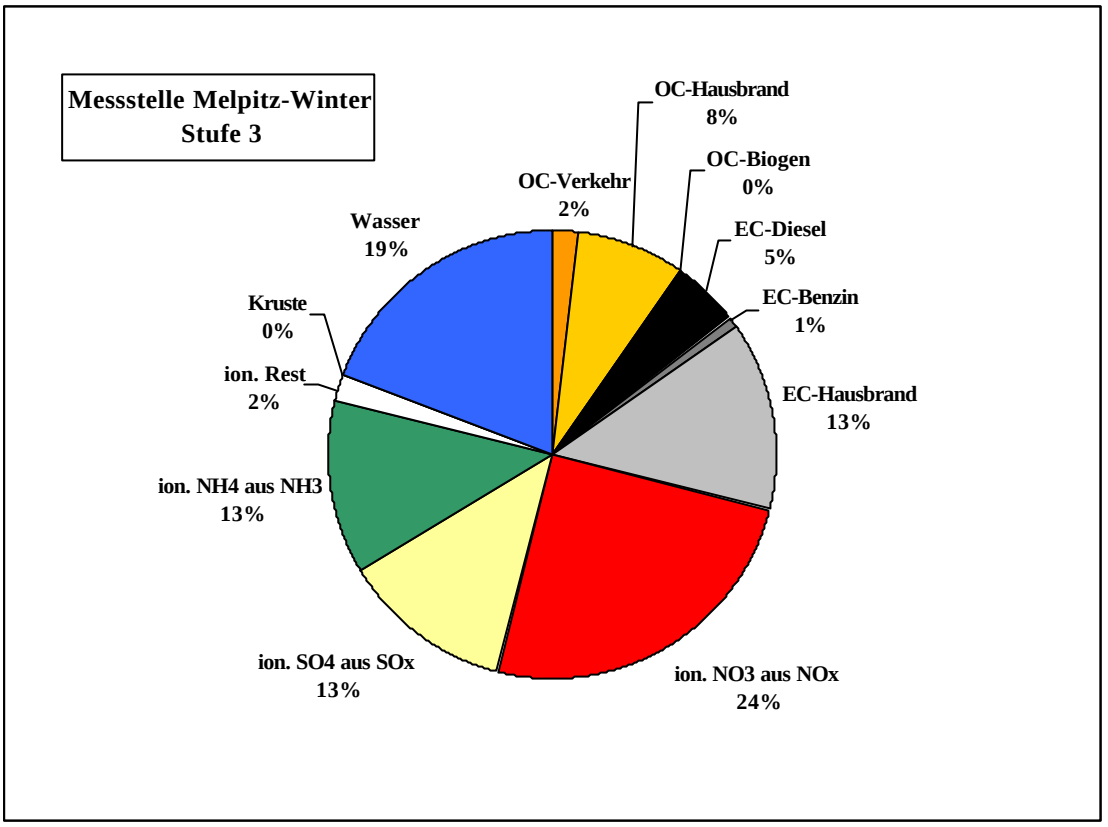


Abbildung 10: Quellenzuordnung der Partikel der Stufe 3 für die Station IfT für beide Messkampagnen



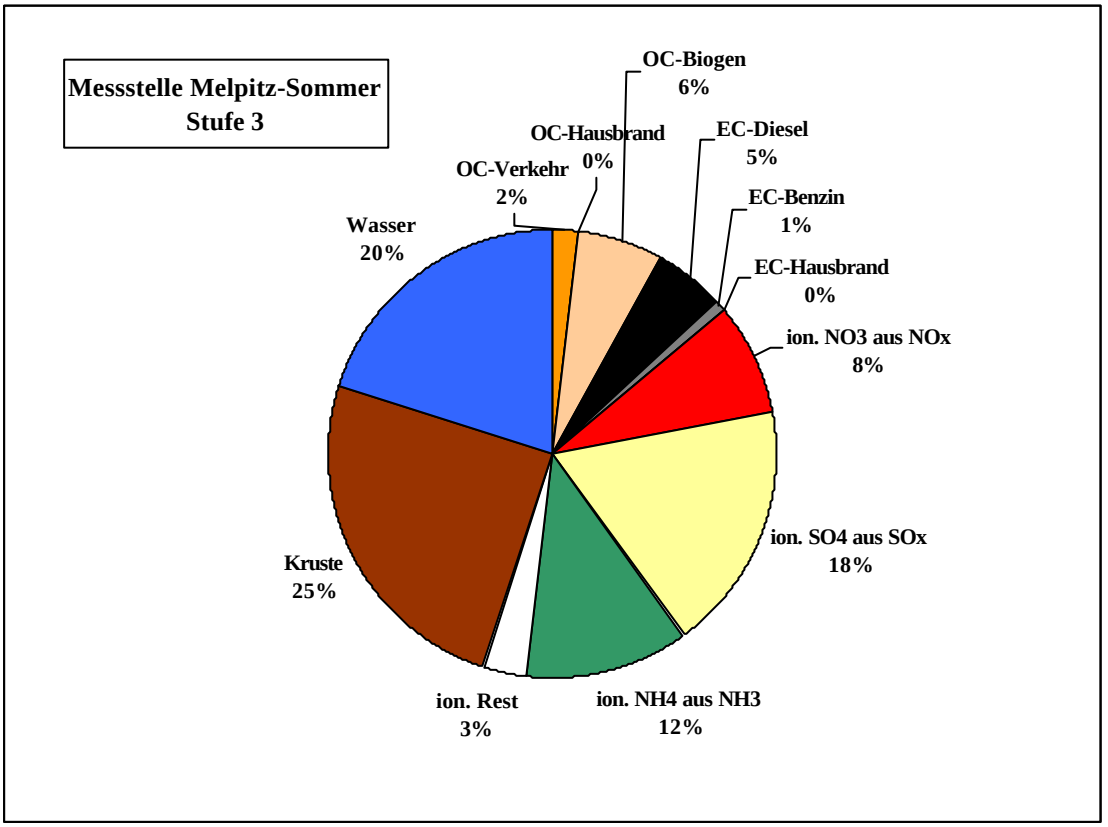


Abbildung 11: Quellenzuordnung der Partikel der Stufe 3 für die Station Melpitz für beide Messkampagnen

Erster Versuch einer Quellenzuordnung für PM10 in Berlin

Martin Lutz, Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Berlin

1. Einleitung

Bei der Beurteilung der Luftqualität in Berlin nach den neuen EU-Tochterrichtlinien tritt neben der Überschreibung der Stickoxid Grenzwerte als Hauptproblemfeld eine relativ hohe Belastung an Feinstaub (PM10) zu Tage. Obwohl zu erwarten ist, dass die Berliner Emissionen von PM10 in den nächsten Jahren um 10-15% weiter zurückgehen, ist in 2005 noch mit einer Überschreitung dieses Grenzwertes in einigen hochbelasteten Straßenschluchten zu rechnen, wenn nicht zusätzliche Maßnahmen zur Minderung der Emissionen ergriffen werden und die regionale Hintergrundbelastung nur mäßig zurückgeht (zu Details s. SenStadt, 2001).

Als Grundlage für die notwendige Entwicklung von Maßnahmenkonzepten muss deshalb der Frage nachgegangen werden, was die Ursachen der PM10-Belastung sind und in welcher Größenordnung welche Quellgruppen zur Belastung beitragen.

Im Folgenden werden zunächst einige Beispiele für eine qualitative Untersuchung der Ursachen hoher Feinstaubwerte präsentiert. Darauf aufbauend werden Ergebnisse des Versuchs einer für Berlin möglichst vollständigen Quellzuordnung vorgestellt (siehe auch Lenschow, et. al., 2001).

2. Beispiele für eine qualitative Untersuchung der Ursachen von PM10

- **Auswahl räumlicher Kategorien der PM10 – Belastung („Scaling“)**

Die räumlich Verteilung der PM10-Werte in und um Berlin zeigt trotz der dominierenden Rolle des Verkehrs vergleichsweise geringere Unterschiede zwischen der Immission in den Wohngebieten der Innenstadt und der Belastung an Hauptverkehrsstraßen als bei anderen verkehrsrelevanten Schadstoffen wie NOx oder Benzol. Gleiches gilt für den Gradienten zwischen Stadtrand und innerstädtischem Wohngebiet. Angesichts der beträchtlichen Aufenthaltsdauer von Feinstaubpartikeln in der Luft ist zu erwarten, dass erhöhte Feinstaubkonzentrationen sich nicht auf quellnahe Standorte beschränken. Während Belastungsspitzen naturgemäß in Verkehrsnähe auftreten, vermischen sich die flächenhaften Emissionen aus dem Verkehr und aus weiteren Quellen zu einer relativ gleichmäßigen urbanen Hintergrundbelastung.
Vergleiche der PM10 – Verläufe an mehreren abgelegenen Messpunkten im weiteren Umland von Berlin, sowie am Funkturm Frohnau in 320m Höhe (Bake et. al, 1997), zeigen einen bemerkenswert gleichförmigen Verlauf. Dies deutet darauf hin, dass auch die PM10-Konzentration im ländlichen Hintergrund im zeitlichen Mittel eine relativ gleichmäßige Verteilung aufweist. Bedingt durch die einfache räumliche Struktur des Großraumes Berlin, mit der dichtbesiedelten Stadt umgeben von einem noch relativ dünn besiedelten Umland, könnte die räumliche Verteilung der PM-Belastung dem in Abb. 1 stilisierten Bild relativ nahe kommen.

Ein erster Schritt Richtung Ursachenanalyse kann also darin bestehen, den lokalen PM-Anteil aus dem Verkehr oder von Punktquellen von der, durch Überlagerung sämtlicher städtischer Quellen entstehenden städtische Hintergrundbelastung und dem, was als regionale Zusatzbelastung von außerhalb der Stadt hinzukommt, zu separieren. Dazu wurde

für die hier vorgestellten Auswertungen unter den verfügbaren PM10-Messstellen die folgende, für die drei räumlichen Kategorien repräsentative Auswahl getroffen:

- regionaler Hintergrund:

  UBA Messstellen Waldhof und Neuglobsow mit Messungen von PM10 und Inhaltstoffen; Messstelle Buch des LUA Brandenburg
  Messstelle 77 des Berliner Luftgüte-Messnetzes (BLUME) in Berlin-Buch am nordöstlichen Stadtrand, mit PM10-FH-IR Geräten und Messgeräten für gasförmige Schadstoffe
- urbaner Hintergrund

  BLUME-Messstelle 42, Nansenstrasse, im innerstädtischen Wohngebiet Neukölln, mit halbwöchiger, zeitweise täglicher PM10-Probenahme mit Kleinfiltergeräten und Analyse der Inhaltsstoffe, PM10-FH-IR-Geräten und Geräten für gasförmige Komponenten
- lokale Verkehrsbelastung

  BLUME-Messstelle 174, Frankfurter Allee, an einer belebten Hauptverkehrsstraße, Messungen wie in der Messstelle Nansenstraße

Die hier vorgenommene Kategorisierung wurde als Grundlage der in Kapitel 3 beschriebenen Quellzuordnung benutzt. Aus der Differenz der Messwerte zwischen den Kategorien „lokal“ und „urbaner Hintergrund“ konnte der Anteil des lokalen Verkehrs abgeleitet werden. Der Unterschied zwischen urbaner Hintergrundbelastung und regionalem Hintergrund reflektiert den integralen Beitrag aller Quellen in der Stadt.

- **Betrachtung der PM-10 Messwerte nach Windrichtung und geographischer Herkunft**

Ein Beispiel einer windrichtungsabhängigen Darstellung zeigt Abbildung 2. Die Windrosen, berechnet aus den Gesamtstaubwerten eines Jahres, zeigen eine Asymmetrie zu deutlich höheren Konzentrationen bei Südostwind, die fast unabhängig vom Standort der Messstelle auftritt. Die Vermutung, dass sich eine starke PM-Quelle außerhalb der Stadt befindet, wurde erst kürzlich während einer Episode im Januar 2001 bestätigt. Abbildung 3 zeigt die Verläufe der Windrichtung, von PM10 im urbanen Hintergrund und an der Hauptverkehrsstraße, sowie die Differenz aus beiden, also den Beitrag des lokalen Verkehrs. Während bei Drehung von West- auf Südostwind der lokale Beitrag des Verkehrs nahezu konstant bleibt, steigt die Belastung im urbanen Hintergrund auf 150 µg/m³ an. Gleichzeitig treten um den 20. Januar herum hohe Werte zwischen 80 und 140 µg/m³ an nahezu allen Stationen in Brandenburg auf. Anhand zeitlicher Verläufe von Rückwärtstrajektorien kann der Schluss gezogen werden, dass die Hauptursache der hohen Belastung nicht auf einer einzelnen Quelle im Berliner Umland beruht, sondern vermutlich weiter südlich in Sachsen und Tschechien zu suchen ist. Berechnungen der räumlichen Verteilung der Dichte von Rückwärtstrajektorien an Tagen mit erhöhter Belastungen verstärken den Eindruck, dass Südpolen und Tschechien für den Berliner Raum als Ausgangsgebiet für eine erhöhte PM-Grundbelastung betrachtet werden kann.

- **Gleichzeitige Betrachtung der Verläufe von PM10 und anderer Komponenten**

Beim Vergleich der langjährigen Staub- und Schwefeldioxidwerte wird deutlich, dass der noch vor 10 Jahren vorhandene Gleichlauf beider Reihen inzwischen völlig verloren gegangen ist. Das nunmehr fehlende Wintermaximum bei Staub weist auf eine veränderte Emittentenstruktur hin, mit schwindenden Beiträgen aus dem im Winter stärker emittierenden Heizungssektor.

Ein enger funktionalen Zusammenhangs zwischen PM10 und NOx besteht an der Verkehrsmessstelle Frankfurter Allee. Unabhängig vom Wochentag lässt sich der PM10-

Verlauf relativ gut über eine lineare Gleichung mit NOx als unabhängiger Variablen modellieren. NOx ist offensichtlich besonders gut geeignet, weil es – wie PM10 – mit NO sowohl den lokalen Beitrag des Verkehrs berücksichtigt, also auch mit NO2 den Effekt weiter entfernter Quellen im städtischen Hintergrund abbildet. Demnach ergibt sich eine Relation von 17 µg/m³ PM10 zu 100 µg/m³ NOx, wenn man einen Offset von 19 µg/m³ berücksichtigt, der aus Quellen stammt, die nicht den Tages-Wochengang des NOx haben. Dieser Offset korrespondiert zahlenmäßig gut mit der im regionalen Hintergrund gemessenen PM10-Konzentration.

2.4. Einbezug von Staubinhaltsstoffen, wie z.B. Ruß

Ruß ist ein guter Indikator für Verbrennungsprozesse, insbesondere aus Dieselmotoren und Hausbrand. Hinweise auf den unterschiedlichen Beitrag von LKW-Emissionen erhält man aus einem Vergleich der mittleren Wochengänge von CO, NOx und Ruß (Abbildung 5). Skaliert man alle Kurven auf ein gleiches Niveau während des Sonntags mit nahezu keinen LKW-Verkehr, kann der Beitrag dieser Fahrzeugklasse während der Werktage anhand der Abweichung der NOx und Rußkurven vom CO-Verlauf beurteilt werden.

Erstaunlicherweise lässt sich auch die PM10-Konzentration mit Ruß gut modellieren, indem man das alte englische Modell "PM = Faktor * Schwärzung" aufnimmt, den Ruß aber vorher um eine an das Stickoxid gebundene Komponente vermindert. Der zur bestmöglichen Anpassung notwendige Ruß/NOx-Quotient beträgt am Stadtrand 0,03 (s. Abbildung 4). Die Abnahme gegenüber dem Quotienten an der Frankfurter Allee (0,04) kann einerseits damit erklärt werden, dass auf dem im Mittel ca. 30 km langen Transportweg über die Stadt Ruß ausfällt, während das NOx erhalten bleibt. Es kann aber auch angenommen werden, dass die Relation der Frankfurter Allee erhalten bleibt. Die mittlere Differenz von 5 µg/m³ (20%) zwischen Messung und Modell kann dann als "Stadteinfluss" auf diese Station interpretiert werden. Es bleibt ein Rest von etwa 5 µg/m³, der nicht mit dem Ruß korreliert.

Harrison et. al. (DETR, 1999) schlagen vor, das alte englische Modell einer Berechnung des Schwebstaubes mit Hilfe von Messwerten von Black Smoke als Leitsubstanz für Verbrennungsabgase um Sulfat als Leitsubstanz für Sekundärstoffe und Chlorid als Leitsubstanz für Meereseinflüsse zu ergänzen. Das hier vorgestellte Modell könnte mindestens für Ballungsgebiete eine Alternative sein, insbesondere deshalb, weil es die Sekundärschadstoffe mit dem Ruß in die Kategorie Verbrennung einbezieht, weil mit Hilfe des NOx die überproportional hohe Rußemission des Kfz-Verkehrs berücksichtigt wird und weil damit auch der Einfluss des Kfz-Verkehrs abgeschätzt werden kann. Das Modell benötigt nur die automatisch gut messbaren Substanzen PM10, Ruß (Aethalometer, FH-Rußzahl) und NOx.

3. Ein erster Versuch einer Quellzuordnung der PM10-Belastung in Berlin

Abbildung 6 zeigt schematisch Übergang von den, die Verschmutzung verursachenden Verursachersektoren, über die durch sie ausgestoßenen Schadstoffe und ihre Ausbreitung, bis hin zur Immission. Das Ziel der hier versuchten Quellzuordnung besteht in der Quantifizierung der durch jeden Sektor hervorgerufenen Immission.

Die dabei vorgenommene Unterscheidung zwischen überregionaler, urbaner oder lokaler Herkunft ist nicht nur ein methodisches Mittel zum Zweck der Quellzuordnung. Die Abgrenzung urbaner und lokaler Verursacher von nicht beeinflussbaren Quellen außerhalb eines urbanen Ballungsraumes (oder einer bestimmten Region bzw. eines Landes) dient außerdem dazu, den eigenen Handlungsspielraum für Maßnahmen zur Verbesserung der Luftqualität abzuschätzen.

Im Idealfall würde man für die Ableitung einer quantitativen Beziehung zwischen Quellen und Immission Ausbreitungsmodelle zur Hilfe nehmen. Dies ist zur Zeit noch nicht möglich, da geeignete Modelle und die dazu notwendigen Daten erst in Entwicklung sind.

In Ermangelung von Modellrechnungen wurde eine vorläufige Quellzuordnung vorgenommen, indem – wie nachfolgend dargestellt - verursacherspezifische Emissionsangaben mit den verschiedenen gemessenen Konzentrationen der Staubinhaltsstoffe in einfacher Weise verknüpft wurden.

a) Natürliche Quellen
   Deren Beitrag aus primären und sekundären Quellen natürlichen Ursprungs (z.B. Pollen, durch den Wind aufgewirbelte Erdkruste, Vulkane) wurde auf insgesamt etwa 6 µg/m³ PM10 geschätzt. Es wurde angenommen, dass zwei Drittel davon im regionalen Hintergrund vorwiegend als Sekundärstaub erscheinen und jeweils etwa ein Sechstel im urbanen Hintergrund (meist Pollen als OM) und lokal (aufgewirbelte Erdkruste als „rest") enthalten ist.
b) Anthropogener Sekundärstaub
   Die sektorspezifische Aufteilung des gemessenen **Sekundärstaub**beitrages (Sulphat, Nitrat und Ammonium-Ionen) zum *urbanen* PM-Hintergrund wurde anhand der prozentualen Anteile der Sektoren an den *Berliner* Emissionen der für die Sekundärstaubbildung relevanten gasförmigen Stoffe (SO2, NOx und VOC) vorgenommen. Zur Aufteilung des Beitrages zum *regionalen* PM-Hintergrund wurden *deutschlandweite* Emissionsdaten (Quelle: Umweltbundesamt) verwandt.
c) Anthropogener Primärstaub

- Die sektorspezifische Aufteilung des gemessenen **Primärstaub**beitrages zum *urbanen* **PM-Hintergrund** wurde anhand der prozentualen Anteile der Sektoren an den *Berliner* Staub-Emissionen vorgenommen. Zur Aufteilung des Beitrages zum *regionalen* PM-Hintergrund wurden *deutschlandweite* Staub-Emissionsdaten (Quelle: Umweltbundesamt) herangezogen, wobei zum Ausgleich der fehlenden Kategorie „Staubaufwirbelung durch den Verkehr" ein, mit den Berliner Anteilen konsistenter Beitrag hinzugefügt wurde.
  Zum Zweck der Quellzuordnung der primären PM-Immission im urbanen und regionalen Hintergrund wurden zunächst die PM-Emissionen pro Sektor (jeweils für Berlin und Deutschland) nach dem folgenden sektorspezifischen Schlüssel in die Komponenten EC, OC und Rest aufgeteilt. Die Tabelle enthält außerdem einen Beitrag zur OC-Emission, der anhand der VOC-Emissionen aufgeteilt wird. So wurde über die VOC-Emissionen ein gewisser (10%) Beitrag benzingetriebenen Fahrzeuge an der primären OC-Emission des Verkehrs unterstellt, obwohl sie laut UBA-Handbuch zu den primären PM Emissionen nichts beitragen,
  Bei Zuordnung der Staubaufwirbelung aus dem Verkehr wurde der Tatsache Rechnung getragen, dass 70% des aufgewirbelten Materials an der Straße aus relativ groben Partikel zwischen 10 und 2.5 µm Größe besteht, die überwiegend in einem Bereich von wenigen Kilometern wieder deponiert werden. Der Beitrag der Aufwirbelung in Straßen wird deshalb für urbanen Hintergrund stärker gewichtet (50% derselben Emissionskategorie) als für den regionalen Hintergrund (20%). Um den Einfluss der Emissionshöhe auf die Immission zu berücksichtigen, werden genehmigungsbedürftige Anlagen im Berliner Stadtgebiet mit einem geringeren Faktor von 0.16 der entsprechenden Primärstaub-Emissionen gewichtet. Der Faktor wurde aus Ausbreitungsrechnungen abgeleitet. Für den regionalen Hintergrund fand keine Wichtung statt.

Faktoren zur Aufteilung der Primäremissionen

	Aufteilung der PM-Emissionen auf...			Zusätzlicher Beitrag zum OC, aufgeteilt anhand der VOC-Emissionen		Gewichtung der Emissionen durch Aufwirbelung		Anmerkung
	rest	EC	OC	regional Hintergrund	urbaner Hintergrund	regional Hintergrund	urbaner Hintergrund	
genehmigungsbedürftige Anlagen	0,8	0,2	0,0	0,1	0,1			Anwendung eines Faktors von 0.16 auf die Berliner Emissionen
Hausbrand	0,5	0,2	0,3	0,1	0,1			Spalte 1-3 nach Ehrlich et. al., 2000
Kleingewerbe	0,5	0,2	0,3	0,1	0,01			wie „Hausbrand“, eigene Schätzung
Haushalte				0,05	0,01			eigene Schätzung; Faktor 0,01 zur Berücksichtigung der kürzeren Quell-Rezeptorentfernung
Verkehr	0,0	0,4	0,6	0,1	0,1			Spalte 1-3 nach UBA-Handbuch, 1999
Aufwirbelung durch den Verkehr	0,8	0,1	0,1			0,2	0,5	Nach Rauterberg-Wulf, 2000
Lösemittelverbrauch				0,01				ist für Berlin „Haushalte“ und „Kleingewerbe“ bereits enthalten
übrige Quellen (Baustellen, etc.)	1,0	0,0	0,0	0,1	0,1			eigene Schätzung

- Zur sektorspezifischen Zuordnung des ***lokalen*** PM-10 Beitrages wurde (nach Untersuchungen von Rauterberg-Wulf, 1998 und 2000) angenommen, dass der kohlenstoffhaltige Anteil (55%) zu vier Fünftel den Emissionen aus dem Auspuff und ein Fünftel aus Reifenabrieb besteht. Der Rest (45%) wurde der Kategorie „aufgewirbelter Straßenstaub“ zugeordnet.

