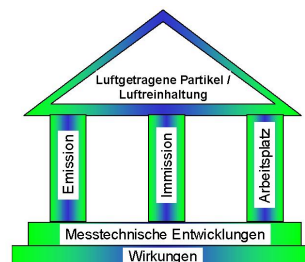




Abteilung:  
Verfahrenstechnik

Bereich:  
„Luftgetragene Partikel /  
Luftreinhaltung“



**Dr. U. Quass und Dr. T. Kuhlbusch**  
IUTA e.V., Bereich „Luftgetragene Partikel / Luftreinhaltung“

**Dr. M. Koch**  
ECOFYS GmbH

Projektleitung

**Prof. Dr.-Ing. H. Fissan<sup>1</sup> und Prof. Dr.-Ing. K.-G. Schmidt<sup>2</sup>**

Universität Duisburg-Essen,

<sup>1</sup>Abteilung für Elektrotechnik und Informationstechnik, Prozess- und Aerosolmesstechnik

<sup>2</sup>Institut für Energie- und Umweltverfahrenstechnik/Umwelttechnik und IUTA e.V.

Projektbegleitung

**Prof. Dr. P. Bruckmann, Dr. U. Pfeffer, Dr. D. Gladtko, und Herr T. Zang**

Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen

IUTA-Report Nr. LP 15/2004

**Identifizierung von Quellgruppen  
für die Feinstaubfraktion**

Im Auftrag vom:

Ministerium für Umwelt und Naturschutz,  
Landwirtschaft und Verbraucherschutz  
des Landes Nordrhein-Westfalen (MUNLV)  
Schwannstr. 3  
40476 Düsseldorf

Datum: 16. Nov. 2004

## **Inhaltsverzeichnis**

Inhaltsverzeichnis .....	I
Abbildungsverzeichnis.....	II
Tabellenverzeichnis .....	III
1. Zusammenfassung .....	1
1.1. Zielsetzung und Umfang des Projektes .....	1
1.2. Messtechnische Vergleiche.....	3
1.3. Konzentrationskenndaten.....	4
1.4. Vergleichbarkeit der drei Messstationen .....	5
1.5. Quellenidentifizierung .....	6
1.6. Resümee.....	10

## Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1:	Lage der Stationen (blaue Felder kennzeichnen Industriegebiete)	1
Abbildung 2:	Schema der verwendeten Probenahmegeräte und Analysatoren	2
Abbildung 3:	Chemische Zusammensetzung von $PM_{10}$ , $PM_{2.5}$ und $PM_1$ , UNI Gesamtzeitraum	5
Abbildung 4:	Prozentuale Verteilung der ermittelten Episodentypen ( $PM_{10} \geq 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ )	7
Abbildung 5:	Quellenzuordnung für $PM_{10}$ und $PM_{2.5}$ mittels PMF für UNI Gesamtzeitraum	9

## **Tabellenverzeichnis**

Tabelle 1:	Daten der Messstationen	2
Tabelle 2:	Details zu den eingesetzten Messverfahren	3
Tabelle 3:	Kenndaten der PM-Massenkonzentrationen der Stationen	4
Tabelle 4:	Merkmale der Episodentypen ( $\text{PM}_{10} \geq 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ )	7
Tabelle 5:	Lokale/regionale Zusatzbelastung durch Quellen mit regelmäßigen Aktivitätsänderungen	8

# 1. Zusammenfassung

## 1.1. Zielsetzung und Umfang des Projektes

Im Rahmen eines vom Ministerium für Umwelt- und Naturschutz, Landwirtschaft und Verbraucherschutz (MUNLV) des Landes Nordrhein-Westfalen geförderten Projektes wurden über ein Jahr (28.02.02 bis 01.04.03) Messungen luftgetragener Partikel und deren Inhaltstoffe an einer und während zweier Intensivmesskampagnen (23.04.02-27.05.02; 22.10.02-16.12.02) gleichzeitig an drei Standorten durchgeführt. Dieses Projekt wurde vor dem Hintergrund zu erwartender Grenzwertüberschreitungen der  $PM_{10}$ -Konzentrationen und der laufenden Diskussion in Bezug auf neue Partikelstandards in der Luftreinheit durchgeführt. Ziele dieses Projektes waren:

- *messtechnische Vergleiche* der filterbasierten Messungen mit entsprechenden kontinuierlich registrierenden Verfahren,
- orientierende *Konzentrationskenndaten* für  $PM_{2,5}$ ,  $PM_{10}$ , Partikelanzahlkonzentrationen und –größenverteilungen zu bestimmen,
- die *Vergleichbarkeit der Messstationen* für alle untersuchten Messgrößen im Rahmen der Intensivmesskampagnen zu überprüfen,
- *Tagesgänge* für kontinuierlich erhobene Messgrößen zu ermitteln und darauf basierende Untersuchungen in Hinblick auf Quellen und Prozesse durchzuführen,
- eine *Quellenidentifizierung* im Hinblick auf Prozesse durchzuführen, die die  $PM_{10}$ -Massenkonzentrationen beeinflussen.

