



**Feinstaub –  
Die Situation  
in Deutschland nach der  
EU-Tochter-Richtlinie  
Bericht über ein Symposium  
am 26. und 27. Juni 2000**

bearbeitet von

**Norbert Englert  
Hans-Guido Mücke  
Bernd Seifert**

Umweltbundesamt

Diese WaBoLu-Veröffentlichung kann bezogen werden bei  
**Vorauszahlung von 20,- DM (10,26 Euro)**  
durch Post- bzw. Banküberweisung,  
Verrechnungsscheck oder Zahlkarte auf das

Konto Nummer 4327 65 - 104 bei der  
Postbank Berlin (BLZ 10010010)  
Fa. Werbung und Vertrieb,  
Ahornstraße 1-2,  
10787 Berlin

Parallel zur Überweisung richten Sie bitte  
eine schriftliche Bestellung mit Nennung  
der **WaBoLu-Hefte-Nummer** sowie des **Namens**  
und der **Anschrift des Bestellers** an die  
Firma Werbung und Vertrieb.

Herausgeber: Umweltbundesamt -  
Postfach 33 00 22  
14191 Berlin  
Tel.: 030/8903-0  
Telex: 183 756  
Telefax: 030/8903 2285  
Internet: <http://www.umweltbundesamt.de>

Redaktion: Fachgebiet II 2.1  
Dr. Norbert Englert, Dr. Hans-Guido Mücke

Berlin, September 2000

# INHALT

<b>Vorwort</b>	<b>3</b>
<b>Übersicht über das Symposium</b>	<b>5</b>
<b>Preface</b>	<b>9</b>
<b>Overview of the Symposium</b>	<b>11</b>
<b>1 Wirkungen und Bewertung von Feinstaub</b>	<b>15</b>
<b>1.1 Gesundheitsbezogene Grundlagen der Ableitung der neuen EU-Grenzwerte</b>	<b>17</b>
<b>1.2 Luftverschmutzung: Die gesundheitlichen Folgen in Österreich, Frankreich und der Schweiz – eine trinationale Studie</b>	<b>33</b>
<b>1.3 Neue Erkenntnisse der Epidemiologie, Bedeutung von Nanopartikeln</b>	<b>43</b>
<b>1.4 Mögliche Wirkungsmechanismen von Dieselruß und anderen Partikeln</b>	<b>77</b>
<b>2 Ansätze zur Minderung von Feinstaub-Emissionen</b>	<b>97</b>
<b>2.1 Entstehung und Quellen der Feinstaub-Emissionen</b>	<b>99</b>
<b>2.2 Partikelemissionen des Straßenverkehrs – Was ist noch zu tun?</b>	<b>109</b>
<b>3 Möglichkeiten der Erfassung von Feinstaubkonzentrationen</b>	<b>123</b>
<b>3.1 CEN-Felduntersuchungen zur Standardisierung von PM<sub>10</sub> und PM<sub>2,5</sub> Messverfahren</b>	<b>125</b>
<b>3.2 Zuordnung von Immissionen zu Quellen</b>	<b>135</b>
<b>3.3 Kombination Messung und Modellierung</b>	<b>151</b>
<b>4 Beispiele für die Umsetzung der Anforderungen der EU-Tochter-Richtlinie (Immissionslage, Messaktivitäten, Überlegungen zu Minderungsstrategien)</b>	<b>171</b>
<b>4.1 Allgemeine Einführung, Situation in Nordrhein-Westfalen als überregionaler Ballungsraum</b>	<b>173</b>
<b>4.2 Situation in Berlin als regionaler Ballungsraum</b>	<b>195</b>
<b>4.3 Situation in Hessen als Mischgebiet</b>	<b>215</b>
<b>4.4 Situation in Sachsen als Grenzregion</b>	<b>227</b>
<b>5 Diskussion und Ausblick</b>	<b>235</b>
<b>ANNEX 1 Tagungs-Programm</b>	<b>245</b>
<b>ANNEX 2 Teilnehmerverzeichnis</b>	<b>249</b>



## **VORWORT**

Nach Veröffentlichung der Europäischen Rahmenrichtlinie über die Beurteilung und die Kontrolle der Luftqualität (96/62/EG) vom 27. September 1996 wurde im April 1999 die erste Tochter-Richtlinie (1999/30/EG) verabschiedet. Von den vier in dieser Tochter-Richtlinie behandelten Substanzen (Schwefeldioxid, Stickstoffoxide, Partikel und Blei) kommt dem komplexen Parameter Feinstaub die größte Bedeutung zu, sowohl wegen seiner gesundheitlichen Auswirkungen als auch wegen der absehbaren Schwierigkeiten, die neuen Grenzwerte einzuhalten.

