

UMWELT UND GESUNDHEIT

02/2025

Abschlussbericht

Ultrafeine Partikel im Innenraum und in der Umgebungsluft

Zusammensetzung, Quellen und
Minderungsmöglichkeiten

von:

Birgit Wehner, Jiangyue Zhao, Thomas Tuch, Kay Weinhold, Alfred Wiedensohler
Leibniz-Institut für Troposphärenforschung, Leipzig

Ulrich Franck
Helmholtz Zentrum für Umweltforschung, Leipzig

Herausgeber:
Umweltbundesamt

UMWELT UND GESUNDHEIT 02/2025

Umweltforschungsplan des
Bundesministeriums für Umwelt,
Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit

Forschungskennzahl 3715 61 200 0
FB001493

Abschlussbericht

Ultrafeine Partikel im Innenraum und in der Umgebungsluft

**Zusammensetzung, Quellen und
Minderungsmöglichkeiten**

von

Birgit Wehner, Jiangyue Zhao, Thomas Tuch, Kay
Weinhold, Alfred Wiedensohler
Leibniz-Institut für Troposphärenforschung, Leipzig

Ulrich Franck
Helmholtz Zentrum für Umweltforschung, Leipzig

Im Auftrag des Umweltbundesamtes

Impressum

Herausgeber

Umweltbundesamt
Wörlitzer Platz 1
06844 Dessau-Roßlau
Tel: +49 340-2103-0
Fax: +49 340-2103-2285
buergerservice@uba.de
Internet: www.umweltbundesamt.de/

Durchführung der Studie:

Leibniz-Institut für Troposphärenforschung
Permoserstr. 15
04318 Leipzig

Abschlussdatum:

November 2020

Redaktion:

Fachgebiet II 1.3
Dr. Wolfram Birmili

Publikationen als pdf:

<http://www.umweltbundesamt.de/publikationen>

ISSN 1868-4340

Dessau-Roßlau, Februar 2025

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei den Autorinnen und Autoren.

Kurzbeschreibung: Ultrafeine Partikel im Innenraum und in der Umgebungsluft: – Zusammensetzung, Quellen und Minderungsmöglichkeiten

Die Exposition gegenüber Aerosolpartikeln (Feinstäuben) kann zu gesundheitlichen Problemen wie Atemwegserkrankungen und Herz-Kreislauf-Erkrankungen führen, abhängig von Partikelgröße und chemischer Zusammensetzung. In der modernen Gesellschaft verbringen Menschen die meiste ihrer Zeit zu Hause – dennoch wurde die Partikelexposition unter den entsprechenden Bedingungen bisher nur selten mit partikelgrößenaufgelösten Messungen untersucht. In dieser Studie wurden von Dezember 2016 bis März 2019 in 40 deutschen Haushalten Innen- und Außenmessungen an Fein- und Ultrafeinstäuben durchgeführt. Konkret wurden Partikelmassenkonzentration, Partikelanzahlkonzentration und -größenverteilung, CO₂-Konzentration und Aktivitäten der Bewohner*innen erfasst. Zwei häufig verwendete Quantifizierungsmethoden der Partikelemissionen wurden für diesen Datensatz erstmals verglichen und bewertet: der Single-Parameter-Ansatz SPA sowie der Indoor-Aerosol-Modell-Ansatz IAM. Letzterer kombiniert Modellsimulationen mit Messdaten, die die Realität besser beschreiben als der SPA-Ansatz. Um die aus dem vereinfachten SPA-Ansatz berechneten Emissionsraten anzupassen, wurden Korrekturfaktoren abgeleitet, wodurch die Emissionsraten miteinander vergleichbar sind. Die Ergebnisse zeigen, dass Innenraumquellen gegenüber Außenquellen hinsichtlich ihres Beitrags zur Partikelanzahl leicht überwiegen (~ 56% der Gesamtexposition). Für den Beitrag der Außenluft war die Penetration durch die Gebäudehülle (~ 26% der Gesamtexposition) bedeutender als der Eintrag durch geöffnete Fenster (~ 15% der Gesamtexposition). Das Brennen von Kerzen und das Öffnen von Fenstern führen zu saisonalen Unterschieden bei den Beiträgen von Innenquellen zur Exposition in Wohngebieten (70% in der kalten bzw. 40% in der warmen Jahreszeit). Die Ergebnisse legen nahe, dass Quellen in Innenräumen für den Großteil der anzahlkonzentrationsbezogenen Exposition in Wohnungen verantwortlich sind. Dies sollte in epidemiologischen Studien und bei der Risikobewertung Berücksichtigung finden, wenn die gesundheitlichen Auswirkungen von Aerosolpartikeln untersucht werden.

Abstract: Ultrafine particles in indoor and ambient air: Composition, sources, and mitigation options

Exposure to aerosol particles (particulate matter) can lead to health problems such as respiratory diseases and cardiovascular diseases, depending on the particle size and chemical composition. In modern society people spend most of their time at home. Despite this, particle exposure has rarely been studied with particle size-resolved measurements under real-world conditions in homes. In this study, indoor and outdoor measurements of fine and ultrafine particles were conducted in 40 German households from December 2016 to March 2019. Concretely, particle mass concentration, particle number concentration and size distribution, CO₂-concentration, and occupant activities were recorded. Two commonly used particle emission quantification methods, the single parameter approach (SPA) and the indoor aerosol model (IAM) approach, were compared and evaluated for the first time for this data set. The IAM approach combines model simulations with measured data that better describe reality than the SPA approach. Correction factors were derived to adjust emission rates calculated from the simplified SPA approach, making emission rates comparable. The results show that indoor sources slightly outweighed outdoor sources (~56% of total exposure) in terms of their contribution to particle counts. For the outdoor contribution, penetration through the building envelope (~ 26% of total exposure) was higher than infiltration through open windows (~ 15% of total exposure). Candle burning and window opening lead to seasonal differences in indoor source contributions to residential exposure (70% and 40% in cold and warm seasons, respectively). The results suggest that indoor sources are responsible for most of the number

concentration-related residential particle exposure. This should be considered in epidemiological studies and risk assessment when studying the health effects of aerosol particles.

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis.....	9
Tabellenverzeichnis.....	10
Abkürzungsverzeichnis.....	11
Zusammenfassung.....	12
Summary	16
1 Einleitung.....	20
1.1 Erkenntnisstand	20
1.2 Aufgabenstellung	21
2 Vorbereitung der Messungen	23
2.1 Aufbau der Messsysteme und Qualitätssicherung	23
2.1.1 Aufbau der Messsysteme	23
2.1.2 Qualitätssicherung	24
2.2 Rekrutierung der zu untersuchenden Haushalte.....	27
2.3 Erstellung der Fragebögen zu Wohnsituation und Innenraumaktivitäten	27
3 Durchführung der Messungen	29
3.1 Energieverbrauch.....	30
3.2 Zusammenfassung des Fragebogens	31
4 Ergebnisse	35
4.1 Konzentrationen von PM _{2.5-10} , PM _{1-2.5} , PM ₁ , FP und UFP im Innen- und Außenbereich.....	35
4.2 Tagesverlauf und jahreszeitliche Schwankungen der Partikelmassen- und Partikelanzahlkonzentrationen.....	39
4.2.1 Effekte der Jahreszeit auf die PNSD.....	41
4.3 Regionale Unterschiede der Außenluftkonzentrationen.....	42
4.4 Dynamische Prozesse an Partikeln im Innenraum.....	44
4.4.1 Luftwechselrate	44
4.4.2 Partikelverlustraten im Innenraum.....	45
4.4.3 I/O-Verhältnis im quasi-stationären Zustand	45
4.4.4 Penetrationsfaktor.....	46
4.5 Einfluss von Partikelquellen im Innenraum	47
4.5.1 Überblick über die Aktivitäten in Innenräumen	47
4.5.2 PNSD und PMSD der wichtigsten Quellen in Innenräumen	49
4.5.3 Raumluftsimulation und Emissionsrate von Innenraumquellen	50
4.6 Beitrag von Innen- und Außenquellen zur Partikelexposition in Innenräumen	54

4.6.1	Feinstaubbelastung in Innenräumen.....	54
4.6.2	Exposition gegenüber groben Partikeln in Innenräumen	56
5	Quellenverzeichnis	58

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1	TROPOS-MPSS für den Innen- und Außenbereich	24
Abbildung 2	OPSS: Innen- und Außen-Messungen von PM ₁₀ , PM _{2,5} , und PM ₁	24
Abbildung 3	OPSS: Korrelation der Innen- und Außen-Messungen von PM ₁₀ , PM _{2,5} , und PM ₁	25
Abbildung 4	MPSS-Kalibrierung: Vergleich N _{FP} (10–800 nm) mit Referenz-MPSS und -CPC	25
Abbildung 5	MPSS-Kalibrierung: Lineare Regression zum Referenz-CPC.....	26
Abbildung 6	MPSS-Kalibrierung: Mittlere PNSD der Innen-, Außen- und Referenz-MPSS	26
Abbildung 7	Überblick über die auf dem Tablet auswählbaren Aktivitäten	28
Abbildung 8	Lage der Haushalte in und um Leipzig, erste und zweite Messphase	29
Abbildung 9	Ansichten der Innen- und Außen-Messgeräte	30
Abbildung 10	Gesamtstatistik der Partikelmassen- und Partikelanzahlkonzentrationen	36
Abbildung 11	PM _{2,5-10} , PM _{1-2,5} und N _{FP} für jeden Haushalt im Innen- und Außenbereich	38
Abbildung 12	Zeitverlauf der Umgebungstemperatur in Leipzig und Berlin ..	39
Abbildung 13	Statistische Tagesgänge in der kalten und warmen Jahreszeit	40
Abbildung 14	Vergleich der Anzahlgrößenverteilung für die Nachtzeit und aktive Tageszeit	41
Abbildung 15:	Vergleich zwischen Wochentagen und Wochenende für den Tagesgang der N _{FP}	42
Abbildung 16	Auswirkung von Standorttyp auf die Partikelanzahlkonzentration (außen).....	43
Abbildung 17:	Auswirkung der Entfernung zu Straßen auf die Partikelanzahlkonzentration (außen).....	43
Abbildung 18	Größenaufgelöste Partikelverlustrate im Innenraum (h ⁻¹).....	45
Abbildung 19	Größenaufgelöstes I/O-Verhältnis im quasi-stationären Zustand	46
Abbildung 20	Größenaufgelöster Penetrationsfaktor	46
Abbildung 21	Mittlere Dauer der nutzerbedingten Innenraumaktivitäten....	48
Abbildung 22	Verteilung der nutzerbedingten Aktivitäten als Funktion der Startzeit	48
Abbildung 23	Mittlere PNSD- und PMSD-Erhöhungen infolge von Ereignissen in Innenräumen	50
Abbildung 24	Beispielhafte Modellsimulation der N _{FP} mit IAM in einem Haushalt (Nr. L2).....	53
Abbildung 25	Saisonale Unterschiede des Anteils der wichtigsten Expositions-Quellen.....	56

Abbildung 26	Regionale Unterschiede des Anteils der wichtigsten Expositions-Quellen.....	56
Abbildung 27	Beitrag der Quellen zur täglichen integrierten Exposition in Innenräumen	57

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1	Stromverbrauch in den 20 Haushalten in und um Leipzig.	30
Tabelle 2	Stromverbrauch in den 20 Haushalten in und um Berlin.....	31
Tabelle 3	Kennzeichen der beprobten Messorte und Wohnungen.....	31
Tabelle 4	Statistik der Partikelkonzentration im Innen- und Außenbereich, Black Carbon (eBC) und CO ₂ auf Basis von Stundenmitteln für alle Messungen in Leipzig und Berlin.....	37
Tabelle 5	Zusammenfassung der wichtigsten Nutzeraktivitäten.....	47
Tabelle 6	Mittelwert und Standardabweichung (SD) der dynamischen Parameter, die mit Hilfe des Innenraum-Aerosolmodells (IAM) bestimmt wurden.....	51
Tabelle 7	Zusammenfassung der mit dem Innenraum-Aerosolmodell geschätzten Emissionsraten von Innenraumquellen.	54

Abkürzungsverzeichnis

FP	Feine Partikel
UFP	Ultrafeine Partikel
BC	Black Carbon - Schwarzer Kohlenstoff
CPC	Condensation Particle Counter - Kondensationspartikelzähler
E	Emissionsrate
GMD	Geometrischer Mittelwert des Durchmessers
I	Gemessene Partikelanzahlkonzentration in Innenräumen
IAM	Indoor-Aerosol-Modell-Ansatz
K	Koagulationskoeffizient
MPSS	Mobilitäts-Partikelgrößenspektrometer
N_{FP}	Partikelanzahl Konzentration feiner Partikel (Mobilitätsdurchmesser 10 nm – 800 nm)
N_{UFP}	Partikelanzahlkonzentration von ultrafeinen Partikeln (Mobilitätsdurchmesser 10 nm – 100 nm)
O	Gemessene Partikelanzahlkonzentration im Freien
OPSS	Optisches Partikelgrößenspektrometer
P	Penetrationsfaktor
PMC	Partikelmassenkonzentration
PNC	Partikelanzahlkonzentration
PM₁₀	Feinstaub mit einem aerodynamischen Durchmesser von weniger als 10 µm
PM_{2.5}	Feinstaub mit einem aerodynamischen Durchmesser von weniger als 2.5 µm
PM₁	Feinstaub mit einem aerodynamischen Durchmesser von weniger als 1 µm
PMSD	Partikelmassengrößenverteilung
PNSD	Partikelanzahlgrößenverteilung
SD	Standardabweichung
SPA	Ein-Parameter-Ansatz
TROPOS	Leibniz-Institut für Troposphärenforschung
WCCAP	Weltkalibrierzentrum für Aerosolphysik
λ	Ventilationsrate
λ_d	Ablagerungsrate
u	Depositionsgeschwindigkeit (Schubspannungsgeschwindigkeit)

Zusammenfassung

Aufgrund ihres Einflusses auf Atemwegs- und Herz-Kreislauf-Erkrankungen stellen Aerosol- oder Feinstaubpartikel ein wichtiges Thema der Gesundheitsvorsorge dar. In Industrieländern verbringen die Menschen im Mittel mehr als 65 % ihrer Zeit zu Hause. Dort sind die Menschen einer Mischung aus Partikeln ausgesetzt, die zum einen aus dem Freien stammen und zum anderen von Quellen in Innenräumen ausgestoßen werden (z. B. durch Kochen und brennende Kerzen). Um die Partikelexposition in Wohnräumen zu verstehen, ist es wichtig, die Beiträge von Innen- und Außenquellen zu bestimmen. Bislang gibt es nur relativ wenige Studien, welche die Partikelkonzentration in Wohnräumen mit einem vollständigen, grösenaufgelösten Bild der Partikel im Größenbereich von 10 nm bis 10 μm und mit grösenaufgelösten Informationen untersucht haben – zudem wurde in Deutschland keine davon langfristig in mehreren Wohnungen durchgeführt. Somit besteht eine Erkenntnislücke hinsichtlich der Partikelexposition in deutschen Wohnräumen sowie des Einflusses von Partikelquellen im Innenbereich.

Um diese Lücke zu schließen, wurden von Dezember 2016 bis März 2019 in 40 privaten Häusern und Wohnungen in Leipzig und Berlin Messungen durchgeführt. Dabei fanden in jeder Wohnung zweimal gleichzeitige Innen- und Außenmessungen statt, zu verschiedenen Jahreszeiten sowie für jeweils mindestens zehn Tage. In den insgesamt über 500 Messtagen wurden die PM_{10} -, $\text{PM}_{2.5}$ - und PM_1 -Massekonzentrationen, die Konzentrationen feiner und ultrafeiner Partikel (N_{FP} bzw. N_{UFP}) und die Partikelanzahl- und Partikelmassengrösßenverteilungen (PNSD bzw. PMSD) erfasst, außerdem die CO_2 -Konzentrationen in den Innenräumen, die meteorologischen Parameter der Umgebung sowie Informationen über die Aktivitäten in den Wohnungen. Begleitet wurden die Messungen überdies von einem Fragebogen, der neben der Wohnsituation auch die räumliche Aufteilung der Innenräume mit möglichen Innenraumquellen sowie die Aktivitäten der Bewohner*innen dokumentierte. Damit ist diese Arbeit eine der größten Studien mit derart umfassenden Partikelparametern in mehreren europäischen Haushalten (hier: deutsche Haushalte), die alle Jahreszeiten abdeckt. Die Messkampagne und die gewonnenen Erkenntnisse setzen Standards für qualitativ hochwertige Partikelmessungen im Innen- und Außenbereich von privaten Innenräumen.

Die Massenkonzentrationen der groben Partikel (Partikeldurchmesser $> 1 \mu\text{m}$), insbesondere $\text{PM}_{2.5-10}$, konnten mit Resuspensionsprozessen in Verbindung gebracht werden, die durch Aktivitäten der Bewohner*innen verursacht wurden. Sie wiesen in Innenräumen signifikant höhere Konzentrationen ($3,9 \mu\text{g m}^{-3}$) und eine grösere Variabilität auf als im Freien ($1,1 \mu\text{g m}^{-3}$), was darauf hindeutet, dass Aktivitäten in Innenräumen die Hauptursache von groben Partikeln dort darstellen. Es wurde offensichtlich, dass die Belastung durch grobe Partikel in Innenräumen nicht durch Messungen im Freien erfasst werden kann.

Bei Submikrometerpartikeln waren die mittleren Konzentrationen von PM_1 und N_{FP} in Innenräumen niedriger als im Freien (mittleres E/A-Verhältnis jeweils 0,69), wobei die zeitlichen Schwankungen im Innenraum den Schwankungen im Freien folgten. Von der Gesamtpartikelzahl machten die UFP in den untersuchten Wohnsituationen den Großteil aus (im Durchschnitt 83 % in Innenräumen und 82 % im Freien). Die tageszeitlichen Zyklen von N_{UFP} und N_{FP} zeigen daher insgesamt ähnliche Trends. Dies deutet darauf hin, dass in deutschen Wohnbereichen das Niveau und die Schwankungen der ultrafeinen Partikelanzahl, die bei Langzeitmessungen beobachtet wurden, denen für Submikrometerpartikel entsprechen könnten. Insgesamt wurde die Schwankung der mittleren Submikrometerpartikel in Innenräumen in erster Linie durch Quellen im Freien verursacht. Dieses Ergebnis steht im

Gegensatz zu der Schlussfolgerung in der Übersichtsstudie von Morawska et al. (2017), die zu dem Schluss kam, dass Innenraumquellen die Haupttreiber der Partikelanzahlkonzentrationen (PNC) in Wohnräumen sind. Ein Grund dafür ist, dass in dieser Studie zum Vergleich von Innen- und Außen-PNC anstelle des Durchschnittswertes der Medianwert verwendet wurde, um den häufigsten Zustand dieser 500 Messtage darzustellen. Ein weiterer Grund ist, dass die Übersichtsstudie die Aktivitätsgewohnheiten der Bewohner*innen in vielen verschiedenen Ländern erfasst. Dies unterstreicht auch die Bedeutung der Messungen in Deutschland, da sich die Wohnsituation hier von der in anderen Regionen der Welt unterscheiden kann. Unabhängig von Unterschieden innerhalb Deutschlands sind sich die Wohnungen und Häuser in folgender Hinsicht relativ ähnlich: In den meisten Fällen waren die Häuser aus Ziegeln gebaut und vor allem mit modernen, energieeffizienten Fenstern ausgestattet (gemäß der Energieeinsparverordnung EnEV, 2001).

Alltägliche Aktivitäten in Innenräumen führten zu einem starken Anstieg der PNC in Innenräumen. Etwa 900 Ereignisse in Innenräumen wurden anhand des elektronischen Aktivitätsprotokolls der Bewohner*innen klassifiziert, darunter Backen, Braten, Toasten und das Abbrennen von Kerzen, die Nutzung von Kaminen und das Öffnen von Fenstern. Im Tageszyklus sind deutliche Unterschiede zwischen der kalten und der warmen Jahreszeit zu erkennen, die mit dem Grad der Belüftung zusammenhängen. In der kalten Jahreszeit verursachten ultrafeine Partikel aus Innenraumquellen die starken Spitzenwerte im Tagesgang der NFP in Innenräumen. In der warmen Jahreszeit dominierten Quellen im Freien die Schwankungen des Tagesverlaufs der Submikrometerpartikel in Innenräumen, da die Fenster viel länger geöffnet blieben. Die Auswirkungen von Innenraumquellen (Kochen und durch Verbrennung bedingt) sind im Vergleich zur warmen Jahreszeit in der kalten also viel stärker ausgeprägt. Folglich waren die Bewohner*innen je nach Jahreszeit unterschiedlichen Zusammensetzungen von Partikeln in Innenräumen ausgesetzt.

Die Aktivitätsgewohnheiten der Bewohner*innen hatten einen großen Einfluss auf die Partikelkonzentration in den Innenräumen. Im Allgemeinen verbrachten die Menschen an Wochenenden und Feiertagen mehr Zeit zu Hause und standen später auf als an Wochentagen, was dazu führte, dass die Partikelkonzentration in Innenräumen höher war und die Spitzenzeit um das Frühstück herum am Wochenende etwa 2 Stunden später lag als an Wochentagen.

Was den Einfluss der Lage der Wohnung betrifft, so waren die Partikelmassen- und Partikelanzahlkonzentrationen im Freien erwartungsgemäß in Wohngebieten in städtischen Gebieten höher als in ländlichen, wie auch in Wohnungen, die näher an einer stark befahrenen Straße lagen.

Das Verhältnis von Aerosolpartikeln in Innenräumen zur Außenluft wird hauptsächlich durch vier Mechanismen beeinflusst: das Eindringen von außen (d. h. Filtration und Infiltration), die Lüftungsrate, den Partikelverlust in Innenräumen (einschließlich Ablagerung auf Innenraumoberflächen, Koagulation) und die Quellen in Innenräumen. Unter realen Bedingungen ist das dynamische Verhalten von Aerosolen in Innenräumen komplizierter und kann komplexe Prozesse wie Resuspension, Verdunstung sowie Partikelbildung aus Gasphasenreaktionen und Gas-Partikel-Wechselwirkungen umfassen. Durch die Quantifizierung dieser Schlüsselprozesse lässt sich dann der Beitrag von Innen- und Außenquellen abschätzen. In diesem Bericht wurde das Ein-Kompartiment-Modell für Innenraum-Aerosole (Indoor Aerosol Model, IAM) von Hussein et al. (2005), (2015) angewandt, um die Hauptparameter der Belüftung, Penetration, Deposition und Koagulationsprozesse zu schätzen und die Partikelkonzentration in Innenräumen zu simulieren. Durch den Vergleich der simulierten Innenraum-Hintergrundpartikelkonzentration mit der gemessenen Konzentration wurden dann die Emissionsraten aus typischen Wohnaktivitäten berechnet und analysiert.

Während der Messperioden lag der mittlere Penetrationsfaktor während der Zeit, in der die Fenster geschlossen waren, für jede Partikelgröße im Bereich von 10-800 nm unter 0,5. Dies spiegelt wider, dass typische deutsche Häuser eine relativ luftdichte Gebäudehülle haben, die auf Außenpartikel als partikelgrößenabhängiger Filter wirkt. Der Durchdringungsfaktor und die Lüftungsrate lagen bei 0,4 - 1,5 bzw. 0,1 - 6 h⁻¹.

Zum ersten Mal wurden zwei gängige Methoden zur Quantifizierung von Partikelemissionen verglichen und bewertet: der Ein-Parameter-Ansatz (SPA) und der Indoor-Aerosol-Modell-Ansatz (IAM). Der IAM-Ansatz kombiniert Modellsimulationen mit Messdaten einschließlich zeit- und partikelgrößenabhängiger Informationen, was zur Abbildung der Realität als geeigneter betrachtet wird als der SPA-Ansatz.