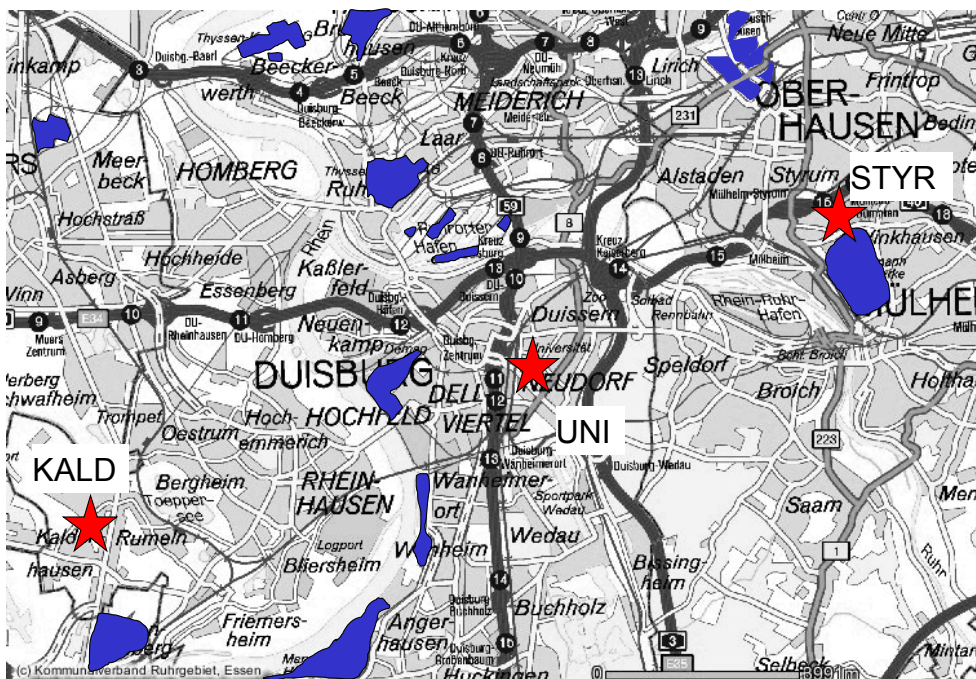


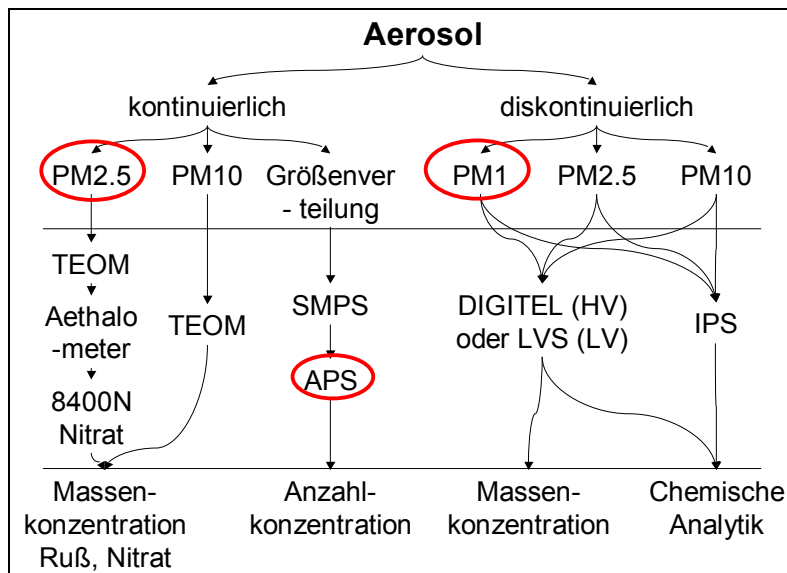
Abbildung 1: Lage der Stationen  
(blaue Felder kennzeichnen Industriegebiete)

In Abbildung 1 ist die Lage der drei Messstationen dargestellt, die in etwa auf der Achse der Hauptwindrichtung liegen. Eine Übersicht zur Stationscharakterisierung gibt Tabelle 1.

Station	Rechtswert	Hochwert	Typ	Anmerkungen
Duisburg-Kaldenhausen (KALD)	2545530	5695104	Urbaner Hintergrund	LUQS-Messstation, Stadtrandgebiet
Duisburg Universität (UNI)	2554501	5699925	Urbaner Hintergrund	Messstation des IUTA e.V., städtischer Wohnbereich mit Verkehrs- und Industrie-Einfluss
Mülheim-Styrum (STYR)	2560165	5702458	Urbaner Hintergrund	LUQS-Messstation, städtischer Wohnbereich mit Verkehrs- und Industrie-Einfluss

**Tabelle 1:** Daten der Messstationen

Abbildung 2 gibt eine Übersicht über die erfassten Partikelcharakteristika. Hierbei sind die Größen, die nur an der zentralen Station UNI beprobt wurden, rot umrandet. Näheres zu den verwendeten Messverfahren ist Tabelle 2 zu entnehmen. Neben diesen hier aufgeführten Größen wurden auch die meteorologischen Bedingungen vor Ort mit einer Wetterstation erfasst.