Die vollständigen Ergebnisse der Quellzuordnung sind in Tabelle 2 wiedergegeben. Sie beruhen ausschließlich auf Jahresmittelwerten der PM- Konzentration bzw. seiner Komponenten. Hier einige der wichtigsten Erkenntnisse in graphischer Form:

- Abbildung 7 zeigt die nach räumlichen Kategorien vorgenommene Aufteilung der PM10-Belastung an einer Verkehrsmessstelle zwischen regionalem und urbanem Hintergrund, sowie dem lokalen Verkehrsbeitrag. Mehr als ein Drittel ist auf externe Einflüsse zurückzuführen, die sich der Kontrolle lokaler Minderungsstrategien entziehen.
- Zum Vergleich zeigt Abbildung 8 die Aufteilung der PM-10 Konzentration in Inhaltstoffkategorien. Ein Teil des Sekundärstaub stammt demnach aus dem urbanen Hintergrund. Aufgrund verschiedener Autoren der Messwerte für den regionalen und urbanen Hintergrund sollte diese Aussage in Zukunft verifiziert werden.
- Abbildung 9 zeigt den Beitrag aller Quellsektoren zur PM10-Belastung an einer verkehrsreichen Straße. Der Verkehr ist mit mehr als 50% der dominierende Sektor. Beschränkt man sich auf die beinflußbaren Quellen innerhalb der Stadt, wächst der Anteil des Verkehrs sogar auf 70% (siehe Abbildung 10). Weitere, nicht vernachlässigbare Verursacher sind Bautätigkeit und Haushalte (Ofenheizung).

4. Zusammenfassung und Ausblick

Auf der Basis von Emissionsdaten, PM10 und Inhaltstoffanalysen im regionalen und urbanen Hintergrund, sowie an einer Verkehrsmessstelle wurde ein erster Versuch einer Zuordnung der Quellsektoren zur gemessenen Feinstaubbelastung in Berlin vorgenommen. Als wesentliche Ergebnisse lassen sich festhalten,

- dass die Lösung von mehr als ein Drittel des PM10-Problems großräumig (national und international) koordinierte Maßnahmen verlangt. Die Auswertung einer Episode hoher

PM10-Belastung verstärkt den Eindruck, dass Quellen und Rezeptoren von PM10 - und in noch stärkerem Maße PM2.5 – über größere Entfernungen transportiert wird.

- dass bei den beeinflussbaren Verursachern innerhalb des Berliner Stadtgebietes der Verkehr die absolut dominierende Rolle spielt, und
- dass ein signifikanter Teil der Verkehrsemissionen nicht aus dem Auspuff stammt, sondern als Reifenabrieb und aufgewirbeltes Material von der Anzahl der fahrenden Kraftfahrzeuge abhängt.

Die bisher getroffenen Aussagen sollten auf der Grundlage

(i) zeitlich verdichteter und räumlich konsistenterer Messdaten, sowie besserer Informationen zur Verknüpfung der gemessenen Staubinhaltsstoffe mit den verfügbaren Emissionsdaten

(ii) von groß- und kleinräumigen Ausbreitungsrechnungen

verifiziert werden.

Zu (i) beginnt im Oktober 2001 ein Messprojekt, in dem ein Jahr lang Tagesproben von PM10 an

- zwei Messstellen am Stadtrand, repräsentativ für den Beitrag von außerhalb
- einer Messstelle im urbanen Hintergrund
- und an einer Verkehrsmessstelle

gesammelt werden. Davon werden die wichtigsten Inhaltsstoffe (EC, OM, Ionen, Fe und Rest) bestimmt. Zusammen mit den etwa zweimal pro Woche routinemäßig durchgeführten Inhaltsstoffanalysen von PM2.5 und PM1.0 und zusammen mit weiteren PM10-Messwerten aus dem regionalen Hintergrund in Brandenburg soll ein Datensatz erzeugt werden, mit dem der hier gemachte Versuch einer Quellzuordnung wiederholt werden soll. Der Datensatz dient außerdem als Grundlage für die Validierung von Modellen.

Literatur:

Bake, D., O. Hehl, K. Hoffmann, D. Ullrich, D. Wintermeyer: Untersuchung der Schadstoffbelastung einer stadtnahen atmosphärischen Grenzschicht – Analyse der Herkunft, chemischer Zusammensetzung und vertikaler Verteilung der Schwebstaub- und Kohlenwasserstoff-Immissionen am Fernmeldeturm Berlin-Frohnau. Abschlußbericht B 2009 UF, im Auftrag der Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Umweltschutz und Technologie, Berlin, November 1997.

DETR (1999): Airborne Particles Expert Group, "Source Apportionment of Airborne Particulate Matter in the United Kingdom" Prepared on behalf of the Dept. of Enviroment, Transport and Regions, January 1999, ISBN 0-7058-1771-7

Lenschow, P, H.-J- Abraham, K. Kutzner, M. Lutz, J.D. Preuß, W. Reichenbächer, 2001, Some ideas about the sources of PM10, *Atmospheric Environment 35/1001, pp23-33*

Rauterberg-Wulff, A., 1998. Beitrag des Reifen- und Bremsenabriebs zur Russimmission an Strassen. VDI-Fortschr.-Ber. Reihe 15, Nr.202, VDI-Verlag Düsseldorf.

Rauterberg-Wulff, A., 2000. Untersuchung über die Bedeutung der Staubaufwirbelung für die PM10-
Immission an einer Hauptverkehrsstrasse. Technische Universität, Abschlussbericht
für die Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Umweltschutz und Technologie, Berlin

SenStadt, 2001: Die Luftqualität in Berlin im Jahr 2000. Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Berlin. Verfügbar unter http://www2.senstadt.verwalt-berlin.de/umwelt/luftreinhaltung/luftqualitaet_2000/download/luftbericht_2000.pdf

Tabelle 1

	Partikel PM10				Schwefeldioxid				Stickoxide				VOC				Ammo-niak	
	Deutschland		Berlin		Deutschland		Berlin		Deutschland		Berlin		Deutschland		Berlin		Deutschland	
	kt	%	kt	%	kt	%	kt	%	kt	%	kt	%	kt	%	kt	%	kt	%
genehmigungs-bedürftige Anlagen	95	38.8	1.9	20.3	1119	86.6	7.9	71.3	564	31.7	7.5	24.8	140	8.2	2.2	3.8	8	1.3
Hausbrand	29	11.8	0.5	5.3	102	7.9	2.5	22.6	103	5.8	3.0	9.9			1.0	1.7		
Haushalte													56	3.3	10.0	17.2		
Kleingewerbe	5	2.0	0.1	1.5	37	2.9	0.0	0.4	38	2.1	1.0	3.3	5	0.3	10.0	17.2		
KFZ-verkehr	43	17.6	2.4	25.6	30	2.3	0.5	4.5	856	48.1	17.0	56.3	409	24.0	28.0	48.3		
Aufwirbelung durch den verkehr	43	17.6	2.4	25.6														
Übriger Verkehr	20	8.2	0.2	2.6	5	0.4	0.1	1.3	220	12.4	1.7	5.6	53	3.1	2.8	4.8		
Lösemittelverbrauch													1000	58.7				
Viehzucht																	525	84.0
Düngemittel-anwendung																	70	11.2
Übrige Quellen (Bautätigkeit etc)	11	4.5	1.8	19.2			0.0	0.0			0.0	0.0	42	2.5	4.0	6.9	22	3.5
Summe aller Quellen	245		9.4		1292		11.1		1780		30.2		1705		58.0		625	

Anmerkungen:

Alle Emissionen wurden extrapoliert aus Daten von 1995
Natürliche Emissionen sind ausgenommen

Lösemittelverbrauch in Berlin in Haushalte und Kleingewerbe inbegriffen

Quellen:

Berlin: Senatsverwaltung für Stadtentwicklung

Deutschland: nach Umweltbundesamt Berlin und Protokoll eines Fachgespräches III 2.2 H 50231-18/11

Tabelle 2

(a)

Quellen	Lokaler Verkehr = [Verkehr]-[urbaner Hintergrund]							Quellen im Ballungsraum = [urbaner Hintergrund]-[regionaler HG]							Quellen außerhalb des Ballungsraumes = [regionaler Hintergrund]							Alle Quel-len
	OM	EC	SO4	NO3	NH4	Rest	Sum	OM	EC	SO4	NO3	NH4	Rest	Sum	OM	EC	SO4	NO3	NH4	Rest	Sum	
genehmigungsbed. Anlagen								0.02	0.15	0.63	0.10		0.40	1.30	0.28	0.59	3.03	0.67	0.02	2.06	6.64	10.8
Hausbrand								0.16	0.24	1.24	0.25		0.41	2.30	0.17	0.18	0.28	0.12		0.39	1.14	2.4
Haushalte								0.31						0.31	0.06						0.06	0.4
Kleingewerbe								0.09	0.07	0.02	0.08		0.12	0.38	0.04	0.03	0.10	0.04		0.07	0.28	0.6
Verkehr (Motor, Reifen	3.50	3.90		0.20			7.60	2.64	2.32	0.25	1.42	1.00		7.63	1.32	0.53	0.08	1.01			2.94	17.0
Aufwirbelung Verkehr						5.70	5.70	0.07	0.29				1.59	1.95	0.02	0.03				0.19	0.23	8.7
Verkehr (sonst)								0.26	0.23	0.07	0.14			0.71	0.34	0.25	0.01	0.26			0.86	1.4
Lösemittelgebrauch															0.20						0.20	0.2
Viehzucht																			1.60		1.60	1.6
Düngemittelverbrauch																			0.21		0.21	0.2
Übrige Quellen (Bautätigkeit etc.)								0.25				0.40	2.98	3.63	0.08				0.07	0.30	0.45	2.8
Summe der antropogenen Q.	3.50	3.90	-0.40	0.20	-0.10	5.70	12.8	3.80	3.30	2.20	2.00	1.40	5.50	18.2	2.50	1.60	3.50	2.10	1.90	3.00	14.6	45.6
Natürl. Quellen						1.00	1.0	0.70					0.20	0.9	0.50	0.20	0.40	0.30	0.10	2.50	4.0	5.9
Summe aller Quellen																						51.5

alle Zahlen in µg m-3
Rest : überwiegend Metaloxyde (Erde) und Wasser (Israel et al., 1992)

(b)

	Lokaler Verkehr	Quellen im Ballungsraum	Quellen außerhalb des Ballungsraumes	Alle
Industrie		3.2	13.4	16.7
Haushalte		5.1	2.7	7.8
Verkehr	25.8	20.0	7.8	53.6
Landwirtschaft			3.5	3.5
Übrige (Bautätigkeit, etc.)		7.0	0.9	7.9
Natur	1.9	1.7	7.8	11.5
Summe aller Quellen	27.7	37.0	36.1	100.8

alle Zahlen in %; Summee 100.8 % weil negativer Differenzen in Tabelle 4a.nicht berücksichtigt wurden
Industrie: - genehmigungsbedürftige Anlagen, Kleingewerbe; Haushalte: - Hausbrand, private Haushalte, Verbrauch von Lösemitteln

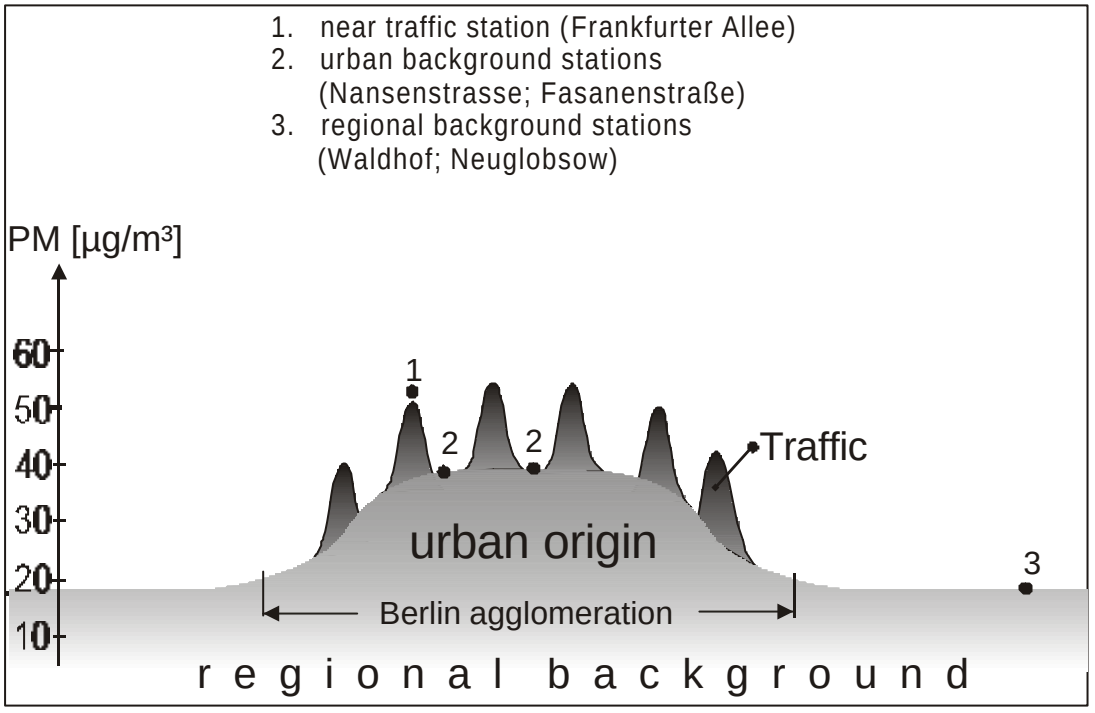


Abbildung 1: Schematisches Horizontalprofil der PM10-Verteilung im Großraum Berlin

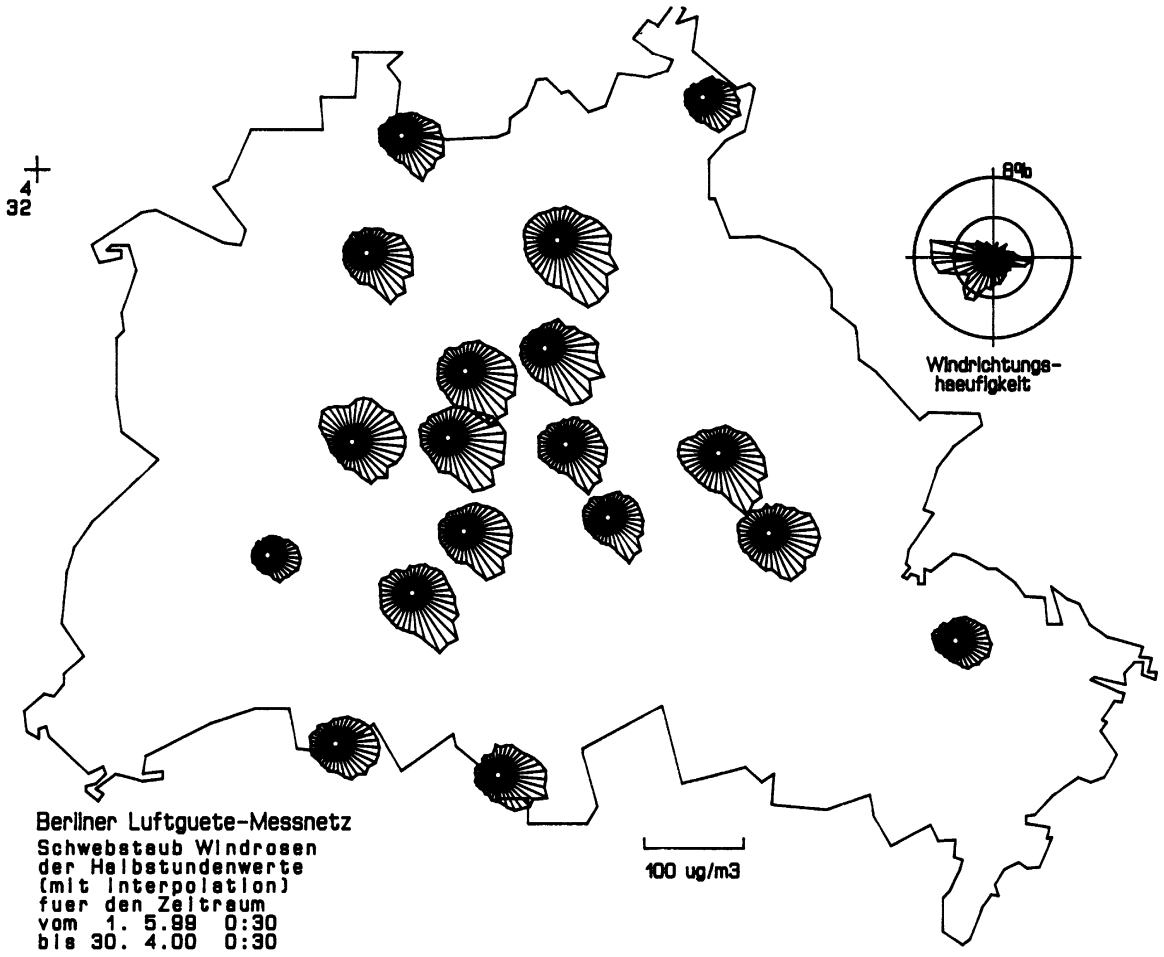


Abbildung 2: Windrosen der Gesamtstaubkonzentration über ein Jahr

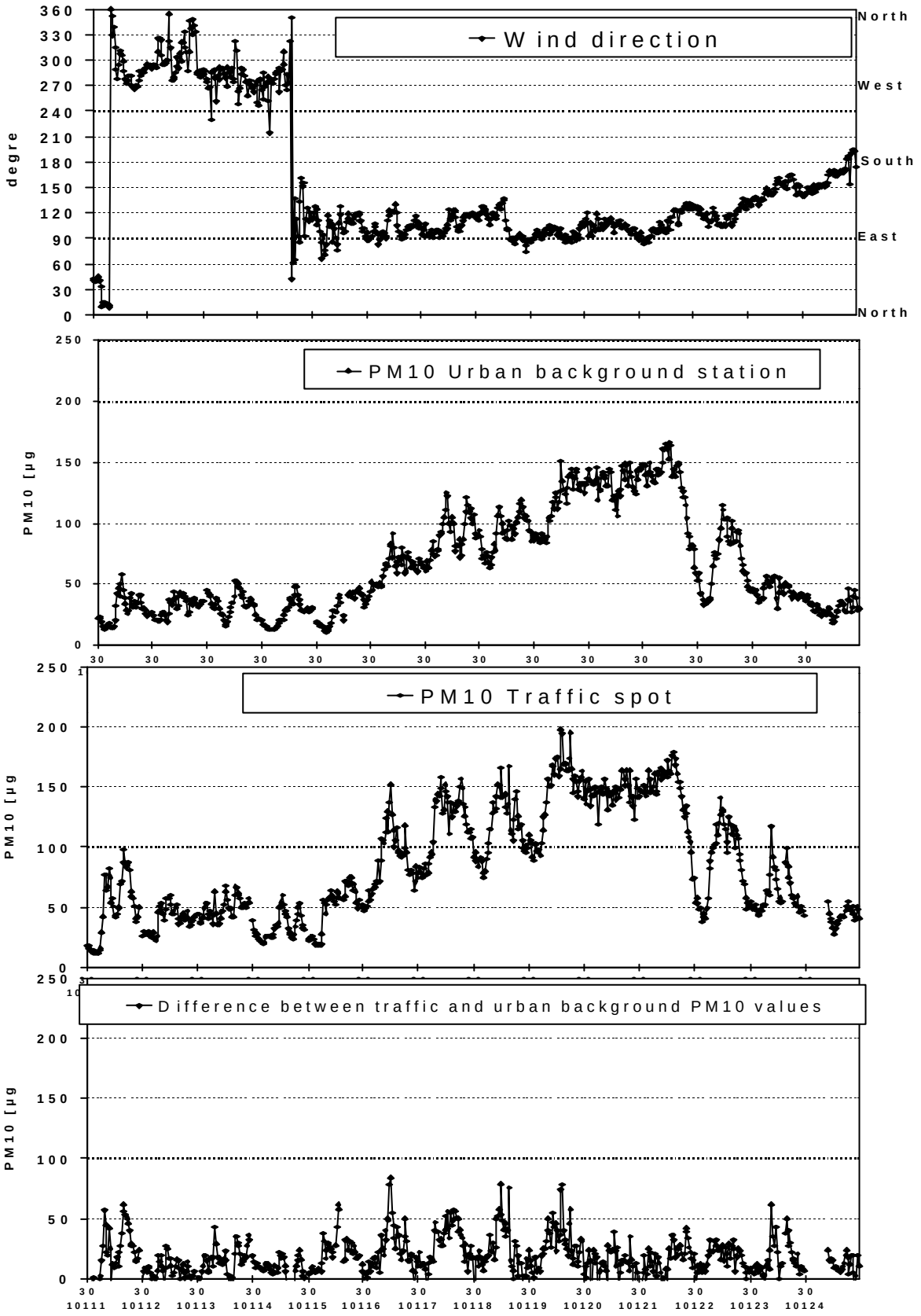


Abbildung 3: Verläufe der Windrichtung und der PM10-Konzentration vom 11.-24. Januar 2001

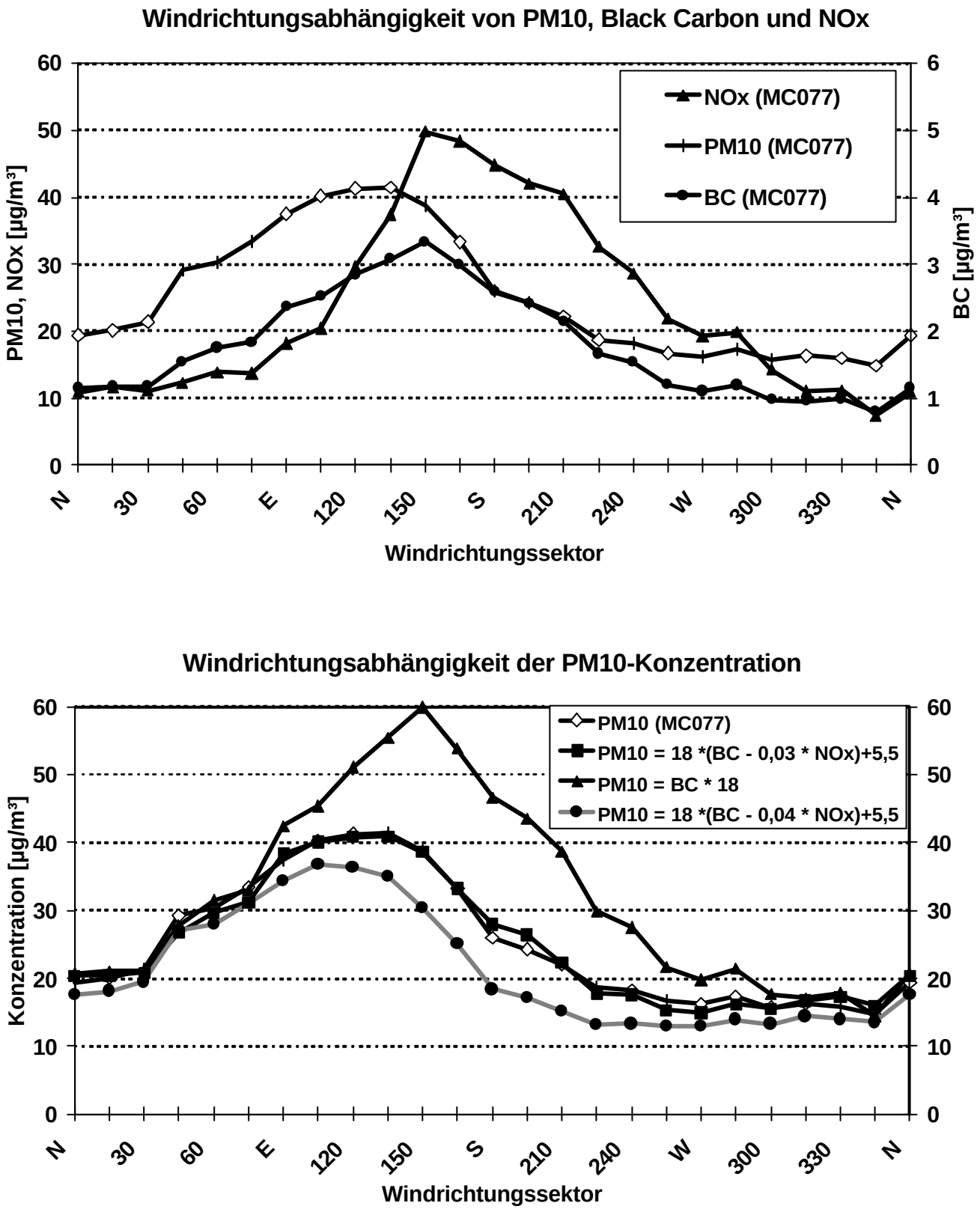


Abbildung 4: Windrichtungsabhängigkeit der Konzentration von Ruß, PM10 und NOx an der Stadtrand-Hintergrundstation MC077 Berlin-Buch (7/98-5/00)