Neuere Erkenntnisse deuten darauf hin, dass für Feinstaub keine Wirkungsschwelle angegeben werden kann. Das bedeutet, dass auch unterhalb der neuen - stark abgesenkten - Grenzwerte noch mit Wirkungen gerechnet werden muss. Mit ansteigender Feinstaubkonzentration nehmen z.B. die Zahl der Krankenauseinweisungen wegen Atemwegs- und Herz-Kreislauf-Erkrankungen, der Medikamentenverbrauch und die Anfallshäufigkeit bei Asthmatikern, Atemwegssymptome sowie vorzeitige Todesfälle zu. Auch im Aktionsprogramm "Umwelt und Gesundheit" wird die Feinstaubproblematik ausdrücklich angesprochen.

Vor diesem Hintergrund führte der Verein für Wasser-, Boden- und Lufthygiene e.V. am 26. und 27. Juni 2000 in Zusammenarbeit mit dem Umweltbundesamt in Berlin im Dienstgebäude am Corrensplatz ein Symposium über die Situation in Deutschland nach der EU-Tochter-Richtlinie durch. An der Veranstaltung nahmen etwa 90 Fachleute aus Universitäten, wissenschaftlichen Forschungseinrichtungen und Behörden von Bund, Ländern und Gemeinden teil. Das Symposium war Herrn Professor Dr. Erdwin Lahmann zum 75. Geburtstag gewidmet. Herr Dr. Lahmann war 1956 in das Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene des Bundesgesundheitsamtes eingetreten und 1990 als Leiter der Abteilung Lufthygiene in den Ruhestand verabschiedet worden. Er kann mit Fug und Recht als einer der Pioniere der Luftreinhaltung bezeichnet werden und hat gerade auch die Bearbeitung der Schwebstaubproblematik seit den 70er Jahren entscheidend vorangebracht.

Während der beiden Tage präsentierten vierzehn Fachreferenten deutscher Großforschungseinrichtungen, der Universität Basel, der Landesumweltbehörden Berlin, Hessen, Niedersachsen, Nordrhein-Westfalen, Sachsen, sowie der UBA-Fachbereiche I, II und III ihre Vorträge. Erklärtes Ziel des Symposiums war es, neben den ausgewählten Fachvorträgen der Diskussion breiten Raum zu geben, um die gegenwärtige Situation und Möglichkeiten für zukünftige Maßnahmenplanungen offen und eingehend zu erörtern.

Kurzfassungen der Vorträge und die präsentierten Folien sowie die Abschlussdiskussion sind im vorliegenden Band zusammengestellt.

Unser Dank gilt den Vortragenden für die Vorbereitung ihrer Präsentationen und ihre bereitwillige Unterstützung bei der Zusammenstellung dieses Bandes und den Teilnehmern für ihre rege Beteiligung während der Veranstaltung.

*Die Herausgeber*



## ÜBERSICHT ÜBER DAS SYMPOSIUM

Das Programm des Symposiums war in vier Sektionen gegliedert. Die **Sektion 1** behandelte Fragen der Wirkung und Bewertung von Feinstaub.

Einleitend wurden zunächst die gesundheitsbezogenen Grundlagen der Ableitung der neuen EU-Grenzwerte dargestellt (**Englert**). Ausgangspunkt für eine EU-Arbeitsgruppe war die Bewertung der WHO, dass auch bei den heute vorliegenden Feinstaub-Konzentrationen noch Wirkungen auftreten und die Expositions-Wirkungs-Beziehung weitgehend linear ist, ohne dass eine Wirkungsschwelle zu erkennen wäre. Als geeignete Messgröße wurde  $PM_{10}$  angesehen, also die Korngrößenfraktion  $\leq 10 \mu m$ . Grenzwerte sollen als 24-Stunden-Werte und als Jahresmittelwerte angegeben werden. Zur Verdeutlichung der noch zu erwartenden Wirkungen wurde die Zahl der Krankenhaus-Aufnahmen gewählt: Bei einem  $PM_{10}$ -Anstieg von 20 auf  $50 \mu g/m^3$  steigen die Aufnahmen um 0,5 bis 1 Aufnahme pro Million Einwohner und Tag an. Die Berechnungen stützen sich vorwiegend auf Zeitreihen-Analysen.