**Abbildung 2:** Schema der verwendeten Probenahmegeräte und Analytoren

Verfahren	Messgröße	Prinzip	Zeitauf- lösung
TEOM	Aerosolmassenkonzentration (PM <sub>10</sub> bzw. PM <sub>2.5</sub> )	Quasi-kontinuierliche Abscheidung auf Schwingquarz- Filter	10 min
Aethalometer	Rußmassenkonzentration (ca. PM <sub>2.5</sub> )	Abscheidung auf Filterband, Messung der Reflektion	10 min
8400N	Aerosolnitrat-Massenkonzentration (PM <sub>2.5</sub> )	Partikel-Impaktion auf Metallstrip, Flash- Pyrolyse, NO <sub>x</sub> -Detektion	10 min
SMPS	Aerosol-Anzahlgrößenverteilung (14 nm bis 700 nm)	Trennung von Partikeln nach elektrischer Mobilität, Detektion mit Kondensationskernzähler	5 min
APS	Aerosol-Anzahlgrößenverteilung (0,5 µm bis 14 µm)	Trennung von Partikeln durch Beschleunigung, optische Detektion	10 min
Digitel	Massenkonzentration, chem. Inhaltsstoffe (PM <sub>1</sub> , PM <sub>2.5</sub> , PM <sub>10</sub> )	High-Vol Filterprobenahme (30 m <sup>3</sup> /h)	24 h
LVS	Massenkonzentration, chem. Inhaltsstoffe (PM <sub>2.5</sub> )	Low-Vol Filterprobenahme (2,3 m <sup>3</sup> /h)	24 h
IPS	Chem. Inhaltsstoffe	Impaktion auf Quarz-Probenträgern (3-stufiger Impaktor), Analyse mit TRFA	24 h

**Tabelle 2:** Details zu den eingesetzten Messverfahren

### 1.2. Messtechnische Vergleiche

Im arithmetischen Mittel bestimmte das TEOM (1400AB, 40°C) etwa 70% der mit den manuellen Verfahren gemessenen PM<sub>10</sub>-Massenkonzentrationen. Wurden zu den mit dem TEOM bestimmten PM<sub>10</sub>-Massekonzentrationen die von den Filtern bestimmten Konzentrationen an semivolatilen Substanzen (Ammonium, Nitrat, Chlorid) addiert, lag das arithmetische Filter/TEOM-Verhältnis bei 0,99 und die entsprechende Steigung der Korrelation bei 0,97 (Achsenabschnitt 0,5 µg/m<sup>3</sup>). Somit können die Differenzen zwischen dem TEOM und den filterbasierten PM<sub>10</sub>-Massenkonzentrationsbestimmungen auf Verluste an semivolatilen Substanzen beim TEOM zurückgeführt werden.

Detailuntersuchungen zur Volatilisierung von Nitrat durch Vergleich der Filterwerte mit denen eines online Nitratmonitors (8400N, R&P) zeigten, dass ab einer maximalen Tagestemperatur von etwa 20°C mit signifikanten Verlusten von Nitrat vom Filter (hier Quarzglasfaserfilter) zu rechnen ist. Für den luftgetragenen Zustand zeigte sich eine signifikante Volatilisierung von Nitrat im Temperaturbereich zwischen 25°C und 30°C.

### 1.3. Konzentrationskenndaten

Tabelle 3 zeigt im Überblick die Kenndaten der PM-Konzentrationen der drei Messstationen. Die durchschnittlichen PM<sub>10</sub>-Konzentrationen über die Messzeiträume liegen zwischen 32 µg/m<sup>3</sup> und 35 µg/m<sup>3</sup>. Diese Werte liegen in dem Bereich, der auch vom LUA NRW im Großraum Duisburg bestimmt wurde (LUA NRW, 2003+2004).

Zeitraum	Gesamtmesszeit			vergleichbare Tage					
	28.02.02-01.04.03			23.04.-27.05/22.10.16.12.2002 <sup>*)</sup>					
Station	UNI			UNI		STYR		KALD	
Partikelfraktion	PM <sub>10</sub>	PM <sub>2,5</sub>	PM <sub>1</sub>	PM <sub>10</sub>	PM <sub>2,5</sub>	PM <sub>10</sub>	PM <sub>2,5</sub>	PM <sub>10</sub>	PM <sub>2,5</sub>
Tage	184	180	111	78	76	78	77	78	61
Mittelwert [µg/m <sup>3</sup> ]	32.9	25.4	24.8	35.3	27.8	34.5	24.6	32.9	29.4
Median [µg/m <sup>3</sup> ]	26.2	20.5	23.1	32.6	24.7	30.6	21.7	32.2	30.3
25%-Quantil [µg/m <sup>3</sup> ]	19.9	13.8	14.8	20.1	15.4	18.0	11.7	19.4	12.7
75%-Quantil [µg/m <sup>3</sup> ]	43.3	34.0	33.7	48.2	37.1	46.4	34.5	44.7	41.4
Anzahl > 50 µg/m <sup>3</sup>	35			18		17		14	
Überschreitungen (Hochrechnung)	69			84		80		66	