Die aus dem IAM-Ansatz abgeleiteten Quellenemissionsraten (EIAM) waren erheblich höher als die aus dem SPA-Ansatz ermittelten (ESPA). Dabei wurden letztere mit einer vereinfachten Methode im Rahmen des SPA-Ansatzes ermittelt, d. h. ohne Berücksichtigung der dynamischen Aerosolprozesse. Auch war der Medianwert von ESPA nur halb so hoch wie der von EIAM. Da für die Expositionabschätzung quellspezifische Emissionsraten verwendet werden sollten, wurde eine neue Methode zur Anpassung der aus dem vereinfachten SPA-Ansatz abgeleiteten Ergebnisse angewandt. Korrekturfaktoren für den vereinfachten SPA-Ansatz machten auch die aus den verschiedenen Analyseebenen abgeleiteten Emissionsraten miteinander vergleichbar.

Die mit dem IAM-Ansatz berechnete mittlere Emissionsrate der Quellen in Innenräumen für alle Messungen von 500 Tagen betrug $2,7 \times 10^{13} \pm 6,0 \times 10^{13}$ h⁻¹. Die mittlere Emissionsrate jedes Quellentyps lag typischerweise in der Größenordnung von 10¹³ h⁻¹, mit der höchsten Emissionsrate für brennende Kerzen mit einem Mittelwert von $5,3 \times 10^{13}$ h⁻¹. Aufgrund der hohen Partikelemissionen beim Kochen hatte auch die Küchenkonfiguration einen Einfluss auf die Messergebnisse. Die mittlere Emissionsrate aller Tätigkeiten in Wohnungen mit getrennter Küche und offener Küche betrug $1,2 \times 10^{13} \pm 2,6 \times 10^{13}$ h⁻¹ bzw. $3,5 \times 10^{13} \pm 7,0 \times 10^{13}$ h⁻¹. Daher könnten in den Wohnungen, in denen Küche und Wohnzimmer durch eine Tür getrennt sind, die Emissionsraten für die Kochtätigkeiten unterschätzt worden sein. Andererseits bedeutet dies auch, dass die Partikelexposition bei Kochtätigkeiten im Wohnzimmer geringer ist, wenn die Küchentür geschlossen ist.

Anhand der mit dem IAM-Modell simulierten Innenraum-Zeitreihen von PNC für die 40 Wohnungen war es möglich, die Anteile von PNC in Innenräumen zu unterscheiden, die aus Innenraum- und Außenquellen stammen. Die Exposition gegenüber Feinstaub, der von verschiedenen Innen- und Außenquellen emittiert wird, wurde gemäß der Arbeit von Bhangar et al. (2011) als tägliche integrierte Exposition quantifiziert, die durch Integration des PNC über die Zeit und Division durch die Anzahl der Messtage (cm⁻³ h/Tag) berechnet wird. Die tägliche integrierte Exposition in unseren 40 Haushalten schwankte zwischen $0,7 \times 10^5$ cm⁻³ h/Tag und $4,7 \times 10^5$ cm⁻³ h/Tag, mit einem Mittelwert von etwa 2×10^5 cm⁻³ h/Tag.

Die Ergebnisse zeigen, dass Innenraumquellen die Hauptrolle bei der Partikelexposition in Wohnräumen spielen. Der Beitrag von Innenraumquellen zu PM_{1-2,5} und PM_{2,5-10} betrug 84 % bzw. 98 % der Gesamtexposition. Der Beitrag aus dem Freien war für PM_{2,5-10} nahezu vernachlässigbar. Bei den Submikrometerpartikeln machten Innenraumquellen etwa 56 % der Gesamtexposition aus. Von den bekannten Innenraumquellen trugen brennende Kerzen am meisten (17 %) zur Gesamtexposition bei. Dennoch war auch der Beitrag des Außenbereichs (etwa 40 %) für die Exposition gegenüber Submikrometerpartikeln wichtig. Der IAM-Modellansatz erlaubt es sogar, diesen Beitrag in die Penetration durch die Gebäudehülle und die Infiltration durch Fenster aufzuschlüsseln (26 % bzw. 15 %).

Der Anteil der Innenraum- und Außenluftpartikel war sehr unterschiedlich. In der kalten Jahreszeit waren die Bewohner*innen einem Großteil der aus Innenräumen stammenden Partikel ausgesetzt (70 %), während in der warmen Jahreszeit der entsprechende ermittelte Beitrag nur 39 % der Gesamtexposition ausmachte. Das Öffnen von Fenstern und das Abbrennen von Kerzen waren die beiden Hauptaktivitäten, die den entscheidenden Unterschied machten (ihr Anteil an der Gesamtexposition betrug 6 % und 24 % in der kalten Jahreszeit bzw. 25 % und 3 % in der warmen Jahreszeit). Ohne das Abbrennen von Kerzen wäre die tägliche Exposition in Innenräumen in der kalten Jahreszeit um etwa $5 \times 10^4 \text{ cm}^{-3} \text{ h/Tag}$ reduziert worden. Im Vergleich zu früheren Studien in Peking, Kalifornien und Dänemark war die tägliche integrierte Expositionsbelastung in den in dieser Arbeit untersuchten deutschen Haushalten geringer. Die tägliche integrierte Belastung durch grobe Partikel wurde mit demselben Algorithmus wie für feine Partikel quantifiziert. Die Beiträge von Innenraumquellen zu $\text{PM}_{1-2,5}$ und $\text{PM}_{2,5-10}$ betrugen 84 % bzw. 98 % der Gesamtexposition.

Insgesamt konnten diese über 500 Tage dauernden Messungen repräsentativere Daten über die Exposition gegenüber groben, feinen und ultrafeinen Partikeln sowie Ruß in Wohnräumen liefern. Damit ermöglichen sie ein besseres Verständnis der dynamischen Prozesse, die die Innenraumluft beeinflussen. Diese Arbeit erweitert somit das Wissen über die quellenspezifischen Emissionsraten in europäischen Häusern unter realen Bedingungen. Zum ersten Mal wurden dabei die beiden Berechnungsansätze für Emissionsraten quantitativ verglichen und bewertet. Ebenfalls wurde erstmals beim Einfluss des Außenbereichs auf die Partikelexposition quantitativ zwischen der Penetration durch die Gebäudehülle und der Infiltration durch offene Fenster unterschieden.

Die Ergebnisse darauf hin, dass Innenraumquellen nach wie vor für den Großteil der Partikelexposition in Wohnräumen verantwortlich sind. Diese Arbeit stellt so einen wichtigen Beitrag zur Kenntnis über die Partikelexposition in Innenräumen und die quellenspezifischen Beiträge zu verschiedenen Jahreszeiten dar. Um die PNC-Exposition von Haushalten weiter zu reduzieren, kann empfohlen werden, in der warmen Jahreszeit die Zeit offener Fenster während hoher PNC-Werte im Freien (z. B. zu Hauptverkehrszeiten) zu verkürzen und in der kalten Jahreszeit die Nutzung von Kaminen und die Verwendung von Kerzen zu reduzieren.

Summary

Aerosol particles, or particulate matter, have attracted concerns for public health because of their association with respiratory and cardiovascular diseases. In developed countries, people spend more than 65% of their time at home. In residential environments, people are exposed to a mixture of particles originating from outdoors, and ones emitted from indoor sources (e.g. cooking related activities and burning candles). To understand the particle exposure in homes, it is thus important to quantify the contribution from indoor and outdoor sources. However, only relatively few studies have investigated the residential particle concentration level with a full picture of particles from 10 nm to 10 μm size range, with size-resolved information, and none was performed in Germany in the long-term in multiple homes. There is a gap in the knowledge of the indoor particle exposure levels and source contribution in German residences.

To fill this gap, the indoor and outdoor measurements were conducted from December 2016 to March 2019 in 40 private houses/apartments in Leipzig and Berlin, Germany. Simultaneous indoor and outdoor measurements were performed twice in each home for a minimum of ten days each during different seasons. The over 500 days' measurement combined PM_{10} , $\text{PM}_{2.5}$, PM_1 mass concentrations, fine and ultrafine particle number concentrations (N_{FP} and N_{UFP} , respectively), particle number and mass size distributions (PNSD and PMSD, respectively), indoor CO_2 concentrations, ambient meteorological parameters as well as information about residential activities into a unique dataset. The measurements were also accompanied by a questionnaire to document the room configuration and overview of the neighborhoods. This work is one of the largest studies with such comprehensive particle parameters in multiple European homes (here: German homes) covering all seasons. Based on the knowledge gained during the measurement campaign, a standard for high-quality indoor and outdoor particle measurement in single family houses and apartments was established for the first time.

Mass concentrations of the coarse particle (particle diameter $>1 \mu\text{m}$), especially $\text{PM}_{2.5-10}$, were linked to resuspension processes driven by residents' activities, showed significantly higher concentrations and greater variability indoors than outdoors ($3.9 \mu\text{g m}^{-3}$ and $1.1 \mu\text{g m}^{-3}$, respectively), indicating that indoor activities were the major contributors to indoor coarse particles. Clearly, in German residential environments, indoor exposure to coarse particles cannot be described by outdoor measurements.

For submicrometer particles, the median indoor PM_1 and N_{FP} diurnal cycles were lower than those outdoors (median I/O ratio both 0.69), and following outdoors' variation. Among total particle number, UFP made up a majority in the residential environments under study (on average 83% and 82% for indoors and outdoors, respectively). The N_{UFP} and N_{FP} diurnal cycles, therefore, show similar overall trends. This indicated that in German residential environments, ultrafine particle number concentration level and variation observed from long-term measurements could represent those for submicrometer particles. Overall, the variation of median indoor submicrometer particles was driven by outdoor sources primarily. This result is contrary to the conclusion in the review study of Morawska et al. (2017), which concluded that indoor sources are the main drivers of home particle number concentrations (PNC). One reason is that in this study the median value was used to compare indoor and outdoor PNC instead of the mean, to represent the most common state of those 500 days' measurement. Another reason is that the review study covers the residents' activity habits in many different countries. This also highlights the importance of residential measurement in the German region, where the housing situation is different from other areas of the world. Despite the different living conditions, apartments/houses in Germany are relatively unified in following terms: homes are in most cases built of bricks, and most importantly, equipped with modern energy-efficient

windows (under the Energy Saving Regulation “Energieeinsparverordnung” requirement EnEV, since 2001).

Common indoor activities have caused a strong increase in indoor PNC. Around 900 indoor events were classified according to the residents' electronic activity log, involving baking, frying, toasting, candle burning, use of fireplaces, and opening windows. Notable contrasts can be seen in the diurnal cycle between the cold and warm seasons. These differences are linked to the state of ventilation. In the cold season, ultrafine particles emitted from indoor sources caused the strong peaks in the diurnal cycle in indoor N_{FP} . In the warm season, outdoor sources dominated the variation of the diurnal cycle of indoor submicrometer particles due to much longer periods of opening windows. The effects of indoor sources (cooking and combustion-related) during the cold season are much more prominent compared with the warm season. Consequently, residents were exposed to different compositions of indoor particles.

Inhabitants' activity habits strongly influence the indoor particle concentration pattern. In general, people spent more time at home and get up later during the weekends and holidays than during the weekdays, which leads to the indoor particle concentrations higher and peak time around breakfast about 2 hours later on the weekends than on the weekdays.

As for the influence of different regions, as expected, the outdoor particle mass and number concentrations were higher in homes located in urban areas than rural areas, which were also higher in homes that are closer to the busy road.

The indoor-to-outdoor relationship of aerosol particles is mainly affected by four mechanisms: penetration from outdoors (i.e. filtration and infiltration), ventilation rate, indoor particle loss (incl. deposition onto indoor surfaces, coagulation), and indoor sources. In real life conditions, the dynamic behavior of indoor aerosols is more complicated, which might include complex processes such as re-suspension, evaporation, particle formation from gas-phase reaction, and gas-particle interaction. By quantifying these key processes, we can then estimate the contribution of indoor and outdoor sources. In this report, the single-compartment form of Indoor Aerosol Model (IAM) by Hussein et al. (2005), (2015) was applied to estimate the main parameters of ventilation, penetration, deposition, and coagulation processes and simulate indoor particle concentration. By comparing the simulated indoor background particle concentration with the measured concentration, emission rates from typical residential activities were calculated and analyzed.

During measurement periods, the median penetration factor during the window-closed time was lower than 0.5 for any particle size within the range 10-800 nm and reflects that the typical German homes have building shells that are rather airtight and act as particle size-dependent filters for outdoor particles. Penetration factor and ventilation rates were 0.4 - 1.5 and 0.1 - 6 h^{-1} , respectively.

Two commonly used quantitation methods for particle emissions, single parameter approach (SPA) and Indoor Aerosol Model approach (IAM), were compared and evaluated for the first time. The IAM approach combines model simulations with measurement data, including time and particle size dependent information, which is considered to describe reality better than the SPA approach.

The source emission rates derived from the IAM approach (EIAM) were considerably higher than those obtained from the SPA approach (ESPA). SPA was quantified with a simplified method under SPA, i.e. without considering the aerosol dynamic processes, and the median SPA is only half as much as EIAM. Since source-specific emission rates are to be applied for exposure assessment, a new method is offered to adjust results derived from the simplified SPA approach.

Correction factors for the simplified SPA approach also make emission rates derived from different levels of analysis mutually comparable.

The mean indoor source emission rate calculated via the IAM approach of all 500 days' measurements was $2.7 \times 10^{13} \pm 6.0 \times 10^{13} \text{ h}^{-1}$. The mean emission rate of each source type was typically on the order of 10^{13} h^{-1} , with the highest emission rate for burning candles with a mean value of $5.3 \times 10^{13} \text{ h}^{-1}$. Due to the high particle emissions during cooking, the kitchen configuration also has an influence on the measurement results. The mean emission rate of all activities in homes with separated kitchen and open kitchen are $1.2 \times 10^{13} \pm 2.6 \times 10^{13} \text{ h}^{-1}$ and $3.5 \times 10^{13} \pm 7.0 \times 10^{13} \text{ h}^{-1}$, respectively. Therefore, in the homes in which the kitchen and living room are separated by a door, emission rates might be underestimated for the cooking activities. On the other hand, this also indicates that there will be less particle exposure to cooking activities in the living room if the kitchen door is closed.

With the simulated indoor time series of PNC for the 40 dwellings using the IAM model, it is possible to differentiate the fractions of indoor PNC that originate from indoor and outdoor sources. Exposure to fine particles emitted from different indoor and outdoor sources was quantified as a daily-integrated exposure according to work by Bhangar et al. (2011), which is calculated by integrating the PNC over time and dividing by the number of measurement days ($\text{cm}^{-3} \text{ h/day}$). The daily-integrated exposure in our 40 households varied from $0.7 \times 10^5 \text{ cm}^{-3} \text{ h/day}$ to $4.7 \times 10^5 \text{ cm}^{-3} \text{ h/day}$, with a mean around $2 \times 10^5 \text{ cm}^{-3} \text{ h/day}$.

Results show that, indoor sources played the main role in residential particle exposure. The contributions from indoor sources to $\text{PM}_{1-2.5}$ and $\text{PM}_{2.5-10}$ were 84% and 98% of the total exposure, respectively. Contribution from outdoors was almost negligible for $\text{PM}_{2.5-10}$. As for submicrometer particles, indoor sources were around 56% of total exposure. Among the known indoor sources, burning candles contribute the most (17%) to the total exposure. Nevertheless, the outdoor contribution was also important (around 40%) for exposure to submicrometer particles. The IAM model approach even allows to break this contribution down to penetration through the building shell, and ventilation through windows (26% and 15%, respectively).

However, due to the different behavior patterns of residents in the cold and warm seasons, the proportions of indoor and outdoor contributions were rather different. In the cold season, residents were exposed to a majority of particles emitted from indoor sources (70%) whereas, in the warm season, the corresponding identified contribution amounted to only 39% of total exposure. Opening windows and burning candles were the two major activities that made the crucial difference (their proportions of total exposure were 6% and 24% in the cold season, 25% and 3% in the warm season, respectively). Without burning candles, the daily indoor exposure would have been reduced by approximately $5 \times 10^4 \text{ cm}^{-3} \text{ h/day}$ in the cold period. Compared to previous studies in Beijing, California, and Denmark, the daily-integrated exposure burden in the German households studied in this work is lower. The daily-integrated exposure to coarse particles is quantified using the same algorithm as for fine particles. The contributions from indoor sources to $\text{PM}_{1-2.5}$ and $\text{PM}_{2.5-10}$ were 84% and 98% of the total exposure, respectively.

Overall, these measurements over 500 days provided more representative data on indoor exposure to coarse, fine and ultrafine particles as well as black carbon in the residential environment, allowing a better understanding of the dynamic processes affecting indoor air. This work fills the gap of knowledge of the source-specific emission rates in European houses under real-life conditions. For the first time, the two calculation approaches to emission rates were quantitatively compared and evaluated. Also, for the first time, the contribution from outdoor to particle exposure has been quantitatively separated between the building envelope and infiltration through open windows. Moreover, results suggest that indoor sources are still

responsible for the majority of residential exposure to particles. This work offers a significant extension of knowledge related to indoor particle number exposure and source-specific contributions across different seasons. To further reduce the residential exposure to PNC, it is recommended to shorten the time of open windows with high PNC outside (e.g. during rush hours) in the warm season and to reduce the use of candles and fireplaces in the cold season.

1 Einleitung

1.1 Erkenntnisstand

Ultrafeine Partikel (UFP) beziehungsweise Ultrafeinstaub sind als luftgetragene Partikel mit einem Durchmesser zwischen 1 und 100 nm definiert. Sie sind Teil des allgemeinen Feinstaubs (definiert als Partikel < 10 µm) und bezeichnen hierbei meist die natürlich entstandenen, bzw. die durch menschliche Aktivitäten unbeabsichtigt in die Atmosphäre gebrachten Partikel.

Mehrere Umweltbehörden haben Informationen zur Bedeutung der UFP zusammengestellt, so das deutsche Umweltbundesamt (Birmili et al., 2018), das österreichische Umweltbundesamt (Nagl und Buxbaum, 2018), aber auch ein internationales Autorenkollektiv von 36 Wissenschaftlerinnen und Wissenschaftlern (EFCA, 2019).

Aufgrund ihrer geringen Größe können UFP in die tiefen Verästelungen der Atemwege (Alveolen) gelangen und dort deponiert werden. Aus demselben Grund sind UFP in der Lage, die körpereigenen Abwehrmechanismen gegen Stäube (Makrophagen, mukoziliäre Clearance) zu überwinden. Im Alveolarbereich angelangt, können UFP Zellmembranen durchdringen, in die Blutbahn übergehen und letztlich alle Körperorgane des Gehirns erreichen (Rückerl et al., 2011). Als zu messende Metrik für die Darstellung gesundheitlicher Wirkungen wurde neben der Partikelanzahl der UFP auch die Oberflächenkonzentration biopersistenter Partikel vorgeschlagen (Schmid und Stöger, 2016).

Neben der chemischen Zusammensetzung hat vor allem die Größe von Feinstaubpartikeln einen entscheidenden Einfluss auf mögliche gesundheitliche Effekte. Die Größenverteilungen von Feinstaubpartikeln hängen im Allgemeinen stark von den emittierenden Quellen ab. Zahlreiche atmosphärische Messungen zeigen, dass insbesondere die städtische Bevölkerung durch UFP in der Umgebungsluft dieser dauerhaften Belastung ausgesetzt ist (Wehner et al., 2002, Wehner and Wiedensohler, 2003, Birmili et al., 2009, Costabile et al., 2009). Die personenbezogene Belastung kann je nach Aufenthaltsort und Aktivität stark schwanken (Gu et al., 2015).

Informationen zu den möglichen Gesundheitseffekten von UFP finden sich z.B. im HEI Special Report (HEI, 2013) oder den Reviews zum Sachstand der Effekte der UFP aus Sicht der Epidemiologie (Rückerl et al., 2011; Ohlwein et al., 2018). Demnach ist die Kenntnis der Gesundheitseffekte von UFP sind derzeit noch sehr lückenhaft. Neben der chemischen Zusammensetzung der Aerosolpartikel und der daraus resultierenden Toxizität, spielt für den Depositionsort der Partikel in den Atemwegen die Partikelanzahlgrößenverteilung eine bedeutende Rolle (Heyder, 2004, Löndahl et al., 2007). Das begrenzte Wissen über die gesundheitlichen Effekte ultrafeiner Partikel in der Außenluft scheint teilweise auch der bisherigen Fokussierung der Luftgütemessnetze auf PM₁₀ und PM_{2,5} geschuldet. Breite Wissenslücken bestehen auch in Bezug auf UFP-Konzentrationen in Wohnräumen, insbesondere die Beiträge unterschiedlicher Quellen und Größenfraktionen zur Partikelanzahl. Aufgrund einer fehlenden Dosis-Wirkungsbeziehung liegt auch eine Regulierung von UFP noch in weiter Ferne (Wichmann-Fiebig, 2020).

In den Ländern der gemäßigten Klimazone und auch in Deutschland halten sich Menschen den überwiegenden Teil ihrer Lebenszeit in Innenräumen auf. Der höchste Anteil am Zeitbudget entfällt dabei üblicherweise auf Wohnräume. Dies gilt meist auch für Berufstätige, insbesondere aber für als besonders vulnerabel angesehene Personengruppen wie Kinder, Alte und Vorerkrankte.

Analog zur Situation in der Außenluft ist die epidemiologische Nachweislage, von welchen Fraktionen der in Innenräumen vorkommenden Feinstäube welche Gesundheitsrisiken

ausgehen, ebenfalls sehr lückenhaft. Es wird angenommen, dass ca. 10-30 % der mit der Belastung durch luftgetragene Partikel assoziierten Erkrankungen durch Partikel verursacht werden, die ihre Quellen im Innenraum haben (Morawska et al., 2013).

Aus Sicht der feinstaubbezogenen Gesundheitsforschung ist daher die Schaffung einer integralen Beschreibung des Vorkommens, der Eigenschaften und der Quellen des Ultrafeinstaubes sowohl in der Außenluft als auch im Innenraum unumgänglich. Aufgrund der im Innenraum zu erwartenden hohen Variabilität, sowohl zwischen verschiedenen Innenräumen als auch im zeitlichen Verlauf innerhalb eines Innenraums, erscheinen für die Zukunft vor allem modellhafte Beschreibungen oder Parametrisierungen der Ultrafeinstaubexposition als vorteilhaft. Denn die raumzeitliche Variabilität ultrafeiner Partikel hat sich als so stark erwiesen, dass sie selbst in der Außenluft messtechnisch nicht flächenhaft erfasst werden kann. Eine wesentlich erhöhte Aussagekraft bei der Beschreibung der Humanexposition mit ultrafeinen Partikeln wird erreicht, wenn zusätzlich der Aufenthalt der Personen in Wohnungen mit den unterschiedlichen individuellen Lebensverhältnissen und den damit zusammenhängenden Innenraum-Partikelquellen in Betracht gezogen werden.

Wie bereits angemerkt, liefert die Größenverteilung auch indirekt Hinweise auf Quellgruppen und damit die chemische Zusammensetzung. Um eine Aussage über die Exposition mit ultrafeinen Partikeln in Wohnungen zu erhalten, müssten intensive Messungen der Partikelanzahlgrößenverteilung in der Außenluft sowie im Innenraum parallel durchgeführt werden. Diese Messungen sind am sinnvollsten, wenn unterschiedliche Wohnungstypen und -lagen in verschiedenen Jahreszeiten mit unterschiedlichen Lüftungsverhalten und Innenraumquellen untersucht und potenzielle Quellen erfasst werden. Neben Quellen, die a priori als solche von Partikeln angesehen werden müssen (z.B. Rauchen, Kerzen, Räucherwerk, Kaminöfen, Laserdrucker etc. (He et al., 2004, Liu and Zhu, 2010, Tang et al., 2012, Kliucininkas et al., 2014, Gerber et al., 2015) können auch im (Wohn-) Innenraum sekundäre organische Aerosole gebildet werden, was bei der Erfassung potenzieller Quellen beachtet werden soll (Morawska et al., 2009, Rösch et al., 2015).