Die Schweizer Monetarisierungsstudie (**Künzli**) und die darauf aufbauende trinationale Studie (Frankreich, Österreich, Schweiz) ziehen als Indikator für die Luftverschmutzung die  $PM_{10}$ -Konzentration heran, weil hierzu die umfangreichste Datenbasis vorhanden ist. Etwa die Hälfte der  $PM_{10}$ -Immissionskonzentration wird dem Verkehr zugeschrieben. Die Ergebnisse zeigen, dass bei der Berechnung der externen Kosten der Luftverschmutzung die vorgezogene Mortalität (ausgehend von Ergebnissen von Kohorten-Studien) am stärksten zu Buche schlägt (etwa 75 %). Bei der Mortalität bestehen aber die größten methodischen Probleme. Die Zahlungsbereitschaft als Monetarisierungsmethode ist zwar etabliert, aber umstritten. Zu betonen ist auch, dass die so ermittelten Kosten in den tatsächlichen Kosten für das Gesundheitswesen nur zu einem geringen Teil enthalten sind, was umgekehrt aber bedeutet, dass auch bei erfolgreichen Minderungsmassnahmen Kosteneinsparungen nicht in der berechneten Höhe erwartet werden könnten.

Neue Erkenntnisse der Epidemiologie über die Feinstaub-Wirkungen und die Bedeutung von sogenannten Nanopartikeln (**Wichmann**) deuten darauf hin, dass möglicherweise ultrafeine Partikel ( $<100 nm$ ) als Schadstoffkomponenten aufzufassen sind, die weitgehend unabhängig vom sonstigen Feinstaub wirken. Die vorliegenden Messergebnisse zeigen, dass über die Jahre gesehen die von den ultrafeinen Partikeln dominierten Partikelzahlen praktisch gleichbleiben oder sogar ansteigen, auch wenn die Partikelmasse (als  $PM_{10}$  oder  $PM_{2,5}$  gemessen) deutlich abnimmt. Bei nur auf die Partikelmasse bezogenen Regelungen werden daher die ultrafeinen Partikel nicht angemessen einbezogen.

Anschließend wurden mögliche Wirkungsmechanismen von Dieselruß und anderen Partikeln vorgestellt (**Heinrich**). Dieselruß macht nur einen Teil der Partikel aus. Bei einem reinen Partikeleffekt dürften keine löslichen Stoffe wirkungsrelevant sein, aber lösliche Komponenten können ebenfalls Wirkungen entfalten. Entzündliche Veränderungen spielen bei den Partikelwirkungen eine wichtige Rolle. Wie eng die Beziehung zwischen Entzündungsstärke und Tumorrisiko ist und wie gut Befunde von der Ratte auf den Menschen übertragbar sind, wird noch untersucht. Bei ultrafeinen Partikeln ( $< 0,1 \mu m$ ) korreliert die Anzahl- und Oberflächendosis besser mit der Wirkung als die massenbezogene Dosis.

Die **Sektion 2** konzentrierte sich auf Ansätze zur Minderung von Emissionen aus dem industriellen und aus dem Kraftfahrzeugsektor.

Nach einer Einschätzung des Länderausschusses für Immissionsschutz (LAI) werden die vorgesehenen PM<sub>10</sub>-Werte in Deutschland häufig überschritten (**Remus**). Die größten Beiträge zur Emission leisten Industrieprozesse (hier besonders Stahl, Eisen, Metalle einschließlich Verarbeitung), Kraft- und Fernheizwerke und der Straßenverkehr. Der Immissionsanteil der Sekundäraerosole wird auf 20-50 % geschätzt und trägt damit wesentlich zum Immissionsanteil durch Ferntransport bei, der insgesamt mit 50-60 % angesetzt wird. Als Minderungsmaßnahmen kommen Regelungen gemäß dem Stand der Technik, Energiesparmaßnahmen und Brennstoffumstellung und der Einsatz von Rußfiltern bei Dieselfahrzeugen in Betracht.