**Tabelle 3:** Kenndaten der PM-Massenkonzentrationen der Stationen

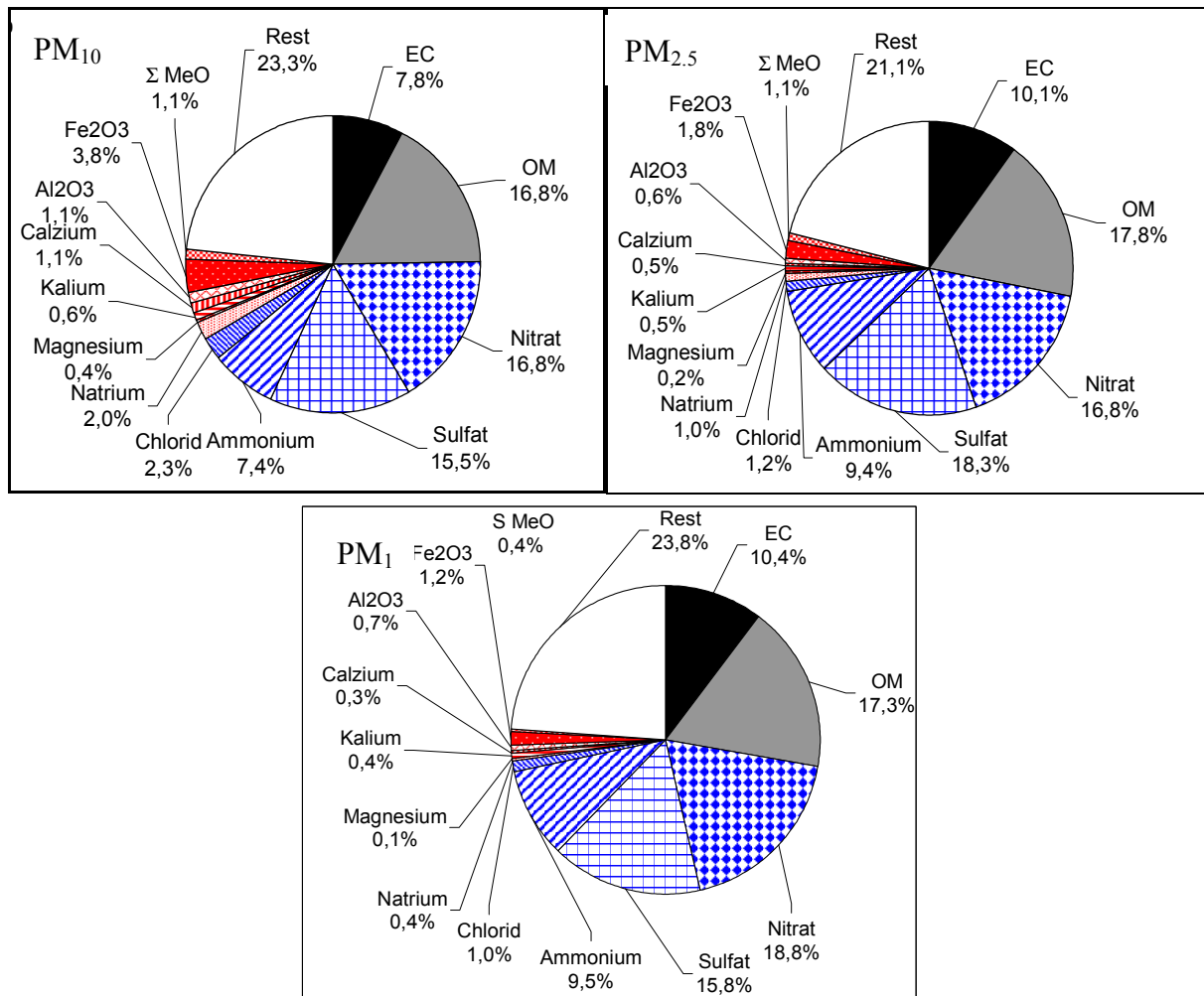
<sup>\*)</sup>Gesamtzeiträume der Intensiv-Messkampagnen; ausgewertet wurden nur die Tage mit kompletten PM<sub>10</sub>-Daten

Eine Überschreitung des Jahresmittelgrenzwertes für PM<sub>10</sub> (40 µg/m<sup>3</sup> ab 2005) ist für alle drei Stationen über den Messzeitraum nicht gegeben. Dahingegen ist eine Überschreitung des Tagesgrenzwertes (PM<sub>10</sub> > 50 µg/m<sup>3</sup> ab 2005) von mehr als 35 Tagen pro Jahr für alle drei Stationen laut Hochrechnung (Tabelle 3) gegeben und für 2005 wahrscheinlich zu erwarten. Eine Auswertung der Überschreitungen der Tagesgrenzwerte in Abhängigkeit vom Wochentag zeigt für die Wochentage Dienstag bis Freitag die meisten Überschreitungen. Im Hinblick auf die hochgerechnete Überschreitungshäufigkeiten ist allerdings zu berücksichtigen, dass die Messzeit (von Februar 2002 bis März 2003) nicht ein Kalenderjahr umfasste und daher zwei Perioden mit hoher Zahl von Überschreitungstagen – im Frühjahr 2002 und Frühjahr 2003 – erfasst wurden. Vermutlich trugen diese Perioden auch dazu bei, dass in Deutschland, aber auch im angrenzenden Ausland (Belgien, Schweiz, Tschechien) in den Jahren 2002 und 2003 - nach abnehmendem Trend in der Dekade 1991 bis 2001 - ein erneuter Anstieg der mittleren PM<sub>10</sub>-Konzentrationen beobachtet wurde (CAFE 2004).