1.2 Aufgabenstellung

Derzeit sind für Innenräume nur wenige repräsentative Daten der Konzentration von Feinstaubpartikeln unter Einschluss ultrafeiner Partikel (UFP) sowie mit hoher Größenauflösung verfügbar. Erstes Hauptziel dieses Projektes war daher, eine entsprechend breite experimentelle Grundlage an Felddaten zu schaffen. Hierzu gehören größenauflöste Partikelkonzentrationen (sogenannte Partikelanzahlgrößenverteilungen) in der Innenraumluft sowie der wohnungsnahen Außenluft an verschiedenen belasteten Standorten. Die Messungen sollen Aerosolpartikel im Durchmesserbereich von 10 bis 1000 nm einschließen. Um die Variationen in Abhängigkeit von der Außenluftsituation diskutieren zu können, wurden Messungen in Haushalten innerhalb der Stadt, am Strand sowie im ländlichen Raum durchgeführt. Es wurde jeweils außerhalb und innerhalb einer Wohnung über einen Zeitraum von etwa 3-7 Tagen parallel gemessen. Diese Messungen werden für jeden Standort zu allen 4 Jahreszeiten durchgeführt. Insgesamt wurden 20 Haushalte in und um Leipzig sowie 20 Haushalte in und um Berlin ausgewählt. Für die Messungen wurden vom Auftragnehmer TROPOS spezielle Mobilitäts-Partikelgrößenspektrometer (Mobility Particle Size Spectrometer; MPSS) gebaut, die den Anforderungen eines Dauerbetriebs im Innenraum und Außenbereich genügen. Die Gewohnheiten und Aktivitäten der Bewohner*innen in den untersuchenden Haushalten wurden vor und nach den Messungen mittels eines Fragebogens, sowie während der Messungen mittels direkter Eingaben der Bewohner*innen in einem Tablet-System erfasst. Dies hat den Zweck, dass Quellen und Prozesse, die die Innenraumkonzentration der UFP deutlich

verändern können, leichter auf entsprechende Aktivitäten der Bewohner*innen zurückgeführt werden können. Die Messungen erstreckten sich über einen Zeitraum von 2 Jahren. Parallel wurde bereits mit der Auswertungen begonnen, so dass bis zum Ende der insgesamt 4-jährigen Projektlaufzeit drei wissenschaftliche Publikationen erstellt werden konnten (Zhao et al., 2018, Zhao et al., 2019, Zhao et al., 2020).

2 Vorbereitung der Messungen

Das Projekt ist zum 01.04.2016 von dem Umweltbundesamt mit einer Laufzeit von 36 Monaten bewilligt worden. Um zusätzliche Ergebnisse zu erzielen, nämlich die Ermittlung quellenspezifischer Beiträge zur Partikelexposition in Innenräumen im Rahmen von Modellsimulationen der physikalischen Prozesse im Innenraum, wurde das Projekt um ein weiteres Jahr verlängert.

Die ersten Arbeitsschritte bestanden im Aufbau der Messsysteme, in der Rekrutierung der Haushalte, sowie in der Erstellung von Fragebögen zur Wohnsituation und Aktivitätsprotokollen. Anschließend wurden die Messgeräte in 20 Haushalten in Leipzig aufgestellt und betrieben.

2.1 Aufbau der Messsysteme und Qualitätssicherung

2.1.1 Aufbau der Messsysteme

Im Unterschied zu normalen Partikelgrößenspektrometern, die vom TROPOS standardmäßig im Labor oder in Messcontainern eingesetzt werden, sind bei diesem Projekt besondere Herausforderungen an die Geräte zu beachten:

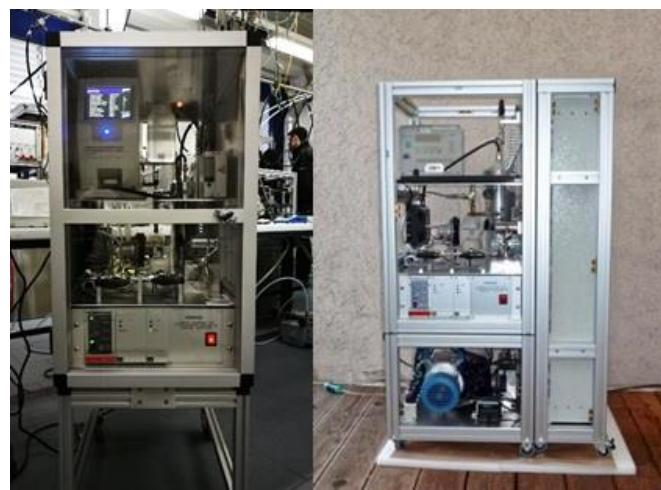
1. Das Gerät für den Innenraum darf die Wohnqualität nicht durch Lärm oder Geruch beeinträchtigen und die Gesundheit der Bewohner*innen nicht durch radioaktive Strahlung gefährden.
2. Das Gerät für den Außenbereich muss über einen größeren Temperaturbereich zuverlässig Ergebnisse liefern.

Die Geräte müssen über mehrere Tage stabil laufen und auch durch Treppenhäuser und in Wohnungen transportabel sein. Für die beschriebenen Messungen werden spezielle MPSS verwendet, die am TROPOS gebaut wurden (Zhao et al., 2018).

Für die Innenmessung wurde ein MPSS gebaut, das die typischen Nachteile wie Butanolgeruch, Strahlung durch eine radioaktive Quelle sowie Lärm ganz ausschließt bzw. auf ein akzeptables Minimum reduziert. Dazu wird ein Kondensationspartikelzähler verwendet, der Wasser statt Butanol verwendet. Weiterhin wird eine Ni-63 radioaktive Quelle mit 95 MBq zur Partikelaufladung benutzt, deren Aktivität unterhalb der Freigrenze liegt. Für den Außenbereich muss das Gerät unter den zu erwartenden Umgebungsbedingungen arbeiten können, d.h. zwischen -10 und +35°C Außentemperatur. Hierfür muss das Innere des Messgerätes klimatisiert werden. Außerdem wird nun ein Aktivkohlefilter am Ende des Auspuffschlauches des Außensystems verwendet, um einen Butanol-Geruch im Außenbereich zu vermeiden. Weiterhin wurde die Außenwände und die Elektronik so verändert, dass sie leichter abnehmbar und ausbaubar sind, um das Tragen zu erleichtern.

Zusätzlich wurde im Innen- und im Außenbereich ein OPSS (Grimm 1.108) eingesetzt, mit dem die Konzentrationen von $PM_{1-2.5}$ und $PM_{2.5-10}$ bestimmt werden. Die PM_1 Massenkonzentration wird aus der submikronen Partikelanzahlgrößenverteilung unter Annahme einer üblichen Partikeldichte berechnet. Im Innenraum-Messsystem wird weiterhin ein CO_2 Sensor sowie ein Mikroaethalometer AE51 (Aethlabs) zur Bestimmung der Massenkonzentration von schwarzem Kohlenstoff betrieben.

Abbildung 1 TROPOS-MPSS für den Innen- und Außenbereich

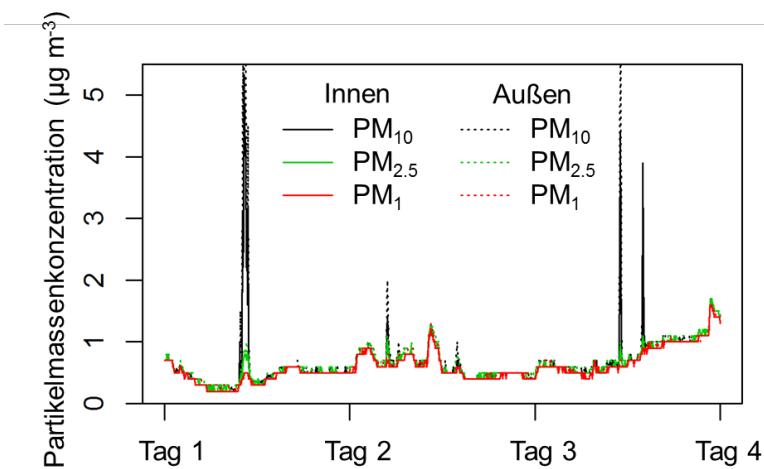


TROPOS-MPSS für den Innenbereich (links) und Außenbereich (rechts). Das Außenmesssystem ist hier beispielhaft ohne Isolierung dargestellt. Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

2.1.2 Qualitätssicherung

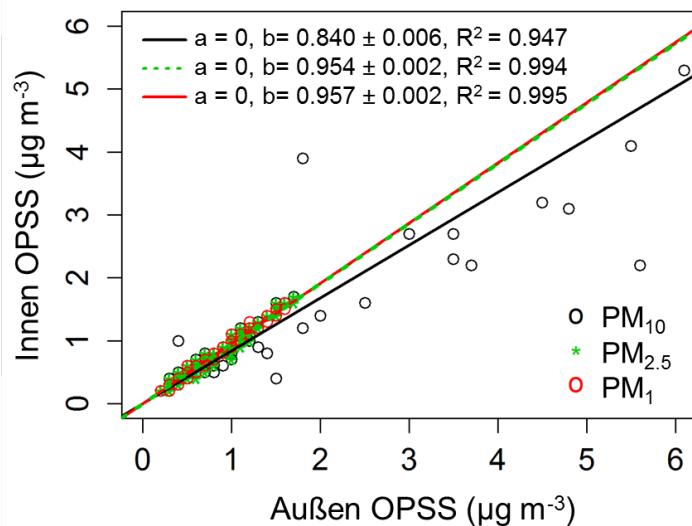
Die Innen- und Außen-OPSS wurden regelmäßig im Labor miteinander verglichen. Beispiele für den Vergleich zweier OPSS (tragbares Laser-Aerosolspektrometer und Staubmessgerät, Grimm Modell 1.108) sind in Abbildung 2 und Abbildung 3 dargestellt. Der Vergleich der OPSS für den Innen- und Außenbereich zeigte maximale Abweichungen im Bereich von $\pm 10\%$. Die R^2 der linearen Regressionen zwischen den Partikelmassenkonzentrationen PM_{10} , den $PM_{2.5}$, und PM_1 der Innen- und Außen-OPSS lagen bei $\geq 95\%$.

Abbildung 2 OPSS: Innen- und Außen-Messungen von PM_{10} , $PM_{2.5}$, und PM_1



Zeitreihen von PM_{10} , $PM_{2.5}$, und PM_1 , gemessen mit optischen Partikelgrößenspektrometern (OPSS) in der Innen- und Außen-Luft. Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

Abbildung 3 OPSS: Korrelation der Innen- und Außen-Messungen von PM₁₀, PM_{2,5}, und PM₁

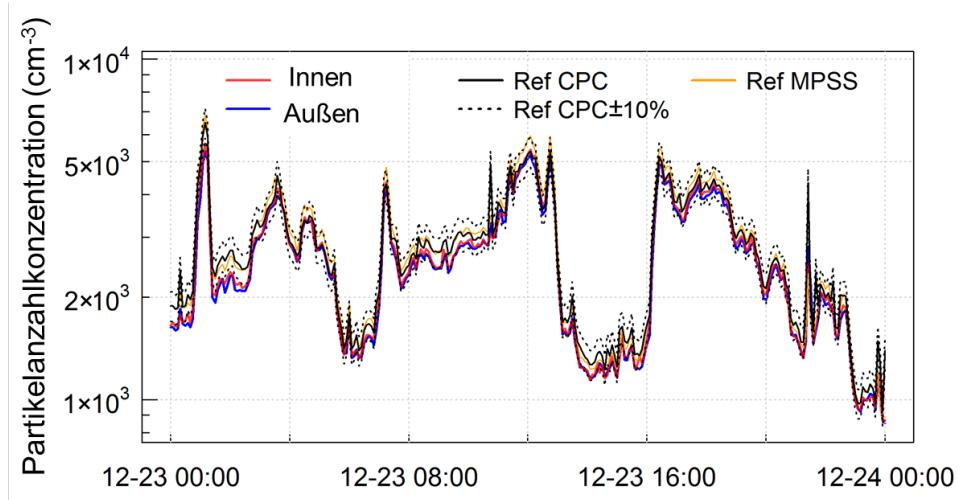


Lineare Regression zwischen den OPSS-Messungen der Massekonzentrationen in der Innen- und Außen-Luft, jeweils für PM₁₀, PM_{2,5}, und PM₁. Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

Die Innen- und Außen-Mobilitäts-Partikelgrößenspektrometer (MPSS) wurden im World Calibration Center for Aerosol Physics (WCCAP) anhand eines Referenz-MPSS kalibriert. Hierbei messen alle Instrumente gleichzeitig über eine Mischkammer die PNSD des Umgebungsaerosols. Zusätzlich wurden die CPCs mit einem Faraday-Cup-Aerosolelektrometer (FCAE) kalibriert. Im Folgenden sind exemplarisch die Ergebnisse der Kalibrierung eines Tages dargestellt.

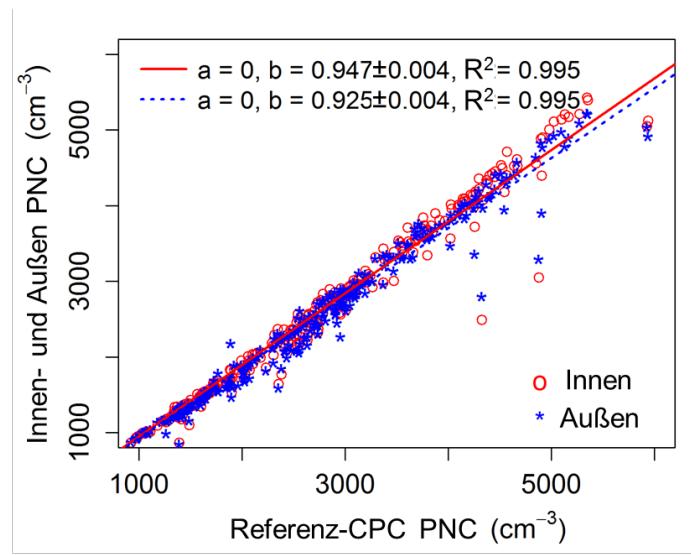
Die Submikrometer-Partikelanzahlkonzentration (N_{FP}, 10–800 nm) und die mittlere Partikelanzahlgrößenverteilung (PNSD, 10–800 nm) von MPSS in Innenräumen und im Freien sollten innerhalb einer Zielunsicherheit (d.h. maximalen Abweichung) von ±10 % im Vergleich zu den Referenz-MPSS und Referenz-CPC liegen (siehe Abbildung 4). Gleichzeitig sollte der NFP von MPSS im Innen- und Außenbereich eine enge lineare Beziehung zur Referenz-CPC aufweisen (R² ≥ 99%, siehe Abbildung 5). Die Kalibrierungsverfahren und Zielunsicherheiten sind bei Wiedensohler et al. (2018) näher beschrieben.

Abbildung 4 MPSS-Kalibrierung: Vergleich N_{FP} (10–800 nm) mit Referenz-MPSS und -CPC



MPSS-Kalibrierung: Die Zeitreihen N_{FP} (10–800 nm) der Innen-, Außen- und Referenz-MPSS sowie der Referenz-CPC. Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

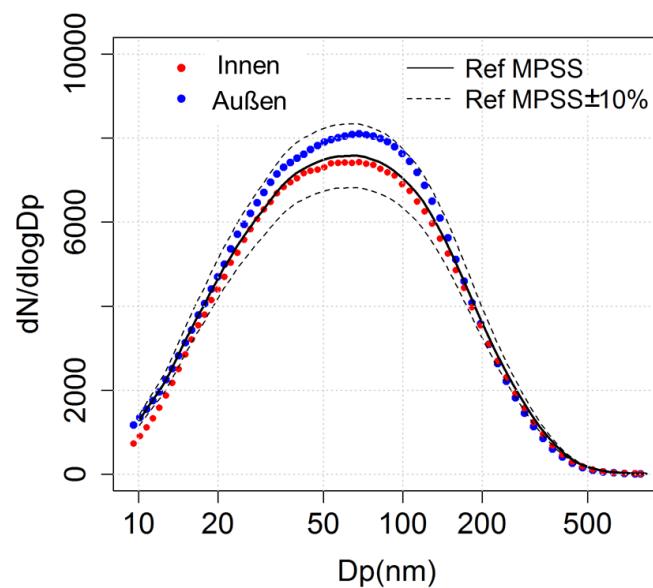
Abbildung 5 MPSS-Kalibrierung: Lineare Regression zum Referenz-CPC



MPSS-Kalibrierung: Lineare Regression der Zeitreihen N_{FP} (10–800 nm) der Innen- und Außen-MPSS mit dem Referenz-CPC.
Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

Die mittleren PNSDs der Innen- und Außen-MPSS lagen innerhalb der Zielunsicherheit von $\pm 10\%$ über einen Größenbereich von 10 nm bis 800 nm gegenüber den Referenz-MPSS (siehe Abbildung 6) Die PNSDs wurden mit der in Pfeifer et al. (2014) beschriebenen Inversionsroutine berechnet und mit der Methode der äquivalenten Länge nach Wiedensohler et al. (2012) um interne Verluste sowie um die größenabhängige Zähleffizienz der Butanol- und Wasser-CPCs korrigiert.

Abbildung 6 MPSS-Kalibrierung: Mittlere PNSD der Innen-, Außen- und Referenz-MPSS



MPSS-Kalibrierung: Die mittlere Partikelanzahlgrößenverteilung (*particle number size distribution*, PNSD) der Innen-, Außen- und Referenz-MPSS. Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

2.2 Rekrutierung der zu untersuchenden Haushalte

Es wurden insgesamt 40 Haushalte in Deutschland (20 in und um Leipzig und 20 in und um Berlin) untersucht. Es wurden Haushalte ausgewählt, die zu gleichen Teilen in ländlichen, vorstädtischen (Stadtrand) und städtischen Gebieten (urbanes Zentrum) liegen.

Zunächst wurden Haushalte in und um Leipzig ausgewählt, um dort ab 2017 mit den Messungen zu beginnen. Voraussetzung dabei waren:

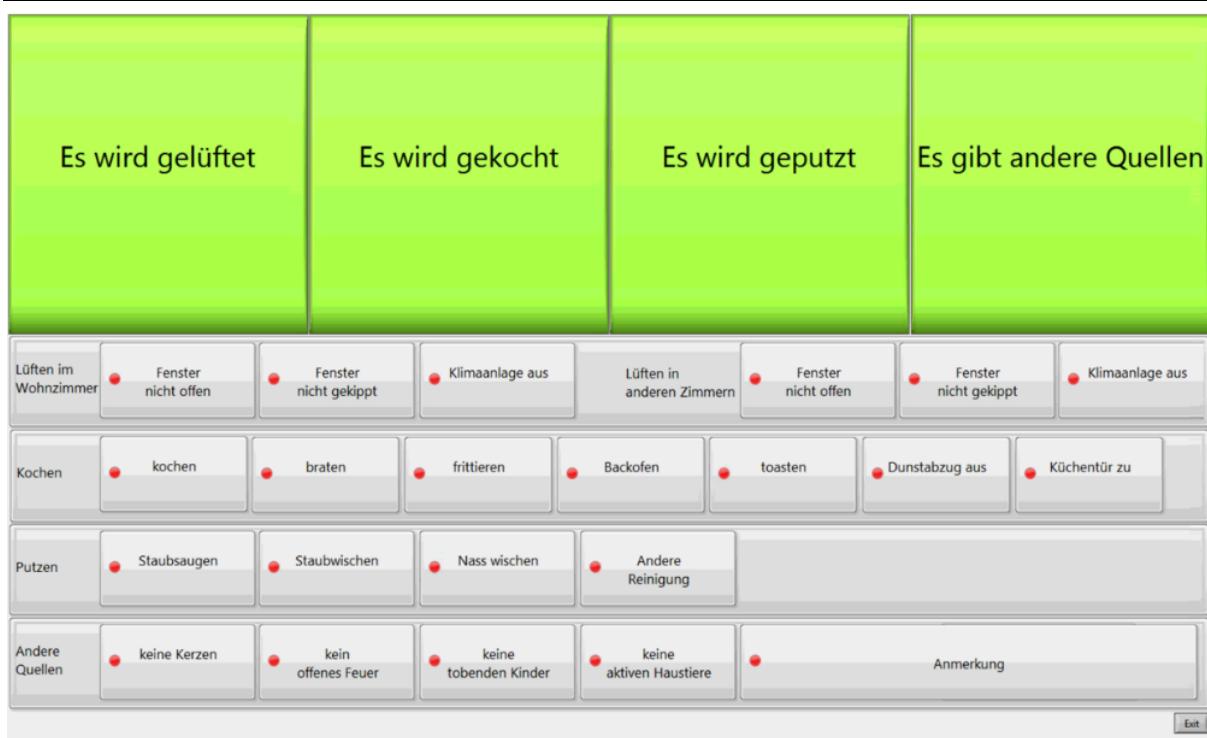
1. Die Möglichkeit einer sicheren Aufstellung eines Messgerätes im Außenbereich (Balkon oder Terrasse).
2. Die Aufstellung des Gerätes im Innenbereich möglichst im Wohnraum und in räumlicher Nähe zum Außengerät.
3. Kein Rauchen im Haus.

2.3 Erstellung der Fragebögen zu Wohnsituation und Innenraumaktivitäten

Um die Lage der Wohnung/des Hauses einzuordnen, wurde ein Fragebogen erstellt. Darin werden neben der Lage des Wohnhauses auch der bauliche Zustand, wie etwa der Zustand der Fenster sowie einige Angaben zu möglichen Innenraumquellen abgefragt. Der vollständige Fragebogen befindet sich im Anhang A. Der Fragebogen wurde von Mitarbeitenden des TROPOS bei der Besichtigung der Wohnung ausgefüllt.

Zur Erfassung der Innenraumaktivitäten während der Messlaufzeit wurde ein bedienungsfreundliches Tabletprogramm erstellt. Mit Hilfe von vordefinierten Schaltflächen für konkrete Aktivitäten (z.B. Lüften, Kochen) mit Unterpunkten (z.B. Braten, Backen), sowie Platz für zusätzliche Kommentare sollen die Bewohner*innen möglichst viele Aktionen dokumentieren, bei denen beispielsweise Partikel entstehen oder aufgewirbelt werden könnten. Alle vermerkten Aktionen und Kommentare werden mit einem Zeitstempel versehen und abgespeichert. Ein Eindruck der auszuwählenden Funktionen wird in Abbildung 7 gegeben.