Neben den primären und sekundären Abgas-Emissionen des Verkehrs tragen auch der Reifenabrieb und Staubaufwirbelungen zu den beobachteten Schwebstaub-Konzentrationen bei (**Rodt**). Durch den Einsatz von Rußfiltern bei Lkw und Pkw lassen sich beträchtliche Minderungen der Emissionen von elementarem Kohlenstoff erreichen, bis 2020 dürfte eine Absenkung auf etwa 20 % der Emissionen von 1995 möglich sein. Filter müssen keine Verschiebung der Partikelgrößen nach unten bewirken und können auch die ultrafeinen Partikel effektiv mindern.

Da die neuen Grenzwerte auf PM<sub>10</sub> und nicht mehr auf Gesamtschwebstaub bezogen sind und sich für die Zukunft sogar die Einbeziehung von PM<sub>2,5</sub> abzeichnet, wurde in **Sektion 3** die Situation in der Messtechnik beleuchtet.

Im Rahmen der CEN-Arbeit wurden Felduntersuchungen mit dem Ziel der Standardisierung von Messverfahren für PM<sub>10</sub> und der Festlegung von PM<sub>10</sub>-Referenzgeräte durchgeführt (**Laskus**). Entsprechende Tests für PM<sub>2,5</sub> laufen noch. Ein erstes Ergebnis der PM<sub>2,5</sub>-Tests war, dass Verluste an flüchtigen Staubbestandteilen auftreten können, was zu deutlichen Unterschieden etwa zwischen dem KleinfILTERgerät und dem TEOM-Gerät (mit Aufheizung) im Winter führt; dies wirkt sich besonders bei der PM<sub>2,5</sub>-Messung aus, tritt aber auch bei der Messung von PM<sub>10</sub> auf. Hier gilt es, konstruktionsseitig derartige Verluste zu vermeiden.

Durch die Analyse von Konzentrationsdifferenzen verschiedener Mess-Stationen konnten in Berlin die Immissionsbeiträge verschiedener Quellen quantifiziert werden. Großräumige Quellen führen im vorgestellten Datensatz zu einem regionalen Hintergrundwert von 19 µg/m<sup>3</sup>. Quellen im Ballungsgebiet selbst kommen zu dieser regionalen Grundbelastung hinzu und erhöhen die Konzentration im Ballungsgebiet (hier um 17 µg/m<sup>3</sup>); der Kfz-Verkehr erhöht als Nahquelle lokal zusätzlich die Staubkonzentration (hier um 14 µg/m<sup>3</sup>, so dass sich an Verkehrsmess-Stellen eine Gesamtkonzentration von 50 µg/m<sup>3</sup> ergibt) (**Lenschow**). Mit einem Vergleich von Immissions- und Emissionsmustern, z.B. über die Tages- und Wochengänge, ließ sich für Berlin der Verkehrseinfluss und der Verbrennungsanteil modellieren. Die Datenbasis für derartige Modellierungen ist jedoch noch schmal.

Die EU-Rahmenrichtlinie sieht nicht nur die Messung, sondern auch eine Kombination von Messung und Modellierung oder sogar nur die Modellierung als Möglichkeiten zur Erfassung der Immissionssituation vor (**Müller**). Mit Methoden der Ausbreitungsrechnung können

Ursachenanalysen für Grenzwert-Überschreitungen und Immissionsprognosen durchgeführt und die Auswirkungen emissionsmindernder Maßnahmen abgeschätzt werden. Mit vorhandenen Rechenmodellen ergeben sich auf handelsüblichen PCs für Staubkonzentrations- und Depositionsberechnungen vertretbare Rechenzeiten (z.B. 1 Stunde), die Anwendung ist also schon durchaus praktikabel und könnte weitere Verbreitung finden.

Wegen der praktischen Bedeutung der Tochter-Richtlinie und der Zuständigkeit der Länder bei der Umsetzung wurde bei der Programmgestaltung besonderer Wert auf die Darstellung der Situation in den Bundesländern gelegt. Die bisher in den Bundesländern angestellten Überlegungen und laufenden Aktivitäten wurden in **Sektion 4** beispielhaft erläutert.