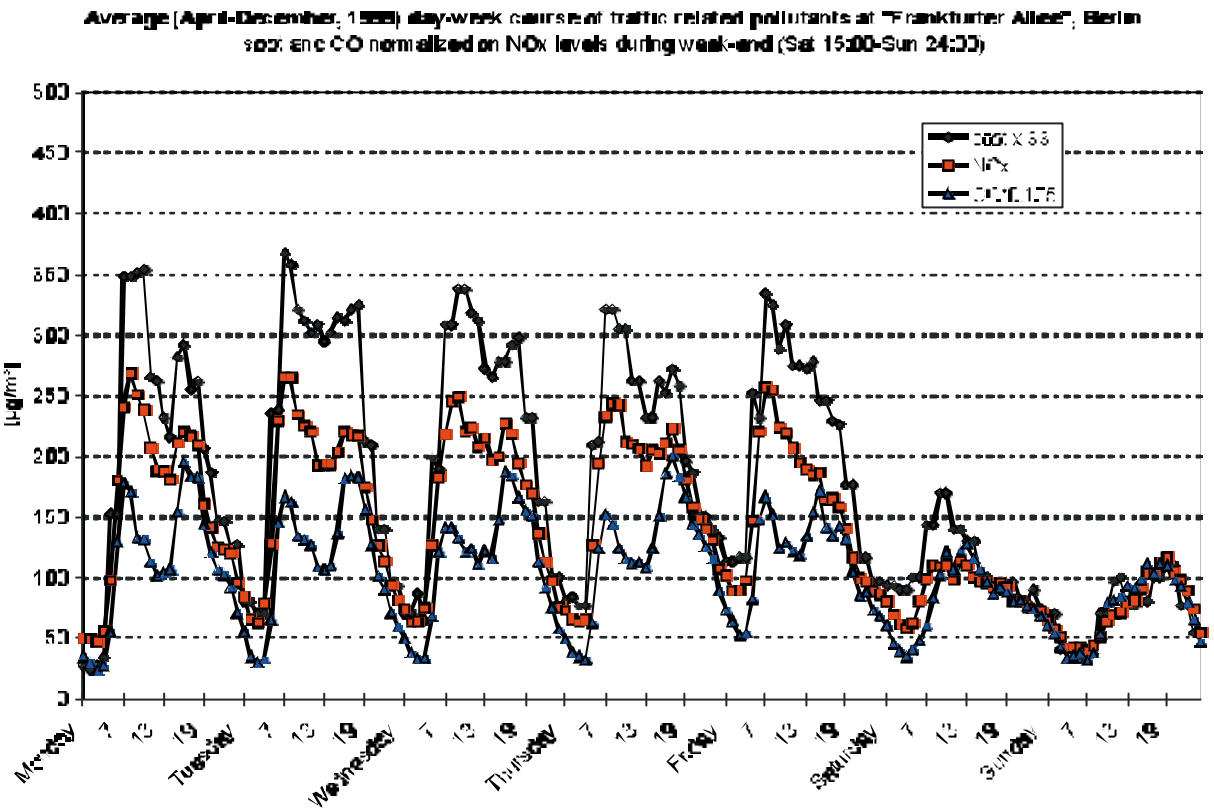


Abbildung 5: Mittlere Tages/Wochengänge von Ruß, CO und NOx an einer Verkehrsmessstelle

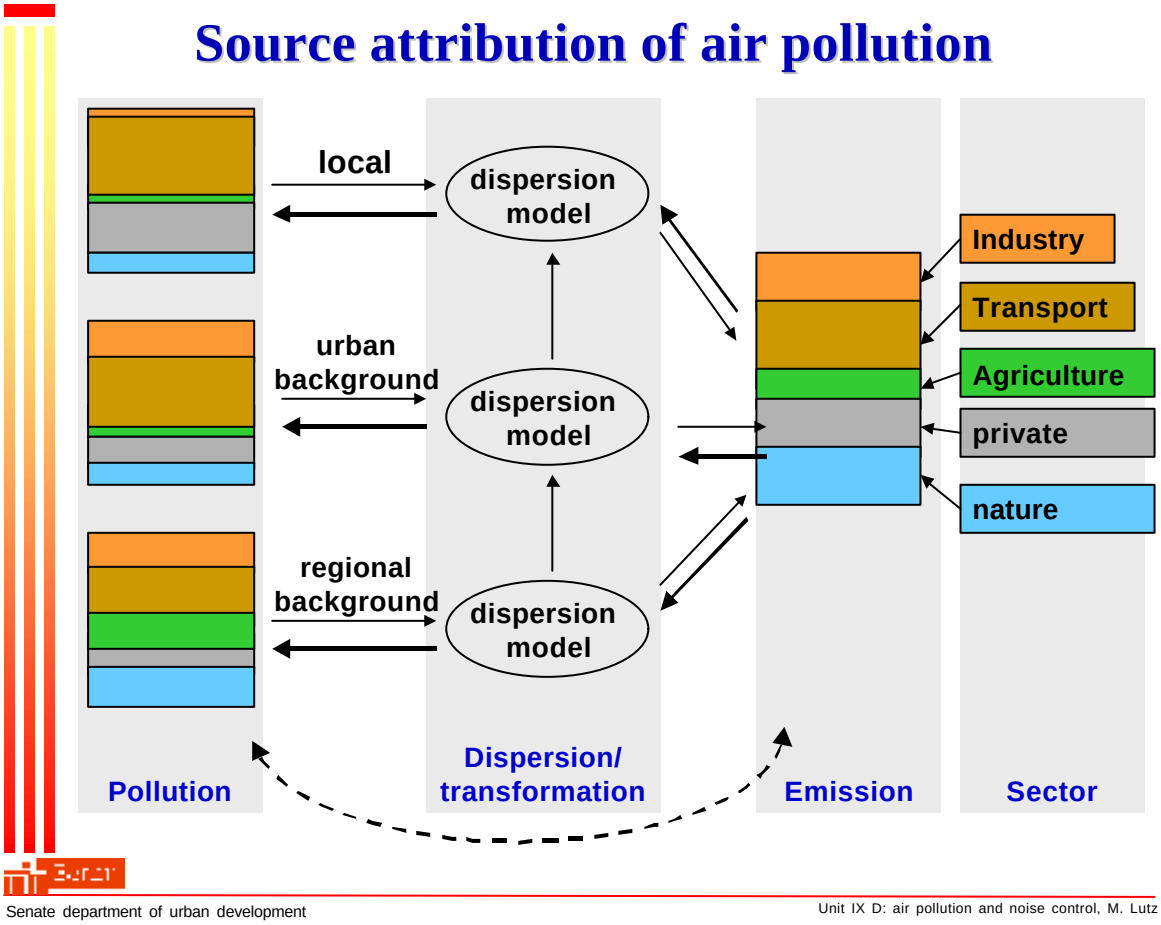


Abbildung 6

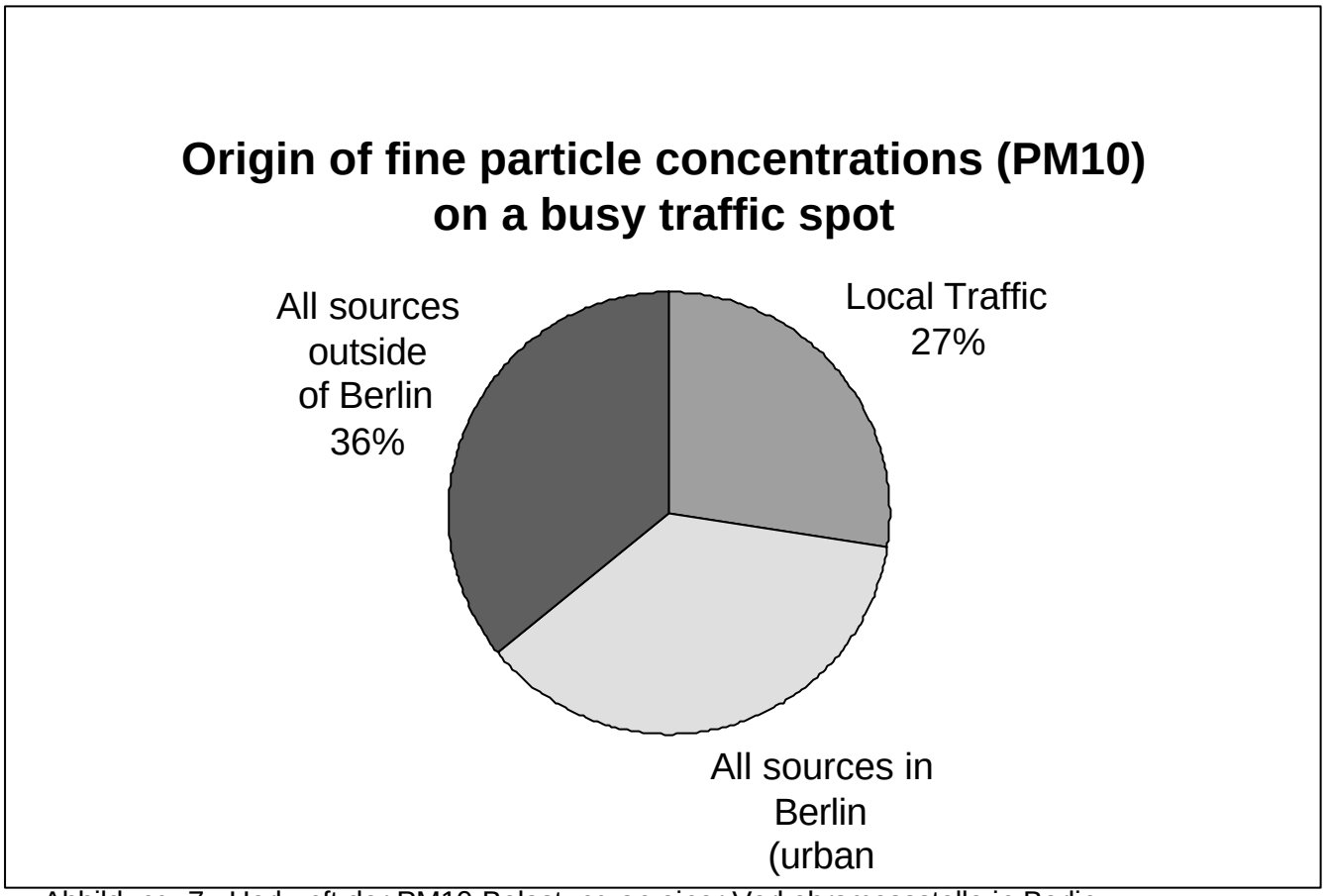


Abbildung 7: Herkunft der PM10-Belastung an einer Verkehrsmessstelle in Berlin

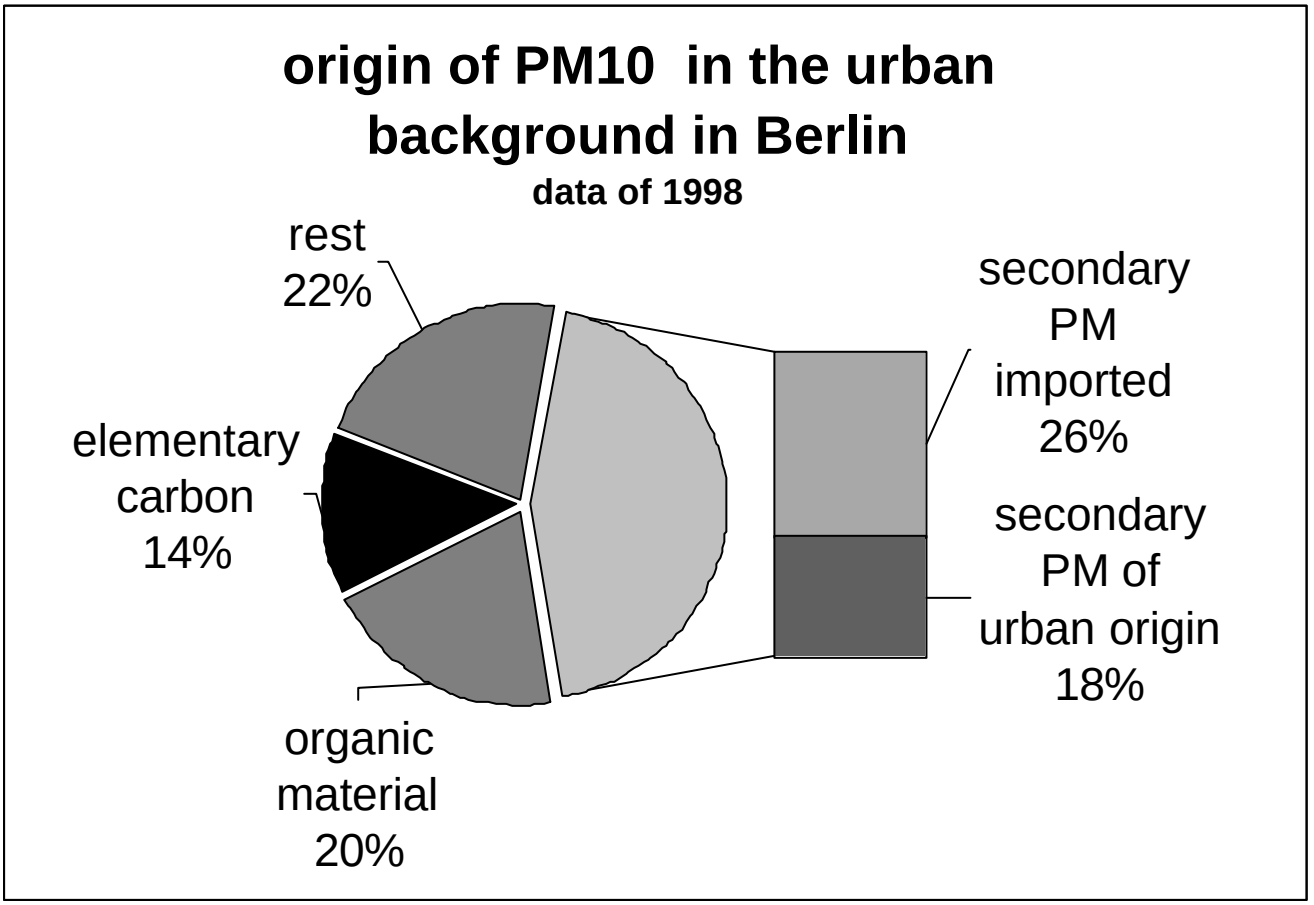


Abbildung 8: Zusammensetzung der PM-10 Konzentration im urbanen Hintergrund

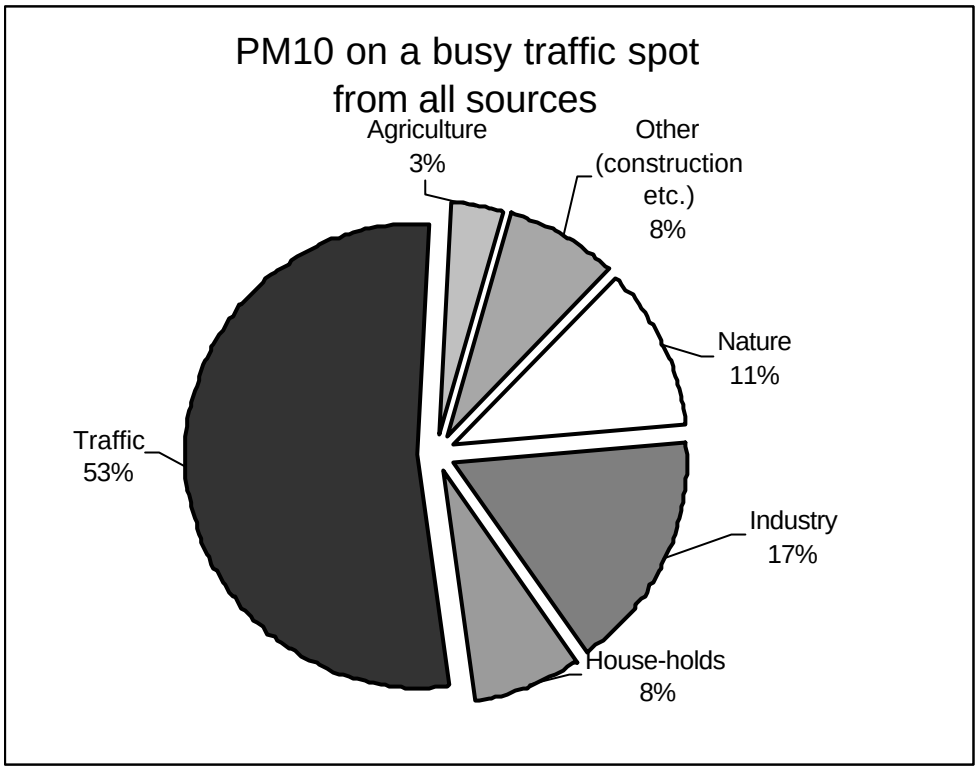


Abbildung 9: Anteile der aller Quellsektoren in und außerhalb Berlins an der PM10-Belastung an einer Verkehrsmessstelle

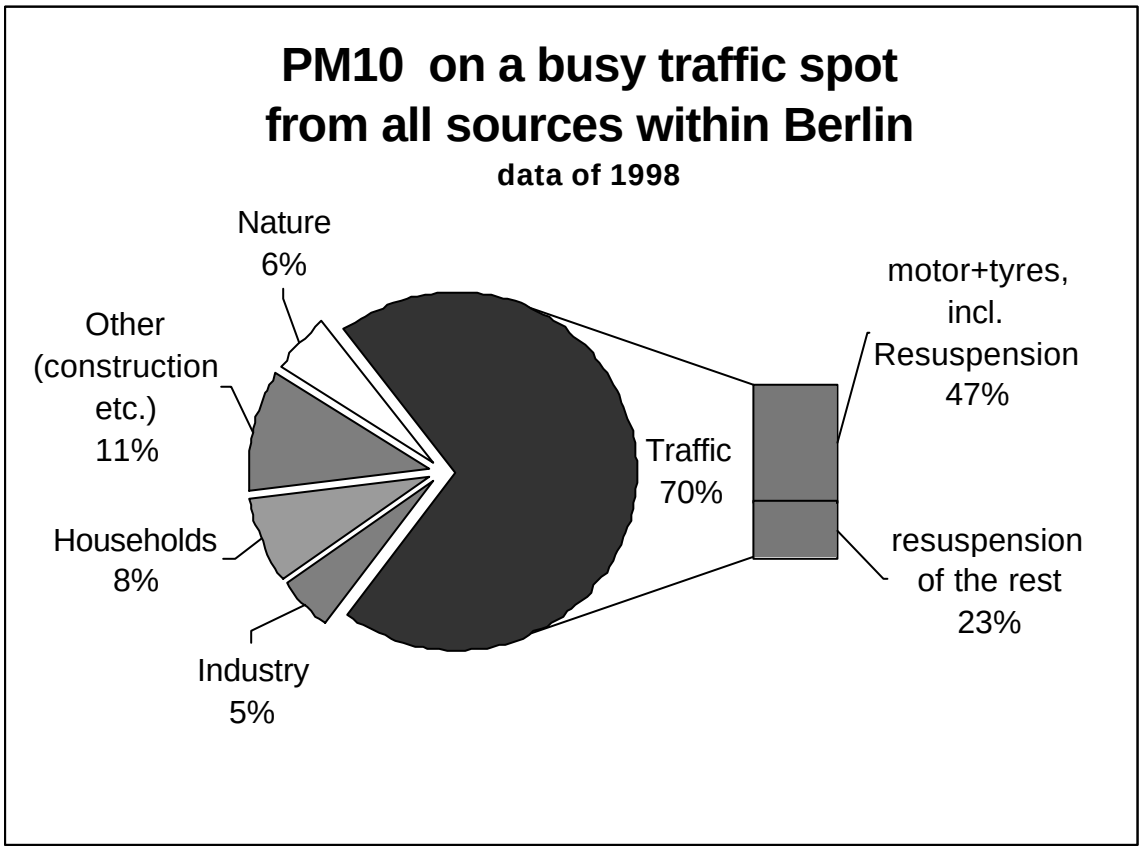


Abbildung 10: Anteile der aller Quellsektoren in und außerhalb Berlins an der PM10-Belastung an einer Verkehrsmessstelle

On chemical mass closure, source identification, and source apportionment of the PMx aerosol

Willy Maenhaut

Institute for Nuclear Sciences, Ghent University, Proeftuinstraat 86, B-9000 Gent, Belgium

1. Introduction

Most of the stable aerosol mass is present in the size range from 0.1 to 10 μm equivalent aerodynamic diameter (EAD), and within this size range there are usually two distinct modes, i.e., a fine (accumulation) mode, which extends from 0.1 to about 1 or 2 μm EAD and a coarse mode, which extends from about 1 or 2 μm EAD upward. The mass size distributions of the aerosol and its constituents provide already some clues on the sources. Primary particles from natural sources, such as sea salt, soil dust, and biological/biogenic particles, have generally most of their mass in the coarse mode. In contrast, secondary particles and species, which are formed by gas-to-particle conversion, such as non-sea-salt sulphates, nitrates, ammonium, secondary organic aerosol (SOA), are predominantly present in the fine mode and are mostly from anthropogenic origin, at least over industrialised countries, such as those in western Europe. Another major anthropogenic species in the fine mode in such countries is elemental carbon (EC), which is also referred to as soot carbon or black carbon (BC). EC originates from the incomplete combustion of fossil fuels (e.g., diesel, oil, coal), wood and other biomass, and is a primary aerosol constituent. Other primary particles from anthropogenic sources, such as road dust, coal fly ash, and primary particles from a wide variety of industrial activities may be present in both the coarse and fine aerosol modes.