Abbildung 7 Überblick über die auf dem Tablet auswählbaren Aktivitäten



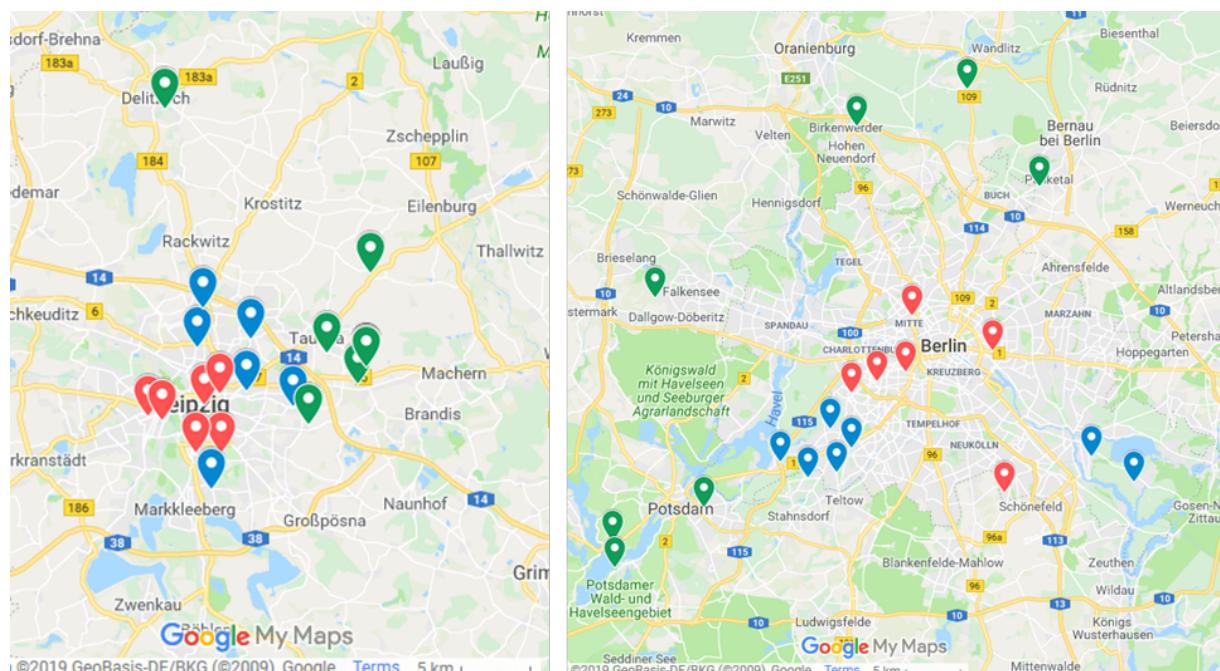
Überblick über die auf dem Tablet auswählbaren Aktivitäten. Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

3 Durchführung der Messungen

Von Mitte Dezember 2016 bis Ende Dezember 2017 wurden zwei Messperioden in 20 Haushalten in und um Leipzig durchgeführt. Ein Haushalt lag in Delitzsch, einige im ländlichen Vorland östlich von Leipzig und der Rest im Leipziger Stadtgebiet. Dabei wurde jeweils von Montag bis Donnerstag oder Donnerstag bis Montag und später in der zweiten Runde von Montag bis Montag in einem Haushalt kontinuierlich gemessen. Von Januar 2018 bis Ende März 2019 wurden die Messungen in Berlin durchgeführt. Hierzu wurden von über 33 freiwilligen Personen in Zusammenarbeit mit dem UBA 20 Haushalte ausgewählt. Dabei wurde jeweils von Montag bis Montag in einem Haushalt kontinuierlich gemessen.

Abbildung 8 rechts zeigt die räumliche Verteilung der Haushalte in Berlin und Umgebung. Für diese Studie wurden die als städtisch, vorstädtisch und ländlich bezeichneten Gebiete anhand der Bevölkerungsdichte definiert. Die Daten zur Bevölkerungsdichte von Leipzig stammen aus dem Leipzig-Informationssystem (LIS), die entsprechenden Bereiche für städtische, vorstädtische und ländliche Gebiete sind $> 3.000 \text{ km}^{-2}$, $800\text{--}3.000 \text{ km}^{-2}$ bzw. $< 800 \text{ km}^{-2}$. Die 20 Wohnungen befanden sich über ganz Leipzig verteilt, wobei sechs Wohnungen im städtischen, sechs Wohnungen im vorstädtischen und acht Wohnungen im ländlichen Raum lagen (siehe Abbildung 8, links). Die Daten zur Bevölkerungsdichte in Berlin stammen von "Statistik-Berlin-Brandenburg", die entsprechenden Bereiche für städtische, vorstädtische und ländliche Gebiete sind $> 3.000 \text{ km}^{-2}$, $1.000\text{--}3.000 \text{ km}^{-2}$ bzw. $< 1.000 \text{ km}^{-2}$. Von den 20 Haushalten in Berlin befanden sich sieben im städtischen, sieben im vorstädtischen und sechs im ländlichen Raum (siehe Abbildung 8, rechts).

Abbildung 8 Lage der Haushalte in und um Leipzig, erste und zweite Messphase



Lage der Haushalte in und um Leipzig, für die erste und zweite Messphase zwischen Dezember 2016 und Dezember 2017.
Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

Abbildung 9 Ansichten der Innen- und Außen-Messgeräte



Ansichten der Innen- und Außen-Messgeräte. Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

In den untersuchten Gebäuden war die Anordnung der Räume nicht einheitlich, es wurde sowohl in Wohnungen mit offenen als auch mit geschlossenen Küchen gemessen. Generell wurde das Innenraum-Gerät im Wohnraum aufgestellt. Parallel dazu wurde an jedem Haushalt ein Messgerät im Außenbereich, also auf dem Balkon, im Hof, im Garten oder auf der Terrasse aufgestellt. Da die Geräte in einem witterfesten, klimatisierten Gehäuse untergebracht waren, war ein sicherer Betrieb im Außenbereich gewährleistet. Beispiele dafür sind in Abbildung 9 zu sehen.

Die Angaben zum Gebäude und zur Wohnung wurden über separate Fragebögen erfasst. Während der Dauer der aktiven Messung konnten die Bewohner*innen die Messungen von Partikeln, Ruß und CO₂ direkt am Bildschirm verfolgen. Nutzungsaktivitäten konnten von den Bewohner*innen im Tablet angegeben und die Effekte direkt in den Daten betrachtet werden.

3.1 Energieverbrauch

Durch den Betrieb der Messgeräte wurde nicht unwesentliche elektrische Energie verbraucht, die den Teilnehmenden an der Studie vergütet werden sollte. Daher wurden während der Messung entsprechende Stromzähler betrieben.

Tabelle 1 Stromverbrauch in den 20 Haushalten in und um Leipzig.

Zeitraum	Mittelwert (KWH/ Haushalt)	Gesamtkosten € (0.3 €/ KWH)
Erste Kampagne	45	268
Zweite Kampagne	64	367

Tabelle 2 Stromverbrauch in den 20 Haushalten in und um Berlin.

Zeitraum	Mittelwert (kWh/ Haushalt)	Gesamtkosten € (0.3 €/ kWh)
Erste Kampagne	45	264
Zweite Kampagne	41	233

3.2 Zusammenfassung des Fragebogens

Tabelle 3 zeigt eine Zusammenfassung der wichtigsten Angaben aus den Fragebögen in den 40 Leipziger und Berliner Haushalten. In jedem Haushalt wurde nach Möglichkeit zweimal gemessen: Die Jahreszeiten und Zeiträume der Messungen sind in Tabelle 3 aufgeführt (Haus L10 nahm an der zweiten Messung nicht teil).

Die Hausnummern L1-L20 beziehen sich auf die 20 Haushalte in Leipzig. Die Hälfte davon befand sich in einem Umkreis von 150 Metern um relativ stark befahrene Straßen, so dass die Auswirkung der im Außenbereich emittierten Verkehrspartikeln beurteilen werden konnten. Die 20 Häuser/ Wohnungen waren alle mit einem Elektroherd ausgestattet. Fünf der Häuser hatten eine offene Küche (d.h. Küche und Wohn-/Esszimmer sind nicht durch Türen oder Wände getrennt). Im Winter wurden alle 20 Haushalte mit einer zentralen Heizungsanlage beheizt. Zusätzlich wurden drei von ihnen auch mit einem geschlossenen Kamin (Holzofen) und drei weitere mit einem zusätzlichen Elektroheizer beheizt. Nur eines der 20 Gebäude war mit einer mechanischen Lüftungsanlage ausgestattet (Haus Nr. L6), die anderen wurden alle natürlich belüftet (d.h. durch offenes Fenster).

Die Hausnummern B1-B20 sind die 20 Haushalte in Berlin. Auch hier befand sich etwa die Hälfte davon in einem Umkreis von 150 Metern um relativ stark befahrene Straßen. Die Haushalte B5, B17 und B18 waren mit Gasherden ausgestattet, alle anderen mit Elektroherden. Die Hälfte der Häuser war mit einer offenen Küche ausgestattet. Im Winter wurden die Wohnungen B13, B14 und B15 mit Fernwärme beheizt, alle anderen 17 Haushalte nutzen eine Zentralheizung mit Ofen in der Wohnung oder im EFH/ZFH. Die Gebäude B11, B16 und B18 waren mit mechanischen Lüftungsanlagen ausgestattet, die anderen wurden alle natürlich belüftet.

Tabelle 3 Kennzeichen der beprobten Messorte und Wohnungen

Haus Nr.	Lage	Einwohner-dichte (km ⁻²)	Entfernung zur nächsten Hauptstr. (m)	Gebäudetyp	Baujahr	Größe (m ²)	Anzahl der Bewohner	Art der Küche
L1	ländlich	530	>150	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	1993	120	2	Getrennt
L2	ländlich	530	>150	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	1998	200	4	Offen

Haus Nr.	Lage	Einwohner-dichte (km ⁻²)	Entfernung zur nächsten Hauptstr. (m)	Gebäudetyp	Baujahr	Größe (m ²)	Anzahl der Bewohner	Art der Küche
L3	ländlich	530	>150	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	1996	170	4	Offen
L4	ländlich	530	>150	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	1998	100	3	Getrennt
L5	ländlich	450	>150	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	1995	220	2	Getrennt
L6	ländlich	58	50-150	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	2009	104	2	Offen
L7	ländlich	464	>150	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	1983	210	2	Getrennt
L8	ländlich	300	>150	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	1991	140	3	Getrennt
L9	Stadtrand	1149	10-50	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	?	40	1	
L10	Stadtrand	872	10-50	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	?	200	4	Getrennt
L11	städtisch	4368	>150	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	1936	120	3	Getrennt
L12	Stadtrand	2960	<10	Blockbebauung (mit Grünflächen)	?	57	2	Getrennt
L13	städtisch	5111	>150	Blockbebauung (mit Grünflächen)	1956	120	5	Getrennt
L14	städtisch	8153	10-50	Blockbebauung (mit Grünflächen)	2006	139	4	Offen
L15	städtisch	14508	50-150	Blockbebauung (mit Grünflächen)	1900	65	1	Getrennt
L16	Stadtrand	816	10-50	Blockbebauung (mit Grünflächen)	1970 (renoviert: 2000)	86	2	Getrennt
L17	Stadtrand	2526	<10	Blockbebauung (mit Grünflächen)	1994	76	1	Offen

Haus Nr.	Lage	Einwohner-dichte (km ⁻²)	Entfernung zur nächsten Hauptstr. (m)	Gebäudetyp	Baujahr	Größe (m ²)	Anzahl der Bewohner	Art der Küche
L18	städtisch	6014	10-50	Blockbebauung (mit Grünflächen)	1920	70	1	Offen
L19	Stadtrand	1111	50-150	Blockbebauung (mit Grünflächen)	1900	81	3	Getrennt
L20	städtisch	4302	10-50	Blockbebauung (mit Grünflächen)	1950	75	3	Getrennt
B1	ländlich	92	>150m	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	1938	52	1	Offen
B2	ländlich	891	50-150m	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	1970	90	6	Offen
B3	ländlich	891	>150m	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	1914	123	3	Offen
B4	ländlich	120	50-150m	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	2013	95	2	Offen
B5	ländlich	120	>150m	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	2002	125	2	Offen
B6	ländlich	115	>150m	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	2008	126	3	Offen
B7	Stadtrand	2800	<10m	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	2002	140	6	Offen
B8	Stadtrand	2800	10-50m	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	1960 - 1970	160	2	Getrennt
B9	Stadtrand	1500	>150m	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	2011	150	4	Offen
B10	Stadtrand	1500	>150m	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	2001	164	2	Getrennt
B11	Stadtrand	2800	>150m	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	1929	100	4	Offen

Haus Nr.	Lage	Einwohner-dichte (km ⁻²)	Entfernung zur nächsten Hauptstr. (m)	Gebäudetyp	Baujahr	Größe (m ²)	Anzahl der Bewohner	Art der Küche
B12	städtisch	7100	>150m	Ein- oder Zweifamilienhaus mit Garten	1965	150	2	Getrennt
B13	Stadtrand	2800	50-150m	Blockbebauung (mit Grünflächen)	~1904	150	5	Getrennt
B14	Stadtrand	2800	>150m	Blockbebauung (mit Grünflächen)	1928	120	2	Offen
B15	städtisch	4800	50-150m	Blockbebauung (mit Grünflächen)	1932	100	4	Getrennt
B16	städtisch	9000	50-150m	Blockbebauung (ohne Grünflächen)	1900	116	4	Getrennt
B17	ländlich	891	50-150m	Blockbebauung (ohne Grünflächen)	~1915	66	2	Getrennt
B18	städtisch	13200	<10m	Blockbebauung (ohne Grünflächen)	1912	124	3	Offen
B19	städtisch	6300	50-150m	Blockbebauung (ohne Grünflächen)	1890	92	1	Offen
B20	städtisch	4800	>150m	Blockbebauung (ohne Grünflächen)	1905	130	4	Getrennt

4 Ergebnisse

4.1 Konzentrationen von PM_{2.5-10}, PM_{1-2.5}, PM₁, FP und UFP im Innen- und Außenbereich

Die Partikelmassenkonzentrationen PM_{2.5-10} und PM_{1-2.5}, PM₁, N_{FP} und UFP-Partikelzahl-Konzentrationen (N_{UFP}) im Außen- und Innenbereich sind für den gesamten Messzeitraum in Abbildung 10 und Tabelle 4 dargestellt. In Tabelle 4 sind PM₁₀ und PM_{2.5}-Daten angegeben, um einen besseren Vergleich mit den Ergebnissen anderer Studien zu ermöglichen. Die Beziehung zwischen Innen- und Außenpartikeln wird sinnvollerweise durch das Verhältnis zwischen Innen- und Außenkonzentrationen (I/O-Verhältnis) quantifiziert. Das I/O-Verhältnis wurde berechnet, indem die Innen-N_{FP} durch die Außen-N_{FP} dividiert wurde. Das mittlere I/O-Verhältnis der verschiedenen Parameter ist in Tabelle 4 aufgeführt.

Der Gesamtmittelwerte an PM₁₀ im Innen- und Außenbereich waren 25 $\mu\text{g m}^{-3}$ und 18 $\mu\text{g m}^{-3}$, also in etwa vergleichbar mit den von Jones et al. (2000) berichteten mittleren Konzentrationen in Birmingham (rund 26 $\mu\text{g m}^{-3}$ im Innenraum und 20 $\mu\text{g m}^{-3}$ im Außenbereich), aber wesentlich niedriger als, von Custódio et al. (2014) für eine Studie in Portugal (rund 71 $\mu\text{g m}^{-3}$ für Innenräume und 54 $\mu\text{g m}^{-3}$ für Außenbereiche) berichtet wurde. Unsere PM_{2.5} Konzentration war vergleichbar mit den Konzentrationen, die in zwei Studien in Schweden von Molnár et al. (2005), (2007) festgestellt wurden (Mittelwerte um 10 $\mu\text{g m}^{-3}$ sowohl für den Innen- als auch den Außenbereich).

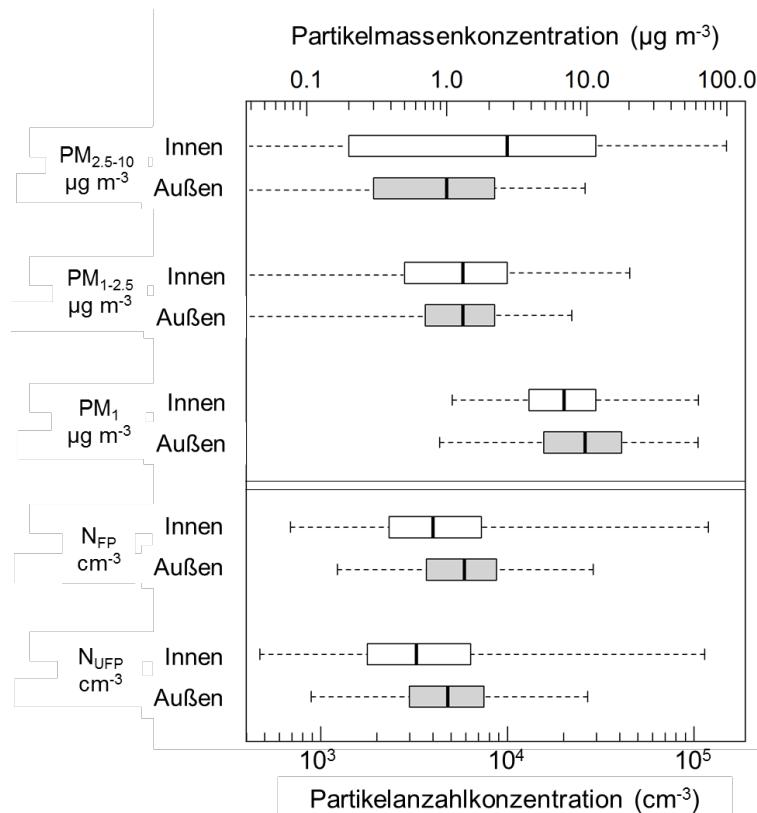
Interessanterweise waren die Medianwerte der PM_{2.5-10} Massenkonzentrationen in Innenräumen deutlich höher als im Freien (3,9 $\mu\text{g m}^{-3}$ bzw. 1,1 $\mu\text{g m}^{-3}$; p-Wert << 0,05). Die PM_{2.5-10} Massekonzentrationen zeigten in 32 von 40 Haushalten ähnliche Trends (siehe Abbildung 11). Die große Bandbreite der PM_{2.5-10} Massenkonzentration in Innenräumen wird durch starke zeitliche Schwankungen verursacht wider. Der Median der PM_{1-2.5} Massenkonzentration in Innenräumen und im Freien und seine Variabilität waren jedoch recht ähnlich (die Medianwerte liegen insgesamt bei 1,4 $\mu\text{g m}^{-3}$ bzw. 1,5 $\mu\text{g m}^{-3}$; p-Wert = 0,053). In Innenräumen war die PM_{1-2.5} Massekonzentration deutlich niedriger als die PM_{2.5-10} Massekonzentration, was auf den geringeren Beitrag von Staubquellen in Innenräumen zu diesem Größenbereich hinweist. Darüber hinaus waren die PM_{1-2.5} Massekonzentrationen in Innenräumen nur in zwölf der Haushalte signifikant höher als die im Freien (siehe Abbildung 11). Darüber hinaus lag der Median des I/O-Verhältnisses der PM_{2.5-10}- und PM_{1-2.5}-Massenkonzentration bei 2,75 bzw. 1, was auf einen starken Beitrag des in Innenräumen aufgewirbelten Hausstaubs hindeutet, der den größten Anteil an der Massenkonzentration hat.

Für Partikel < 1 μm war die mittlere Anzahlkonzentration in Innenräumen (sowohl N_{FP} als auch N_{UFP}) höher als im Freien (siehe Tabelle 4). Dies ist vergleichbar mit den Ergebnissen der Übersichtsstudie von Morawska et al. (2017). Allerdings war der Median der Gesamtanzahlkonzentration im Freien höher als in Innenräumen. Dies ist darauf zurückzuführen, dass Innenraumquellen während bestimmter Phasen einen sehr hohen Beitrag zur Anzahlkonzentration in Innenräumen leisten. Um den häufigsten (typischen) Zustand in diesen Haushalten besser darzustellen, wurde der Median der Innen- und Außenanzahlkonzentration verwendet.

Die Differenz zwischen dem 25. und dem 75. Perzentil der Anzahlkonzentration in Innenräumen war etwa eine Größenordnung höher als im Freien, obwohl dies für PM₁ nicht beobachtet wurde. Dies unterstützt die Hypothese, dass die Anzahlkonzentration ein besserer Indikator für die FP und UFP ist, um zeitliche Schwankungen und Beiträge der verschiedenen Innenraumquellen zu

beobachten, als die Massenkonzentration. Die Innen- und Außen- N_{FP} der einzelnen Wohnungen zeigen in 33 von 40 Wohnungen ähnliche Trends (siehe Abbildung 11). Man kann feststellen, dass der Unterschied zwischen N_{FP} und N_{UFP} in Innenräumen und im Freien sehr gering ist. Der N_{UFP} beträgt im Durchschnitt 83 % des N_{FP} in Innenräumen und 82 % des N_{FP} im Außenbereich. Dies deutet darauf hin, dass UFP den Großteil der Partikelanzahl in Innenräumen und im Freien ausmachen.

Abbildung 10 Gesamtstatistik der Partikelmassen- und Partikelanzahlkonzentrationen



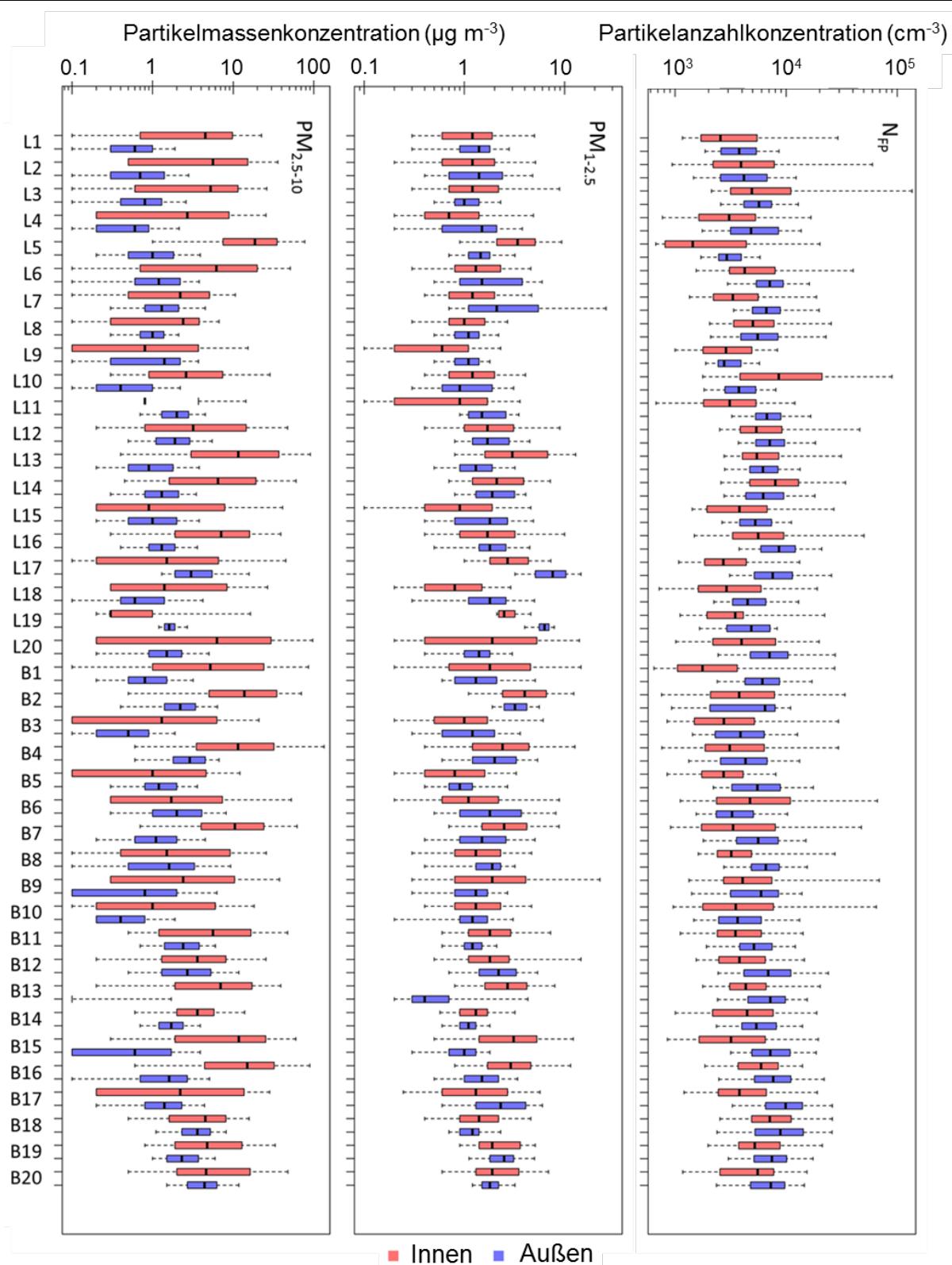
Gesamtstatistik der Partikelmassen- und Partikelanzahlkonzentrationen in Leipzig und Berlin (1., 25., 50. (Median), 75. und 99. Perzentil). Die Gesamtmessdauer betrug 543 Tage. Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

Tabelle 4 Statistik der Partikelkonzentration im Innen- und Außenbereich, Black Carbon (eBC) und CO₂ auf Basis von Stundenmitteln für alle Messungen in Leipzig und Berlin.