Die Anzahlkonzentrationen lagen an der Station UNI im Jahresmittel bei 16.700 N/cm<sup>3</sup> und für die ultrafeinen Partikel bei 14.100 N/cm<sup>3</sup>. In einer „European aerosol phenomenology“-Studie zeigen Puteaud et al. (2003) Partikelanzahlkonzentrationen für städtische und Stadtrandstationen zwischen 3.000-28.000 N/cm<sup>3</sup> und entsprechende Konzentrationen an ultrafeinen Partikeln von 2.000-25.000 N/cm<sup>3</sup>. Anhand der Ähnlichkeit der drei untersuchten Stationen in Bezug auf Partikelanzahlkonzentrationen und –größenverteilungen sind alle drei Stationen auf einem für diesen Standorttyp vergleichbaren europäischen Niveau.

Abbildung 3 zeigt die chemische Zusammensetzung von PM<sub>10</sub> für den gesamten Messzeitraum für die Station UNI. Hiernach besteht PM<sub>10</sub> zu 24 % aus Kohlenstoffverbindungen, etwa

40 % sekundären Ionen (Nitrat, Sulfat, Ammonium), etwa 5 % aus den Seesalzkomponenten (Na, Mg, Cl), etwa 8 % aus Erdkrustenelementen und Metallen, sowie einem nicht bestimmten Rest von etwa 23 % (zumeist Silizium und Wasser). Zum Vergleich sind auch die mittleren chemischen Zusammensetzungen für PM<sub>2,5</sub> und PM<sub>1</sub> in dieser Abbildung gezeigt.



**Abbildung 3:** Chemische Zusammensetzung von PM<sub>10</sub>, PM<sub>2,5</sub> und PM<sub>1</sub>, UNI Gesamtzeitraum

#### 1.4. Vergleichbarkeit der drei Messstationen

Insgesamt wurde für die drei untersuchten städtischen Hintergrundstationen für folgende Parameter ein hohes Maß an Übereinstimmung gefunden: PM<sub>10</sub>, PM<sub>2,5</sub>, Inhaltsstoffe, Anzahlkonzentrationen, Partikelgrößenverteilungen. Detaillierte Untersuchungen zeigten aber dennoch eine größere Ähnlichkeit der beiden Messstationen im direkten großstädtischen Umfeld (UNI, STYR) als zu der am westlichen Rande des Agglomerationsgebietes liegenden Station KALD. Trotzdem kann jede der untersuchten städtischen Hintergrundstationen für die gemessenen Partikelcharakteristika als repräsentativ im Rahmen der Luftqualitätsüberwachung für den Großraum Duisburg betrachtet werden.

Konzentrationsunterschiede der chemischen Inhaltsstoffe von PM<sub>10</sub> zwischen den drei Stationen waren sehr gering und zeigten sich im wesentlichen nur für die Spurenelemente. Insbesondere lagen erhöhte Titan- und Zinkanteile an PM<sub>10</sub> in KALD sowie deutlich niedrigere Anteile der Elemente V, Mn, Co, Ga, Se, Rb, Sr, Sn, Ba im Vergleich zur Station UNI vor. Die Station STYR wies höhere Anteile für Cr, Ni, Zn und niedrigere Anteile für Ti, Mn, Co und Rb als die Station UNI auf.

### **1.5. Quellenidentifizierung**

Eine detaillierte **Windrichtungsanalyse** der Einzelkomponenten bzw. deren Cluster zeigte eine deutliche Separation der Inhaltsstoffe in drei Gruppen: Seesalzemission, Sekundärpartikel und stärker lokal/regional geprägte Nebenbestandteile. In einigen Fällen (Clustern) war eine Zuordnung zu spezifischen industriellen Emissionsquellen auf der Basis des Emissionskatasters möglich; z. B. Mangan-Quellen im Nordosten der Station UNI oder Titan-Quelle in südlicher Richtung der Station KALD.

Eine **konzentrationsbezogene Analyse** der chemischen Zusammensetzung von PM<sub>10</sub> für Tage mit Grenzwertüberschreitungen zeigte im Vergleich zu Tagen zwischen 30-50 µg/m<sup>3</sup> und < 30 µg/m<sup>3</sup>, dass Ammonium und Nitrat als Leitsubstanzen anzusehen sind. Da diese Substanzen an allen Standorten in etwa gleichem Maße zur PM<sub>10</sub>-Konzentrationserhöhung beitragen und zu den sekundären Aerosolen zählen, ist deren Quelle entweder ubiquitär oder durch Ferntransport bestimmt. Die Abnahme der absoluten Massenkonzentrationen der Seesalzkomponenten mit steigenden PM<sub>10</sub>-Massenkonzentrationen deutet auf kontinentale Luftmassen, also aus östlicher bis südlicher Richtung, oder stagnierende meteorologische Bedingungen hin.