2. Aerosol chemical mass closure

It is a major objective in atmospheric aerosol research to identify the various sources (source categories) and to apportion the particulate mass (PM) and its major constituents to these sources. Of special interest is the differentiation between the *natural* and *anthropogenic* contributions and between the various source categories within each of these two broad classes. A first step in source identification and apportionment of the PMx aerosol is to analyse the aerosol samples for the PM (by gravimetry), major organic and inorganic components and species [organic carbon (OC), EC or BC, SO_4^{2-}, NO_3^-, NH_4^+], indicators for sea salt (Na, Cl) and crustal material (Al, Si, Fe), and to examine (a) what the contribution of the various aerosol types (components) is to the PM and (b) to which extent the PM can be reconstituted on the basis of the various aerosol types (components) and thus aerosol chemical mass closure can be achieved. These tasks can be done for the PM10, PM2.5, PM10-PM2.5, PM1, PM0.1 size fraction or as function of detailed particle size. An example of a mass closure study as a function of particle size is that by *Maenhaut et al.* [2001] for fall 1999 at Gent, Belgium. Thirty-four parallel samplings (of typically 24 hours) were conducted with two cascade impactors operating in parallel. The impactors were a 10-stage microorifice uniform deposit impactor (MOUDI), with cut-points down to 53 nm EAD, and a 12-stage small deposit area low pressure impactor (SDI), with cut-points down to 45 nm EAD. The MOUDI samples were analysed for the PM by gravimetry and for OC and EC by a thermal-optical technique, and the SDI samples were analysed for 27 elements (from Na to Pb) by particle-induced X-ray emission spectrometry (PIXE). The average total PM concentration (sum over all MOUDI stages) in our data set was 29 μg m^{-3}, and 72% of it was in the <3 μm

EAD size fraction, on average. Concentrations of 6 aerosol types (components) were calculated on the basis of the MOUDI and SDI data, i.e., organic aerosol (estimated as 1.4 OC), EC, ammonium sulphate, sea salt, crustal matter, and smoke (actually, noncrustal K, calculated as K – 0.6 Fe). The percentage attribution (averaged over all samples) of the gravimetric PM to each of the six aerosol types as a function of particle size is shown in Fig. 1. The percentage contribution from organic aerosol to the gravimetric PM is rather constant (around 30%) in the size range from 8 μm EAD down to 0.2 μm EAD, but increases clearly with decreasing particle size below 0.2 μm EAD. Emissions from traffic are expected to provide the largest contribution to the fine and ultrafine organic aerosol. On average, 74% of the gravimetric PM is accounted for by the 6 aerosol types considered. The unexplained mass is likely attributable to ammonium nitrate and water.

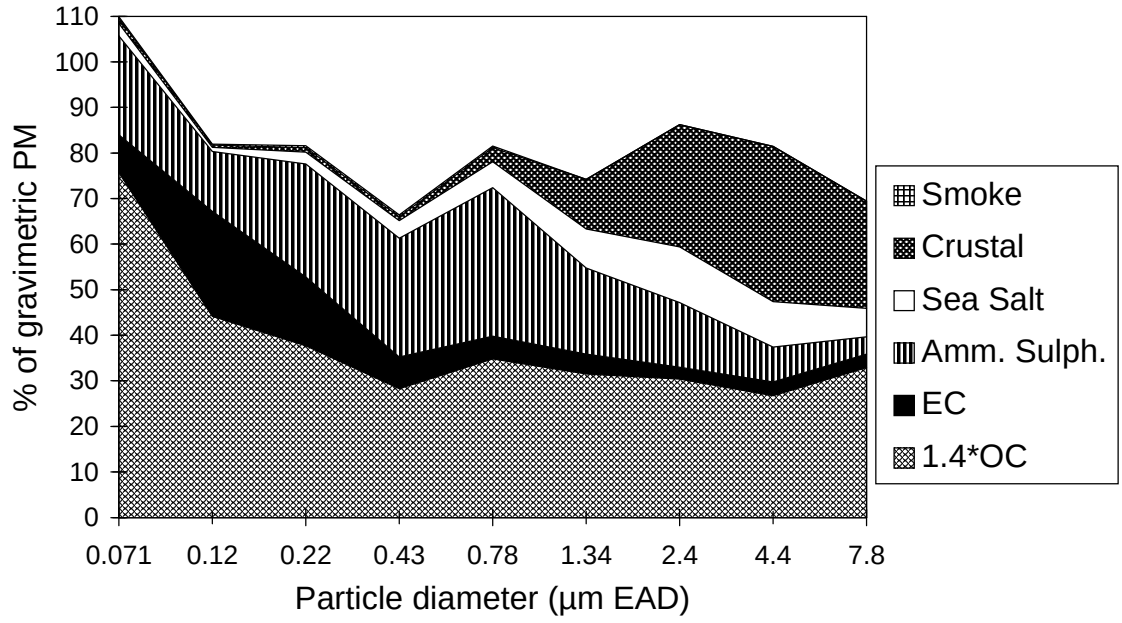


Fig. 1. Average percentage attribution of the gravimetric aerosol mass (PM) to 6 aerosol types as a function of particle size during fall 1999 at Gent (based on 34 samples).

3. Source identification

Various approaches have been proposed for source identification and apportionment, including (a) *receptor models* [*Gordon*, 1988; *Hopke*, 1991], which are normally subdivided in two main branches, namely (i) chemical mass balance (CMB) methods and (ii) multivariate techniques, such as absolute principal component analysis (APCA), and (b) *other methods*, such as examining interelement (or isotopic) ratios, for example, by using graphical techniques. All these approaches invariably require tracer (indicator or marker) elements or species for the different sources that are expected to contribute. Inorganic and elemental tracers (often complemented with OC and EC) are used since more than three decades. Examples of marker elements are S, V, and Ni for heavy (residual) oil burning; Pb and Br for leaded gasoline automotive emissions; K, Zn, Cd, Sn, Sb, and Pb for refuse combustion; S, Cu, Zn, As, Se, In, Cd, Sb, and Pb for non-ferrous (sulphide) smelters; and Al, Si, Ti, Fe, and other elements for crustal matter [*Maenhaut*, 2001]. Since the past decade, molecular organic species are increasingly used as tracers. For more information on this topic, see *Rogge* [2001] and several papers of *Rogge et al.* that were published in the course of the 1990s in the journal

Environ. Sci. Technol.. Some organic species are unique markers for certain source types. For example, levoglucosan, which arises from the pyrolysis of cellulose (the main building material of wood) at temperatures higher than 300°C, is a general indicator for wood burning. Levoglucosan carbon was responsible for 1.5% of the OC during winter 1998 in Gent, and for 4.8% of the OC during the 1999 dry (biomass burning) season at a primary forest site in the Amazon basin, Brazil [Zdráhal et al., unpublished results].

4. Source apportionment by receptor modelling and recent examples

For CMB, the number and nature of the sources need to be known. CMB has the advantage that it can be applied on a single aerosol sample; it is often claimed to be more robust than multivariate techniques, provided that the source profiles (those are the compositions of the particles emitted by the sources) are reliable and do not give rise to collinearity problems. Multivariate techniques include absolute principal component analysis (APCA), factor analysis and multiple linear regression or combinations thereof. For multivariate techniques, one needs to have variability in the data set, with different sources contributing in varying proportions to the different samples. They require data for various species or elements (indicators of the sources) in a series of samples, but no a priori knowledge of the sources and their composition is needed.

Here, I briefly present results of two studies in which multivariate techniques were used and of two studies that made use of CMB. *Maenhaut and Cafmeyer* [1998] applied APCA to apportion the fine (<2 μm EAD) and coarse (2-10 μm EAD) PM at Waasmunster, a rural site in Flanders, Belgium. The samples were taken over a 16-month period in 1994-95 with a Gent PM10 stacked filter unit (SFU) sampler. A total of 142 daily SFU samples were collected and analysed for the PM by gravimetry, for BC with a light reflectance technique, and for up to 29 elements by a combination of PIXE and instrumental neutron activation analyses (INAA). Twenty aerosol variables were included in the APCA for the fine size fraction. Seven components were retained, which together explained 89% of the variance in the data set. The first component had loadings (these are the correlation coefficients between the variables and the components) in the range of 0.7-0.9 for BC, K, Cu, Zn, and Pb, and of around 0.5 for Cl, Mn, Fe, and I. It seemed to represent a pollution component, but without contributions from residual oil burning, as V and Ni were not correlated with this component. In fact, the two latter elements were highly loaded (around 0.85) on a separate component 3, which was termed as oil component. Sulphur had a loading of 0.63 on this oil component. The second component represented clearly crustal materials. The loadings for Al, Si, Ca, and Ti were in the range 0.7-0.95, and Fe (0.54), S (0.54), K (0.44), and I (0.4) were also somewhat loaded on it. The fourth component was sea salt (loading of 0.92 for Na and of 0.68 for Cl). The fifth component was mainly loaded with Mn (0.72), but also somewhat with Fe (0.54) and Ti (0.44). Component 6 was essentially a Br component (loading of 0.88), but I (0.41) was also somewhat associated with it. Finally, component 7 was only loaded with In (0.97). The Mn component was associated with winds from the WNW and seemed to be related to emissions from the industrial area to the north of Gent. The In component was only significant in very few samples and it was almost invariably associated with winds from the east to ENE. Most likely, it originated from the non-ferro metallurgy to the south of the city of Antwerp. The pollution, crustal, and oil components were the main contributors to the fine PM, with average contributions of 32%, 25%, and 32%, respectively. The remaining 4 components contributed on average less than 5% each.

The multivariate receptor model study of *Olmez et al.* [1998] concentrated on the contribution of Canadian and U.S. sources to the fine particulate mercury across New York State. Aerosol collections were done with dichotomous samplers on Teflon filters over a

2-year period (1991-93) at 5 rural sampling sites. A total of 1200 fine fraction samples were analysed for Hg and 38 other elements by INAA and the data were subjected to receptor modelling by absolute principal factor analysis (APFA). In addition to elements, also elemental ratios (i.e., As/Se and La/Sm) were included for the APFA. The As/Se ratio in most atmospheric particulates and in aged coal combustion aerosol is around 1, but in areas that are affected by copper smelters, it is often up to one order of magnitude higher, so that inclusion of the As/Se ratio was expected to aid in identifying a copper smelter component. Similarly, the La/Sm ratio is elevated in areas with oil-related sources, because of high concentrations of La in the zeolites used for catalytic petroleum cracking. Up to 7 different source types and/or source regions were identified in the sample sets from the 5 rural sites, i.e., copper smelters, a U.S. regional source, crustal material, oil refining & combustion, a Canadian regional source, other smelters, and local sources. The largest contribution to the fine particulate mercury came from the copper smelters.

Kim and Henry [2000] used CMB (actually, a combination of a multivariate technique and CMB) to apportion PM10 in the Los Angeles area. 24-hour PM10 samples were collected every sixth day during 1986 at 9 sites in California and analysed for the PM and 41 species (i.e., OC, EC, NO_3^-, SO_4^{2-}, NH_4^+, and 36 elements). A multivariate receptor model, i.e., source apportionment by factors with explicit restrictions (SAFER) was used for obtaining source profiles for roadway, secondary, marine, and crustal components. Crustal elements, such as Al, Si, Ca, and Fe were important in both the roadway and crustal profiles, but the roadway profile contained much more OC, and substantially more EC than the crustal profile. Also the secondary species NO_3^-, SO_4^{2-}, NH_4^+ were enriched in the roadway profile relative to the crustal profile. The SAFER source profiles were then used in the CMB analysis. For the Los Angeles site, 45% of the PM10 aerosol was on average attributed to the roadway dust, 34% to the secondary particles, 3% to the marine source, 10% to the crustal profile, and 8% was left unexplained.

A CMB study that made use of both inorganic and molecular organic tracers is that of *Schauer et al.* [1996]. At 4 sites in southern California, 24-hour samplings of fine (<2 μm) aerosol were made every sixth day in 1982, using 4 different filters. In addition, source samplings were done for up to 15 source categories. The ambient and source samples were analysed for the PM, OC, EC, major ions (by ion chromatography), elements (by energy-dispersive X-ray fluorescence), and organic compounds (by gas chromatography and gas chromatography/mass spectrometry). In the receptor modelling by CMB, profiles for 9 primary particle source types were used, and the concentrations of the secondary species (SOA, SO_4^{2-}, NO_3^-, NH_4^+) were then added to the CMB-modelled data. The total modelled PM10 data, thus obtained, agreed well with the experimental gravimetric PM10 data. Of the 9 primary particle source types, the following 5 provided the major contributions to the experimental PM10: diesel vehicles (around 20%), paved road dust (12%), wood combustion (around 7%), meat cooking (7%), and gasoline vehicles (around 5%). Secondary + background sulphate was responsible for about 20%.

5. Concluding remarks

Source identification and apportionment is a difficult task in complex urban airsheds. The results of receptor models should not be taken uncritically. Some validation is possible by comparing different approaches, as for example done by *Hopke* [2001]. CMB has often been claimed to be more reliable than multivariate receptor models (such as APCA), but it needs source profiles, and one should be very careful with using published source profiles. Source profiles may change with time because of changes in technology. In a recent study by *Watson et al.* [2001], PM2.5 source profiles were obtained from source samplings at coal-fired power

stations and in residential coal combustion. It was found that the coal-fired power station profiles differed substantially between different units using similar coals. Furthermore, there were large differences between the profiles from coal-fired power plants and residential coal combustion.

References

Gordon, G. E., Receptor models, *Environ. Sci. Technol., 22*, 1132-1142, 1988.

Hopke, P. K., *Receptor Modeling for Air Quality Management*, Elsevier, Amsterdam, 1991.

Hopke, P. K., Advances in receptor modeling, *J. Aerosol Sci., 32*, Suppl. 1, S363-S364, 2001.

Kim, B. M., and R. C. Henry, Application of SAFER model to the Los Angeles PM_{10} data, *Atmos. Environ., 34*, 1747-1759, 2000.

Maenhaut, W., Inorganic tracers for aerosol source apportionment: analytical techniques and selected results, *J. Aerosol Sci., 32*, Suppl. 1, S327-S328, 2001.

Maenhaut, W., and J. Cafmeyer, Long-term atmospheric aerosol study at urban and rural sites in Belgium using multi-elemental analysis by particle-induced X-ray emission spectrometry and short-irradiation instrumental neutron activation analysis, *X-Ray Spectrometry, 27*, 236-246, 1998.

Maenhaut, W., J. Cafmeyer, S. Dubtsov, and X. Chi, Detailed mass size distributions of elements and species, and aerosol chemical mass closure during fall 1999 at Gent, Belgium, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B*, in press, 2001.

Olmez, I., M. R. Ames, and G. Gullu, Canadian and U.S. sources impacting the mercury levels in fine particulate material across New York State, *Environ. Sci. Technol., 32*, 3048-3054, 1998.

Rogge, W. F., Organic aerosol tracers for source-receptor reconciliation, *J. Aerosol Sci., 32*, Suppl. 1, S329-S330, 2001.

Schauer, J. J., W. F. Rogge, L. M. Hildemann, M. A. Mazurek, G. R. Cass, and B. R. T. Simoneit, Source apportionment of airborne particulate matter using organic compounds as tracers, *Atmos. Environ., 30*, 3837-3855, 1996.

Watson, J. G., J. C. Chow, and J. E. Houck, $PM_{2.5}$ chemical source profiles for vehicle exhaust, vegetative burning, geological material, and coal burning in Northwestern Colorado during 1995, *Chemosphere, 43*, 1141-1151, 2001.

Rezeptormodellierung zur Quellidentifikation

G. Pohlmann, W. Koch,
Fraunhofer Institut Toxikologie und Aerosolforschung, Nikolai-Fuchs-Straße 1,
30625 Hannover
email: pohlmann@ita.fraunhofer.de,
web: http://www.ita.fhg.de/abteilungen/Aerosoltechnologie/index.html

Die neueren Erkenntnisse der Wirkung von Partikeln auf die menschliche Gesundheit haben zu Maßnahmen der Grenzwertabsenkungen für Partikelgrößenfraktionen in der Außenluft geführt. Die diskutierten Grenzwerte werden bei der derzeitigen Emissionssituation in urbanen Gebieten voraussichtlich nicht eingehalten werden. Vor diesem Hintergrund kommt der Charakterisierung der Emissionsquellen und der Quantifizierung ihres Beitrages zur Immissionssituation in belasteten Gebieten eine besondere Bedeutung zu.

Für klassische Schadstoffe wie beispielsweise NO_x und SO_2 ist die Emissionssituation relativ gut bekannt, nicht zuletzt aufgrund der häufig kontinuierlichen Überwachung dieser Komponenten direkt an den maßgeblichen Quellen. Für Partikel gilt dies nicht. Hier bestehen größere Wissenslücken, was die Quellen und ihre Emissionsstärken und den Zusammenhang zwischen Emissionen und Immissionen angeht. Maßgeblich für diese Situation ist insbesondere die Tatsache, daß die Partikelimmissionen durch eine Vielzahl von chemischen Komponenten und variable Partikelgrößenverteilungen charakterisiert sind und eine Vielzahl von zum Teil noch unverstandenen Partikelfreisetzungs- und –bildungsmechanismen zur Immission beitragen.

Der Zusammenhang zwischen Emission und Immission kann zum einen prospektiv durch Ausbreitungsrechnungen hergestellt werden. Das setzt jedoch neben der Verfügbarkeit von geeigneten Dispersionsmodellen eine relativ gute Kenntnis der räumlichen Verteilung und der Stärke der Emissionsquellen voraus. Die sogenannte Rezeptormodellierung auf Basis der Faktoranalyse ist auf der anderen Seite ein statistisches Verfahren zur Auswertung von Immissionsdaten zur Herstellung einer empirischen Quelle-Rezeptormatrix. Diese Matrix erlaubt Aussagen über Anzahl und Gewicht der zur Immission beitragenden Quellen, ohne auf Emissionsdaten zurückgreifen zu müssen (Vergleich zum Beispiel P.K. Hopke, 1999).

Fundamentale Annahmen bei Rezeptormodellen sind die Massenerhaltung, die Linearität der Beziehung zwischen Quelle und Rezeptor und die Tatsache, daß jede der relevanten Partikelquellen durch einen unterschiedlichen Fingerprint ihrer physikalisch/chemischen Charakterisierung gekennzeichnet sind. Chemische Massenbilanzmethoden setzen die Fingerprints dieser Quellen voraus. Methoden, die sich der Faktoranalyse bedienen, kommen hingegen ohne jegliche die Quellen betreffende Vorinformationen aus. Sie basieren auf der Annahme, daß die Varianz der Immissionsmesswerte (bzw. geeignet gewählter Normierungen) auf die voneinander unabhängigen Varianzen der Emissionsstärken (z.B. unterschiedliche Tagesgänge) der relevanten Quellen zurückzuführen ist. Durch die statistische Analyse der Koavarianzmatirx der Meßwerte und geeignete Berücksichtigung physikalisch sinnvoller Nebenbedingungen kann auf den Beitrag relevanter **Quellkategorien** (z.B. KFZ-Verkehr, Hausbrand, sek. Aerosol) zur Immission geschlossen werden.

Voraussetzung für eine erfolgreiche Anwendung dieses Verfahrens ist jedoch, Immissionsdaten möglichst vieler Partikelkenngrößen (unterschiedliche Momente der Größenverteilung, chemische Zusammensetzung,...) und die Quellen charakterisierende gasförmige Substanzen mit ausreichender Zeitauflösung zu erfassen.

Ein Ergebnis einer Studie bestehend aus 4 Einzelkampagnen und deren Auswertung mittels Rezeptormodellierung (unter Benutzung eines Verfahrens von Henry, vgl. Henry 1990, 1997, 1999; Kim und Henry 1999, 2000) zeigt die Abbildung 1. Dargestellt ist die Aufteilung in drei Quellkategorien, die aufgrund der Thematik der Studie, den Verkehrsbeitrag zur Immission an einem repräsentativen Standort in Hannover zu quantifizieren, sinnvoll erschienen. Neben der Masse (PM_{10}) wurden hier auch die Partikeloberfläche und die Anzahlkonzentration verdampfbarer und nichtverdampfbarer Partikel betrachtet. Die Aufteilung in diese groben Kategorien ist an anderen Standorten vergleichbar. So ordnen Hüglin et al. (2000) an einem Standort in Basel ca. 18 % der PM10-Masse den Primäremissionen des Verkehrs, 55 % der Kategorie Sekundäraerosole/Ferntransport und 17 % der Resuspension zu. Die restlichen 10 % konnten nicht zugeordnet werden. Stedmann et al. (2001) kommen für einen nichtverkehrsnahen Standort in London zu einem ähnlichen Ergebnis. Das angewendete Verfahren der Rezeptormodellierung war für die drei Studien unterschiedlich. Neben den allgemeinen Kenngrößen lassen sich auch spezifische chemische Komponenten den entsprechenden Kategorien plausibel zuordnen (Abb.2).

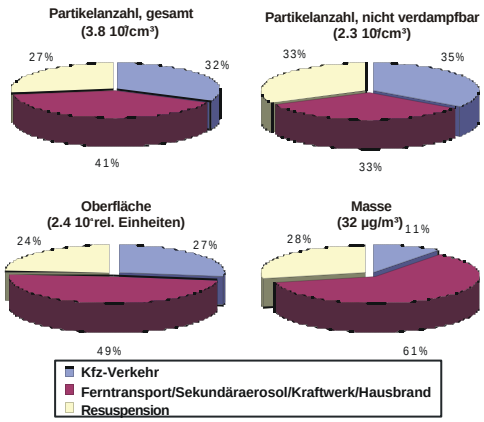


Abb. 1: Beitrag dreier Quellkategorien zur Immission relevanter Partikelkenngrößen (Standort Hannover)

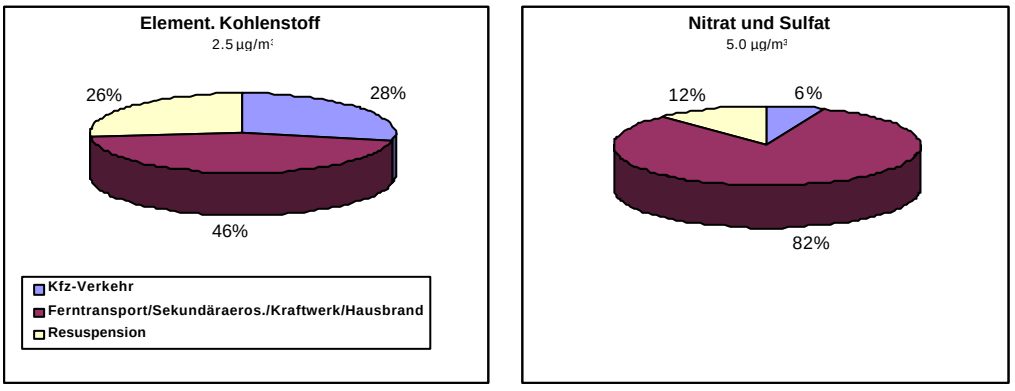


Abb. 2: Zuordnung des elementaren Kohlenstoffs und der wasserlöslichen Ionen zu den Quellkategorien (Standort Hannover)

Die hier durchgeführten und vorgestellten Analysen erlauben zwar eine konsistente aber, bedingt durch die entsprechende Auswahl der gemessenen Partikelkenngrößen nur eine relativ grobe Quellzuordnung. Eine für die Rezeptormodellierung verbesserte Datenbasis könnte eine detaillierte Analyse der organischen Fraktion des atmosphärischen Aerosols liefern. Insbesondere die Identifizierung und Analyse geeigneter organischer quelltypischer Tracersubstanzen verspricht eine verbesserte Diskriminierung

einzelner Quellen(vgl. z.B. Schauer et al., 1996). Der organische Anteil des atmosphärischen Aerosols ist aber bislang in Europa eher wenig beachtet worden, obwohl der (organische) Kohlenstoff nicht zuletzt auch in Form von Aerosolen biologischen Ursprungs einen erheblichen Anteil am Aerosol hat (vgl. z.B. Matthias-Maser et al., 2000). Wünschenswert wäre auch eine weitere Spezifizierung der Quellen des Sekundäraerosols, welches insbesondere in der $PM_{2.5}$-Fraktion einen großen Anteil hat. Hier könnten methodische Verbesserungen durch Kombination der multivariaten Methoden mit deterministischen Modellen zielführend sein. So könnte z.B. die Rezeptormodellierung zur Identifikation der relevanten Quellkategorien herangezogen werden. Aus den so gewonnenen Informationen ließen sich spezifische Kenngrößen von Quellen bestimmen, mit deren Hilfe eine genauere Identifizierung und Lokalisierung der Quellen, z.B. mittels Trajektorienrechnungen, ermöglicht wird.