Parameter	N a (stündlich)	Mittel	SDev	Mittleres I/O Verhältnis	Perzentile				
					Min	25	Median	75	Max
Innen PM ₁₀ ($\mu\text{g m}^{-3}$)	8969	25.3	41.3	1.0	0.8	8.7	16.1	29.0	1475.0
Außen PM ₁₀ ($\mu\text{g m}^{-3}$)	8510	18.1	16.1		0.8	8.6	13.7	22.3	418.9
Innen PM _{2.5} ($\mu\text{g m}^{-3}$)	8969	13.5	26.6	0.8	0.7	5.5	9.3	14.8	1278.7
Außen PM _{2.5} ($\mu\text{g m}^{-3}$)	8510	16.1	15.1		0.6	7.0	11.5	20.2	418.3
Innen PM ₁ ^b ($\mu\text{g m}^{-3}$)	10564	10.4	28.0	0.7	0.4	3.9	7.0	11.7	2174.8
Außen PM ₁ ^b ($\mu\text{g m}^{-3}$)	11296	13.4	13.1		0.5	5.1	9.8	17.8	415.5
Innen N _{FP} (cm^{-3})	10564	9498	24002	0.7	680	2386	4108	7553	649264
Außen N _{FP} (cm^{-3})	11296	7219	5762		1480	3789	6015	8909	177777
Innen N _{UFP} (cm^{-3})	10564	8634	23326	0.7	506	1823	3378	6654	641983
Außen N _{UFP} (cm^{-3})	11296	6203	5474		1096	3069	4928	7619	176643
Indoor eBC ($\mu\text{g m}^{-3}$)	11622	0.6	0.9	/	0.1	0.2	0.4	0.7	85.4
Innen CO ₂ (ppm)	11024	749	285	/	385	547	671	863	2853

Anmerkungen: ^a Die Messdaten wurden alle fünf Minuten erhoben, die Tabelle hier zeigt die Statistik der durchschnittlichen Konzentration pro Stunde. ^bPM₁-Massenkonzentrationen wurden durch eine integrierte Partikelvolumenkonzentration (bestimmt durch die PNSD) berechnet, die mit Partikeldichte multipliziert wurde. (Annahme 1.6 g cm⁻³) (Pitz et al., 2003).

Abbildung 11 PM_{2.5-10}, PM_{1-2.5} und N_{FP} für jeden Haushalt im Innen- und Außenbereich



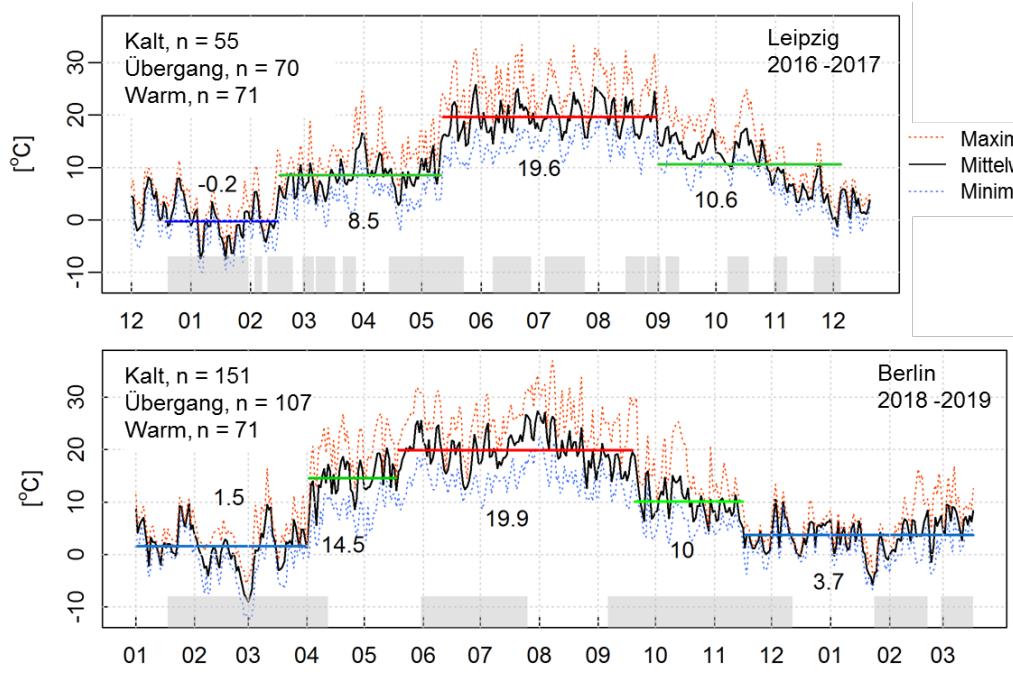
PM_{2.5-10} und PM_{1-2.5}-Massenkonzentrationen und N_{FP} für jeden Haushalt im Innen- und Außenbereich. Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

4.2 Tagesverlauf und jahreszeitliche Schwankungen der Partikelmassen- und Partikelanzahlkonzentrationen

Jahreszeitliche Schwankungen werden oft anhand der im Kalender definierten Jahreszeiten beschrieben. Für diese Arbeit hat man jedoch vorgezogen, die Jahreszeiten anhand der tatsächlichen Verläufe der Wetterdaten, insbesondere der Temperatur einzuteilen. Ein Grund hierfür ist, dass die Außentemperatur stark gebäudephysikalische Vorgänge wie Lüftung und auch die Nutzeraktivitäten (Heizung, Fensterlüftung) beeinflusst. Laut der TROPOS-Wetteraufzeichnung gab es 2016/2017 eine eindeutig kalte Jahreszeit (19. Dezember 2016 - 15. Februar 2017), eine Übergangszeit (15. Februar - 10. Mai 2017) und eine warme Jahreszeit (10. Mai - 01. September 2017). Danach beginnt wieder die Übergangszeit (01. September - 04. Dezember 2017), aber mit leicht höheren Temperaturen im Herbst verglichen mit dem Frühjahr. Die mittleren Temperaturen für die vier Perioden waren: -0,2 °C, 8,5 °C, 19,6 °C und 10,6 °C.

Laut der Wetterstation in Berlin-Dahlem (FU Berlin) gab es 2018/2019 eine eindeutig kalte Jahreszeit (01. Januar - 01. April 2018, und 16. November 2018 – 20. März 2019), eine Übergangszeit (01. April – 18. Mai 2018, und 19. September - 16. November 2018) und eine warme Jahreszeit (18. Mai - 19. September 2018). Die mittleren Temperaturen für die drei Perioden waren entsprechend: 1,5 °C und 3,7 °C, 14,5 °C und 10,0 °C, 19,9 °C.

Abbildung 12 Zeitverlauf der Umgebungstemperatur in Leipzig und Berlin

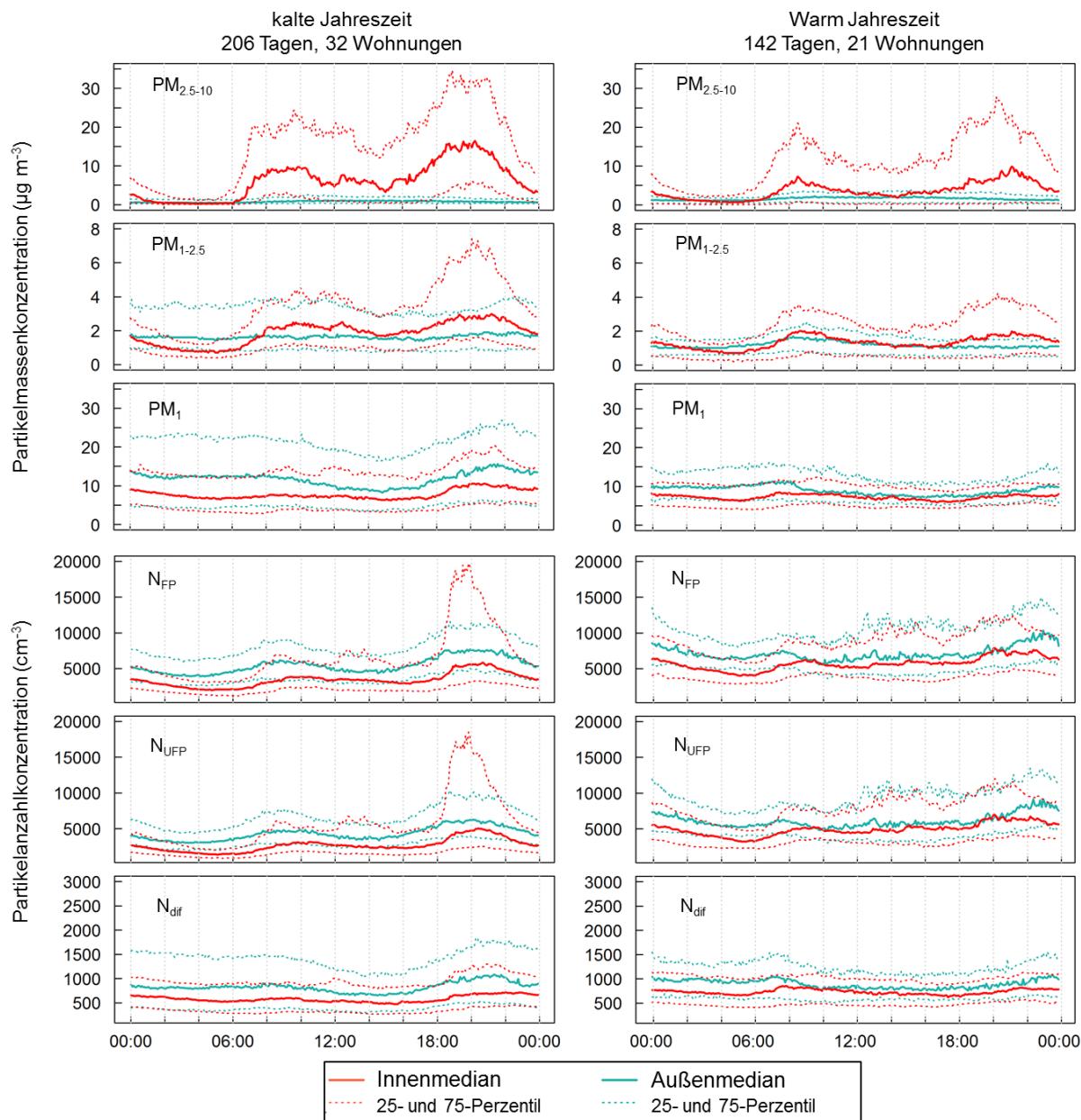


Zeitverlauf der Umgebungstemperatur in Leipzig (von Dezember 2016 bis Dezember 2017) und Berlin (von Januar 2018 bis März 2019). Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

In Abbildung 12 wird die Zeit von 00:00 - 06:00 Uhr als Nachtperiode und 06:00 - 24:00 Uhr als aktive Zeit definiert. Während der Nacht sind Partikelkonzentrationen im Innen- und Außenbereich mit zunehmender Dauer entkoppelt. Während der aktiven Zeit der Bewohner*innen hingegen zeigen die Innenkonzentration starke Spitzen, insbesondere während der typischen Essenszeiten. Zu diesen Zeiten sind die Bewohner*innen zu Hause und durch Kochaktivitäten werden Partikel erzeugt.

Für grobe Partikel (Partikelgrößenbereich 1-10 μm) nimmt die PM-Massenkonzentration in Innenräumen während der Nacht durch Sedimentation schnell ab. Dies ist sogar stärker ausgeprägt im Vergleich zur Außenluft. Sobald es Aktivitäten im Haus gibt, werden die grobe Partikel aufgewirbelt und die Massenkonzentration der groben Partikel steigt entsprechend im Vergleich mit der Außenluft sehr stark an.

Abbildung 13 Statistische Tagesgänge in der kalten und warmen Jahreszeit



Statistische Tagesgänge der Partikel-Massenkonzentration für PM_1 , PM_1 - $\text{PM}_{2.5}$, $\text{PM}_{2.5}$ - PM_{10} und FP und UFP Partikelanzahlkonzentrationen (N_{FP} und N_{UFP}) in der kalten und warmen Jahreszeit. Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

Für feine Partikel ($< 1 \mu\text{m}$) ist die Massenkonzentration in der Außenluft meist höher als im Innenraum. Um die Variation der feinen Partikel zu verstehen, muss die Partikelanzahlkonzentration betrachtet werden. Der 24-Stunden-Median N_{FP} I/O-Verhältnisses liegt im Bereich von 0,4 bis 1. Dies weist darauf hin, dass die Quellen im Freien eine bedeutende Rolle für die Innenraumkonzentration spielen.

In der kalten Jahreszeit zeigt die Innenkonzentration häufigere und stärkere Spitzen als der warmen Jahreszeit. Dies liegt daran, dass die Durchschnittstemperaturen in der kalten und der Übergangsjahreszeit niedriger als 10°C im Mittel sind. In der kalten und Übergangsjahreszeit gibt es weniger Luftaustausch, und die innen erzeugten Partikel können länger erhalten bleiben. In der warmen Jahreszeit sind die Fenster generell häufiger geöffnet und die Durchmischung mit der Außenluft somit wesentlich stärker.

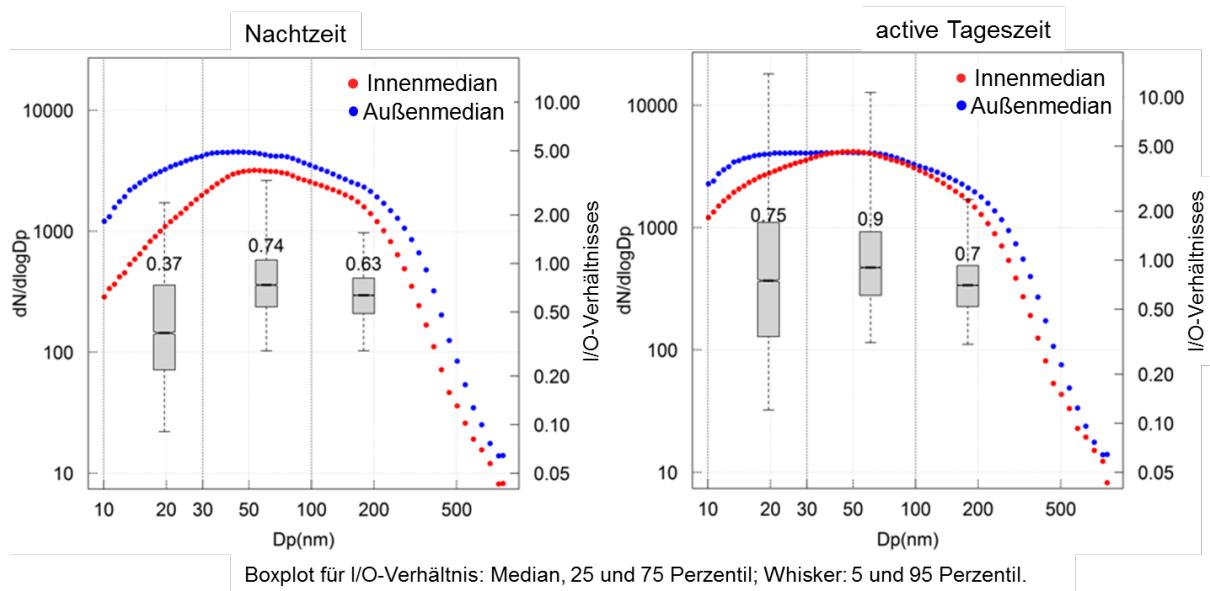
Der 24-Stunden-Median des I/O-Verhältnisses in kalten, warmen und Übergangsjahreszeiten liegt im Bereich von 0,4-1,0, 0,5-1,7 bzw. 0,6-1,0. Man stellt somit fest, dass in der Übergangssaison der Median des I/O-Verhältnisses höher als während der anderen Jahreszeiten ist. Dies könnte daran liegen, dass bestimmte Haushalte während dieser Übergangszeit mehr Innenraum-Aktivitäten haben.

Die Tagesgänge der Übergangsjahreszeiten werden hier nicht separat dargestellt, ihre Charakteristika liegen zwischen denen der kalten und warmen Jahreszeit liegen.

4.2.1 Effekte der Jahreszeit auf die PNSD

Abbildung 14 zeigt den Median der Partikelgrößenverteilung (PNSD) aller Messungen im Bereich von 10–800 nm. Der überlagerte Boxplot stellt den Medianwert und die Schwankungen des I/O-Verhältnisses für 10–30 nm, 30–100 nm und 100–800 nm dar. Die Außenluft-Anzahlkonzentrationen sind während der Nachtzeit und der aktiven Tageszeit für alle Größenbereiche durchaus ähnlich. Während der Nachtzeit ist die Konzentration der Partikelanzahlkonzentration im Innenraum jedoch in allen Größenbereichen niedriger als die der aktiven Tageszeit. Während der aktiven Tageszeit liegt der größte Anstieg der Innenraum-Anzahlkonzentration bei den ultrafeinen Partikeln (10–100 nm). Dies wird durch das I/O-Verhältnis und seine Variation unterstrichen, wobei im ultrafeinen Partikelgrößenbereich das 95-Perzentil des I/O-Verhältnisses über 10 liegt. Das zeigt, dass die Beiträge von Innenraumquellen wesentlich werden und mehr zu ultrafeinen Partikeln als zum Größenbereich 100–800 nm- beitragen. Der Beitrag der Innenraumquellen wird in Kapitel 4.5 weiter diskutiert.

Abbildung 14 Vergleich der Anzahlgrößenverteilung für die Nachtzeit und aktive Tageszeit

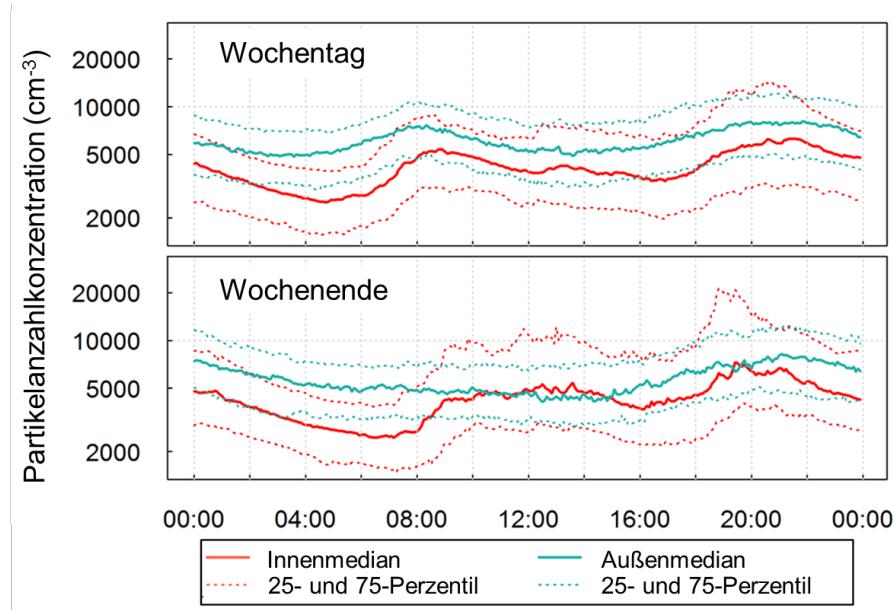


Vergleich der Partikelanzahlgrößenverteilung für die Nachtzeit und aktive Tageszeit. Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

4.2.2 Wochentage und Wochenende

Abbildung 15 zeigt Vergleiche zwischen den Partikelkonzentrationen an Wochentagen und am Wochenende. An Wochentagen zeigt der N_{FP} für den Außenbereich deutliche Spitzenwerte in der Hauptverkehrszeit zwischen 08:00 und 20:00 Uhr. Im Innenraum sind die Konzentrationen am Wochenende höher, da mehr Bewohner*innen zuhause sind und durch Aktivitäten wie Braten, Backen etc. entsprechende Partikel produziert werden. Außerdem liegt die Frühstückszeit am Wochenende etwa 2 Stunden später als an den Wochentagen.

Abbildung 15: Vergleich zwischen Wochentagen und Wochenende für den Tagesgang der N_{FP}



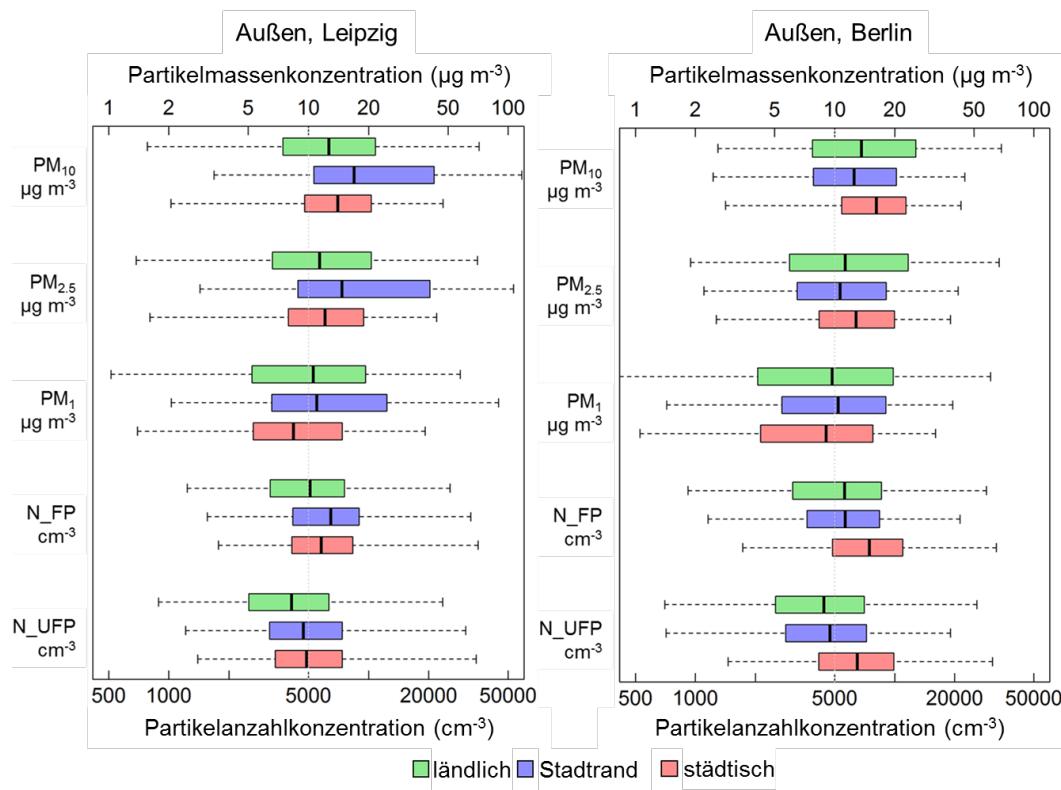
Vergleich zwischen Wochentagen und Wochenende für den Tagesgang der N_{FP} . Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

4.3 Regionale Unterschiede der Außenluftkonzentrationen

Abbildung 16 zeigt die Außen-Partikelmassenkonzentrationen PM_{10} , $PM_{2.5}$ und PM_1 bzw. die feinen und ultrafeinen Partikelanzahlkonzentrationen N_{FP} und N_{UF} in Leipzig und Berlin. Die Mediane der PM_{10} und $PM_{2.5}$ Massenkonzentrationen sind im ländlichen Raum niedriger (11 % und 6 % für Leipzig bzw. 19 % und 13 % für Berlin) als im städtischen Raum. Bei Submikrometerpartikeln sind die mittleren Massenkonzentrationen (PM_1) im städtischen Gebiet niedriger (20 % für Leipzig bzw. 7 % für Berlin) als im ländlichen Gebiet, während die entsprechenden mittleren Anzahlkonzentrationen (N_{FP}) im städtischen Gebiet höher sind (14 % für Leipzig bzw. 34 % für Berlin) als im ländlichen Gebiet. Dies liegt daran, dass die Anteile von N_{UF}/N_{FP} im städtischen Gebiet (85 % für Leipzig bzw. 87 % für Berlin) höher sind als im ländlichen Gebiet (81 % für Leipzig bzw. 79 % für Berlin).