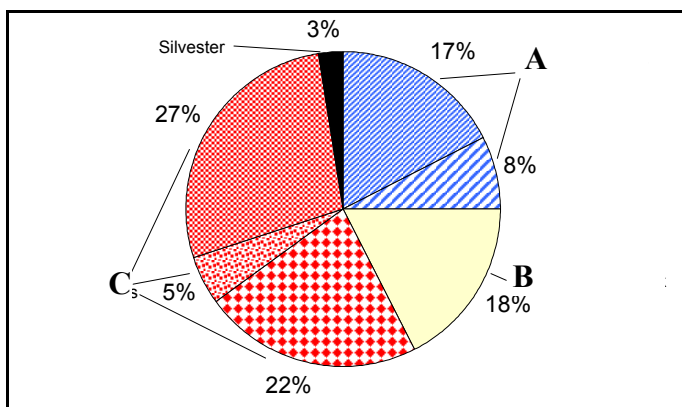
In einer detaillierten **Episodenanalyse** für Tage mit Grenzwertüberschreitungen wurden drei Episodengrundtypen identifiziert, die sich aber auf Grund des geringen Datensatzes statistisch nicht eindeutig von einander abgrenzen. Allen Tagen mit Grenzwertüberschreitungen von PM<sub>10</sub> lagen sehr geringe Trajektorienlängen zugrunde, die auf stabile Wetterlagen und langsame Mischungsprozesse hindeuten.

Die erhöhten Werte für Al und Ca beim **Typ A** deuten auf Krustenmaterialien bzw. Steine & Erden hin. Damit könnte der Episodentyp A mit der Bezeichnung „Übergangszeit /Aufwirbelung“ bezeichnet werden.

Die erhöhten Vanadium-Anteile beim **Typ B** in Verbindung mit westlicher Windrichtung (die allerdings durch die Rückwärtstrajektorien nur bedingt gestützt wird) weisen evtl. auf Ölraffinerien bzw. Schwerölverbrennung in den Niederlanden als Quelle hin. Die geringen Trajektorien-Distanzen bei diesem Typ wurden vermutlich durch stabile überregionale Hochdruckwetterlagen verursacht. Somit wäre dieser Episodentyp als „Sommer/ Hochdruckwetter“ zu bezeichnen.

Der geringere Anteil bei den Sekundäraerosolen im **Typ C** korreliert mit der ebenfalls geringeren Strahlungsintensität. In diesem Typ sind überwiegend Wintertage bei wechselnden

Windrichtungen zusammengefasst. Die erhöhten Anteile bei vielen Metallen zeigen an, dass bei diesem Typ möglicherweise die lokalen/regionalen Emissionsquellen stärker gewichtet sind, was u.a. auch durch geringere Mischungsschichthöhen im Winter bedingt sein kann. Dieser Typ kann folglich mit der Bezeichnung „Winter/lokaler Einfluss“ versehen werden. Abbildung 4 zeigt die prozentuale Aufteilung der zeitlichen Beiträge der Episodentypen, Tabelle 4 fasst einige ihrer Merkmale zusammen. Die weitere Aufteilung in Abbildung 4 bezieht sich auf eine feinere Unterteilung der Clusteranalysen.



**Abbildung 4:** Prozentuale Verteilung der ermittelten Episodentypen ( $PM_{10} \geq 50 \mu g/m^3$ )

Typ	Jahreszeiten	Erhöhte Anteile chem. Inhaltsstoffe	Mittlere Trajektorien-Distanzen [km]			Überwiegende Windrichtung	Strahlung [ $W/m^2$ ]
			24h	48h	72h		
A	Winter/Frühjahr	Sek., Al, Ca	340	700	1000	Östl.	100
B	Frühsommer + andere	Sek., Mn, V	260	500	700	Westl.	90
C	Winter + andere	Metalle, OM, EC	290	900	1300	Östl./westl.	56

**Tabelle 4:** Merkmale der Episodentypen ( $PM_{10} \geq 50 \mu g/m^3$ )

Basierend auf **Tagesganganalysen** der Online-Daten (korrigiert auf Filterkonzentrationen) wurden die Beiträge lokaler/regionaler Quellen mit sich regelmäßig ändernden Emissionsaktivitäten quantifiziert. Es zeigten sich für alle untersuchten Größen klare Tages- und Wochengänge. Eine Auswertung der Beiträge ist in Tabelle 5 zusammengefasst.

	<b>Di - Fr</b> <b>µg/m<sup>3</sup></b>	<b>Zusatzbelastung</b> <b>relativ</b>	<b>Anteil an Zusatzbelastung</b>	
			<b>PM<sub>10</sub></b>	<b>PM<sub>2,5</sub></b>
PM <sub>10</sub>	8-10	27-31%		
PM <sub>2,5</sub>	4-6	19-24%		
Nitrat + NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	1.8-2.3	27-31%	18-29%	30-58%
Ruß+OC	1.6-2.0	37-43%	16-25%	27-50%
20-40 nm		30-36%		
50-100 nm		23-30%		
150-300 nm		22-31%		
400-600 nm		22-33%		