Literatur

R.C. Henry, B.M. Kim, Extension of self-modeling curve resolution to mixtures of more than three components: Part 1. Finding the basic feasible region, Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems, 8, 205–216, 1990

Henry, R.C., History and Fundamentals of Multivariate Air Quality Receptor Models, Chemometric and Intelligent Laboratory Systems,37, 37-42, 1997.

Henry R.C.; Park E.S.; Spiegelman C.H., Comparing a new algorithm with the classic methods for Estimating the number of factors, Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems, Volume 48, Issue 1, 14 June 1999, Pages 91-97.

Hopke, An Introduction to Receptor Modeling, In: Elemental Analysis of Airborne Particles, S. Landsberger and M. Creatchman, eds., Gordon & Breach, London, 273-315 (1999)

Hüglin, C. Anteil des Strassenverkehrs an den PM10- und PM2.5-Immissionen, BUWAL-Bericht NFP, C4, Bern, 2000

B. M. Kim , Henry R.C., Extension of self-modeling curve resolution to mixtures of more than three components Part 2. Finding the complete solution. Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems, 49, 67–77, 1999

B. M. Kim; Henry R.C., Extension of self-modeling curve resolution to mixtures of more than three components - Part 3. Atmospheric aerosol data simulation studies, Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems, Volume 52, Issue 2, 18 September 2000, Pages 145-154.

Kim B.M.; Henry R.C., Extension of self-modeling curve resolution to mixtures of more than three components. Part 2. Finding the complete solution, Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems, Volume 49, Issue 1, 1999, Pages 67-77.

Kim, Bong Mann; Henry, Ronald C., Application of SAFER model to the Los Angeles PM10 data, Atmospheric Environment, Volume 34, Issue 11, 2000, Pages 1747-1759.

Matthias-Maser S.; Obolkin V.; Khodzer T.; Jaenicke R., Seasonal variation of primary biological aerosol particles in the remote continental region of Lake Baikal/Siberia, Atmospheric Environment, Volume 34, Issue 22, 2000, Pages 3805-3811.

James J. Schauer, Wolfgang F. Rogge, Lynn M. Hildemann, Monica A. Mazurek and Glen R. Cass, Bernd R. T. Simoneit, Source apportionment of airborne particulate matter using organic compounds as tracers, Atmospheric Environment, Volume 30, Issue 22, November 1996, Pages 3837-3855.

Stedman J.R.; Linehan E.; Conlan B., Receptor modelling of PM10 concentrations at a United Kingdom national network monitoring site in central London, Atmospheric Environment, Volume 35, Issue 2, 2001, Pages 297-304.

Integrierte Bewertungsmodelle für Feinstaub

Matthias Koch
ECOFYS GmbH, Eupener Str. 161, D-50933 Köln,
Tel: 0221-4852332, Fax 0221-4852301, Email: m.koch@ecofys.de

Integrierte Bewertungsmodelle (im Englischen: Integrated Assessment Modelling) zielen darauf ab, kosteneffiziente Maßnahmenbündel für die Erreichung von Immissionszielen zu ermitteln. Integrated Assessment Modelle beinhalten folgende Komponenten:

- Emissionsinventare einschließlich Projektionen der zukünftigen Entwicklung
- Ausbreitungsrechnung mit Transformationsprozessen
- Wirkungskategorien bzgl. Immissionen mit Zielgrößen (Critical Loads, Critical Levels, Grenzwerte, Richtwerte)
- Zusammenstellung von Maßnahmen technischer, substituierender, organisatorischer u.a. Art
- Optimierungsmodul

Letztlich werden mit Integrated Assessment Modellen der gesamte Bereich von der Quelle über Maßnahmen bis zur Wirkung abgedeckt, erforderliche Minderungsziele ermittelt und die durchzuführenden Maßnahmen vorgeschlagen.

Feinstaub wird üblicherweise nicht unabhängig von anderen Luftschadstoffen und von anderen Immissionswirkungen betrachtet. Es werden vorhandene Modelle für Luftschadstoffminderungsstrategien um den Schadstoff „PMx“ ergänzt. Als Schadstoffe werden dabei oft SO_2, NO_x, NH_3, VOC und z.T. Klimagase einbezogen. Als Wirkungskategorien werden Versauerung, Eutrophierung, bodennahes Ozon und z.T. der Treibhauseffekt berücksichtigt.

Aufgrund der Komplexität der zu berücksichtigenden Aspekte werden Integrated Assessment Modelle häufig als Verbundvorhaben mehrerer Institutionen entwickelt bzw. Teilaufgaben (z.B. die Ausbreitungsrechnung) von anderen Institutionen übernommen. Auf europäischer Ebene sind insbesondere das RAINS-Modell und das MERLIN-Projekt von Bedeutung.

Das von IIASA entwickelte RAINS-Modell bildet eine wesentliche Grundlage für die europäischen Verhandlungen über länderspezifischen Minderungsziele von Luftschadstoffen u.a. im Rahmen der UN/ECE. Derzeit wird das RAINS-Modell um eine Feinstaub-Modul ergänzt und erste Ergebnisse liegen vor (1-3).

ECOFYS

Das MERLIN-Projekt baut auf Arbeiten des INFOS-Projektes auf. Beteiligt sind u.a. IER Universität Stuttgart und ECOFYS. Das MERLIN-Projekt befindet sich derzeit in der Entwicklung und soll bis 2003 abgeschlossen werden.

Erste Ergebnisse von Integrated Assessment Modellen zu Feinstaub haben andere Arbeiten hinsichtlich Emissionsinventare und modellierten Immissionsbelastungen grundsätzlich bestätigt. Um die erforderlichen Maßnahmen einschließlich der damit verbundenen Kosten endgültig abgesichert bewerten zu können, sind allerdings weitergehende Grundsatzarbeiten zur Rolle der verschiedenen Emissionsquellen und zu den verfügbaren Optionen der Emissionsminderung erforderlich.

Literatur:

1. M. Koch: Airborne Fine Particulates in the Environment: A Review of Health Effect Studies, Monitoring Data and Emission Inventories. IIASA Interim Report IR-00-004, International Institute for Applied Systems Analysis, Laxenburg, Österreich. http://www.iiasa.ac.at/cgi-bin/pubsrch?IR00004
2. M. Johansson et al.: An Initial Framework to Assess the Control of Fine Particulate Matter in Europe. Report to the 25th Meeting of the UN/ECE Task Force on Integrated Assessment Modelling, Stockholm April 2000. IIASA Interim Report, International Institute for Applied Systems Analysis, Laxenburg, Österreich. http://www.iiasa.ac.at/~rains/reports/pm.pdf
3. A. Lükewille et al.: A Framework to Estimate the Potential and Costs for the Control of Fine Particulate Emissions in Europe. IIASA Interim Report IR-01-023, International Institute for Applied Systems Analysis, Laxenburg, Österreich. http://www.iiasa.ac.at/cgi-bin/pubsrch?IR01023

Source Apportionment of Fine Particulate Matter

- methodology and research needs -

Henk J.Th. Bloemen

Laboratory of Organic Analytical Chemistry, National Institute of Publich Health and Environment, Bilthoven, The Netherlands

Introduction

Source apportionment of fine particulate matter is widely used for a variety of objectives generally characterized by the need to further the knowledge on origin and occurrence of particulate matter both for development of abatement strategies and human exposure estimates.
The last 5 years research has been carried out in the Netherlands and the USEPA /NERL different in objectives but similar in applied techniques. Fueled by the experiences gathered in these projects the workshop questions are addressed and research needs are drafted.

What is the current and near future methodology?

Chemical analysis - The objectives of the applied analytical methods is (i) to speciate the 'container' particulate matter to such an extent as to allow discrimination between source type contributions and (ii) to balance the mass of the various species with the total particulate mass. An additional objective could be the comparison of obtained source contributions with dispersion model results to find justification for emission inventories and separation between anthropogenic and biogenic or geogenic sources.
Species most frequently measured include a suite of elements (Na/Mg to Pb) using preferably XRF for its low detection limits and ease of sample pretreatment. Measuring the first two elements successfully heavily depends on the optical filters used in the XRF. Drawbacks are the lack of molecular information (relevant for e.g. discriminating between emission types and bioavailability assessments) and excluding oxygen (oxides). Combining scanning electron microscopy and XRF (SEM/XRF) reveals information on the morphological structure and possibly the molecular form for single particles with sizes larger than 0.5 μm. Smaller particles and particles that are made of easily volatilizable material escape detection. Carbonaceous material is often measured as elemental and volatilizable carbon using either the NIOSH Method 5040 (Sunset Laboratories) or the Improve method (Desert Research Institute). Recent intercomparison by DRI and EPA revealed substantial differences that may be corrected for by modifying the data processing procedures of the methods. A drawback of both methods is the need for a factor to correct for the non-detected elements (hydrogen, oxygen and others that make up the organic species). The proposed factors range for 1.2 to 2.8 depending on the (unknown) composition of the volatilizable mixture.
Most of the remaining particulate mass include the inorganic ammonium nitrate and sulfate commonly measured with ion-chromatography often including sodium and chloride as well. Comparisons of sulfate (IC) and sulfur (XRF) concentrations by different research groups showed a significant discrepancy the reason of which is yet unknown.

The speciation results in combination with assumed molecular composition often showed good agreement with the total mass measured. A prerequisite are equal sampling conditions to achieve equal and preferable low losses of volatilizable material (eg. ammonium nitrate and -chloride and organic material).

Physical analysis – Particle size distribution (measured with instruments like SMPS and APS) with substantial time resolution (1 hr) can provide information on the size dependent

contribution of known sources and atmospheric conditions for (trans-) formation of particles (eg. agglomeration). This type of information might only be indirectly applicable for source attribution.

For both the chemical and physical analysis the time resolution might prove to be critical in many applications. As source strengths will vary during the day, show trends during weeks to seasons, integrated sampling over a longer time period will obscure the individual contributions and will increase the difficulty to discriminate between source types. Time is also relevant in discriminating between source emissions transported over long distances (including the transformation of composition) and local active sources.

Source receptor models – A number of receptor models have been developed and modified since the introduction of the concept by Friedlander in the seventies. Chemical Mass Balance (CMB) initially developed and regularly modified at the Desert Research Institute (Watson) and recently upgraded by EPA/NERL (CMB EPA 8.2, Coulter and Lewis) have been widely used for both particulate matter and volatile organic compound source apportionment. A vast database of emission profiles for both have been compiled (EPA-SPECIATE). Recently two new concepts have been implemented in software models: UNMIX (Henry, UNCLA) and PMF (Paatero, Helsinki) both using measurement data to extract number of sources and their profiles, circumventing the need to sample and analyze actual emissions. At a Workshop (RTP, February 2001) these models were intercompared using several databases including an artificial one. The models showed agreement ranging from fair to good depending on the relative source contribution and the database. It was concluded that the combination of UNMIX (finding the number and profiles of the major sources), PMF (using the outcome of UNMIX to add the profiles of minor sources – down to a few percent) and CMB (to calculate the contributions for each individual sample) might be the optimal approach. To validate the outcome of the UNMIX – PMF combination consulting the SPECIATE database might still be necessary. Evaluation of this concept is to be expected shortly. As real world emission profiles are still needed and some initiatives are underway to obtain validated high quality profiles form major sources (EPA in collaboration with DOE in the USA).

How correct are the outcomes?

Although the above described source apportionment models all present their outcomes including uncertainties it still is undefined how correct (see above) and how representative in time and space obtained results are. It certainly will need more research to establish correctness and representativiness, preferably using extended databases as well as carefully designed artificial ones. Using other sets of compounds, VOC instead of PM, to confirm the found contributions. On the other hand, comparing the outcomes with dispersion model calculations might give credence to the conclusions and/or might hint at blind spots. Furthermore, correctness might also been seen in the perspective of comparing with continuous measurement techniques that in itself basically will differ from the ambient concentration of particulate matter.

What are the current research results?

In addition to the results presented at the workshop the source apportionment of fine particulate matter in Phoenix Arizona, USA is mentioned here as an example of a successful source apportionment exercise.

At a residential area in Phoenix Arizona during a two year period 24-hour samples were collected daily and analyzed for elemental composition ($PM_{2.5}$ collected on Teflon filter, EDXRF) and carbonaceous aerosol. ($PM_{2.5}$ collected on preheated quartz filters, NIOSH Method 5040). A stepwise data evaluation was followed including:

- *Mass balancing*: the total $PM_{2.5}$ mass was reconstructed (100 ± 8%) with organic material (OC*1.4) (49%), elemental carbon (9%), sulfates (assuming diammoniumsulfate) (20%), crustal material (assuming composition of simple oxides) (23%), trace elements (1%), and aged marine aerosol (75% Cl replacement).
- *Principal component analysis*: PCA revealed six significant factors four of which explained 75% of the observed variation and included: crustal material (29%), motor vehicle emissions (25%), vegetative burning (13%) and secondary sulfates (8%). The two remaining were marine aerosol (based on Na) and probably a cement kiln (based on Sr).
- *Multiple linear regression analysis*: MLRA confirmed the factor for diammonium sulfates (3.3 ± 0.3) based on sulfur (XRF) and showed a higher factor for OC (1.65 ± 0.05) instead of 1.4. This higher factor might be related to the absence of nitrate data.
- *Chemical Mass Balance modeling*: For the CMB analyses a number of profiles obtained from previous studies in the Phoenix area were tested. A suite of five profiles proves to be sufficient to reconstruct the observed speciated data within the quality constraints of the CMB model. The (relative) contributions are given in Figure 1. The vegetative burning contribution represents two profiles: agricultural burning profile during the non-heating season and woodstoves and open fire places during the heating season. The marine contribution was confirmed by evaluating back trajectories to the pacific region on high Na load days.

Further credence to the results were given by the episodical observations (See Figure 2) during which the increase in concentration was mainly due to the increase of the local source contribution (road traffic – MV2575, and traffic related crustal material – PHPVRD) whereas the contribution of regional sources decrease with time as the stagnant weather conditions build up.

This rather successful source apportionment study benefited from several factors: (i) an extensive set of measurement data in combination with (ii) an large number of source profiles obtained form samples collected from the same region, (iii) a dry and hot (desert) climate with low humidity and elevated temperatures and (iv) sparsely distributed industries. In west-European areas the composition of fine particulate matter might prove to be more complicated. Nevertheless, the approach followed here shows potential also for other areas.

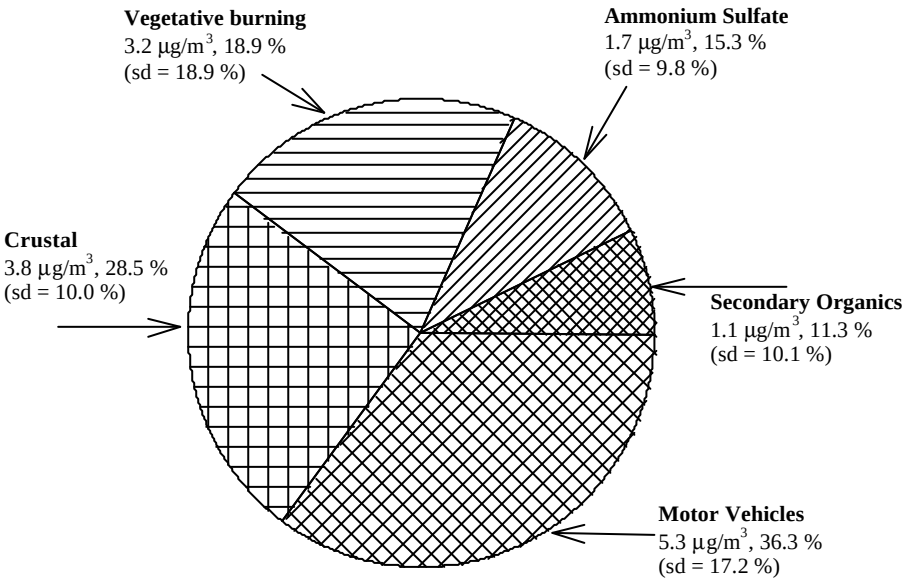


Figure 1: Average contribution to PM2.5 concentrations in Phoenix (1995-1996).

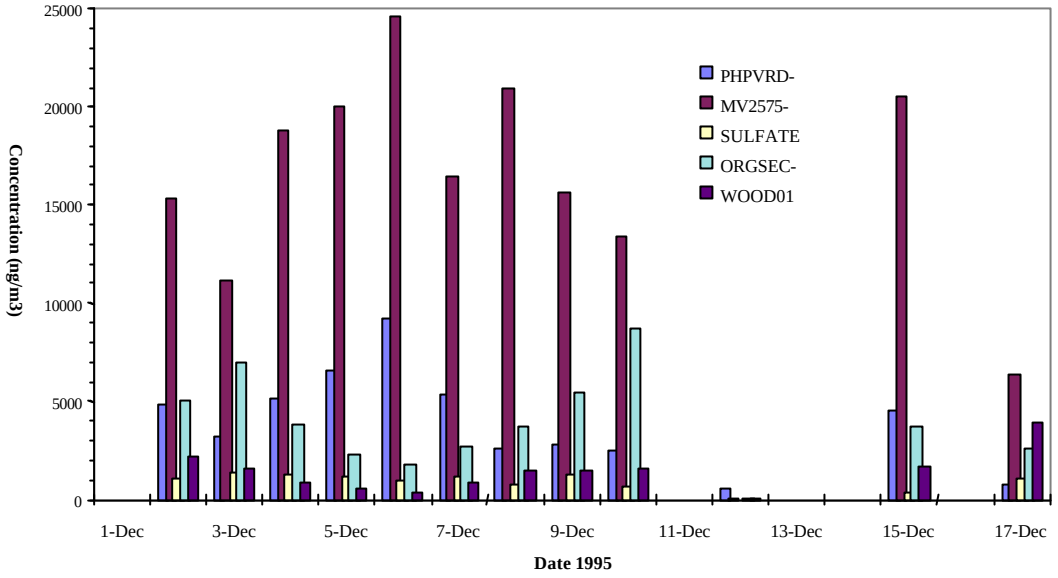


Figure 2: Source contributions (ng/m^3) during an episode December 1995.

Ongoing and planned research initiatives

1. Currently data is evaluated of the RIVM "BronStof" project, including measurement at six different site (street, urban, rural, marine and industrial) of fine and coarse particulate matter, both continuous and integrated, and speciation in elements, carbonaceous aerosol (OC/EC) and inorganic secondary aerosol. Multiple linear regression analysis and source apportionment modeling (CMB) was only successful for the coarse mode. The fine mode data evaluation was inconclusive. Potential causes are (i) relative large contribution of carbonaceous material and (ii) inorganic secondary aerosol and only minor differences between the different sites. Further work will be focussed on the fine mode data.
2. Analytical methods are implemented to estimate traffic contributions using organic marker compounds during animal exposure as part of toxicological experiments with concentrated real world particulate matter. Selection of potential markers is based on the work of Cass cs.
3. The source apportionment models mentioned hereabove, UNMIX, PMF and CMB EPA 8.2 are currently implemented and planned to be tested with particulate matter and volatile organic compound data sets.

How can source apportionment techniques be used for defining abatement strategies?

Abatement strategies are usually to be based on sound knowledge of the origin and occurrence of particulate matter. Presently, such knowledge is incomplete and hampers from many blind spots such as the contribution of biogenic, geogenic and secondary organic particulate matter. Source apportionment might further this required knowledge in particular when compared to detailed dispersion modeling results based on validated models and up to date emission inventories.

Research needs.

The following issues need to be resolved or investigated to better the source apportionment outcomes:

1. Profiles of major source emission type both speciated with elemental composition as well as organic marker compounds (in particular major combustion type sources)
2. Evaluation of applicability, accuracy and representativiness of source apportionment models in combination with dispersion models for small and large scales. Building further on the experiences reported in the February RTP workshop
3. Analytical methods for organic markers for carbonaceous aerosol. Besides the trace metals, the organic compounds, in particular the heterogeneous and oxygenated, are the less investigated group in respect to occurrence, origin and toxicological aspects.
4. Secondary organic aerosol may or may not be a relevant contribution to current PM levels. The origin of secondary organic aerosol precursors might be the same as other major PM sources but might be different as well. In respect to abatement strategies this will prove important of the contribution is substantial.
5. Biogenic and geogenic source contribution (eg. wind driven crustal material, plant detritus) will be hard to reduce. Hence, target for abatement should be defined knowingly.
6. Improved time resolution of sampling technology and analytical methods (eg. lower detection limits) as well as automation to enable handling of large sampling sets will increase the information to validate time averaged outcomes.

Stellungnahme zum Workshop PM_X-Quellenidentifizierung: Methoden und Ergebnisse 12./13. September 2001 Duisburg

Wilfried Winiwarter,
Austrian Research Center Seibersdorf

Maßnahmenpläne bei Grenzwertüberschreitung der PM10-Konzentrationen gemäß EU-Richtlinie werden eine Analyse der Einzelbeiträge, also der Quellen bzw. Ursachen beinhalten müssen. Grundsätzlich sind derartige Analysen auf zwei Arten möglich:

1. Von der Quelle zum Rezeptor:
Unter Verwendung von Emissionsdaten wird die Schadstoffausbreitung sowie die chemische Umsetzung bis zum Rezeptorpunkt mit Hilfe geeigneter Modelle verfolgt. Die Emissionsangaben (Emissionskataster) erlauben die Identifikation der jeweiligen Quellen.

2. Vom Rezeptor zur Quelle:
Unter Verwendung von Meßdaten und geeigneter statistischer Verfahren (receptor modelling) oder Umkehrung der Prozesse in Ausbreitungs-/Umwandlungsmodellen (inverse modelling) wird auf die Emissionen rückgeschlossen. Die Verfahren erlauben zum Teil eine örtliche Zuordnung und/oder eine Zuordung zu einer Quellgruppe.

Während Maßnahmenpläne am einfachsten direkt aus Emissionskatastern erstellt werden können, die bereits eine direkte Quellenzuteilung beinhalten, ist dies bei vielen Luftschadstoffen und eben auch bei PMx nicht ohne weiteres möglich. Insbesondere die atmosphärische Bildung von Aerosolen (sekundäres Aerosol) sowie die Bedeutung des Ferntransportes machen unmittelbare Aussagen aufgrund eines Emissionskatasters unmöglich. Lediglich für den lokalen Anteil kann ein Emissionskataster direkt herangezogen werden.

Daher ist es besonders wichtig, daß sich der Workshop vor allem mit den in (2) genannten Verfahren auseinandersetzt (wie ja auch dem Programm zu entnehmen ist). Nur unter Verwendung dieser Methoden können Angaben von Emissionskatastern, soferne sie überhaupt vorliegen, ergänzt und auch unabhängig überprüft werden.

Dabei sollten jedoch auch die besonderen Schwachstellen, die Emissionskataster und –bilanzen derzeit aufweisen, besondere Berücksichtigung finden. Wenn die inversen Verfahren helfen, gerade diese Schwachstellen aufzuklären, können sie am meisten dazu beitragen, auch die Emissionsdaten zu verbessern.

Zur Emissionsbilanz Österreichs wird derzeit eine Studie fertiggestellt (Veröffentlichung wird noch einige Zeit dauern, die Studie muss durch den Auftraggeber approbiert und freigegeben werden). Als herausragender Aspekt zeigt sich dabei die hohe Bedeutung, die den Emissionen aus der Wiederaufwirbelung von Staub im Straßenverkehr zukommt. Unter Verwendung des einzigen verfügbaren Verfahrens (der U.S. EPA) wäre der Beitrag dieser Quelle in der Größenordnung von der Hälfte der gesamten österreichischen PM10 Emissionen. Das Verfahren ist allerdings wissenschaftlich umstritten (siehe Venkatram, Atmos.Environ., 2000) und die Ergebnisse sind in dieser Ausprägung nicht plausibel.