Nach freiwilliger Selbstverpflichtung der EU-Mitgliedsstaaten sollen die Messungen nach der Tochterrichtlinie am 1. Januar 2001 beginnen. Daraus ergeben sich Anforderungen an die Messplanung, die Anzahl und die Geräte-Ausstattung der Mess-Stationen, die Datenqualitätsziele und Maßnahmenpläne sowie bei der Information der Öffentlichkeit (**Bruckmann**). Mit den bisher in deutschen Messnetzen überwiegend verwendeten kontinuierlichen radiometrischen Messgeräten können die vorgegebenen Datenqualitätsziele nur bedingt und unter hohem Wartungsaufwand erfüllt werden. In NRW werden zunächst 17 PM<sub>10</sub>- und 5 PM<sub>2,5</sub>-Mess-Stationen eingerichtet. In weiten Teilen des Rhein-Ruhr-Gebietes und anderen Ballungsräumen, aber auch in mittelgroßen Städten ist mit Grenzwertüberschreitungen zu rechnen. Zwischenergebnisse eines F+E-Vorhabens zeigen einen hohen Beitrag des sekundären Aerosols und diffuser Emissionen.

In Berlin werden etwa 50 % der urbanen Hintergrundkonzentration durch Ferntransport hervorgerufen. An verkehrsnahen Mess-Stellen ist die Konzentration um bis zu 40 % höher als der städtische Hintergrund. Der verkehrsbedingte Beitrag besteht etwa zur einen Hälfte aus Motoremissionen und Reifenabrieb, die andere Hälfte ist durch Aufwirbelungen bedingt (**Kutzner**). Vorläufige Messergebnisse (**Abraham**) zeigen, dass lokale Minderungsmaßnahmen in Berlin nur im Bereich der kohlenstoffhaltigen Komponenten wie Ruß und bei aufgewirbeltem Feinstaub und Baustäuben zu einer nennenswerten Verminderung der Staubbelastung führen werden. Etwa die Hälfte der Immissionskonzentration entzieht sich lokalen Einflussmöglichkeiten. Eine Minderung der ionischen Bestandteile sowie der partikelförmigen organischen Oxidationsprodukte ist, wenn überhaupt, nur durch regionale und überregionale Maßnahmen zu erwarten.

In Hessen umfasst das Messnetz zur Zeit 33 Stationen zur kontinuierlichen Überwachung der Luftqualität (**Jacobi**). Für die Staubmessung werden  $\beta$ -Staubmeter eingesetzt, die Anfang 2000 auf PM<sub>10</sub> umgestellt wurden. Das Messergebnis wird vorläufig mit einem einheitlichen Faktor von 1,3 auf das Referenzmessverfahren "umgerechnet". Eine Ausgangsbeurteilung auf der Basis PM<sub>10</sub> = 0,83 x Gesamtstaub ergibt für das Tages- und Jahresmittel eine hessenweite Überschreitung der oberen Beurteilungsschwelle. In Hessen können mit dem Rhein-Main-Gebiet sowie Kassel und Umgebung zwei Ballungsräume definiert werden, der verbleibende Teil kann in Südhessen, Lahn-Dill und Hessisches Bergland eingeteilt werden.

Auch in Sachsen bestehen Probleme bei der Einhaltung der Staub-Grenzwerte der Tochterrichtlinie und hier besonders beim Tagesmittelwert, während der Jahresmittelwert der ersten Stufe kaum Schwierigkeiten bereitet (**Gräfe**). PM<sub>10</sub> machte etwa 60 % des Gesamt-

Schwebstaubes (TSP) aus, und der PM<sub>2,5</sub>-Anteil an PM<sub>10</sub> belief sich auf etwa 60-70 %. Vergleichsmessungen zwischen  $\beta$ -Absorption und gravimetrischen Messungen ergaben für PM<sub>10</sub> (gravimetrisch) Konzentrationen im Bereich von 64-89 % der TSP-Konzentrationen ( $\beta$ -Absorption).

In der abschließenden Diskussionsrunde wurden die offenen Fragen erörtert (**Seifert**), die sich aus den Beiträgen und Diskussionen der vier Sektionen ergeben hatten. Erwartungsgemäß zeigte sich, dass praktisch in allen Bereichen (Quellen, Wirkung und Erfassung) noch Unklarheiten bestehen. Viele Teilnehmer drückten ihren Wunsch nach Durchführung einer Folgeveranstaltung zum Thema Feinstaub zur Darlegung und Diskussion der Fortschritte aus, eventuell innerhalb Jahresfrist, auf alle Fälle aber vor der für Ende 2003 vorgesehenen Revision der Tochter-Richtlinie durch die Europäische Kommission.

*Die Herausgeber*

## PREFACE

Following the publication of the European Framework Directive on Ambient Air Quality Assessment and Management (96/62/EC) of 27 September 1996, the first Daughter Directive was adopted in April 1999 (1999/30/EC). Among the four substances dealt with in this Daughter Directive (sulphur dioxide, nitrogen oxides, particulate matter, and lead), the complex parameter particulate matter is of highest relevance, with respect to both health effects and the difficulties to be expected with attainment of the new limit values.