**Tabelle 5:** Lokale/regionale Zusatzbelastung durch Quellen mit regelmäßigen Aktivitätsänderungen

Für PM<sub>10</sub> liegt diese Zusatzbelastung bei 8-10 µg/m<sup>3</sup>. Diese im Wochengang deutlichen Zusatzbelastungen korrelieren gut mit dem beobachteten Wochengang der PM<sub>10</sub>-Tagesgrenzwertüberschreitungen. Von der PM<sub>10</sub>-Zusatzbelastung können 20-30% dem Ammoniumnitrat und weitere 15-25% dem Ruß mit assoziiertem organischen Kohlenstoff zugeordnet werden. Die PM<sub>10</sub>- und Rußtagesgänge deuten eine enge zeitliche Korrelation mit der Zu- und Abnahme von Straßenverkehrsaktivitäten an. Im Falle von Nitrat zeigt sich keine Korrelation zum Straßenverkehr. Die relativ hohen Nitratkonzentrationen an Samstagen und relativ niedrigen Konzentrationen an Montagen deuten auf einen zeitlichen Versatz von ca. einem Tag hin. Die höchsten lokalen/regionalen Zusatzbelastungen wurden für Ruß- und für Partikelanzahlkonzentrationen „20-40 nm“ berechnet. Auf Grund der Lage der Stationen und dem zeitlichen Verlauf der Zusatzbelastungen (Tages- und Wochengang) sind diese höchstwahrscheinlich dem Verkehr und teilweise dem Hausbrand zuzuordnen.

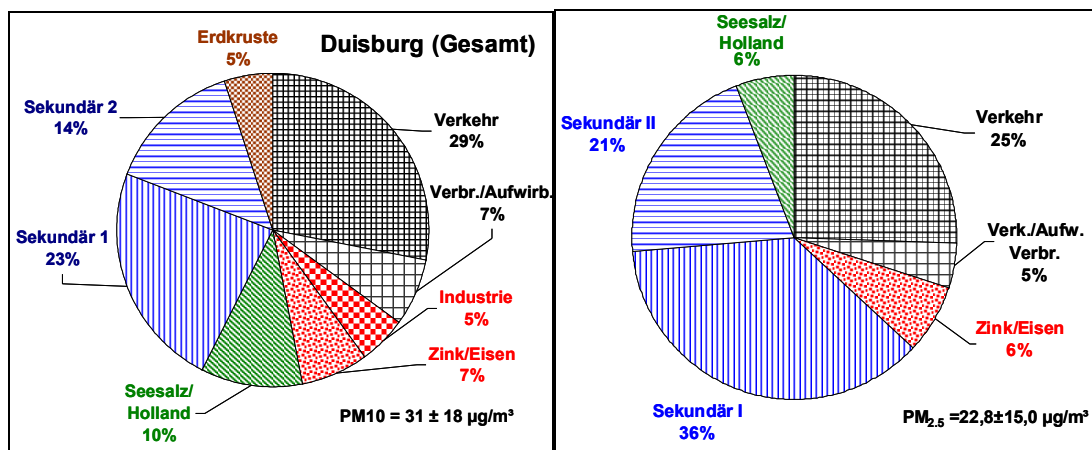
Die Anteile von Ammoniumnitrat und Ruß+OC an der Zusatzbelastung von PM<sub>2,5</sub> sind mit 30-60% bzw. 30-50% deutlich höher als für PM<sub>10</sub>. Dieses zeigt, dass diese beiden Komponenten hauptsächlich in der PM<sub>2,5</sub> Fraktion enthalten sind und diese auch wesentlich im lokalen/regionalen Bereich gebildet bzw. emittiert werden. Das Ergebnis zeigt weiter, dass unterschiedliche Komponenten zu den Zusatzbelastungen für PM<sub>2,5</sub> und PM<sub>2,5-10</sub> führen und sich die Zusatzbelastung von PM<sub>10</sub> aus jeweils etwa 50% Zusatzbelastung in PM<sub>2,5</sub> und PM<sub>2,5-10</sub> zusammensetzt.

Für alle Komponenten gilt, dass an Tagen mit PM<sub>10</sub>-Grenzwertüberschreitungen die Zusatzbelastung noch etwas höher als im Jahresmittel ausfällt und auf einem bereits erheblich höheren Konzentrations-Grundniveau aufsattelt.

Ein Vergleich der über Tagesgänge berechneten Zusatzbelastung aus lokalen/regionalen Quellen mit den städtischen Beiträgen, berechnet mittels eines Ansatzes nach Lenschow et al.

(2001) für Ludwigshafen und Koblenz (Kuhlbusch et al., 2003) und für Berlin (John und Kuhlbusch, 2004), zeigt städtische Beiträge von 40-45% für Koblenz und Ludwigshafen sowie 50% für Berlin. Damit liegen die für Duisburg berechneten Beiträge, die vom Ansatz her einen Teil der städtischen Beiträge ausmachen, im plausiblen Bereich.

Mittels **Positiv-Matrix-Faktorisierung (PMF)** wurden die Daten der Stationen für  $PM_{10}$  und  $PM_{2.5}$  (mit chemischen Inhaltsstoffen) zur detaillierten Auflösung von Quellen und Quellgruppen untersucht. Für  $PM_{10}$  konnten 8 Faktoren und für  $PM_{2.5}$  6 Faktoren aufgelöst werden. Mittels der chemischen Zusammensetzung, Windrichtungsabhängigkeit und Korrelationen zwischen den drei Stationen konnten den Faktoren Quellgruppen und teilweise Quellregionen zugeordnet werden. Insbesondere die Faktoren Industrie und Zink/Eisen konnten spezifischen lokalen Quellen zugeordnet werden. Die quantitativen Beiträge der Faktoren zu  $PM_{10}$  an der Station UNI sind in Abbildung 5 gezeigt.