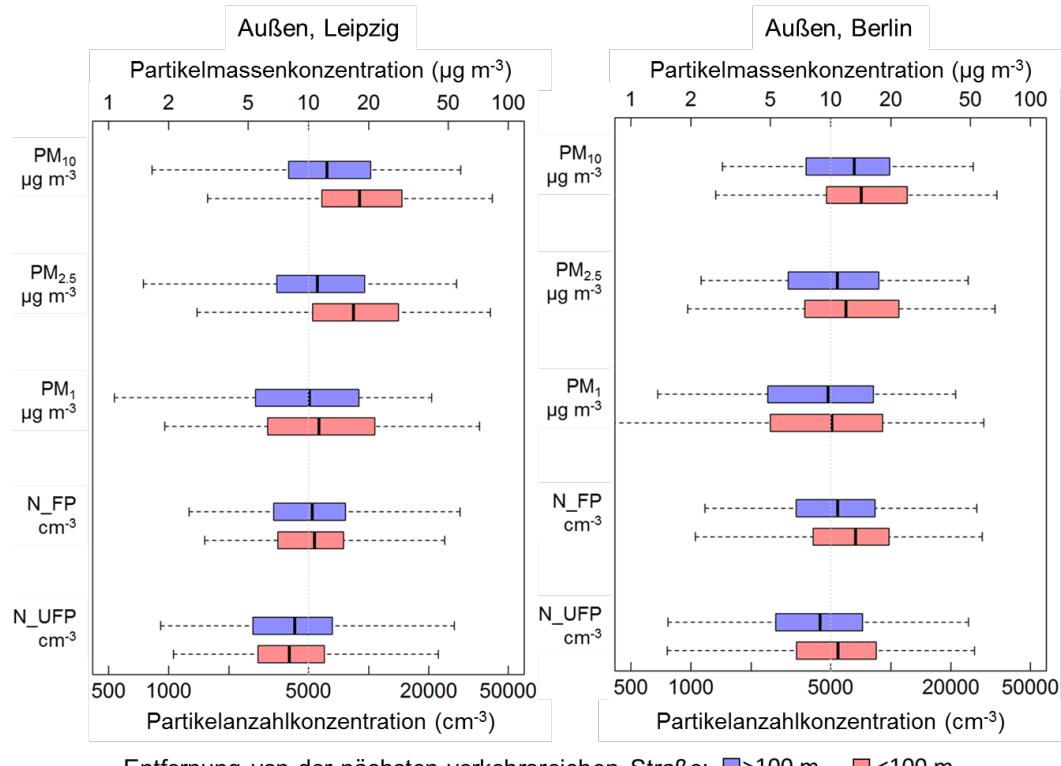
Abbildung 17 zeigt die Außenluft-Partikelkonzentrationen bei den Haushalten, die relativ nah oder weit von der nächsten verkehrsreichen Straße entfernt sind. Neun Haushalte sind >100 m und elf Haushalte <100 m von der nächsten verkehrsreichen Straße in Leipzig entfernt, zehn Haushalte sind >100 m und weitere zehn Haushalte <100 m von der nächsten verkehrsreichen Straße in Berlin entfernt. Wie erwartet sind die Außenpartikelkonzentrationen in der Nähe der Straße höher.

Abbildung 16 Auswirkung von Standorttyp auf die Partikelanzahlkonzentration (außen)



Auswirkung von Standorttyp auf die Partikelanzahlkonzentration N_{FP} (außen). Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

Abbildung 17: Auswirkung der Entfernung zu Straßen auf die Partikelanzahlkonzentration (außen)



Auswirkung der Entfernung zu verkehrsreichen Straßen auf die N_{FP} (außen). Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

4.4 Dynamische Prozesse an Partikeln im Innenraum

In diesem Abschnitt wird beschrieben, inwieweit aus den in diesem Projekt bereitgestellten Messdaten Rückschlüsse auf dynamische Prozesse an den Partikeln im Innenraum gezogen werden können. Dies dient dem besseren Verständnis der Ergebnisse und öffnet Möglichkeiten, Partikelbelastungen im Innenraum durch gezieltes Handeln zu beeinflussen.

In Abwesenheit von Innenraumquellen wird das Innenraum-zu-Außenluft (I/O)-Verhältnis von feinen Aerosolpartikeln hauptsächlich durch drei Faktoren bestimmt: die Luftwechselrate, Eintrag von Außenluftpartikeln (Infiltration und Exfiltration) sowie die Depositionsraten von Partikeln auf Innenflächen. Angenommen, die Innenluft ist gut durchmischt und eine bestimmte Partikelgrößenfraktion hat innen und außen vergleichbare chemisch-physikalische Eigenschaften, kann die Bilanzgleichung der Partikelanzahlkonzentration das dynamische Verhalten von Innenraum-Aerosolpartikeln beschreiben. Dies kann mathematisch in folgender Form beschrieben werden:

$$\frac{dI}{dt} = \frac{E}{V} + P\lambda O - (\lambda + \lambda_d)I - J_{coagulation} \quad (1)$$

Dabei sind I und O die jeweiligen Partikelanzahlkonzentrationen im Innen- und Außenbereich und P der Penetrationsfaktor. Partikel werden von der Außenluft in die Wohnung transportiert und gelangen in den Messraum (Wohnzimmer). Ein Penetrationsfaktor im Bereich von 0 bis 1 repräsentiert hierbei die Wirksamkeit dieses Transports. λ beschreibt die Luftwechselrate und λ_d ist die Ablagerungsrate auf verfügbare Innenflächen. Der Gleichung hinzugefügt wurde die Emissionsrate E der Aerosolpartikel, die in Innenräumen erzeugt oder emittiert werden, normiert durch das Raumvolumen V. $J_{coagulation}$ ist der Term des Koagulationsverlustes.

Unter stationären Bedingungen (Die Änderungsrate der Innenaerosolkonzentration ist in Abwesenheit einer Innenquelle Null) ergibt sich P aus Gl. (1) zu:

$$P = \frac{(\lambda + \lambda_d)}{\lambda} \frac{I}{O} \quad (2)$$

4.4.1 Luftwechselrate

Unter der Annahme, dass die Innenluft gut durchmischt ist, kann die Luftwechselrate auf Grundlage der zeitlichen Verläufe der Kohlendioxid-(CO₂)-Konzentrationen im Innen- und Außenbereich berechnet werden. Voraussetzung ist, dass zu einem Zeitpunkt aufgrund menschlicher Aktivität genug CO₂ vorhanden ist, dann aber für eine bestimmte Zeit kein weiteres CO₂ mehr ausgeatmet wird. Die Luftwechselrate wird durch Auswertung des näherungsweise exponentiellen Abfalls der CO₂-Konzentration mittels folgender Gleichung bestimmt:

$$\lambda = \frac{1}{(t - t_0)} \ln \left(\frac{C_0 - C_{out}}{C - C_{out}} \right) \quad (3)$$

Hierbei gehen wir davon aus, dass die CO₂-Konzentration im Freien konstant bei 400 ppb liegt, was der ungefähren momentanen Hintergrundkonzentration in der Außenluft entspricht.

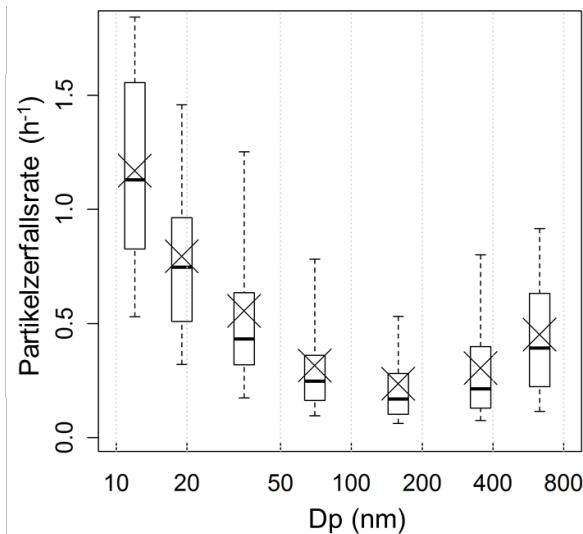
Die Luftwechselraten der 40 Haushalte in Leipzig und Berlin betrug im Mittel $0,2 \pm 0,2 \text{ h}^{-1}$ bzw. $3,7 \pm 2,8 \text{ h}^{-1}$ bei geschlossenen bzw. geöffneten Fenstern.

4.4.2 Partikelverlustraten im Innenraum

Im Allgemeinen erfolgt die Beseitigung von Innenraum-Aerosolpartikeln über den Luftwechsel mit außen oder die trockene Deposition auf Innenraumflächen. Die Verlustrate ($\lambda + \lambda_d$) von Innenraum-Aerosolpartikeln kann analog zu radioaktiven Zerfallsraten quantifiziert werden, indem der Abfall der Innenraum-Partikelkonzentration direkt nach Emissionsereignissen einer Innenraumaktivität ausgewertet wird. Der Logarithmus der Konzentrationen über die Zeit folgt einer Linie mit einer negativen Steigung. Die Steigung entspricht der Partikelzerfallsrate. Für die einfache Rechnung ist zu beachten, dass die ausgewählten Innenraum-Aktivitäten eine anfängliche Gesamt- N_{FP} von weniger als 10^4 cm^{-3} aufweisen. Nur in diesem Fall kann Koagulation der Partikel als zusätzlicher Prozess vernachlässigt werden.

Die grösenaufgelöste Partikelverlustrate (oder „Partikelzerfallsrate“) in den 40 Haushalten in Leipzig und Berlin ist in Abbildung 18 dargestellt, wobei der Boxplot den Median, das untere Quartil und das obere Quartil zeigt und die Antennen die 5. und 95. Perzentile darstellen. Wie aus bisherigen Erfahrungen aerosoldynamischer Studien erwartet werden konnte, liegt die geringste Partikelverlustrate bei etwa 300 nm Partikelgröße und die grösste Partikelverlustrate bei ungefähr 10 nm Partikelgröße. Man erkennt, dass Innenräume ähnlich eines physikalischen Filters agieren, wo Partikelverluste im grösseren Partikelbereich durch Sedimentation und Impaktion sowie im kleineren Partikelgrößenbereich durch Diffusion verursacht werden.

Abbildung 18 Grösenaufgelöste Partikelverlustrate im Innenraum (h^{-1})



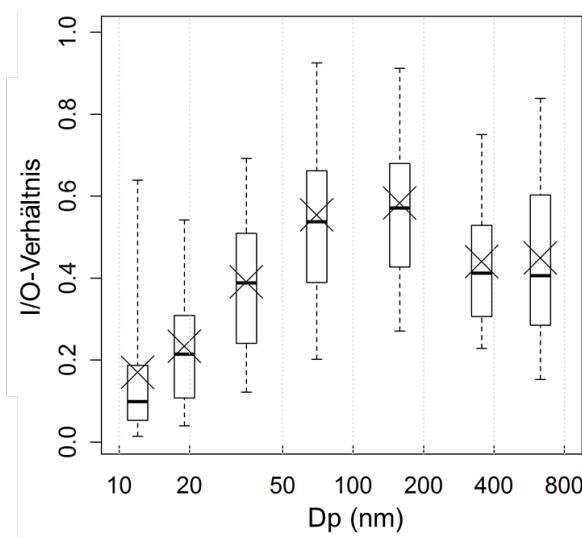
Grösenaufgelöste Partikelverlustrate im Innenraum (h^{-1}). Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

4.4.3 I/O-Verhältnis im quasi-stationären Zustand

Einige Zeit nachdem Partikelquellen in den Innenräumen abgeschaltet sind, wird die Partikelkonzentration im Innenraum einen Zustand erreichen, bei dem die N_{FP} über eine bestimmte Zeit fast unverändert bleibt (quasi-stationären Zustand). Solche quasi-stationären Zustände wurden durch Betrachtung der zeitlichen Änderungsrate dI/dt der Konzentration im Innenraum herausgefiltert. Mit einer dI/dt -Schwelle zwischen -0,1 bis 0,1 und der stationären Zeit, die länger als 1 Stunde sein sollte, kann das I/O-Verhältnis im stationären Zustand berechnet werden. Die Ergebnisse sind in Abbildung 19 dargestellt.

Unter diesen Bedingungen weist das I/O-Verhältnis ein Maximum bei ungefähr 200 nm und ein Minimum bei ungefähr 10 nm auf. Dies kann durch die in Abschnitt 4.4.2 ermittelten größenabhängigen Innenraum-Partikelverlustraten erklärt werden.

Abbildung 19 Größenaufgelöstes I/O-Verhältnis im quasi-stationären Zustand

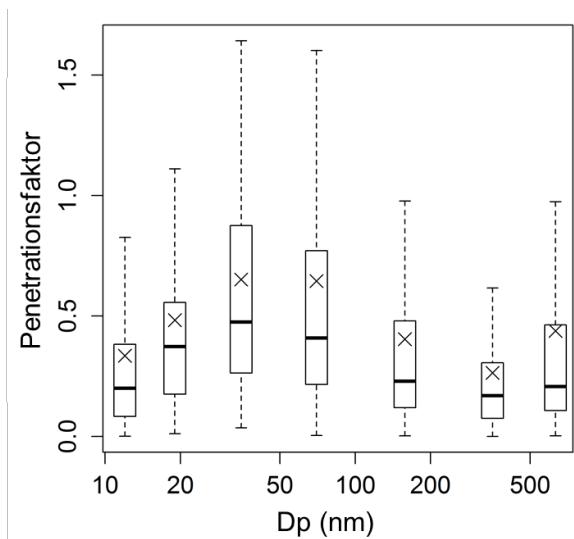


Größenaufgelöstes I/O-Verhältnis im quasi-stationären Zustand. Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

4.4.4 Penetrationsfaktor

Der Penetrationsfaktor P , der die Durchdringung der Gebäudehülle als Funktion des Partikeldurchmessers beschreibt, kann für quasi-stationäre Zustände durch Gl. (2) bestimmt werden. Die Ergebnisse für alle ausgewerteten quasi-stationären Zustände sind in Abbildung 20 gezeigt. Partikel aller Größen (10 - 800 nm) gehen infolge des Transports durch die Gebäudehülle verloren. Der stärkste Verlust wird bei 10 nm beobachtet (P erreicht hier den Minimalwert 0,3), der geringste Verlust bei 150 nm (P erreicht hier den Maximalwert 0,6). Dieses Ergebnis hat eine zentrale Bedeutung für die Einschätzung der Filterwirkung der Gebäude: Während gröbere und sehr kleine Partikel bei der Durchdringung der Gebäudehülle verloren gehen, können Partikel im Bereich 20-100 nm am unbeschadetsten aus der Außenluft in den Innenraum gelangen. Interessanterweise ist dies der Bereich ultrafeiner Partikel (UFP), die in der Außenluft vornehmlich aus Verbrennungsaerosolen (Quellen: Verkehrs, Industrie, Hausbrand) und Partikelneubildung entstehen.

Abbildung 20 Größenaufgelöster Penetrationsfaktor



Größenaufgelöster Penetrationsfaktor. Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

4.5 Einfluss von Partikelquellen im Innenraum

4.5.1 Überblick über die Aktivitäten in Innenräumen

Während des zweijährigen Messprogramms wurden mehr als 1100 Aktivitäten der Bewohner*innen ermittelt. Rund 900 davon konnten anhand der von den Bewohner*innen im Tablet-Computer gemachten Angaben klassifiziert werden (siehe Tabelle 5). Zu den häufigsten Einzeltätigkeiten gehörten das Öffnen der Fenster, Backen, Braten, Toasten, sonstiges Kochen (z. B. Kochen, Aufwärmen von Speisen, Schmoren), Abbrennen von Kerzen, Nutzung des Kamins und Staubsaugen. Unter realen Bedingungen üben die Bewohner*innen oft mehrere Tätigkeiten gleichzeitig aus, z. B. öffnen sie die Fenster beim Kochen. Solche Fälle werden als "gemischte" Quellen kategorisiert. Einige Tätigkeiten, die nicht häufig vorkommen (z. B. spielende Kinder, Bügeln, Wäsche waschen und Wischen) wurden unter "Sonstige" zusammengefasst. Signifikante Spitzen in den Zeitreihen der N_{FP} in Innenräumen, die keinen entsprechenden Eintrag im Aktivitätsprotokoll hatten, wurden als "unbekannt" kategorisiert. In Tabelle 5 sind die Anzahl (n), die mittlere Dauer, die geometrischen mittleren Durchmesser (GMD) und die mittlere N_{FP} der Hauptaktivitäten zusammengefasst.

Tabelle 5 Zusammenfassung der wichtigsten Nutzeraktivitäten

GMD beschreibt den mittleren geometrischen Durchschnittsdurchmesser des PNSD, der zur Spitzenzzeit des Ereignisses beobachtet wurde. PNC: Partikelanzahlkonzentration.

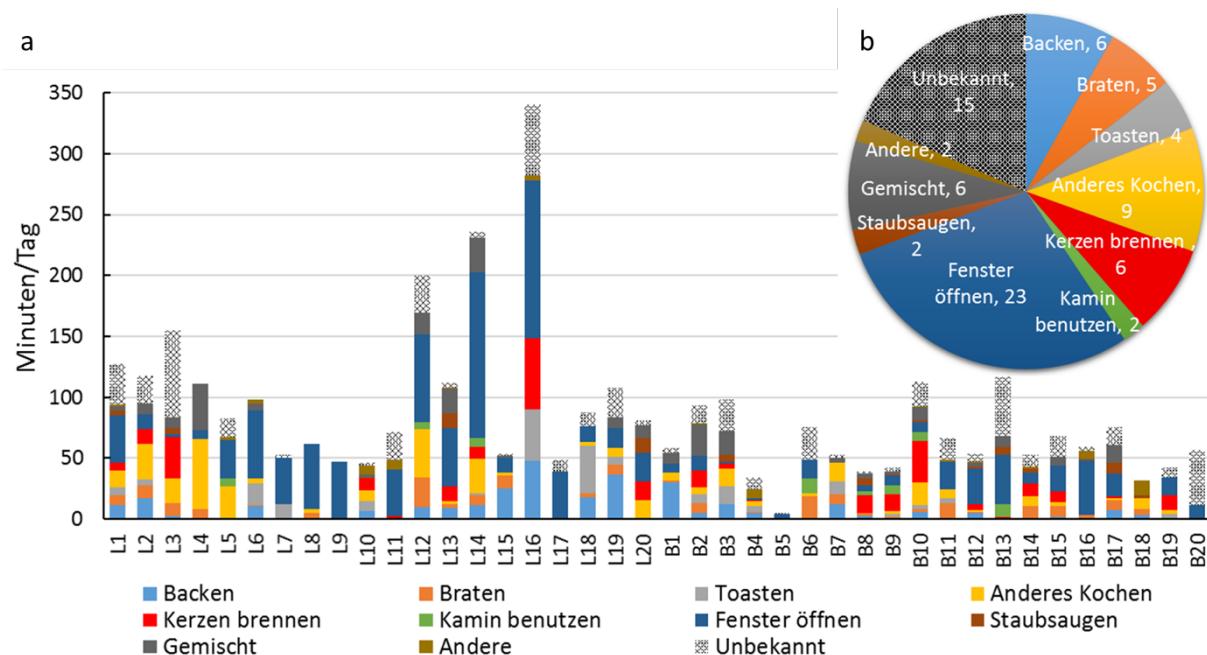
Hauptaktivitäten	n	Mittelwert Dauer [†] (min)	Mittelwert GMD (nm)	Mittelwert PNC (cm ⁻³)
Fenster öffnen	339	38	34	9361
Backen	81	40	30	60758
Braten	91	25	33	34188
Toasten	56	33	25	19623
Anderes Kochen	117	36	31	12805
Kerzen abbrennen	92	33	20	109729
Kaminofen benutzen	27	30	41	23702
Staubsaugen	28	27	26	11437
Gemischt	78	42	27	31821
Andere	33	25	34	10447
Unbekannt	208	26	29	26559

Anmerkung: [†] Die Dauer ist hier die Zeit vom Beginn jedes Quellenereignisses bis zu dem Zeitpunkt, an dem der PNC in Innenräumen das Maximum erreicht.

Die Art und Dauer der Aktivitäten in Innenräumen variierte stark zwischen den verschiedenen Beprobungen in den Haushalten. Die Gesamtdauer der Aktivitäten in Innenräumen reichte von weniger als 5 Minuten/Tag bis zu fast 6 Stunden/Tag (siehe Abbildung 21). Die durchschnittliche Dauer der Aktivitäten, ohne das Öffnen der Fenster, betrug in jedem Haushalt 60 ± 40 Minuten/Tag. Das Öffnen der Fenster und das Kochen waren die am häufigsten ausgeübten Tätigkeiten (31 % bzw. 30 % der gesamten Aktivitätsdauer). Die meisten "Fenster-Öffnungs-Aktivitäten" fanden am Morgen statt, mit dem Höhepunkt gegen 07:00 Uhr. Die

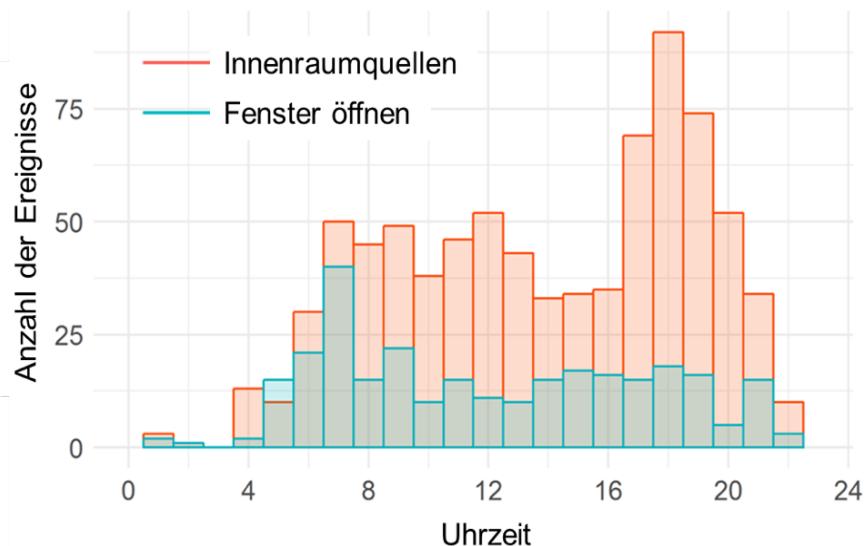
Innenraumquellen traten häufig gegen 08:00, 12:00 und 18:00 Uhr auf, also zu den typischen Zeiten für Frühstück, Mittag- und Abendessen (siehe Abbildung 22).