Weitere wichtige Quellen, deren Bedeutung aber aufgrund der mangelhaften Datensituation nur unvollständig einzuschätzen ist, sind die diffusen Emissionen im industriellen Bereich, insbesondere aufgrund des Schüttgutumschlages, sowie die Emissionen der Bauindustrie (Baustellen). Nicht in der Studie berücksichtigt wurde die Staubaufwirbelung auf Brachflächen durch Wind.

Von Seite des Emissionskatasters wären daher inbesondere folgende Fragen durch die erwähnten inversen Methoden zu lösen:

Welche chemische Zusammensetzung hat Straßenstaub (in Abhängigkeit von der Fahrbahn / der Straßenkategorie) ? Wie groß ist der Anteil einer Quelle, die dieser Zusammensetzung entspricht (evtl. mit zusätzlichem Rußkohlenstoff aus primären Abgasemissionen) ? Welche Möglichkeiten gibt es, Emissionsfaktoren für Wiederaufwirbelung von Staub im Straßenverkehr zu bestimmen ?

Wie groß ist der Anteil an Krustenmaterial am Gesamtstaub ? Möglicherweise kann hier auch eine Unterscheidung nach meteorologischen Gesichtspunkten (Windstärke) zusätzliche Informationen liefern, die zwischen Schüttgutmanipulation (hier haben insbesondere Sande eine hohe Bedeutung, andere Schüttgüter könnten aufgrund ihrer Zusammensetzung identifiziert werden) und Winderosion trennt. Zu beachten ist jedoch, daß auch Straßenstaub zu einem beträchtlichen Anteil aus Krustenmaterial bestehen dürfte.

Nähere Informationen:
Dr. Wilfried Winiwarter
Austrian Research Centres
A-2444 Seibersdorf

wilfried.winiwarter@arcs.ac.at

Stand der Modellierungsmöglichkeiten für Feinstaubimmissionen

Karlsruher Modellsystem "KAMM/DRAIS"

Das nicht-hydrostatische Modellsystem KAMM/DRAIS (Vogel et al., 1995) kommt in der regionalen Skala zum Einsatz. Typische Simulationsgebiete haben eine horizontale Ausdehnung von 200x200 km^2. Die verwendeten Maschenweiten liegen zwischen einem und vier Kilometern. In der Vertikalen werden 25 Schichten verwendet. In Bodennähe beträgt die vertikale Maschenweite 20 m, am Oberrand des Modellgebietes, der in 8 km Höhe liegt, beträgt die vertikale Maschenweite 400 m. Die Zeitschritte liegen im Sekundenbereich.

Das Modellsystem ist mit dem Gasphasenmechanismus RADM2 gekoppelt. Das Modell MADE wurde zur Behandlung von Sekundaraerosolen integriert.

In jüngster Zeit wurde ein Programmpaket entwickelt, welches die Behandlung von Dieselruß und dessen Alterung gestattet. Somit können Aussagen über die hygroskopischen Eigenschaften des Dieselrußes und dessen Einfluss auf das atmosphärischen Strahlungsfeld gemacht werden (Riemer et al., 2001). Ziel dieser Arbeiten ist die Quantifizierung des Klimaeinflusses der Aerosole. Wie bei allen zur Zeit zum Einsatz kommenden Modellen können nicht alle in der Atmosphäre vorkommenden Aerosoltypen behandelt werden. Auf diesem Gebiet herrscht noch erheblicher Forschungsbedarf auch auf dem Gebiet der Grundlagen (z.B. biogenes organisches Sekundäraerosol).

Das Modellsystem erlaubt das gezielte Abschalten von Quellen bzw. Quellgruppen bei Beibehaltung der meteorologischen Gegebenheiten. Somit kann die Effizienz einzelner Emissionsminderungsmaßnahmen im Hinblick auf das Einhalten von Grenzwerten quantifiziert werden. Zur Zeit erfahren Arbeiten auf diesem Gebiet aber *keine* finanzielle Unterstützung.

Institut für Meteorologie und Klimaforschung Forschungszentrum Karlsruhe/Universität Karlsruhe

Prof. Dr. Franz Fiedler, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Forschungszentrum Karlsruhe/Universität Karlsruhe, Postfach 3640, 76021 Karlsruhe, Tel.: 07247 822800, Fax: 07247 824742
Dr. B. Vogel, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Forschungszentrum Karlsruhe/Universität Karlsruhe, Postfach 3640, 76021 Karlsruhe, Tel.: 07247 824233, Fax: 07247 824742

Kölner EURAD-Modellsystem

Das numerische Modellsystem EURAD des Rheinischen Instituts für Umweltforschung (RIU) an der Universität zu Köln erlaubt neben der Berechnung der Ausbreitung und Umwandlung gasförmiger Schadstoffe auch die Simulation von Aerosolen. Das im EURAD-System integrierte modale Aerosolmodul MADE enthält primäre und sekundäre Aerosole in drei Größenklassen (Moden) und beschreibt die Bildung, das Wachstum und die Deposition von Aerosolen sowie ihre Wechselwirkungen mit Wolken. Dabei werden sowohl bei den anorganischen wie auch bei organischen Sekundäraerosolen verschiedene Stoffgruppen unterschieden.

Dieses Modellsystem wird zur Zeit im Auftrag des Ministeriums für Umwelt und Naturschutz, Landwirtschaft und Verbraucherschutz (MUNLV) NRW im Rahmen des Projekts ANABEL angewendet, um für NRW eine Beurteilung der Luftqualität nach EU-Richtlinien auf Modellbasis als Ergänzung der Beurteilung auf Messbasis durchzuführen. Dazu wird das EURAD-System für ein ganzes Jahr zunächst in drei Schritten von einer horizontalen Auflösung von 125 km über 25 km bis zu 5 km Auflösung im Zielgebiet NRW betrieben. Als Ergänzung soll in einem Teilgebiet für Einzelepisoden mit hoher PM10-Belastung zusätzlich eine Auflösung von 1 km realisiert werden. Aus einer Kombination mit Ergebnissen der 5 km-Rechnung sollen so Jahreskenngrößen für 1 km Auflösung abgeleitet werden. Sensitivitätsstudien zur Ursachenanalyse sind ebenfalls geplant. Das Projekt wird im Sommer 2002 abgeschlossen.

Im Vorläuferprojekt COSIMA ist anhand von Einzelepisoden bereits die technische Machbarkeit von Jahresläufen mit dem EURAD-System gezeigt und die zu erwartende Datenqualität ermittelt worden. Dabei hat sich insbesondere für PM10 eine gute

Trefferquote bezüglich der nach EU-Richtlinien vertretbaren Fehlergrenzen ergeben: je nach Episode 75-95% der Tagesmittelwerte aller LUQS-Stationen bei 25 km Gitterauflösung. Ein Testbetrieb des Systems zur tagtäglichen Immissionsprognose in NRW ist geplant, u.a. auch für PM10.

Berliner REM3/Calgrid Modellsystem

Im Rahmen eines vom Umweltbundesamt geförderten FE-Vorhabens „Entwicklung eines Beurteilungssystems für das Zusammenspiel von Messung und Modellrechnungen für die bundeseinheitliche Umsetzung der EU-Rahmenrichtlinie Luftqualität und ihrer Tochterrichtlinien“ wurde an der Freien Universität Berlin, Institut für Meteorologie ein operables Modellsystem mittlerer Komplexität entwickelt, das die folgenden vier Raumskalen abdeckt:

- europaweit,
- großräumig (national)
- regional (Ballungsraum)
- lokal/städtisch (Einzelanlage, Stadtquartier, Straßenschlucht).

Das Modellsystem ermöglicht es, die in der EU-Rahmenrichtlinie definierten Luftqualitätswerte zu bestimmen. Betrachtet werden die Schadstoffe SO2, NOx, Benzol, Ozon, PM10 und CO. Gerechnet wird in stündlicher Auflösung für das ganze Jahr.

Das Modellsystem enthält folgende Ausbreitungsmodelle:

(i) Das dreidimensionale chemische Transportmodell REM3/CALGRID, das zur Behandlung der PM10-Problematik um ein Aerosolmodul ergänzt wurde. Das Modell wird zur Bestimmung der Luftqualität in der europaweiten und der nationalen Raumskala in einer Auflösung von ca. 30x30 km^2 und in der urbanen Raumskala (Ballungsgebiet) in einer Auflösung von ca. 2x2 km^2 verwendet. Die aus dem großräumigen Modell berechnete Hintergrundbelastung wird als Randbedingung für die urbane Skala verwendet („one-way-nesting“).

(ii) Das Canyon-Plume-Box-Modell (CPB). Das CPB-Modell ist ein 2-dimensionales analytisch-empirisches Modell, mit dem die Luftschadstoffimmissionen in einer Straßenschlucht berechnet werden können. Die Hintergrundbelastung wird dazu von den urbanen Ausbreitungsrechnungen bereit gestellt („one-way-nesting“).

(iii) AUSTAL2000, ein Lagrange'sches Partikelsimulationsmodell zur Beschreibung von Immissionsbelastungen ausgehend von industriellen Quellen.

Das System befindet sich zur Zeit in der Erprobungsphase. Erste Ergebnisse zur großräumigen PM10- und Oxidantienbelastung des Jahres 1999 liegen vor. Als nächster Schritt soll die urbane – genestet mit der regionalen - Modellskala in der Region Berlin/Brandenburg getestet werden.

Integrierte Bewertungsmodelle („integrated assessment models“)

Integrierte Bewertungsmodelle wurden auf dem Feld der Luftreinhaltung im Rahmen der UN-ECE Konvention zur großräumig grenzüberschreitenden Luftverschmutzung[1] entwickelt und angewandt.

Unter diesem Begriff werden Modellsysteme verstanden, die es erlauben,

- über die von klassischen Ausbreitungsmodellen berechnete Beziehung zwischen Emittent und Rezeptor hinaus,
- die Emissionen verschiedener Komponenten pro Quellgruppe aus länderspezifischen Daten zur wirtschaftlichen Aktivität (Energie/Brennstoffverbrauch, Anzahl/Typ von Anlagen/Fahrzeuge, Fahrleistung, etc) zu berechnen,
- das Emissionsminderungspotential pro Komponente und Quellgruppe aus einer Reihe von möglichen sektorspezifischen Maßnahmen zu bestimmen
- die länderspezifischen Kosten zusätzlich notwendiger Maßnahmen abhängig vom Grad der bereits umgesetzten Maßnahmen zu berechnen

Daraus wird für jedes Land ein "optimales“ Paket von technischen Minderungsmaßnahmen geschnürt, so dass vorher festgelegte Umwelt(zwischen)ziele überall erreicht werden und insgesamt möglichst wenig Kosten für zusätzlich notwendige Maßnahmen entstehen, die über die EU-weit oder national schon getroffenen hinausgehen.

Das bekannteste "integrierte Bewertungsmodell" ist das, vom IIASA[2] entwickelt **RAINS-Modell.** Es wurde von der CLRTAP und der EU-Kommission zur Ermittlung der nationalen

[1] Convention on long-range transboundary air pollution (CLRTAP)

Emissionshöchstgrenzen für die NEC-Richtlinie und für das im Dezember 1999 unterzeichnete CLRTAP-Protokoll zur Bekämpfung von Ozon, Versauerung und Eutrophierung eingesetzt.

Im Hinblick auf die große Bedeutung des großräumig transportierten Primär- und Sekundärstaubs, und auf die Tatsache, dass die vier in der NEC-Richtlinie behandelten Schadstoffe auch Vorläuferstoffe für Sekundärstaub sind, ist beabsichtigt, das Feinstaubproblem bei der Revision der NEC-Richtline mit zu berücksichtigen. Deshalb wird im Rahmen des CAFE ("Clean Air For Europe")-Programms der Kommission und des EMEP-Programms der UN-ECE Konvention an einer Erweiterung von RAINS gearbeitet, so dass zusätzlich auch die Emission von Feinstaub, die Entstehung und Ausbreitung von Sekundärstaub und deren Minderung behandelt werden kann.

Finanziell unterstützt durch ein F&E Vorhaben des Umweltbundesamtes wurde das Emissionsmodell in RAINS durch Feinstaub ergänzt. Alle dabei verwendeten Daten – auch die für Deutschland – können auf der Website des IIASA[3] eingesehen werden. Der nächste Schritt besteht darin, die Ausbreitung und Bildung von Feinstaub in RAINS zu integrieren. Dazu werden die o.g. Ausbreitungsmodelle benötigt, um daraus eine, wegen der Komplexität der integrierten Bewertungsmodelle notwendige Vereinfachung der Quell-Rezeptor-Beziehung ableiten zu können.
Angesichts der Bedeutung der integrierten Bewertungsmodelle bei der Revision von EU-Richtlinien ist es sehr wichtig, dass die oben genannten Modellvorhaben in Deutschland in den Prozess der Weiterentwicklung der integrierten Bewertungsmodelle einbezogen werden. Dies betrifft auch die Bereitstellung von Informationen zur Emission und Minderung der Feinstaubemissionen sowie deren Kosten, an der sich Bund und Länder aufgrund ihrer Erfahrung intensiv beteiligen sollten.
Ein weiteres Vorhaben zur (Weiter)-Entwicklung eines integrierten Bewertungsmodells ist das **MERLIN-Projekt**, ein mit Mitteln des 5. Forschungsrahmenprogramms von der EU-Kommission (DG Research) gefördertes Forschungsvorhaben zur Modellierung von Luftschadstoffminderungsstrategien.

---

[2] Internationales Institut für angewandte Systemanalyse in Laxenburg, Österreich, das seit einigen Jahren als "Centre for integrated assessment" im Rahmen von EMEP (dem wissenschaftlichen Programm der CLRTAP) fungiert
[3] die Adresse ist http://www.iiasa.ac.at/~rains/PM/pm-home.html

Es baut auf Arbeiten des INFOS-Projektes auf. Beteiligte deutsche Einrichtungen sind das IER Universität Stuttgart und ECOFYS. Berücksichtigt werden die Emissionen von Feinstaub (PM2,5, PM10), SO2, NOx, NH3, VOC, CO und Schwermetallen sowie Klimagasen (CO2, CH4, N2O, fluorierte Verbindungen). Als Wirkungskategorien werden Aerosole, urbane Luftqualität, Versauerung, Eutrophierung, tropospharisches Ozon, Schwermetalleinträge in Boden sowie der Treibhauseffekt modelliert. Das Modell befindet sich derzeit in der Entwicklung und die Arbeiten sollen bis Juni 2003 abgeschlossen werden.

Ziel dieses Projektes ist die Entwicklung eines computerbasierten Modellsystems zur Ermittlung von Bündeln von Luftreinhaltemaßnahmen, mit deren Hilfe es möglich ist, möglichst kosteneffizient Grenzwerte und Luftqualitätsziele (für Emissionen, Konzentrationen und Deposition von Luftschadstoffen) einzuhalten. Darüberhinaus wird dieses Modellsystem verwendet, um Nutzen, das heißt vermiedene Schadenskosten, durch die Implementierung von Luftreinhaltemaßnahmen zu quantifizieren, zuerst anhand physikalischer Größen, und später in einem zweiten Schritt - soweit möglich - in monetären Größen. Auf diese Weise können Kosten und Nutzen verschiedener Maßnahmenbündel abgeschätzt und eine integrierte Kosten-Nutzen-Analyse durchgeführt werden. Zusätzlich werden makroökonomische und Verteilungs-Effekte von Luftreinhaltestrategien ermittelt und bewertet.

Das Projekt ist auf eine Laufzeit von drei Jahren ausgelegt und soll auch im Rahmen des CAFE-Programms der DG Umwelt angewandt werden. Während des ersten Jahres wird die Sammlung und Auswertung von Daten sowie die Definition von Schnittstellen zwischen den eingesetzten Modellen und zu externen Nutzern im Vordergrund stehen. Im zweiten Jahr sollen die verwendeten Modelle soweit weiterentwickelt, harmonisiert und angepasst werden, dass sie schließlich als integriertes Instrument zur Bewertung der Luftreinhaltestrategien zur Verfügung stehen. Diese Bewertung wird im dritten und letzten Jahr durchgeführt, um die Entwicklung von EU-weiten Luftreinhaltestrategien zu unterstützen.

Forschungs-und Entwicklungsbedarf

Aus den Vorträgen und Diskussionen während des Workshops (12./13.09.01) lasen sich folgende Anforderungen an die Quellenidentifizierung ableiten:

- Alle wesentlichen Feinstaub-Quellen müssen identifizierbar und quantifizierbar sein
- Eine genügende zeitliche Auflösung der Quellenzuordnung muss zur Identifikation der Quellen unter den meteorologischen Bedingungen gegeben sein, bei denen Grenzwertüberschreitungen auftreten
- Eine räumliche Zuordnung der Quellen muss gewährleistet sein, um die effektivsten Maßnahmen für einen belasteten Raum identifizieren zu können
- Atmosphärische Umwandlungsprozesse und Aerosolbildungsprozesse zwischen Quelle und Immissionsort müssen erfassbar sein

Dabei wurden deutliche Defizite und somit ein Forschungs- und Entwicklungsbedarf offengelegt. Dieser lässt sich grob in drei Blöcke gliedern:

Immission

- Methodenentwicklung zur Bestimmung von Staubinhaltsstoffen mit höherer Zeitauflösung (Zielwert: 1 Stunde), insbesondere von Tracer-Komponenten

Emission

- messtechnische Erfassung diffuser Emission
- Untersuchung und Quantifizierung der Beiträge durch Straßenabrieb und -aufwirbelung
- Identifizierung von (organischen und anorganischen) Tracern für bestimmte Quellen
- Schließung der Lücken im Bereich der Ammoniakemissionen
- Validierung der Emissionskataster anhand von Emissionsmessungen

Modelle

- Vergleich verschiedener Quellenidentifizierungsmodelle und –verfahren anhand virtueller und/oder gemessener Immissionsdatensätze (mit möglichst vielen chemischen, physikalischen und meteorologischen Parametern)

a) *Ausbreitungsmodelle und Quellen-Rezeptor-Modelle*

- Aktualisierung und Erweiterung der Emissionskataster
- Parametrisierung der Beiträge durch Straßenabrieb und –aufwirbelung durch verkehrsbedingte Emissionen
- Parametrisierung der biogenen Quellen
- Parametrisierung weiterer diffuser Quellen
- Erweiterung der räumlichen Anwendungsskala auf „kleine“ Räum (bis 100 m) z. B. durch Nestung

b) Rezeptormodelle

- Entwicklung von Modell- und Methodenkombinationen unter Berücksichtigung der oben genannten aus der zukünftigen Erstellung von Massnahmeplänen erwachsenden Anforderungen.

C Überblick zu Untersuchungsvorhaben hinsichtlich der Quellen für die Feinstaubbelastung in der Bundesrepublik

C1 Abgeschlossene Untersuchungsvorhaben

Die im Rahmen des Workshops zur PMx-Quellidentifizierung durchgeführte Umfrage nach relevanten Untersuchungsvorhaben förderte eine Reihe von Projekten zutage, in denen auf der Basis von Messungen der PM-Konzentration und der Analyse von Staubinhaltsstoffen Aussagen zu den Quellen der Feinstaubimmission gewonnen wurde. Eine Kurzbeschreibung der erfassten und bereits abgeschlossenen Vorhaben in Bayern, Berlin, Niedersachsen, Nordrhein-Westfalen, Sachsen, Sachsen-Anhalt und Thüringen ist in Anhang A zu finden.

Die wichtigsten Ergebnisse dieser Untersuchungen lassen sich wie folgt zusammenfassen:

[1] Bezüglich der Zusammensetzung und Größenverteilung des Feinstaubes

Die Konzentration von elementarem Kohlenstoff (Ruß) in PM_{10}-und $PM_{2,5}$-Staubproben bewegen sich im Hintergrundbereich um 10%, im straßennahen Bereich zwischen 10 und 20%. Die der Erdkruste zurechenbaren Kationen (Natrium, Kalium, Kalzium und Magnesium) sind in der groben Fraktion (zwischen 2.5 und 10 µm) stärker vertreten als im Feinstaub kleiner als 2.5 µm. Dies gilt auch für aufgewirbeltes anorganisches Material. In der Nähe bestimmter Industrieanlagen und an Verkehrsmessstellen sind erhöhte Schwermetallgehalte festzustellen.

Organisches Material ist zu etwa 20% an der PM10-Masse im urbanen Hintergrund beteiligt. Strittig ist der darin enthaltene Anteil biogenen Materials und des Beitrages aus natürlichen Quellen insgesamt. Bisherige Ergebnisse deuten im urbanen Hintergrund auf einen natürlichen Anteil von 12% im Jahresmittel hin, der jedoch saisonal doppelt so hoch sein kann.

Der Anteil an Sekundärstaub (lösliche Ionen) ist in der $PM_{2,5}$-Fraktion (>50%) höher als in PM_{10}-Staub, der allerdings sogar in Straßennähe schon aus mehr als 40% Sekundarstaub besteht. Untersuchungen von der Zugspitze zeigen, dass der Nitratanteil gegenüber dem Sulfatanteil oberhalb der planetarischen Grenzschicht abnimmt.

Mehr als 80% der Anzahl der Teilchen findet sich im Größenbereich von < 0.1 µm (ultrafeines PM) wieder, der jedoch nur 3% der Massenkonzentration ausmacht.

[2] Nach geographischer Herkunft und Quellen:

In einem urbanen Ballungraum (Beispiel Berlin) ist mehr als ein Drittel ist auf externe Einflüsse zurückzuführen, die sich der Kontrolle lokaler Minderungsstrategien entziehen. Der Großteil des importierten Anteils besteht aus Sekundärstaub, der neben Verkehr und Industrie auch auf die Beiträge aus der Landwirtschaft (Ammoniakemissionen) zurückgeht. Allerdings gibt es Hinweise, dass ein nicht vernachlässigbarer Teil des Sekundärstaubes auch aus Quellen im subregionalen Einzugsbereich (30 km) stammen könnte.

Episoden hoher Feinstaubbelastung sind meist mit einem erhöhtem Sekundäraerosolanteil (72% in NRW) verbunden, was auf stärkeren Beitrag durch Fernstransport schließen läßt. Bei weiteren 22% solcher Episoden in NRW ist die Aufwirbelung durch höhere Windgeschwindigkeit ein dominierender Faktor. Einige Episoden im Berliner Raum sind durch überregional erhöhte Staubwerte charakterisiert, was, zusammen mit der Auswertung von Rückwärtstrajektorien, auf großräumigen, womöglich grenzüberschreitende Verfrachtung von Feinstaub hinweist.

In einem Ballungsraum ohne industriellen Schwerpunkt (Beispiel Berlin) ist der Verkehr mit mehr als 50% Anteil am PM10-Staub der dominierende Sektor. Ähnliches wurde auch bei Messungen an einer verkehrsbelasteten Station in Leipzig gefunden. Von den in Berlin beeinflußbaren Quellen stammt sogar 70% des PM10 vom Verkehr, wobei Reifenabrieb und Aufwirbelung zusammengenommen den aus dem Auspuff stammenden Anteil deutlich übertreffen.

Weitere bedeutsame Quellgruppen an der städtisch geprägten Hintergrundbelastung sind Industrie (10-20%, einschließlich Beitrag zum Sekundärstaub) und Kleinfeuerungen (5% bis über 10%). Hausbrand scheint insbesondere dort als Feinstaubquelle von Bedeutung zu sein, wo noch, wie z.B. in Leipzig, in größerem Umfang feste Brennstoffe eingesetzt werden.