**Abbildung 5:** Quellenzuordnung für  $PM_{10}$  und  $PM_{2.5}$  mittels PMF für UNI Gesamtzeitraum

Hierbei stammen die Beiträge der Quellgruppen Sekundär 1, Sekundär 2, Seesalz/Holland eher aus überregionalen Quellen, die Quellgruppen Verkehr, Verbrennung/Aufwirbelung und Erdkruste haben lokale bis überregionale Quellregionen, wohingegen Industrie und Zink/Eisen lokaleren Ursprungs sind.

Ein Vergleich der Beiträge der verschiedenen Quellgruppen zwischen dem gesamten Messzeitraum und dem Vergleichszeitraum für die Station UNI zeigt eine sehr gute Übereinstimmung, so dass die entsprechenden, nur für den Vergleichszeitraum durchführbaren Quellenzuordnungen für STYR und KALD als repräsentativ betrachtet werden können.

Insgesamt zeigt sich auch bei der Quellgruppenzuordnung mittels PMF ein hoher Grad an Übereinstimmung zwischen den drei Stationen. Der steigende Anteil des Verkehrs von KALD über UNI zu STYR kann auf die entsprechenden Verkehrsdichten und Nähe zu befahrenen Straßen erklärt werden. Die höheren industriellen Beiträge in UNI (11%) und STYR (14%) gegenüber KALD (9%) können auf deren Lage zu den wichtigsten industriell geprägten Quellregionen (sowohl Entfernung als auch Richtung) zurückgeführt werden.

Die Faktoren Sekundär 1, Verkehr, Seesalz/Holland und Zn/Fe konnten in der PM<sub>2,5</sub>-Fraktion mittels PMF wieder aufgelöst werden, wobei der Faktor Verkehr aber in 2 Faktoren, die miteinander sehr gut korrelierten, aufgeteilt war. Die Faktoren Industrie und Erdkruste wurden in der PM<sub>2,5</sub>-Fraktion nicht wiedergefunden und der Sekundär 2 Faktor nicht robust aufgelöst. PM<sub>2,5</sub>/PM<sub>10</sub>-Verhältnisse der zugeordneten Faktoren für PM<sub>10</sub> und PM<sub>2,5</sub> ergaben ein plausibles Bild mit z. B. Verhältnissen nahe 1,0 für den Sekundär 1 Faktor und einem Verhältnis von 0,3-0,4 für den Seesalz/Hollandfaktor. Insbesondere zeigt dieser Vergleich zwischen PM<sub>10</sub> und PM<sub>2,5</sub>, dass der Zn/Fe Faktor eher der feinen Fraktion zugeordnet werden kann und daher wahrscheinlich einen thermischen Emissionsprozess wiedergibt. Der nicht aufgelöste Faktor Industrie kann eher einer „kalten Quelle“ zugeordnet werden.

Eine vergleichende Betrachtung der Beiträge der Quellgruppen zu erhöhten PM<sub>10</sub>-Massenkonzentrationen zeigte deutlich überproportionale Beiträge für die Gruppen Verbrennung/Aufwirbelung, Sekundär 1 und Sekundär 2 (in dieser Reihenfolge).

### **1.6. Resümee**

Aus den Ergebnissen der Untersuchungen ergibt sich für die Feinstaub-Belastung des städtischen Hintergrundes im Raum Duisburg folgendes Gesamtbild:

- PM<sub>10</sub> und PM<sub>2,5</sub>-Massenkonzentrationen sowie die chemische Zusammensetzung des Feinstaubes bezüglich der die Masse bestimmenden Hauptkomponenten sind an allen drei Messstationen sehr ähnlich. Die Feinstaubbelastung resultiert daher überwiegend aus ubiquitären, oder regionalen (hier: Umkreis von ca. 30 km Durchmesser) bis überregionalen Prozessen/Quellen. PM<sub>10</sub> kann daher durch Messungen an einer im regionalen Umkreis positionierten beliebigen städtischen Hintergrundstation hinreichend repräsentativ erfasst werden.
- Im regionalen Bereich angesiedelte Emissionsquellen sind anhand ihres Einflusses auf die Zusammensetzung des Feinstaubes im Spurenbereich nachweisbar und teilweise lokalisierbar.
- Die zeitliche Variabilität der PM<sub>x</sub>-Massenkonzentrationen sowie einzelner Inhaltsstoffe deutet darauf hin, dass ein erheblicher Anteil der Belastung durch den Straßenverkehr sowie ggf. andere im Wochen- bzw. Tagesverlauf nicht stetige Emissionsprozesse verursacht wird.
- Überschreitungen des PM<sub>10</sub>-Tagesgrenzwertes treten zumeist dann auf, wenn die Belastung durch diese variablen Quellen mit einer durch überregionale Prozesse und meteorologische Bedingungen erhöhten „Untergrundbelastung“ zusammenfallen.

Episoden mit erhöhten Belastungen treten in allen Jahreszeiten auf; die relative Bedeutung des überregionalen und regional/zeitlich variablen Anteils scheint dabei aber jahreszeitlich bedingt zu variieren, mit einem verstärkten Anteil regionaler Einflüsse in der kälteren Jahreszeit.