Abbildung 21 Mittlere Dauer der nutzerbedingten Innenraumaktivitäten



Mittlere Dauer der nutzerbedingten Innenraumaktivitäten: a) differenziert nach Haushalten (min/Tag) und b) mittlere Gesamtdauer (min/Tag) für den gesamten Datensatz (~500 Tage). Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

Abbildung 22 Verteilung der nutzerbedingten Aktivitäten als Funktion der Startzeit



Verteilung der nutzerbedingten Aktivitäten als Funktion der Startzeit. Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

4.5.2 PNSD und PMSD der wichtigsten Quellen in Innenräumen

Abbildung 23 zeigt die Zuwächse der mittleren Partikelanzahlgrößenverteilungen (PNSD) und Partikelmassengrößenverteilungen (PMSD), die durch bestimmte Innenraumquellen bzw. geöffnete Fenster verursacht wird - ermittelt durch Subtraktion der Hintergrundwerte (d. h. PNSD vor Beginn der Aktivität) von den Werten zur Spitzenezeit.

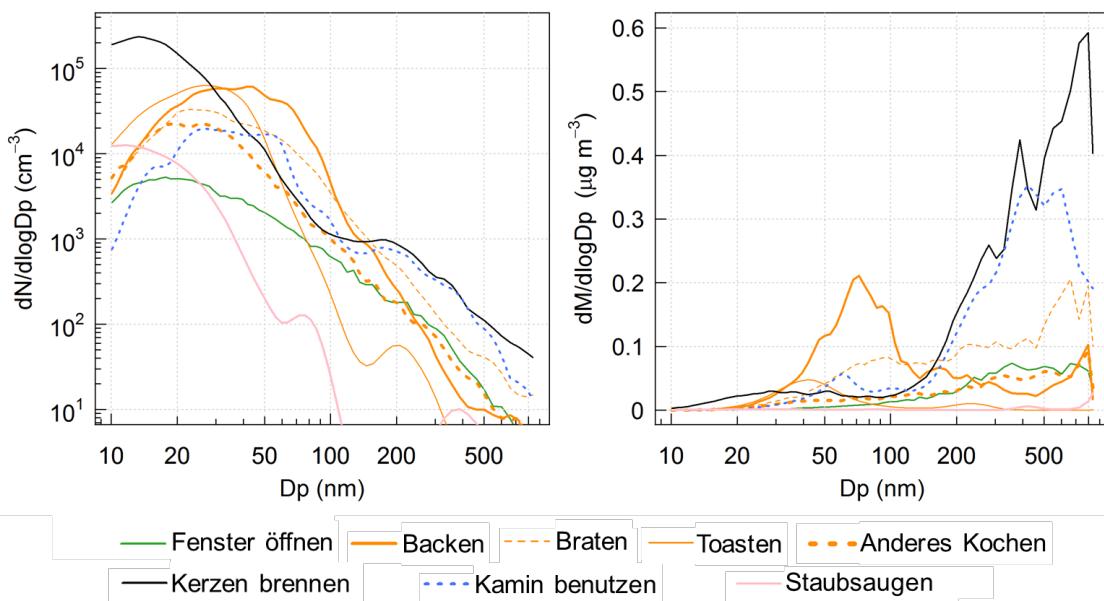
Wie schon in Abschnitt 4.2 dargelegt, trugen Aktivitäten in Innenräumen erheblich zur Partikelanzahl bei, und der Beitrag zur UFP war im Vergleich zu Partikeln im Akkumulationsmodus deutlich höher (siehe PNSD-Diagramm in Abbildung 23). Unter den Aktivitäten in Innenräumen waren die Beiträge von Backen, Toasten und Kerzenbrennen deutlich höher als die der anderen Aktivitäten. Die medianen Partikelanzahlkonzentrationen (PNC) durch Backen, Toasten und Kerzenbrennen waren zu Spitzeneiten 29-, 13- bzw. 31-mal so hoch wie die entsprechenden Hintergrund-PNCs, und die medianen PNCs von Braten, sonstigem Kochen, Kaminbenutzung und Staubsaugen waren zu Spitzeneiten alle weniger als 10-mal so hoch wie die entsprechenden Hintergrund-PNCs. Dieser starke Anstieg der Innenraumquellen beweist, dass Innenraumquellen die Hauptverantwortlichen für die Spitzene倅e des PNC in Innenräumen im Tageszyklus sind. Durch das Öffnen der Fenster stieg der PNC-Wert in Innenräumen aufgrund des höheren PNC-Wertes im Freien ebenfalls an, aber der entsprechende Beitrag zum PNC-Wert war im Vergleich zu den meisten Innenraumquellen viel geringer.

Die höchsten Beiträge zur Partikelanzahl durch Backen, Braten, Toasten, Kochen und die Nutzung eines Kamins entfielen auf Partikel im Größenbereich von 20 bis 50 nm. Das Abbrennen von Kerzen trug zu Partikeln im gesamten Größenbereich bei, wobei das Maximum im Durchmesserbereich von 10-20 nm lag. Die Emissionen aus dem Staubsaugen waren im Vergleich zu den anderen Innenraumquellen viel schwächer, mit einem Maximum im Bereich von 10 nm. Die mittleren PNCs der einzelnen Innenraumquellen sind in Tabelle 5 aufgeführt. Die PNSD, die mit jeder Quellenaktivität verbunden ist, zeigte einen breiten Partikelmodus, dessen mittlere GMD für jede Aktivität in Tabelle 5 zusammengefasst ist.

Aufgrund der geringen Größe der UFP war der Anstieg der PMC durch Innenraumquellen nicht so ausgeprägt wie bei PNC. Die Beiträge zur Partikelmassenkonzentration (PMC) durch Backen, Braten, Kerzen und interessanterweise auch durch die Nutzung von Kaminen waren viel höher als bei den anderen Aktivitäten. Die mittleren PMC-Werte dieser Tätigkeiten waren zu Spitzeneiten zwei- bis viermal so hoch wie die entsprechenden Hintergrund-PMC-Werte, und die mittleren PMC-Werte der anderen Tätigkeiten waren zu Spitzeneiten alle weniger als zweimal so hoch wie die entsprechenden Hintergrund-PMC-Werte.

Von allen Tätigkeiten in Innenräumen trug das Abbrennen von Kerzen am stärksten zu PNC und PMC bei. Kochen in Innenräumen trug ebenfalls stark zum PNC bei, der Beitrag zum PMC war jedoch weniger signifikant. Im Gegensatz dazu trug die Nutzung von Kaminen stark zu PMC, aber nicht zu PNC bei. In den folgenden Kapiteln werden diese Daten zur Quantifizierung der Intensität und Dauer jeder Quelle verwendet, um den entsprechenden Beitrag zur Partikelexposition in Innenraumbereichen zu bestimmen.

Abbildung 23 Mittlere PNSD- und PMSD-Erhöhungen infolge von Ereignissen in Innenräumen



Mittlere PNSD- (links) und PMSD- (rechts) Erhöhungen infolge von Ereignissen in Innenräumen. Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

4.5.3 Raumluftsimulation und Emissionsrate von Innenraumquellen

Es wird erwartet, dass die Schätzungen der Partikelemissionsraten und des Gebäudedurchdringungsfaktors (Penetrationsfaktor P) genauer sind, wenn alle Terme in Gleichung (1) berücksichtigt werden. Die Emissionsrate der Innenraumquellen wurde nun auf der Grundlage der Ein-Kompartiment-Form des Innenraum-Aerosolmodells (IAM) geschätzt, das von (Hussein et al., 2005b, 2015) entwickelt wurde und die Belüftung, die Partikelinfiltation und -penetration von außen sowie die Ablagerung und Koagulation in Innenräumen berücksichtigt. Bei diesem Ansatz werden IAM-Simulationen mit experimentellen Zeitreihen von Innen- und Außenaerosolparametern kombiniert, was sich als wirksame Methode zur Schätzung der Partikelzahl erwiesen hat (Hussein et al., 2015).

Das Modell verwendet die in der Außenluft gemessene Partikelanzahlkonzentration N_{FP} und den geometrischen mittleren Durchmesser (GMD) des experimentellen PNSD in Innenräumen als zeitabhängige Eingangsparameter. Der GMD in Innenräumen ist der wesentliche Parameter, der die von der Partikelgröße abhängige Aerosoldynamik steuert. Daraus errechnet das Modell den zeitabhängigen Partikeldepositionscoefficienten λ_d und den Koagulationscoefficienten K ($\text{cm}^3 \text{ s}^{-1}$). Die Luftwechselrate λ und der Penetrationsfaktor P der Gebäudehülle dienen als zusätzliche Eingabeparameter, die in einem interaktiven Prozess optimiert werden. Unser Ansatz behält die Informationen über die Entwicklung der PNSD bei und stellt gleichzeitig ein Zugeständnis an die Reduzierung der Komplexität der numerischen Verfahren und der Berechnungszeiten dar.

In dieser Version des IAM wurde die Partikeldepositionsrate λ_d wie folgt berechnet:

$$\lambda_d = \sum_i \frac{A_i}{V} v_{d,i} \quad (4)$$

Dabei ist $v_{d,i}$ ist (m s^{-1}) die Depositionsgeschwindigkeit von Aerosolpartikeln auf der Innenraumoberfläche (einschließlich Boden, Decke und Wände) mit einer Fläche A_i . $v_{d,i}$ wurden

anhand des von Lai und Nazaroff (2000) entwickelten Modells mit Eingabeparametern für die Schubspannungsgeschwindigkeit (u) in Innenräumen in der Nähe von Oberflächen und die experimentelle GMD in Innenräumen berechnet. Das beste Ergebnis für u in den 40 Wohnungen lag zwischen 0.02 und 0.22 m s⁻¹.

Für die Koagulation betrachten wir die Brownsche Diffusion als den dominierenden Prozess für Partikel < 1 µm. Die Koagulationsrate K wurde auf der Grundlage der Fuchs'schen Theorie (Fuchs et al., 1965) im Übergangs- und freien Molekularregime berechnet (Seinfeld und Pandis, 2016). In unserer quasi-monodispersen Formulierung ist K eine direkte Funktion der GMD, wobei die Koagulationsrate zwischen zwei Partikeln wie folgt ist:

$$J_{coagulation} = K I^2 \quad (5)$$

Für die IAM-Simulationen wurden die Luftwechselrate λ und der Penetrationsfaktor P so abgestimmt, dass die simulierte und die experimentelle N_{FP} in Innenräumen (I bzw. I_{sim}) übereinstimmten. Die Abstimmung erfolgte manuell und interaktiv auf einem Raster mit einer Zeitauflösung von bis zu 5 Minuten, ausgehend von den Schätzungen für λ und P , die wie in Abschnitt 4.4 beschrieben ermittelt wurden. Die Ergebnisse der Schlüsselparameter von IAM sind in Tabelle 6 zusammengefasst.

Mit optimalen Werten von λ , P , λ_d , und K , I und I_{sim} wurde für die Zeiträume ohne offensichtlichen Einfluss von Innenraumquellen gerechnet. Während der Zeiträume mit Innenraumquellen-Ereignissen wurde angenommen, dass λ und P dieselben sind wie vor dem Ereignis; Abweichungen zwischen I und I_{sim} wurden wie folgt auf die Quellenemissionen zurückgeführt:

$$\frac{d(I - I_{sim})}{dt} = P\lambda O - (\lambda + \lambda_d)(I - I_{sim}) - K(I^2 - I_{sim}^2) + \frac{E}{V} \quad (6)$$

Die Emissionsrate (E) kann anhand von Eq. (6) gefunden werden. In einigen Fällen mussten λ und P nach einem Quellenereignis erneut abgestimmt werden, damit das Abklingverhalten von I_{sim} dem von I entspricht.

Tabelle 6 Mittelwert und Standardabweichung (SD) der dynamischen Parameter, die mit Hilfe des Innenraum-Aerosolmodells (IAM) bestimmt wurden.

	Mittelwert	SD
Belüftungsrate, λ (h ⁻¹) (Fenster geschlossen)	0.4	0.2
Belüftungsrate, λ (h ⁻¹) (Fenster offen)	1.6	1.2
Depositionsrate, λ_d (h ⁻¹)	0.2	0.1
Zerfallsrate, $(\lambda + \lambda_d)$ (h ⁻¹)	0.7	0.7
Penetrationsfaktor, P	0.6	0.2
Koagulationskoeffizient, K (cm ³ h ⁻¹)	7.8×10 ⁻⁶	6.0×10 ⁻⁷

Abbildung 24 zeigt eine beispielhafte Simulation der mit IAM modellierten Partikelanzahlkonzentration N_{FP} im Innenraum während einer Woche im Haushalt L2. Wie man sieht, ist die Simulation in der Lage, die Innenraum- N_{FP} mit guter Übereinstimmung im Vergleich zu der gemessenen Innenraum- N_{FP} zu reproduzieren ($I_{sim}/I = 1.02$; $R^2 = 0.92$). Der Durchdringungsfaktor und die Lüftungsrate betrugen $0.4 < P < 1.5$ und $0.1 < \lambda < 6$ h⁻¹, abhängig

vom jeweiligen Zeitpunkt (siehe Abbildung 24 b). Die plötzlichen Anstiege von P und λ wurden mit dem Öffnen der Fenster durch die Bewohner*innen in Verbindung gebracht. Lediglich Änderungen von λ , die vermutlich durch die Bewegung der Bewohner*innen verursacht wurden, konnten ebenfalls identifiziert und in der Simulation berücksichtigt werden.

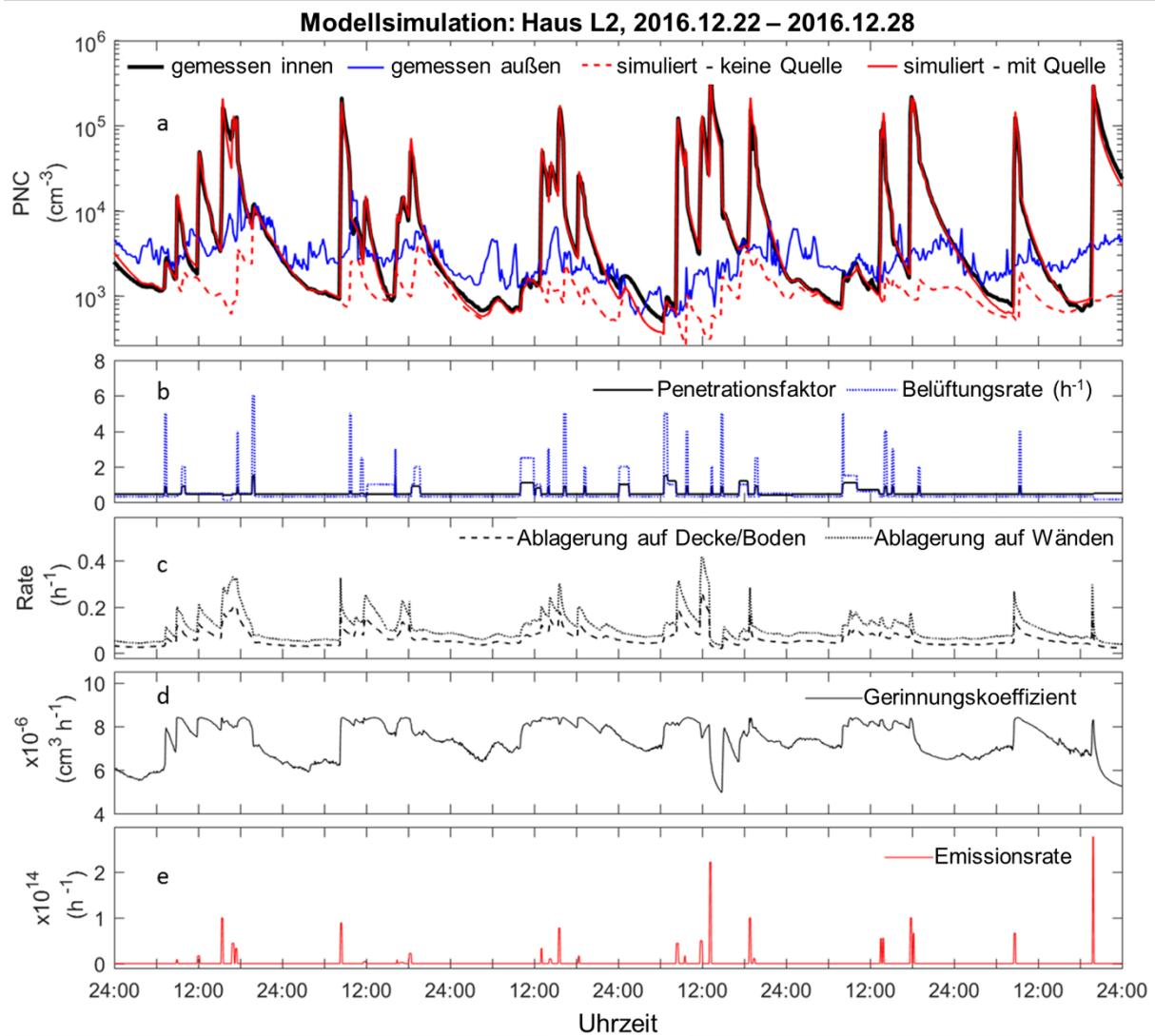
Die Gesamtdepositionsraten (einschließlich Deposition auf dem Boden, der Decke und den Wänden) und die Koagulationskoeffizienten betragen $0.1\text{--}1\text{ h}^{-1}$ und $5\times10^{-6}\text{--}8\times10^{-6}\text{ cm}^3\text{ h}^{-1}$ (siehe Abbildung 24 c und d). Beide Parameter wurden anhand der gemessenen GMD in Innenräumen berechnet, daher folgt ihre Veränderung in den Zeitreihen der Entwicklung der PNSD, die sich insbesondere während der Ereignisse mit Quellen in Innenräumen verändert.

Die beobachteten Quellenereignisse in Innenräumen waren in der Regel kurz und intensiv. Für die Auswertung der Quellereignisse gehen wir davon aus, dass die Emissionsrate während des entsprechenden Emissionszeitraums konstant ist. Die bestimmten Emissionsraten weisen insgesamt große Schwankungen auf: selbst innerhalb desselben Haushalts (siehe Abbildung 24 e) variieren sie um zwei Größenordnungen (von $1.5\times10^{12}\text{ h}^{-1}$ bis $2.0\times10^{14}\text{ h}^{-1}$). Während der gesamten Messzeiträume schwankten die Emissionsraten aller Quellen zwischen $1\times10^{10}\text{ h}^{-1}$ und $6\times10^{14}\text{ h}^{-1}$, während die mittlere Emissionsrate der einzelnen Quellenarten in der Regel in der Größenordnung von 10^{13} h^{-1} betrug (siehe Tabelle 6). Die mittlere Emissionsrate aller Innenraumquellen in den Messungen von 500 Tagen betrug $2.7\times10^{13} (\pm 5.9\times10^{13})\text{ h}^{-1}$. Die höchste Emissionsrate wurde für brennende Kerzen ermittelt, wobei die mittlere Emissionsrate $5.3\times10^{13}\text{ h}^{-1}$ betrug. Die Emissionsrate bei der Verwendung von Kaminen betrug dagegen nur ein Viertel davon, obwohl beides Verbrennungsquellen sind.

Wir müssen berücksichtigen, dass unsere Emissionsraten in Haushalten, in denen Küche und Wohnzimmer durch Türen getrennt sind (siehe Tabelle 3), die tatsächliche kochbedingte Emissionsrate unterschätzen könnten. In solchen Situationen wäre korrekterweise ein Modell mit mehreren räumlichen Abteilen erforderlich. Die Auf trennung der Emissionsraten nach Haushalte mit separater bzw. offener Küche ergab mittlere Emissionsraten von $1.2\times10^{13} (\pm 2.6\times10^{13})\text{ h}^{-1}$ und $3.5\times10^{13} (\pm 7.0\times10^{13})\text{ h}^{-1}$. Beschränkt man diese Betrachtung auf die mit dem Kochen verbundenen Tätigkeiten, so ergibt sich sogar eine noch niedrigere Emissionsrate (22 %) in Haushalten mit einer separaten Küche im Vergleich zur offenen Küche (siehe Tabelle 7). Wir gehen davon aus, dass die für die Kombination aus offener Küche und Wohnzimmer ermittelten Emissionsraten realistischer sind, wobei wir berücksichtigen, dass das Modell mit einem einzigen Raum für den Fall einer separaten Küche nicht geeignet ist.

Was die Grenzen unseres Ansatzes betrifft, so ist zu bedenken, dass alle Berechnungen auf einem gut durchmischten Einraummodell beruhen, welches für unterschiedliche Hauskonfigurationen angewendet wurde. In Realität könnte ein interner Luftaustausch in den Innenräumen stattfinden, der die geschätzten Parameter beeinflusst hat und daher zu einer Unterschätzung der Partikelemissionsraten führen könnte. Diese Unsicherheiten sind bei der Verallgemeinerung der Ergebnisse zu beachten.

Abbildung 24 Beispielhafte Modellsimulation der N_{FP} mit IAM in einem Haushalt (Nr. L2)



Beispielhafte Modellsimulation der N_{FP} mit IAM in einem Haushalt (Nr. L2). Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

Tabelle 7 Zusammenfassung der mit dem Innenraum-Aerosolmodell geschätzten Emissionsraten von Innenraumquellen.

Emissionsrate (E) $\times 10^{13}$ (h ⁻¹)	Alle Haushalte			Haushalte mit separater Küche			Haushalte mit offener Küche		
	n	Mittelwert	SD	n	Mittelwert	SD	n	Mittelwert	SD
Backen	81	4.0	6.2	31	2.0	2.9	50	5.2	7.3
Braten	91	3.0	4.8	23	0.4	0.3	68	3.9	5.3
Toasten	56	4.7	11.1	20	0.8	0.8	36	6.9	13.5
Anderes Kochen	117	1.5	3.6	50	0.6	0.7	67	2.2	4.6
Kerzen brennen	92	5.3	6.8	45	3.1	4.0	47	7.3	8.2
Kamin benutzen	27	1.4	1.9	9	1.2	1.3	18	1.6	2.1
Staubsaugen	28	0.5	0.7	17	0.5	0.9	11	0.4	0.3
Gemischt	78	4.2	8.7	31	2.5	3.8	46	5.4	10.7
Andere	33	0.6	1.7	15	0.2	0.4	18	0.9	2.3
Unbekannt	208	1.5	4.0	102	0.6	1.0	106	2.3	5.4

4.6 Beitrag von Innen- und Außenquellen zur Partikelexposition in Innenräumen

4.6.1 Feinstaubbelastung in Innenräumen

Nachdem wir die Zeitreihen der N_{FP} in Innenräumen für die 40 Wohnungen mit dem IAM-Modell simuliert haben, sind wir nun in der Lage, die Anteile der N_{FP} in Innenräumen zu unterscheiden, die aus Innen- bzw. Außenquellen stammen. Die Unterscheidung dieser Partikelarten könnte ein Schlüssel zum besseren Verständnis der Partikelexposition in Innenräumen sein (Riley et al., 2002). Natürlich hängt der Anteil der Außenpartikel, dem die Bewohner*innen in Innenräumen ausgesetzt sind, von den zahlreichen oben genannten Gebäude- und dynamischen Prozessfaktoren ab. Nach früheren Arbeiten (Bhangar et al., 2011) ist es möglich, die Innenraumexposition gegenüber Submikrometerpartikeln, die von Innen- und Außenquellen

emittiert werden, als tagesintegrierte Exposition zu quantifizieren, die durch Integration des N_{FP} über die Zeit und Division durch die Anzahl der Messtage ($cm^{-3} h/Tag$) berechnet wurde.