[3] Bezüglich des Problems der Quantifizierung des Anteils aus Aufwirbelung von Straßenstaub und aus Reifenabrieb

Eine Recherche der national und international vorhandenen Literatur über Untersuchungen zur PM10-Emissionsbestimmung aus Staubaufwirbelung und Straßenabrieb zeigt große Unsicherheiten und Abweichungen der bisher verwandten Ansätze. Ein von der US-EPA entwickelter Ansatz wurde auf der Basis von Messungen in Berlin und Leipzig so modifiziert,

dass er zumindest vorläufig als Arbeitsbasis für PM10-Emissionsmodelle benutzt werden kann.

Aus den Messungen ist zu entnehmen, dass ein schlechter Zustand der Straßenoberfläche und ein unbefestigter Randstreifen die Emission durch Aufwirbelung deutlich verstärkt. Nach Messungen in der Schildhornstrasse (Berlin) besteht die straßenbedingte Zusatzbelastung zu 52 % aus Staubaufwirbelung, ca. 7 % aus Reifenabrieb und ca. 41 % aus den Auspuff-emissionen.

C2 Laufende/geplante Untersuchungsvorhaben

Eine Übersicht zu derzeit noch laufenden bzw. in Kürze beginnenden Projekten mit der Zielsetzung, den Wissenstand über die Quellen der Feinstaubbelastung zu erhöhen, kann dem Anhang B entnommen werden. Die dort aufgeführten Projekte lassen sich in 2 Gruppen unterteilen:

[1] Untersuchungen zur Quellenidentifizierung im Bereich städtischer Ballungsgebiete (Berlin, NRW (Duisburg), Hessen (Frankfurt), Rheinland-Pfalz) auf der Basis umfangreicher Messungen an einer bzw. mehreren Messstationen. Gegenüber den bisher durchgeführten Untersuchungen unterscheiden sich diese Projekte durch im allgemeinen längere Messzeiträume sowie z. T. durch Vorgaben hinsichtlich der anzuwendenden Auswerteverfahren.

Wesentliche Zielsetzungen dieser Projekte sind:

- Vergleichende Charakterisierung unterschiedlicher Probenahmestellen im Hinblick auf die PMx-Belastung
- Ausarbeitung und Anwendung von Methoden zur Ermittlung der Ursachen für Feinstaub und der Quellenzuordnung aus den Messungen
- Nutzung der Daten für Ausbreitungsmodelle in der urbanen bzw. Straßenschluchtskala

[2] gezielte Untersuchungen zur Emissionsquelle "Verkehr", mit Schwerpunkten im Hinblick auf die Bedeutung der Resuspension von Straßenstaub und des Abriebs von Reifen und Straßenoberflächen sowie auf die Verbesserung von Emissionsfaktoren und Rechenmodellen (Baden-Württemberg, NRW, Niedersachsen, Thüringen (Erfurt)). Dabei werden u. a. die nachstehenden Ziele verfolgt:

- Quantifizierung der Fehler, mit denen derzeit verwendete Verkehrs-Emissionsdaten behaftet sind
- Erstellung einer belastbaren Datengrundlage für ein Berechnungsverfahren der Straßenabrieb - und Aufwirbelungsemissionen
- Entwicklung und Validierung eines (für NRW) geeigneten Berechnungsansatzes der PM10-Emissionen aus dem Straßenverkehr

Mit diesen Untersuchungsvorhaben wird damit bereits ein Teil des im Kapitel 5 dargestellten F&E-Bedarfes aufgegriffen.

C3. Kurzdarstellungen: Abgeschlossene Untersuchungsvorhaben

LAND
Bayern
Projekttitel
Stand der Immissionssituation bei Feinpartikeln
Bearbeitungszeitraum
Jan. 1999 – Feb. 2000
Auftraggeber
Bayerisches Staatsministerium für Landesentwicklung und Umweltfragen
durchführende Institution(en)
Bayerisches Landesamt für Umweltschutz (LfU)
Kontakt
Dr. Peter Rabl, LfU, Bürgermeister-Ulrich-Straße 160, 86179 Augsburg, Tel. 0821/9071-5183, Fax: 0821/9071-5551
Zielsetzungen
Um einen orientierenden Überblick über die bayernweite Immissionssituation zu gewinnen, sollten im Messprogramm folgende Bereiche berücksichtigt werden:

- Urbane Ballungsräume (quellnah, z.B. an Hauptverkehrsstraßen, ggf. auch an anderen Verkehrsanlagen; quellenbeeinflusst, z.B. in innerstädtischen Wohnquartieren; quellfern in Stadtrand- und Erholungsbereichen)
- Industriegebiete (z. B. Metallverarbeitende Industrie, Glasindustrie, Kraftwerke, Raffinerien, Holzverarbeitung, Güterumschlag)
- Ländlicher Hintergrund (im Einwirkungsbereich landwirtschaftlicher und forstwirtschaftlicher Betriebe, in Erholungsgebieten)
- In Höhenlagen und oberhalb der planetarischen Grenzschicht (Mittelgebirge, Zugspitze)

Eingesetzte Geräte/Messparameter
Probenahme:

- Tagesproben (24 Std.) mit Low-Volume-Samplern LVS3 der Fa. Derenda und Leckel entsprechend der Richtlinie VDI 2463 Bl. 7 mit PM_{10}- und $PM_{2,5}$-Vorabscheidern nach Europäischer Norm EN 12341 (Ansaugvolumen 2 m³/h)
- Monatsproben mit Miniatursammlern MiniVS derselben Hersteller mit 0,1 m³/h vor allem an wenig zugänglichen Messstellen im Gebirge und zur Vergleichsmessung an LÜB-Messstationen
- kontinuierliche radiometrische Bestimmungen der PM_{10}-Staubkonzentration mit ß-Staubmetern der Fa. Eberline (jetzt ESM Andersen Instruments) an den LÜB-Messstationen als Vergleichswerte

Bestimmung verschiedene Inhaltsstoffe des Staubes:

- Ruß (elementarer Kohlenstoff - EC) auf geglühte Glasfaserfilter (GF) (Macherey-Nagel, Typ: MN 85/90 BF)
- Lösliche Ionen auf Teflon (PTFE)-Filter mit 2 µm Porenweite (PALL Gelman, Typ Zefluor, Porengröße 2,0 µm): Chlorid (Cl^-), Nitrat (NO_3^-), Ammonium (NH_4^+), Phosphat (PO_4^{3-}), Sulfat (SO_4^{2-}), Natrium (Na^+), Kalium (K^+), Magnesium (Mg^{2+}), Calcium (Ca^{2+})
- Metalle auf Zellulosenitrat (CN)-Filtern (Sartorius, Porenweite 1,2 µm): Aluminium (Al), Chrom (Cr), Mangan (Mn), Eisen (Fe), Nickel (Ni), Kupfer (Cu), Zink (Zn), Blei (Pb)

Probenahmestrategie:
An jedem Messort wurde mit Low-Volume-Probenahme nacheinander im Laufe von drei Wochen ein Glasfaser-, ein Cellulosenitrat- und ein Teflonfilter in einem PM_{10}-Vorabscheider beaufschlagt. Danach erfolgte die Staubprobenahme in der selben Reihenfolge in einem $PM_{2,5}$-Vorabscheider. Bei den Messorten mit MiniVS-Probenahme wurde im gleichen Zyklus

gesammelt, jedoch nicht in wöchentlicher sondern in monatlicher Reihenfolge. Pro Low-Volume-Messpunkt konnten so maximal 26 PM_{10}- bzw. $PM_{2,5}$-24 h-Messwerte gewonnen werden. Bei den MiniVS-Messstellen waren es jeweils 6 Monatsmesswerte. Beim Vergleich der PM_{10}- und $PM_{2,5}$-Messergebnisse ist deshalb auch zu beachten, dass sie nicht gleichzeitig, sondern im Abstand von 3 Wochen bzw. 3 Monaten gewonnen worden sind. Lediglich auf der Zugspitze wurden wegen der Unzugänglichkeit des Messortes je ein PM_{10}- und ein $PM_{2,5}$-MiniVS-Gerät parallel betrieben. Dort führten aber die extremen Witterungsverhältnisse in Verbindung mit der jeweils 30-tägigen Sammelzeit dazu, dass eine Auswertung der Ergebnisse meistens nicht möglich war.

Ergebnisse

- Die Monatsmittel der ß-radiometrischen und der gravimetrischen Messungen differieren erwartungsgemäß, was u.a. auch darauf zurückzuführen ist, dass das ß-radiometrische Verfahren bisher nur mit Folienstandards, aber nicht vor Ort gegen das gravimetrische Basisverfahren kalibriert worden ist.
- Die $PM_{2,5}$-Fraktion weist mit durchschnittlich 48,5 % (Sulfat 19 %, Nitrat 26 %, Ammonium 11 %, Chlorid 0,9 %) höhere relative Anteile an löslichen Ionen auf als PM_{10}-Staub mit durchschnittlich 41 % (Sulfat 13 %, Nitrat 15 %, Ammonium 8 %, Chlorid 1,2 %). Dabei lassen die geringeren Schwankungen der Sulfat-Konzentrationen auf Ferntransporteinflüsse schließen. Die deutlichen Schwankungen bei Nitrat deuten auf nahegelegene Quellen, während bei Ammoniak wiederum eher ubiquitäre Quellen wahrscheinlich sind.
- Während im Jahresverlauf die Sulfatkonzentrations-Schwankungen eher gering sind, sind diese für Nitrat (Winter zu Sommer ca. 10 zu 1) und Ammonium (Winter zu Sommer 3 zu 1) deutlich ausgeprägt). Letztere dürften im Wesentlichen auf die hohe Flüchtigkeit von Ammoniumnitrat zurückzuführen sein. Während einer Episode im Januar 2000 mit deutlich erhöhten PM_{10}-Konzentrationen von bis zu 80 $\mu g/m^3$ auch fernab von Straßen erreichte die Summe an löslichen Ionen knapp 52 % (Sulfat 11 %, Nitrat 26 %, Ammonium 11 %).
- Hingegen weisen die bodenbürtigen Kationen Na^+, K^+, Ca^{2+} und Mg^{2+}, soweit sie im löslichen Anteil nachweisbar waren, in der PM_{10}-Fraktion höhere Anteile auf (Summenmittel aller Proben ca. 4 % bei PM_{10} gegenüber ca. 2 % bei $PM_{2,5}$).
- Auffällig hohe Calcium-Gehalte weisen die Ergebnisse von der Zugspitze auf. Auch war hierin kaum Nitrat, wohl aber Sulfat festzustellen. Oberhalb der planetarischen Grenzschicht nimmt der Nitratanteil offenbar gegenüber dem Sulfatanteil ab.
- Die Summenkonzentration der untersuchten Metalle in den PM_{10}-Proben beträgt im Mittel etwa 1,4 %, in den $PM_{2,5}$-Proben ca. 0,9 %. Dabei weisen die PM_{10}-Staubproben bis auf die Elemente Kupfer und Blei im Durchschnitt höhere Metallkonzentrationen auf. Der erhöhte Anteil von Blei im $PM_{2,5}$-Staub weist auf die erhöhte Flüchtigkeit von Blei hin. Für die erhöhten Kupfer-Gehalte im $PM_{2,5}$-Staub findet sich jedoch keine Erklärung. Während der Episode im Januar 2000 mit deutlich erhöhten PM_{10}-Belastungen lagen die Metallsummenkonzentrationen allerdings überwiegend unter dem Bay. Durchschnitt.
- Die EC-Konzentrationen in PM_{10}-und $PM_{2,5}$-Staubproben bewegen sich im Hintergrundbereich um 10%, im straßennahen Bereich zwischen 10 und 20%. Die noch nachweisbare EC-Konzentration auf der Zugspitze aus einer Probe vom Dezember 1999 dürfte auf Pistenraupenbetrieb zurückzuführen sein.

Bezugsquelle des Abschlussberichtes

Der Bericht kann über das Bayerische Landesamt für Umweltschutz bezogen werden.

LAND
Berlin
Projekttitel
Quantifizierung der Feinstaubbildung im Nahbereich von Straßen. Literaturrecherche
Bearbeitungszeitraum
August 2000 / Januar 2001
Auftraggeber
Senatsverwaltung für Stadtentwicklung IX D 2, Berlin
durchführende Institution(en)
Ingenieurbüro Dr.-Ing. Achim Lohmeyer, Radebeul
Kontakt
Dr.rer.nat. Ingo Düring, E-Mail: info.dd@Lohmeyer.de oder Hr. Reichenbächer, Wolfgang.Reichenbaecher@SenStadt.Verwalt-Berlin.de,
Zielsetzungen
Aufgabe der Studie war eine kritische Recherche über die zurzeit weltweit in der Literatur vorliegenden Ansätze zur Quantifizierung der "nichtauspuffbedingten" Feinstaubemission von Straßen und die Auswahl einer Berechnungsvorschrift für Deutschland, die sich ähnlich wie die Berechnungsformel der US-EPA dazu eignet, aus einfach zu ermittelnden Eingangsgrößen einen Emissionsfaktor für PM10-Feinstaub zu berechnen. Entwicklungsarbeiten waren im Rahmen dieser Literaturrecherche nicht vorgesehen.
Eingesetzte Geräte/Messparameter
Keine
Ergebnisse
Das Suchergebnis der Literaturrecherche zeigt:
Eine Formel zur Bestimmung der Emissionen gibt es in Schweden und von der EPA der USA. Für die EPA-Formel wurde von Rauterberg-Wulff (2000) gezeigt, wie sie modifiziert werden muss, um Messungen in der Frankfurter Allee, Berlin zu beschreiben. Vom LUA Brandenburg (2000) wurde sie für die Anwendung in Brandenburg modifiziert. Die Formel wird auch vom LUA Nordrhein-Westfalen und dem IER der Universität Stuttgart verwendet.

- Andere Länder z.B. Österreich, Großbritannien, Frankreich leiten in Ermangelung besserer Verfahren die PM10-Emission aus der NO_x- oder Rußemission ab.
- Aus einigen Ländern (Schweiz, Niederlande) sind Emissionsfaktoren für eine einzelne Straße oder pauschal für Straßen veröffentlicht worden.
- Die Recherche zeigt, dass große Unsicherheit bzgl. PM-Emissionsbestimmung aus Staubaufwirbelung und Straßenabrieb herrscht. Das Fehlen einer Berechnungsvorschrift wird beklagt, die Leistungsfähigkeit der EPA-Formel wird z.B. in den USA von einer renommierten Gruppe (Venkatram) in Frage gestellt, die englische Partikel-Expertengruppe hält sie gar für England für überhaupt nicht anwendbar und bestimmt die PM10-Emission aus der NO_x-Emission, trotz des Erkennens der Problematik dieser Vorgehensweise.

Da auf Basis der Informationen der vorliegenden Recherche praktisch nutzbare Empfehlungen gemacht werden müssen, wird im Bericht ein Berechnungsverfahren auf Basis der Formel der US-EPA vorgeschlagen.
Bezugsquelle des Abschlussberichtes
Senatsverwaltung für Stadtentwicklung IX D 2, Brückenstraße 6, 10173 Berlin (Hr. Wolfgang Reichenbächer) oder Ingenieurbüro Dr.-Ing. Achim Lohmeyer, Mohrenstraße 14, 01445 Radebeul (Dr.rer.nat. Ingo Düring).
Der Bericht ist in eine zusammenfassende Darstellung eingeflossen, welche herunterladbar ist unter www.Lohmeyer.de/Literatur/Zusammenfassung_06_01.pdf.

LAND
Berlin
Projekttitel
Validierung von PM10-Immissionsberechnungen im Nahbereich von Straßen und Quantifizierung der Staubbildung von Straßen: Schildhornstraße in Berlin
Bearbeitungszeitraum
August 2000 / April 2001
Auftraggeber
Senatsverwaltung für Stadtentwicklung IX D2, Berlin
durchführende Institution(en)
Ingenieurbüro Dr.-Ing. Achim Lohmeyer, Radebeul
Kontakt
Hr. Reichenbächer, Wolfgang.Reichenbaecher@SenStadt.Verwalt-Berlin.de, oder Dr. Düring, info.dd@Lohmeyer.de
Zielsetzungen
Literaturrecherche. Dann Messungen und Untersuchung der Frage, inwieweit ein von der US-EPA entwickeltes PM10-Emissionsmodell sowie ein erster Vorschlag für eine Modifizierung für die Bestimmung der verkehrsbedingten PM10-Emission geeignet ist, die in der Schildhornstraße in Berlin gemessenen Immissionswerte zu reproduzieren, bzw. wie gegebenenfalls entsprechende Parameter des Modells modifiziert werden könnten.
Eingesetzte Geräte/Messparameter
Eingesetzte Messgeräte (für 4 Wochen, näheres siehe Bericht):
Verkehrszählung: Verkehrszählplatten NG 90 A
Staubbeladung Straße: Handstaubsauger Miele S141
Analyse PM75 auf Inhaltsstoffe: AIRTEC Gesellschaft für Umweltmessungen mbH, Leipzig.
Immissionen PM10, PM2.5 (inkl. Inhaltsanalyse) und NOx: DEKRA Umwelt AG, Stuttgart.
Ergebnisse
Im Fahrbereich wurden mittlere PM75-Belegungen zwischen 0.06 und 0.14 g/m² festgestellt, im Rinnsteinbereich (0 bis 0.25 m vom Bordstein entfernt) ca. 1.7 bis 2.3 g/m². Als Mittelwert für die gesamte Straße ergab das 0.16 ± 0.09 g/m². Dieser Wert liegt niedriger als die von Rauterberg-Wulff (2000) an der Frankfurter Allee in Berlin festgestellten ca. 0.2 g/m^2.
Die Analyse der PM75-Fraktion des Straßenstaubes ergab etwa 86 % der Gesamtmasse silikatischen Anteile, ca. 4 % elementaren und ca. 2.8 % organisch gebundenen Kohlenstoff. Diese Stoffanteile waren im Wesentlichen unabhängig von deren Herkunft auf der Straße.
Gemessen (inkl. Analyse der Filterbeladungen) wurde sowohl straßennah als auch im urbanen Hintergrund. Dadurch konnte die Zusatzbelastung infolge Strasse identifiziert werden. Darin lag der mineralische Anteil (vorwiegend aus Staubaufwirbelung) bei ca. 52 %, ca. 7 % resultierten aus Reifenabrieb und ca. 41 % aus den Auspuffemissionen.
Aus inversen Ausbreitungsrechnungen mit MISKAM konnte ein PM10-Gesamtemissionsfaktor zwischen 0.091 und 0.096 g/(km · Fzg) abgeschätzt werden. Bei der Verwendung einer alternativen Vorgehensweise mit NO_x als Tracer (wobei kein mathematisches Ausbreitungsmodell eingesetzt werden und keine Meteorologie bekannt sein muss) ergibt sich ein Emissionsfaktor zwischen 0.081 und 0.095 g/(km · Fzg).
Durch separate Betrachtung der Wochenenden und der Arbeitstage konnte eine separate Abschätzung der PM10-Emissionsfaktoren für PKW und LKW erfolgen.
Bezugsquelle des Abschlussberichtes
Senatsverwaltung für Stadtentwicklung IX D 2, Brückenstraße 6, 10173 Berlin (Hr. Wolfgang Reichenbächer) oder Ingenieurbüro Dr.-Ing. Achim Lohmeyer, Mohrenstraße 14, 01445 Radebeul (Dr.rer.nat. Ingo Düring). Zusammenfassende Darstellung herunterladbar von www.Lohmeyer.de/Literatur/Zusammenfassung_06_01.pdf.

LAND
Berlin und Sachsen
Projekttitel
Validierung von PM10-Immissionsberechnungen im Nahbereich von Straßen und Quantifizierung der Feinstaubbildung von Straßen
Bearbeitungszeitraum
August 2000 / Juni 2001
Auftraggeber
Senatsverwaltung für Stadtentwicklung IX D 2, Berlin und Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Radebeul
durchführende Institution(en)
Ingenieurbüro Dr.-Ing. Achim Lohmeyer, Radebeul
Kontakt
Hr. Reichenbächer, Wolfgang.Reichenbaecher@SenStadt.Verwalt-Berlin.de, Dr. Jacob, Johannes.Jacob@lfug.smul.sachsen.de, oder Dr. Düring, info.dd@Lohmeyer.de.
Zielsetzungen
Zusammenfassung der bisher durchgeführten Projekte bezüglich Quantifizierung der PM10-Emissionen von Straßen infolge Aufwirbelung und Abrieb.
Eingesetzte Geräte/Messparameter
keine
Ergebnisse
Die Literaturrecherche zeigt große Unsicherheit bzgl. der PM10-Emissionsbestimmung aus Staubaufwirbelung und Straßenabrieb. Da das US-EPA-Modell derzeit das einzige für eine Empfehlung zur Verfügung stehende Modell ist, wird als kurzfristige Empfehlung gegeben, zunächst dieses als Arbeitsbasis für ein PM10-Berechnungsmodell zu nehmen, allerdings mit Modifikation resultierend aus Messungen in Deutschland.
Mit den Messungen in der Lützner Straße in Leipzig und der Schildhornstrasse in Berlin stehen Daten zu Verfügung bezüglich der Staubbeladungen dieser Strassen, der PM10 Emissionsfaktoren und der Inhaltsstoffe des Staubbelags auf Strasse und auf Filtern der Immissionsmessgeräte. In der Lützner Strasse wurde festgestellt, dass die PM10 Emissionsfaktoren etwa 4 mal so hoch sind wie in anderen Strassen. Es wird vermutet, dass dies vom schlechten Zustand der Straßenoberfläche und unbefestigten Randstreifen herrührt. In der Schildhornstrasse wurde die straßenbedingte Zusatzbelastung identifiziert als bestehend zu 52 % aus Staubaufwirbelung, ca. 7 % aus Reifenabrieb und ca. 41 % aus den Auspuff-emissionen. Aus inversen Ausbreitungsrechnungen mit MISKAM und mit einer alternativen Vorgehensweise mit NO_x als Tracer konnte ein PM10-Emissionsfaktor abgeschätzt werden. Durch separate Betrachtung der Wochenenden und der Arbeitstage konnte zusätzlich eine separate Abschätzung der PM10-Emissionsfaktoren für PKW und LKW erfolgen.
Für die Emissionsberechnung wird empfohlen die PM10-Emissionen einer Straße zusammenzusetzen aus den bezugsjahrspezifischen Emissionen aus dem Auspuff und den bezugsjahr- unabhängigen Emissionen aus Abrieb und Aufwirbelung. Die Auspuffemissionen werden nach Handbuch des UBA bestimmt, für Abrieb und Aufwirbelung wird ein auf dem Modell der US-EPA aufbauendes Verfahren vorgeschlagen, welches aber mangels besserer Datenlage nur die Parameter Fahrzeuggewicht, PM75 Fraktion der Staubbeladung der Strasse und Regenhäufigkeit nutzt. Es ist zu vermuten, dass die Parameter Fahrzeuggeschwindigkeit, Straßenmaterial und Straßenzustand ebenfalls einen Einfluss haben, der aber bei den derzeitig vorhandenen Datensätzen nicht quantifiziert werden kann.
Bezugsquelle des Abschlussberichtes
Bericht steht im Internet unter www.Lohmeyer.de/Literatur/Zusammenfassung_06_01.pfd

LAND
Nordrhein-Westfalen
Projekttitel
Korngrößenabhängige Untersuchungen von Schwebstaub und Inhaltsstoffen
Bearbeitungszeitraum
1998-31.12.1999
Auftraggeber
Ministerium für Umwelt, Raumordnung und Landwirtschaft (MURL) Nordrhein-Westfalen
durchführende Institution(en)
Gerhard-Mercator-Universität Duisburg, Fb9, Prozess-und Aerosolmesstechnik, Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen
Kontakt
Dr. Thomas Kuhlbusch, IUTA e.V., Bliersheimer Str. 60, 47229 Duisburg, Tel.: 02065-418-0 Fax 02065-418-211
Zielsetzungen

- Umfassende chemische und physikalische Charakterisierung luftgetragener Partikel (Anzahl, Massengrößenverteilung, chemische Größenverteilung
- Vergleich von etablierten und neu- bzw. weiterentwickelten Messgeräten
- Untersuchung der Quellen, Herkunft, Ausbreitung und Transport luftgetragener Partikel

Eingesetzte Geräte/Messparameter
Physikalische Beschreibung des Aerosols: DMPS (<1 µm), APS (1-15 µm), β-Staubmeter (TSP), TEOM (PM10, PM2.5), High-Vol-Sammler (PM10, PM2.5) und Kleinfiltergräte (PM2.5) PM1);
Chemische Charakterisierung: Analysen der High-Vol-Filter auf Pb, Cd, As, Ni, NH_4^+, NO_3^-, SO_4^{2-}, Cl^-, PAK's, Ruß; Aethalometer; Impaktorproben PM10-2.5 und PM2.5-1 sowie ESP-Proben PM1 mittels TXRF
Messungen an 4 Standorten für jeweils ca. 1 Monat (1 Verkehrsbelastet, urbaner Hintergrund, urban-industriell, ländlich (2 Messkampagnen))
Ergebnisse
Gerätevergleich: gute Übereinstimmung der mit diskontinuierlichen Filtriersammlern gefundenen PM2.5-Massen. TEOM zeigt Minderbefunde. Akzeptable Korrelation zwischen thermisch-coulometrischer (VDI) Rußbestimmung und Aethalometerdaten; Aethalometer ergibt 30% mehr bzw. 10% weniger BC als VDI-Methode

Der EU-Grenzwert für Tagesmittelwert wird gem. Hochrechnung an allen Stationen häufiger als 35 mal im Jahr überschritten. Grenzwertüberschreitende Episoden können zwei unterschiedlichen Episodentypen mit erhöhtem Einfluß von Sekundäraerosol (72% der Episodentage) bzw. Winderosion (19% der Episodentage) zugeordnet werden. Regelmäßige regionale Quellen (40 km Umkreis) zeigen deutlichen Einfluß auf die Immissionssituation (Partikelmasse:20-30 %. BC:5%(ländliche), 16%(städtisch), 50% (verkehrsbelastet).

Eine erste Quellenzuordnung auf der Basis ionischer Bestandteile sowie OC/BC egab im Mittel folgende Beiträge zur PM10-Massenkonzentration: Verkehr(incl. sek. Aerosol, excl. Aufwirbelung) : 22%, Industrie 9%, Landwirtschaft/Stromerzeugung 7%, Kleinfeuerungsanlagen 5%
Bezugsquelle des Abschlussberichtes
Der Bericht kann als pdf-Datei bezogen werden unter http://www.uni-duisburg.de/FB9/AMT/ (Forschungsergebnisse)

LAND

Sachsen

Projekttitel

Validierung von PM10-Immissionsberechnungen im Nahbereich von Straßen und Quantifizierung der Staubbildung von Straßen: Lützner Straße in Leipzig

Bearbeitungszeitraum

August 2000 / Februar 2001

Auftraggeber

Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Radebeul

durchführende Institution(en)

Ingenieurbüro Dr.-Ing. Achim Lohmeyer, Radebeul

Kontakt

Dr. Jacob, Johannes.Jacob@lfug.smul.sachsen.de, oder Dr. Düring, info.dd@Lohmeyer.de

Zielsetzungen

Untersuchung der Frage, inwieweit ein von der US-EPA entwickeltes PM10-Emissionsmodell sowie ein erster Vorschlag für eine Modifizierung für die Bestimmung der verkehrsbedingten PM10-Emission geeignet ist, die in der Lützner Straße in Leipzig gemessenen Immissionswerte zu reproduzieren, bzw. wie gegebenenfalls entsprechende Parameter des Modells modifiziert werden könnten.

Eingesetzte Geräte/Messparameter

Eingesetzte Messgeräte (für 4 Wochen, näheres siehe Bericht):
Verkehrszählung: Verkehrszählplatten NG 90 A
Staubbeladung Straße: Handstaubsauger Miele S141
Analyse PM75 auf Inhaltsstoffe: AIRTEC Gesellschaft für Umweltmessungen mbH, Leipzig.
Immissionen PM10 und PM2.5 inkl. Inhaltsstoffanalyse: DEKRA Umwelt AG, Stuttgart.

Ergebnisse

Die PM75-Belegung der Lützner Straße lag im direkten Fahrbereich zwischen 0.16 und 0.25 g/m², im Rinnsteinbereich (0 bis 0.25 m vom Bordstein entfernt) bei ca. 1.6 bis 2.0 g/m². Dies ergab einen Mittelwert für die gesamte Straße entsprechend der jeweiligen Flächenanteile von 0.38 ± 0.21 g/m². Dieser Wert liegt ca. doppelt so hoch wie an der Frankfurter Allee in Berlin von Rauterberg-Wulff (2000) gefunden.

Die Analyse der PM75-Fraktion des Straßenstaubes ergab 88 % silikatische Anteile, ca. 3 % entfallen auf elementaren und ca. 2.5 % auf organisch gebundenen Kohlenstoff. Nitrate, Sulfate und Ammonium haben nur etwa 0.2 % Anteil an der PM75-Belegung. Diese Stoffanteile sind im Wesentlichen unabhängig von deren Herkunft auf der Straße.

Trotz aller Unsicherheiten bei der Emissionsbestimmung weisen die Ergebnisse der Untersuchungen an der Lützner Straße auf eine dort wesentlich höhere PM10-Emission hin, als mit den Standardparametern in der US-EPA-Formel berechnet wird. Der Absolutwert der Emission ist mit 0.6 bis 0.7 g PM10/(km·Fzg) etwa 4 mal so hoch wie für diverse andere Strassen festgestellt.

Diese wesentlich höhere PM10-Emission könnte bedingt sein durch den sehr schlechten Fahrbahnzustand der Lützner Straße, die stark verschmutzten Fußwege und die nicht befestigten Parkflächen.

Bezugsquelle des Abschlussberichtes

Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Zur Wetterwarte 11, 01109 Dresden (Dr. J. Jacob) oder Ingenieurbüro Dr.-Ing. Achim Lohmeyer, Mohrenstraße 14, 01445 Radebeul (Dr.rer.nat. Ingo Düring).

Der Bericht ist in eine zusammenfassende Darstellung eingeflossen, welche herunterladbar ist unter www.Lohmeyer.de/Literatur/Zusammenfassung_06_01.pdf.

LAND
--
Projekttitel
Quellen der Partikelimmission
Bearbeitungszeitraum
1.5.97-31.5.00
Auftraggeber
FVV/FAT
durchführende Institution(en)
Fraunhofer Institut für Toxikologie und Aerosolforschung Pharmaforschung und Klinische Inhalation; Institut für Wasserchemie und chemische Balneologie der TU München
Institut für Meteorologie und Klimatologie der Universität Hannover
Kontakt
Dr. Gerhard Pohlmann, Fraunhofer Institut für Toxikologie und Aerosolforschung, Nikolai-Fuchs-Str. 1, 30625 Hannover, Tel.: 0511/5350-116, Fax –155, e-mail: pohlmann@ita.fraunhofer.de
Zielsetzungen
Es sollten auf der Basis von 4 die verschiedenen Jahreszeiten berücksichtigenden jeweils einmonatigen Intensivmeßkampagnen

- die Immissionskonzentrationen der potentiell relevanten physikalischen Kenngrößen **Anzahl, Oberfläche** und **Masse,**
- die **chemischen Inhaltsstoffe** des urbanen Aerosols erfaßt,
- die relevanten Quellen identifiziert und ihr Beitrag quantifiziert

werden.
Eingesetzte Geräte/Messparameter
Partikeloberfläche (Epiphaniometer); **Partikelmasse** (ß-Staubmeter);**Ruß** (Filterschwärzung Aethalometerverfahren, Reflektometerverfahren); **Partikelanzahl** (verdampfbar/nicht verdampfbar: Kondensationskernzähler mit Differentialmobilitätsanalysator); **Partikelgebundene PAH** (Photoelektrischer Sensor); **CO** (Quecksilberoxidreduktions-Detektor); **NOx** (Chemolumineszenz); **Chemische Analytik der Partikelproben**: **Si** (TXRF mit vorherigem Aufschluß); **Elemente** As, Ba, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, K, Mn, Mo, Ni, Pb, Pt, Rb, Sb, Se, Sr, Ti V, Zn, Zr (TXRF); **Polycyklische Kohlenwasserstoffe** (HPLC); **Chlorid, Nitrat, Sulfat** (Ionenchromatographie); **Elementarer Kohlenstoff** (Coulometrische Kohlenstoffbestimmung VDI, 1996)
Ergebnisse
Es wurden:

- Die Immissionskonzentrationen potentiell relevanter physikalischer und chemischer Kenngrößen des urbanen Aerosols für einen urbanen Standort (Mischgebiet) erfasst,
- die relevanten Quellen identifiziert und ihr Beitrag quantifiziert .

Bezüglich der chemischen Kenngrößen zeigt es sich, dass die berechneten Quellprofile mit Profilen aus der Literatur die zu erwartende Übereinstimmung zeigen. Darüber hinaus konnten zusätzlich zu den in der Literatur bereits beschriebenen chemischen Zusammensetzungen der verschiedenen Quellen und ihrer Beiträge zur Schwebstaubbelastung im urbanen Umfeld weitere, relevante Partikelkenngrößen wie die Anzahlkonzentration löslicher sowie nicht löslicher Partikel und die Partikeloberfläche erfasst und den verschiedenen Quelltypen zugeordnet werden.
Bezugsquelle des Abschlussberichtes
Forschungsvereinigung Verbrennungskraftmaschinen im VDMA (Herr Goericke). Zur Zeit ist der Bericht noch nicht öffentlich zugänglich.

C4 Laufende/geplante Untersuchungsvorhaben

LAND:
Baden-Württemberg
Projekttitel
Quantifizierung der PM10-Emissionen durch Staubaufwirbelung und Abrieb von befestigten Straßen
Bearbeitungszeitraum
Etwa Anfang 2002 bis Mitte 2003
Auftraggeber
BWPLUS, Forschungszentrum Karlsruhe
durchführende Institution(en)
Ingenieurbüro Dr.-Ing. Achim Lohmeyer, Karlsruhe in Zusammenarbeit mit
UMEG Zentrum für Umweltmessungen, Umwelterhebungen und Gerätesicherheit B-W, Karlsruhe sowie
IFEU - Institut für Energie- und Umweltforschung Heidelberg GmbH, Heidelberg
Kontakt
Dr. Achim Lohmeyer, E-Mail: Achim.Lohmeyer@Lohmeyer.de
Zielsetzungen
Ziel des beantragten Vorhabens ist die Quantifizierung der PM10-Emissionen von Straßen infolge Straßenabrieb und Aufwirbelung von Staub und der sie bestimmenden Parameter sowie die erste Beschreibung eines Berechnungsverfahrens für diese Emissionen.
Methodischer Ansatz/Eingesetzte Geräte und Messparameter
Das Arbeitsprogramm wird in zwei Projektphasen unterteilt:

Schritt 1 (Nutzung in Deutschland vorhandener Daten aus verkehrsnahen Immissionsmessstellen der Ländermessnetze zur Identifizierung der Einflussparameter)

Im ersten Schritt werden Immissionsmesswerte von straßennahen Messstellen, Daten zur Vorbelastung, zur Meteorologie, des Verkehrs und der Straßenbeschaffenheit deutschlandweit gesammelt, um emissionsrelevante Parameter durch die Analyse unterschiedlicher Emissionssituationen zu identifizieren und die Basis für eine Ableitung von Emissionsfaktoren für Straßenabrieb/ Staubaufwirbelung zu bilden. Für die PM10-Emissionsbestimmung werden sowohl inverse Ausbreitungsrechnungen mit PROKAS oder MISKAM als auch die Analogiebetrachtungen mit NO_x als Tracer verwendet.

Schritt 2 (Feinanalyse einer Strasse auf Basis des Screening von Schritt 1)

Auf der Grundlage der Arbeiten aus Schritt 1 und des dann vorhandenen, sich derzeit schnell fortentwickelnden Wissens, werden in Absprache mit BWPLUS, UVM und LfU in einem zweiten Schritt in Baden-Württemberg an einem Straßenabschnitt Detailmessungen (Luv-/Lee-Messungen, Inhaltsstoffanalysen, Partikelzählungen etc.) und Analysen durchgeführt. Dadurch wird ein hochqualitativer Datensatz entstehen, anhand dessen eine belastbarere Quantifizierung und Ursachenanalyse für die dortigen PM10-Emissionen erfolgen kann und der die Grundlagen für ein Berechnungsverfahren der Straßenabrieb- und Aufwirbelungs-emissionen bilden soll.

LAND:
Baden-Württemberg (**keine direkte Förderung durch das Land**)
Projekttitel
BABII – Überprüfung der Genauigkeit von Emissionsdaten für gas- und partikelförmige Luftbeimengungen für Autobahnen
Bearbeitungszeitraum

01.01.2000 BIS 28.02.2003

Auftraggeber
Teilfinanzierung durch das Umweltbundesamt, Grundfinanzierung durch das Forschungszentrum Karlsruhe, Eigenbeiträge der teilnehmenden Gruppen
durchführende Institution(en)
Federführung: Institut für Meteorologie und Klimaforschung Forschungszentrum Karlsruhe/Universität Karlsruhe
Teilnehmende Institutionen: Institut für Rationelle Energieanwendungen der Universität Stuttgart, BASF AG, Ford Forschungszentrum in Aachen, Institut für Physikalische Chemie der Universität Wuppertal, Institut für Umweltphysik der Universität Heidelberg, Institut für Verfahrenstechnik und Dampfkesselwesen der Universität Stuttgart, Paul Scherrer Institut Villingen/Schweiz, Außenstelle Langen des Umweltbundesamtes, Universität Kopenhagen/Dänemark, Zentrum für Umweltforschung der Universität Frankfurt
Kontakt
Prof. Dr. Franz Fiedler, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Forschungszentrum Karlsruhe/Universität Karlsruhe, Postfach 3640, 76021 Karlsruhe, Tel.: 07247 822800, Fax: 07247 824742
Dr. B. Vogel, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Forschungszentrum Karlsruhe/Universität Karlsruhe, Postfach 3640, 76021 Karlsruhe, Tel.: 07247 824233, Fax: 07247 824742
Zielsetzungen

- Emissionsdaten gehören zu den wichtigsten Eingabedaten für numerischen Modelle, welche die räumliche und zeitliche Verteilung der Luftbeimengungen berechnen. Über die Genauigkeit dieser Emissionsdaten liegen zur Zeit keine verlässliche Angaben vor.
- An der Autobahn 656 zwischen Heidelberg und Mannheim wurden gleichzeitig umfangreiche Messungen meteorologischer Größen und der Konzentrationen von gas- und partikelförmigen Luftbeimengungen durchgeführt. Daneben fand eine detaillierte Verkehrserfassung statt.
- Zum einen werden somit die realen Emissionen des Autobahnabschnittes direkt gemessen, zum anderen werden mit Emissionsmodellen Emissionsdaten berechnet. Der Vergleich der mit den beiden Methoden bestimmten Emissionsdaten erlaubt eine Quantifizierung des Fehlers, mit denen die zur Zeit zur Verfügung stehenden Emissionsdaten behaftet sind.

Methodischer Ansatz/Eingesetzte Geräte und Messparameter

- Es kamen zwei 50 m hohe Messtürme zum Einsatz. An diesen Türmen konnten Höhenprofile von Wind, Temperatur, Feuchte, Turbulenz, den Konzentrationen von NO, NO2, O3, VOC (Einzelkomponenten), Größenverteilungen der Partikel (SMPS, ELPI) und Partikelkonzentrationen (TEOM, β-Staubmeter), gemessen werden. Für ausgewählte Zeiträume liegen auch Feinanalysen der Inhaltsstoffe der Partikel vor.
- Die Feldkampagne fand von April bis Mai 2001 statt.
- Mit der Auswertung der Messdaten wurde begonnen.

LAND:
Hessen
Projekttitel
Ermittlung der Konzentration, Größenverteilung und räumlichen Ausbreitung von Partikeln und partikelgebundenen Inhaltsstoffen im Bereich Frankfurt am Main
Bearbeitungszeitraum
ein Jahr, Beginn: Juli/August 2001
Auftraggeber
HLUG
durchführende Institution(en)
Institut für Mineralogie der J. W. Goethe Universität Frankfurt am Main
Die Analytik wird teilweise in Kooperation mit dem Institut für Spektrochemie und angewandte Spektroskopie, Dortmund durchgeführt.

Kontakt

Zielsetzungen
- Vergleich von unterschiedlich zu charaktrisierenden Probenahmestellen bezüglich ihrer größenklassendifferenzierten Belastung durch Partikel.
- Versuch einer Abschätzung der Beiträge dominierender Partikelquellen zur Belastung

Methodischer Ansatz/Eingesetzte Geräte und Messparameter
- Probenahmestellen: drei Stellen die exemplarisch die Belastungssituationen:
  a) Straßenverkehrseinfluß (Straßenschlucht)
  b) innerstädtischer Hintergrund
  c) Freiland (Stadtrandlage)

  charakterisieren.
- Probenahme mit Andersen-Impaktoren (8 Größenklassen von ca. 9 bis ca. 0,4 µm; backup-Filter für Partikel <0,4 µm)
  - an gleicher Stelle: Gesamtstaubprobenahme mit LIS-P-Sammlern
  - stichprobenartige Probenahme über die gesamte Laufzeit des Programms

- Untersuchungsparameter:
  Partikelmasse, Blei, Cadmium, Mangan, Nickel, Zink, Vanadium, Arsen, Antimon, Platin, Palladium, Rhodium
  (über eine Erweiterung der Palette, eventuell auch auf EC/OC wird z. Zt. diskutiert)

LAND:
Nordrhein-Westfalen
Projekttitel
Identifizierung von Quellgruppen für die Feinstaubfraktion
Bearbeitungszeitraum
01.07.2001 - 31.12.2003
Auftraggeber
Ministerium für Umwelt und Naturschutz, Landwirtschaft und Verbraucherschutz (MUNLV) Nordrhein-Westfalen
durchführende Institution(en)
Landesumweltamt NRW, IUTA e.V., Duisburg; GMU Duisburg, Prozess- und Aerosolmesstechnik,
Kontakt
Dr. Thomas Kuhlbusch, IUTA e.V., Bliersheimer Str. 60, 47229 Duisburg, Tel.: 02065-418-0 Fax 02065-418-211
Zielsetzungen

- Identifizierung der Beiträge von Punktquellen und diffusen Emissionen zur Immissionsbelastung im urbanen Hintergrund

Methodischer Ansatz/Eingesetzte Geräte und Messparameter

- Städtische Hintergrundstation über 1 Jahr, Intensivmesskampagnen an zwei weiteren Stationen (Luv bzw. Lee zur Hauptstation); Chemische/physikalische Aerosol-Charakterisierung, Rezeptormodellierung, Trajektorienanalyse, Episodendiskriminierung, Fingerprintvergleiche
- SMPS, APS, Aethalometer, Diskontinuierliche Filtriersammler (PM10, PM2.5, PM1, Analyse auf Ionen, PAKs, Metalle) , TEOM, kontinuierliche Nitrat-Bestimmung, Immissionsimpaktor/TXRF, EC/OC/BC

LAND:
Nordrhein-Westfalen
Projekttitel
Modellprojekt Maßnahmenplan für das Stadtgebiet Hagen“; Entwicklung und Validierung einer Modellgleichung zur Bestimmung von PM_{10}-Emissionen aus dem Straßenverkehr
Bearbeitungszeitraum
09.2001-11.2001
Auftraggeber
Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen
durchführende Institution(en)
Ingenieurbüro Dr.-Ing. Achim Lohmeyer
Kontakt
Dr. rer. nat. Rainer Bösinger, Ing. Büro Lohmeyer, An der Roßweid 3, 76229 Karlsruhe, Tel.: 0721/62510-0, Fax: 0721/6251030
Dr.-Ing. Andreas Brandt, Landesumweltamt NRW, Postfach 102363, 45023 Essen, Tel.: 0201/7995-1889, Fax: 0201/7995-1857
Zielsetzungen
- Entwicklung und Validierung eines für NRW geeigneten Berechnungsansatzes für PM10-Emissionen aus dem Straßenverkehr

Methodischer Ansatz/Eingesetzte Geräte und Messparameter
- Grundlage: Messungen und Berechnungen von Immissionen, die im Zusammenhang mit §40(2) BImSchG erhoben wurden
- Messergebnisse von Dauermessstellen (LUQS-Messnetz)
- Modifizierung der aus der Literatur bekannten Ansätze und Validierung über die NO_X-Emissionsdichte

LAND:

Nordrhein-Westfalen

Projekttitel

Modellprojekt Maßnahmenplan für das Stadtgebiet Hagen; Herstellung der lagegetreuen Abbildung des Straßenverkehrsnetzes des Prognose- und Szenarienmoduls Straßenverkehr (PSM)

Bearbeitungszeitraum

09.2001-10.2001

Auftraggeber

Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen

durchführende Institution(en)

AVISO GmbH

Kontakt

Dipl.-Ing. Arnold Niederau, AVISO GmbH, Adalbertsteinweg 34, 52070 Aachen, Tel.: 0241/470358-51, Fax: 0241/9010969

Dr.-Ing. Andreas Brandt, Landesumweltamt NRW, Postfach 102363, 45023 Essen, Tel.: 0201/7995-1889, Fax: 0201/7995-1857

Zielsetzungen

- Herstellung der lagegetreuen Abbildung des Emissionskatasters Straßenverkehr
- Netzverdichtung im Bereich der Nebenstraßen
- Aktualisierung der Verkehrsdaten auf das Jahr 2000
- Fortschreibung der Emissionsfaktoren und Emissionsberechnung für das Jahr 2000 für die Stoffe CO, Benzol, SO_2, NO_X, NO2, PM10 und Blei (soweit relevant)
- Mit einer lagegetreuen Abbildung können kleinräumige Emissions- und Immissionsberechnungen hinreichend genau durchgeführt und genauere Aussagen zur Wirksamkeit von Maßnahmen aufgestellt werden

Methodischer Ansatz/Eingesetzte Geräte und Messparameter

- Das landesweite Emissionsmodell für den Straßenverkehr wird für das Modellgebiet Hagen entsprechend ausgebaut und aktualisiert

LAND:
Rheinland-Pfalz
Projekttitel
Untersuchungen von Schwebstaub und Inhaltsstoffen zur Quellenidentifizierung
Bearbeitungszeitraum
6/2002-12/2003
Auftraggeber
Ministerium für Umwelt und Forsten Rheinland-Pfalz
durchführende Institution(en)
Landesamt für Umweltschutz und Gewerbeaufsicht, Mainz
ggf. Unterauftragnehmer
Kontakt
Dr. Michael Weißenmayer, Landesamt für Umweltschutz und Gewerbeaufsicht, Rheinallee 97-101, 55118 Mainz, Tel. 06131/967-291, Fax: 06131/967-392
Zielsetzungen

- Identifizierung der Beiträge von Punktquellen und diffusen Emissionen zur Immissionsbelastung an ausgewählten Standorten (verkehrsnah, städtischer Hintergrund, industrienah)

Methodischer Ansatz/Eingesetzte Geräte und Messparameter

- Probenahme an charakteristischen Stationen über ein Jahr; chemische/physikalische Aerosol-Charakterisierung , Trajektorienanalyse, Episodendiskriminierung, Fingerprintvergleiche
- Diskontinuierliche Filtriersammler (PM10) Analyse auf Ionen, PAKs, Metalle, OC/EC/BC