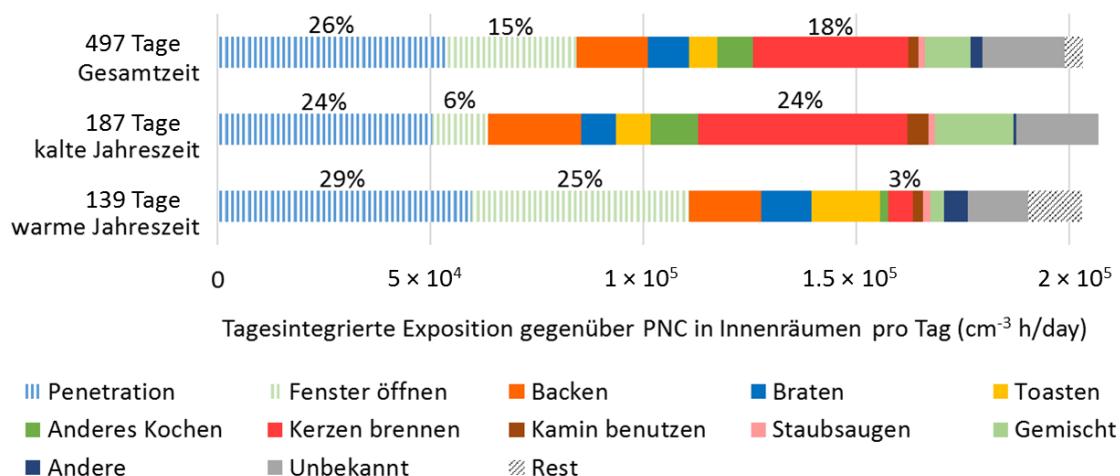
Die tägliche integrierte Exposition in unseren 40 Haushalten reichte von $0.7 \times 10^5 cm^{-3} h/Tag$ bis zu $4.7 \times 10^5 cm^{-3} h/Tag$, mit einem Gesamtmittelwert von etwa $2 \times 10^5 cm^{-3} h/Tag$ (siehe Abbildung 25). Quellen in Innenräumen trugen zu 56 % zur gesamten Partikelanzahl-Exposition in Innenräumen bei, wobei brennende Kerzen für den vorliegenden Datensatz den größten Einzelbeitrag leisteten. Der Beitrag von Außenluftaerosolen wurde anhand der IAM-Simulation der N_{FP} in Innenräumen berechnet, wobei Ereignisse in Innenräumen nicht berücksichtigt wurden, was zu einem relativen Anteil von 42 % an der Gesamtexposition führte. Die Nutzung des IAM-Modells erlaubt es uns sogar, diesen Beitrag auf zwei verschiedene Prozesse, nämlich die Durchdringung der Gebäudehülle und die Belüftung durch Fenster aufzuschlüsseln (26 % bzw. 15 %). Die verbleibende Lücke in der Bilanz (d. h. der "Rest" in Abbildung 27) in Höhe von etwa 2 % der Gesamtexposition könnte auf Resuspension oder nicht identifizierte kleinere Quellen zurückzuführen sein.

Es ist davon auszugehen, dass verkehrsbedingte Emissionen außerhalb der Gebäude auch die Partikelexposition in Innenräumen beeinflussen. Unsere 40 Haushalte befinden sich in städtischen, vorstädtischen und ländlichen Gebieten (siehe Tabelle 3). Der PNC-Wert im Freien für städtische, vorstädtische und ländliche Gebiete betrug (Mittelwert \pm SD): $8300 \pm 7600 cm^{-3}$, $7000 \pm 5600 cm^{-3}$, und $6500 \pm 6300 cm^{-3}$. In Abbildung 26 ist zu erkennen, dass der Beitrag des Eindringens von Partikeln aus dem Außenbereich in städtischen Gebieten höher erscheint als in vorstädtischen und ländlichen Gebieten. Die Gesamtpartikelbelastung der Bewohner*innen im Innenraum im städtischen Gebiet erscheint im Vergleich zu den beiden anderen Gebieten deutlich geringer. Dies wäre bei gleichem Nutzer*innen-Verhalten nicht logisch. Dies deutet vielmehr darauf hin, dass der Datensatz nicht homogen ist und die Aktivitätsgewohnheiten der Bewohner*innen einen starken Einfluss auf das Expositionsmuster haben.

Obwohl sich Quellenereignisse in Innenräumen als eher kurzlebig erwiesen, ist ihr signifikanter Beitrag zur Partikelexposition in Innenräumen auf die hohen Emissionsraten der Quellen und die eher mäßige Abklingrate zurückzuführen, die zu Verweilzeiten von mehreren Stunden für Partikel führen, die in Innenräumen emittiert werden, wenn sie nicht etwa durch Lüftung wirksam beseitigt werden.

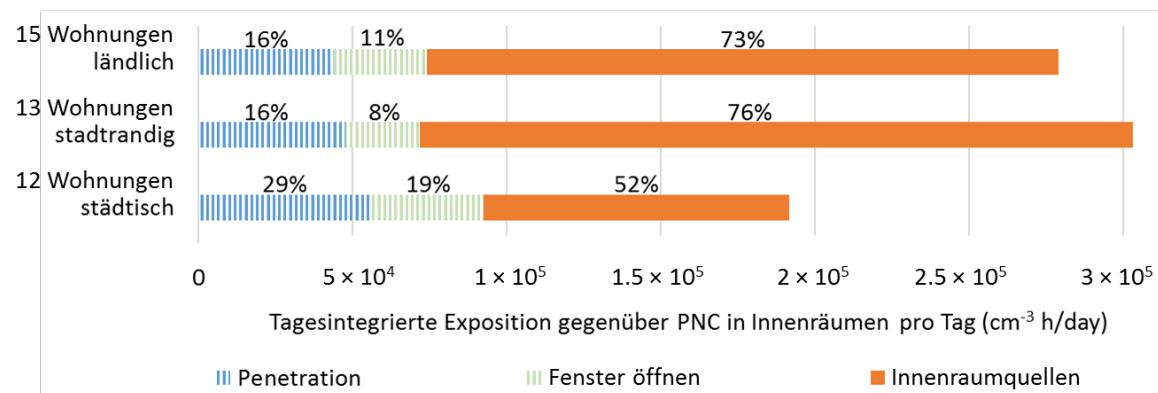
Die tägliche Expositionsbelaistung war in der kalten und warmen Jahreszeit ähnlich - etwa $2 \times 10^5 cm^{-3} h/Tag$ (siehe Abbildung 25). Aufgrund der unterschiedlichen Verhaltensmuster der Bewohner*innen in der kalten und warmen Jahreszeit waren die Anteile der Innen- und Außenbereiche jedoch recht unterschiedlich. In der kalten Jahreszeit waren die Bewohner*innen einem Großteil der Partikelemissionen aus Innenraumquellen ausgesetzt (70 %), während der entsprechende ermittelte Beitrag in der warmen Jahreszeit nur 39 % der Gesamtexposition ausmachte. Das Öffnen von Fenstern und das Abbrennen von Kerzen waren die beiden Hauptaktivitäten, die den entscheidenden Unterschied ausmachten (ihr Anteil an der Gesamtexposition betrug 6 % bzw. 24 % in der kalten Jahreszeit und 25 % bzw. 3 % in der warmen Jahreszeit). Ohne das Abbrennen von Kerzen wäre die tägliche Exposition in Innenräumen in der kalten Jahreszeit um etwa $5 \times 10^4 cm^{-3} h/Tag$ verringert worden.

Abbildung 25 Saisonale Unterschiede des Anteils der wichtigsten Exposition-Quellen



Saisonale Unterschiede des Anteils der wichtigsten Quellen tagesintegrierter Exposition gegenüber N_{FP} in Innenräumen pro Tag ($\text{cm}^{-3} \text{ h/Tag}$). Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

Abbildung 26 Regionale Unterschiede des Anteils der wichtigsten Exposition-Quellen.

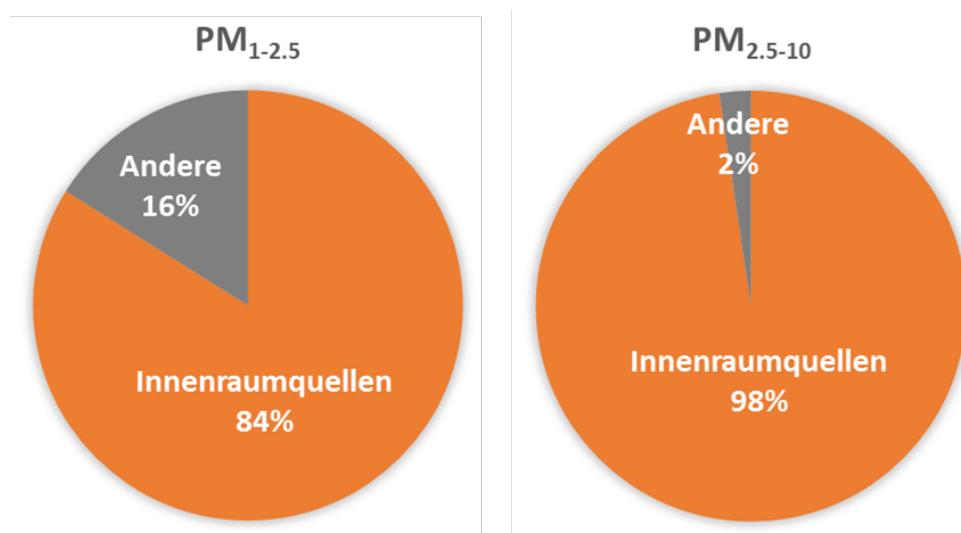


Regionale Unterschiede des Anteils der wichtigsten Quellen tagesintegrierter Exposition gegenüber N_{FP} in Innenräumen pro Tag ($\text{cm}^{-3} \text{ h/Tag}$). Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

4.6.2 Exposition gegenüber groben Partikeln in Innenräumen

In Abschnitt 4.1 haben wir erörtert, dass grobe Partikel in Innenräumen hauptsächlich durch Innenraumquellen beeinflusst werden. Im Vergleich zu den Feinstaubpartikeln wurden auch die Beiträge der Quellen zur täglichen integrierten Exposition gegenüber $\text{PM}_{1-2.5}$ und $\text{PM}_{2.5-10}$ analysiert. Im Durchschnitt lag die tägliche integrierte Gesamtexposition gegenüber $\text{PM}_{1-2.5}$ und $\text{PM}_{2.5-10}$ in Innenräumen bei $70 \mu\text{g cm}^{-3} \text{ h/Tag}$ bzw. $300 \mu\text{g cm}^{-3} \text{ h/Tag}$. Die Beiträge von Innenraumquellen zu $\text{PM}_{1-2.5}$ und $\text{PM}_{2.5-10}$ betrugen 84 % bzw. 98 % der Gesamtexposition (siehe Abbildung 27). Der Beitrag aus der Außenluft war für $\text{PM}_{2.5-10}$ nahezu vernachlässigbar. Es ist zu beachten, dass der Anteil der einzelnen Quellen an der Gesamtbelastung bei der derzeitigen Messanordnung nicht trennbar ist. Bei Aktivitäten in Innenräumen stammen die groben Partikel überwiegend aus der Aufwirbelung (Resuspension).

Abbildung 27 Beitrag der Quellen zur täglichen integrierten Exposition in Innenräumen



Beitrag der Quellen zur täglichen integrierten Exposition gegenüber $PM_{1-2.5}$ und $PM_{2.5-10}$ in Innenräumen. Quelle: eigene Darstellung, TROPOS.

5 Quellenverzeichnis

- Bhangar, S.; Mullen, N.; Hering, S.; Kreisberg, N. and Nazaroff, W. Ultrafine particle concentrations and exposures in seven residences in northern California. *Indoor Air* 21 (2011) No. 2. S. 132-144.
- Birmili, W.; Süring, K.; Becker, K.; Gerwig, H.; Schwirn, K.; Löschau, G.; Plaß, D.; Tobollik, M.: Ultrafeine Partikel in der Umgebungsluft – aktueller Wissensstand. *UMID – Umwelt und Mensch Informationsdienst* 2 (2018) S. 57–65.
- Birmili, W.; Weinhold, K.; Nordmann, S.; Wiedensohler, A.; Spindler, G.; Müller, K.; Herrmann, H.; Gnauk, T.; Pitz, M. and Cyrys, J. Atmospheric aerosol measurements in the German ultrafine aerosol network (GUAN). *Gefahrst. Reinhalt. L* 69 (2009) S. 137-145.
- Costabile, F.; Birmili, W.; Klose, S.; Tuch, T.; Wehner, B.; Wiedensohler, A.; Franck, U.; König, K. and Sonntag, A. Spatio-temporal variability and principal components of the particle number size distribution in an urban atmosphere. (2009).
- Custódio, D.; Pinho, I.; Cerqueira, M.; Nunes, T. and Pio, C. Indoor and outdoor suspended particulate matter and associated carbonaceous species at residential homes in northwestern Portugal. *Sci. Total Environ.* 473 (2014) S. 72-76.
- EFCA (2019) Ambient ultrafine particles: evidence for policy makers. Hrsg.: “Thinking outside the box team”, koordiniert durch Lidia Morawska, Flemming Cassee, Annette Peters. European Federation of Clean Air and Environmental Protection Associations (EFCA) <https://efca.net> (Zugriff am: 03.01.2020).
- Fuchs, N.A.; Daisley, R.; Fuchs, M.; Davies, C. and Straumanis, M. The mechanics of aerosols. *PhT* 18 (1965) S. 73.
- Gerber, A.; Hofen-Hohloch, A.V.; Schulze, J. and Groneberg, D.A. Tobacco smoke particles and indoor air quality (ToPIQ-II)—a modified study protocol and first results. *J. Occup. Med. Toxicol.* 10 (2015) No. 1. S. 5.
- Gu, J.; Kraus, U.; Schneider, A.; Hampel, R.; Pitz, M. et al.: Personal day-time exposure to ultrafine particles in different microenvironments. *Int. J. Hygiene Environ. Health* 218 (2015) No. 2, S. 188–195.
- He, C.; Morawska, L.; Hitchins, J. and Gilbert, D. Contribution from indoor sources to particle number and mass concentrations in residential houses. *Atmos. Environ.* 38 (2004) No. 21. S. 3405-3415.
- HEI (2013) Understanding the Health Effects of Ambient Ultrafine Particles. HEI Review Panel on Ultrafine Particles. HEI Perspectives 3. Health Effects Institute, Boston, MA, USA 2013.
- Heyder, J. Deposition of inhaled particles in the human respiratory tract and consequences for regional targeting in respiratory drug delivery. *Proc. Am. Thorac. Soc.* 1 (2004) No. 4. S. 315-320.
- Hussein, T.; Hämeri, K.; Heikkinen, M.S.A. and Kulmala, M. Indoor and outdoor particle size characterization at a family house in Espoo–Finland. *Atmos. Environ.* 39 (2005a) No. 20. S. 3697-3709.
- Hussein, T.; Korhonen, H.; Herrmann, E.; Hämeri, K.; Lehtinen, K.E. and Kulmala, M. Emission rates due to indoor activities: indoor aerosol model development, evaluation, and applications. *Aerosol Sci. Technol.* 39 (2005b) No. 11. S. 1111-1127.
- Hussein, T.; Wierzbicka, A.; Löndahl, J.; Lazaridis, M. and Hänninen, O. Indoor aerosol modeling for assessment of exposure and respiratory tract deposited dose. *Atmos. Environ.* 106 (2015) S. 402-411.
- Jones, N.; Thornton, C.; Mark, D. and Harrison, R. Indoor/outdoor relationships of particulate matter in domestic homes with roadside, urban and rural locations. *Atmos. Environ.* 34 (2000) No. 16. S. 2603-2612.

Kliucininkas, L.; Krugly, E.; Stasiulaitiene, I.; Radziuniene, I.; Prasauskas, T.; Jonusas, A.; Kauneliene, V. and Martuzevicius, D. Indoor–outdoor levels of size segregated particulate matter and mono/polycyclic aromatic hydrocarbons among urban areas using solid fuels for heating. *Atmos. Environ.* 97 (2014) S. 83-93.

Liu, S. and Zhu, Y. A case study of exposure to ultrafine particles from secondhands tobacco smoke in an automobile. *Indoor Air* 20 (2010) No. 5. S. 412-423.

Löndahl, J.; Massling, A.; Pagels, J.; Swietlicki, E.; Vaclavik, E. and Loft, S. Size-resolved respiratory-tract deposition of fine and ultrafine hydrophobic and hygroscopic aerosol particles during rest and exercise. *Inhal. Toxicol.* 19 (2007) No. 2. S. 109-116.

Molnár, P.; Bellander, T.; Sällsten, G. and Boman, J. Indoor and outdoor concentrations of PM 2.5 trace elements at homes, preschools and schools in Stockholm, Sweden. *J. Environ. Monit.* 9 (2007) No. 4. S. 348-357.

Molnár, P.; Gustafson, P.; Johannesson, S.; Boman, J.; Barregård, L. and Sällsten, G. Domestic wood burning and PM2. 5 trace elements: Personal exposures, indoor and outdoor levels. *Atmos. Environ.* 39 (2005) No. 14. S. 2643-2653.

Morawska, L.; Afshari, A.; Bae, G.N.; Buonanno, G.; Chao, C.Y.; Hanninen, O.; Hofmann, W.; Isaxon, C.; Jayaratne, E.R.; Pasanen, P.; Salthammer, T.; Waring, M. and Wierzbicka, A. Indoor aerosols: from personal exposure to risk assessment. *Indoor Air* 23 (2013) No. 6. S. 462-487.

Morawska, L.; Ayoko, G.; Bae, G.; Buonanno, G.; Chao, C.; Clifford, S.; Fu, S.C.; Hänninen, O.; He, C. and Isaxon, C. Airborne particles in indoor environment of homes, schools, offices and aged care facilities: The main routes of exposure. *Environ. Int.* 108 (2017) S. 75-83.

Morawska, L.; He, C.; Johnson, G.; Guo, H.; Uhde, E. and Ayoko, G. Ultrafine particles in indoor air of a school: possible role of secondary organic aerosols. *Environ. Sci. Technol.* 43 (2009) No. 24. S. 9103-9109.

Nagl, C.; Buxbaum, Iris; Ultrafeine Partikel, Black Carbon. Aktueller Wissensstand. Umweltbundesamt, Wien, Reports, Band 0656 (2018) 69 S

Ohlwein, S.; Kappeler, R.; Joss, M. K.; Künzli, N.; Hoffmann, B.: Health effects of ultrafine particles: a systematic literature review update of epidemiological evidence. *Int. J. Public Health* 64 (2019) No. 4, S. 547–559.

Pfeifer, S.; Birmili, W.; Schladitz, A.; Müller, T.; Nowak, A. and Wiedensohler, A. A fast and easy-to-implement inversion algorithm for mobility particle size spectrometers considering particle number size distribution information outside of the detection range. *Atmos. Meas. Tech.* 7 (2014) No. 1. S. 95-105.

Pitz, M.; Cyrys, J.; Karg, E.; Wiedensohler, A.; Wichmann, H.-E. and Heinrich, J. Variability of apparent particle density of an urban aerosol. *Environ. Sci. Technol.* 37 (2003) No. 19. S. 4336-4342.

Riley, W.J.; McKone, T.E.; Lai, A.C.K. and Nazaroff, W.W. Indoor Particulate Matter of Outdoor Origin: Importance of Size-Dependent Removal Mechanisms. *Environ. Sci. Technol.* 36 (2002) No. 2. S. 200-207.

Rösch, C.; Wissenbach, D.K.; von Bergen, M.; Franck, U.; Wendisch, M. and Schlink, U. The lasting effect of limonene-induced particle formation on air quality in a genuine indoor environment. *Environmental Science and Pollution Research* 22 (2015) No. 18. S. 14209-14219.

Rückerl, R.; Schneider, A.; Breitner, S.; Cyrys, J.; Peters, A.: Health effects of particulate air pollution: A review of epidemiological evidence. *Inhal. Toxicol.* 23 (2011) S. 555–592.

Schmid, O; Stoeger, T.: Surface area is the biologically most effective dose metric for acute nanoparticle toxicity in the lung. *J. Aerosol Sci.* 99 (2016) S. 133–143.

Seinfeld, J.H. and Pandis, S.N. *Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change*, Third Edition ed. John Wiley & Sons (2016).

Tang, T.; Hurraß, J.; Gminski, R. and Mersch-Sundermann, V. Fine and ultrafine particles emitted from laser printers as indoor air contaminants in German offices. *Environmental Science and Pollution Research* 19 (2012) No. 9. S. 3840-3849.

Wehner, B.; Birmili, W.; Gnauk, T. and Wiedensohler, A. Particle number size distributions in a street canyon and their transformation into the urban-air background: measurements and a simple model study. *Atmos. Environ.* 36 (2002) No. 13. S. 2215-2223.

Wehner, B. and Wiedensohler, A. Long term measurements of submicrometer urban aerosols: statistical analysis for correlations with meteorological conditions and trace gases. (2003).

Wichmann-Fiebig, M.: Überlegungen zur rechtlichen Regelung von UFP in der Außenluft, *Gefahrst. Reinh. Luft* 80 (2020) No. 1/2, S. 44-46.

Wiedensohler, A.; Birmili, W.; Nowak, A.; Sonntag, A.; Weinhold, K.; Merkel, M.; Wehner, B.; Tuch, T.; Pfeifer, S.; Fiebig, M. and A. M. Fjäraa, E.A., K. Sellegrí, H. Venzac, P. Villani, P. Laj, P. Aalto, J. A. Ogren, E. Swietlicki, P. Roldin, P. Williams, P. Quincey, C. Hüglin, R. Fierz-Schmidhauser, M. Gysel, E. Weingartner, F. Riccobono, S. Santos, C. Grüning, K. Faloon, D. Beddows, R. Harrison, C. Monahan, S. G. Jennings, C.D.O'Dowd, A. Marioni, H.-G. Horn, L. Keck, J. Jiang, J. Scheckman, P. H. McMurry, Z. Deng, C. S. Zhao, M. Moerman, B. Henzing, G. d. Leeuw, G. Löschau and S. Bastian. Mobility particle size spectrometers: harmonization of technical standards and data structure to facilitate high quality long-term observations of atmospheric particle number size distributions. *Atmos. Meas. Tech.* 5 (2012) No. S. 657-685.

Wiedensohler, A.; Wiesner, A.; Weinhold, K.; Birmili, W.; Hermann, M.; Merkel, M.; Müller, T.; Pfeifer, S.; Schmidt, A. and Tuch, T. Mobility particle size spectrometers: Calibration procedures and measurement uncertainties. *Aerosol Sci. Technol.* 52 (2018) No. 2. S. 146-164.

Zhao, J.; Birmili, W.; Hussein, T.; Wehner, B. and Wiedensohler, A. Particle number emission rates of aerosol sources in 40 German households and their contributions to ultrafine and fine particle exposure. *Indoor Air* (2020).

Zhao, J.; Birmili, W.; Wehner, B.; Daniels, A.; Weinhold, K.; Wang, L.; Merkel, M.; Kecorius, S.; Tuch, T. and Franck, U. Particle Mass Concentrations and Number Size Distributions in 40 Homes in Germany: Indoor-to-outdoor Relationships, Diurnal and Seasonal Variation. *Aerosol Air Qual. Res.* 20 (2019) No. 3. S. 576-589.

Zhao, J.; Weinhold, K.; Merkel, M.; Kecorius, S.; Schmidt, A.; Schlecht, S.; Tuch, T.; Wehner, B.; Birmili, W. and Wiedensohler, A. Concept of high quality simultaneous measurements of the indoor and outdoor aerosol to determine the exposure to fine and ultrafine particles in private homes. *Gefahrst. Reinh. Luft* 3 (2018) No. 3/2018. S. 73-78.