Recent findings suggest that for fine particles no effects threshold can be defined. This means that effects may still occur even below the new limit values which are considerably lower than those valid so far. With increasing concentrations of fine particles, the number of hospital admissions due to respiratory and cardiovascular diseases, the use of medication, and the frequency of asthma attacks in asthmatics, as well as premature deaths are increasing. In the National Environment and Health Action Plan "Umwelt und Gesundheit" ("Environment and Health"), the problems related to fine particles are mentioned explicitly.

Considering the situation, the Verein für Wasser-, Boden- und Lufthygiene e.V. (Association for Water, Soil and Air Hygiene) in cooperation with the Umweltbundesamt (Federal Environmental Agency) organised a Symposium on the situation in Germany with respect to the EC Daughter Directive. The Symposium was held in Berlin on 26 and 27 June 2000 and gathered nearly 100 participants from federal, state and local administrative agencies, scientific research centres and academia. The Symposium was dedicated to Professor Dr Erdwin Lahmann on the occasion of his 75<sup>th</sup> birthday. Dr Lahmann had joined the Institute for Water, Soil and Air Hygiene of the Federal Health Office in 1956. He retired as Head of the Air Hygiene Department in 1990. He certainly is one of the pioneers in the field of air hygiene and air pollution management in Germany and has played a decisive role in promoting research on suspended particles.

In the two-day symposium programme, papers were presented by fourteen speakers from German scientific research centres, the University of Basle, Switzerland, the state environmental administrations of Berlin, Hesse, Lower Saxony, Northrhine-Westphalia and Saxony, and several departments of the Federal Environmental Agency. It was the explicit aim of this Symposium to give the opportunity not only to get the information presented by the speakers, but also to intensively and frankly discuss the present situation and the options for the design of future measures.

This volume contains an overview of the meeting's programme and summaries of the presentations including the graphic material which was shown. Also included is a summary of the final discussion.

We would like to express our gratitude to the speakers for their work in preparing the presentations and their most valuable assistance in compiling this volume, and the participants for their active input during the meeting.

*The Editors*



## OVERVIEW OF THE SYMPOSIUM

The programme of the symposium was structured into four sections. **Section 1** dealt with topics related to health effects and risk assessment of suspended particulate matter (PM).

As an introduction, the health-related basis of the new EC limit values was described (**Englert**). As a starting point for the EC working group set up to prepare a Position Paper for the political decision process, the most recent WHO risk assessment had been defined. WHO had concluded that at current concentrations of PM in the air, there are still health effects to be expected. A linear dose-response relationship without apparent threshold was assumed. The EC working group proposed to use PM<sub>10</sub> as an adequate metric, i.e. the size fraction  $\leq 10 \mu\text{m}$ . Limit values should be derived as 24-h values and annual means. As an example of effects which may be expected, the number of hospital admissions was selected: Research shows that an increase in PM<sub>10</sub> concentration from 20 to 50  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  is associated with an increase in hospital admissions by 0.5 to 1 admissions per day in a population of one million. These calculations are mainly based on time-series studies.

The Swiss Monetarisation Study (**Künzli**) which was recently extended to a trinational study using comparable methods (France, Austria, Switzerland) relied on PM<sub>10</sub> as an indicator of air pollution because PM<sub>10</sub> was thought to provide the best data base available. Some 50 % of PM<sub>10</sub> immission concentration were found to be due to road traffic. The results showed premature mortality (as derived from cohort study results) to be the most relevant endpoint with respect to external costs of air pollution (some 75 %). However, methodological problems are greatest in the case of mortality. Furthermore, the willingness-to-pay method which was the basis of this calculation is an established but not generally accepted method of monetarisation. Also, it has to be mentioned that only part of the costs estimated in this way are comprised in the real and direct health care costs; conversely, this means that even in case of successful pollution abatement measures, health care costs cannot be reduced to the amount calculated.

New epidemiological findings on health effects of fine particles and the relevance of so-called nano-particles (**Wichmann**) suggest the possibility that ultrafine particles ( $< 0.1 \mu\text{m}$ ) may be pollutants which largely act independently from larger-sized particle fractions. Measurement results available so far show that over the years the number concentrations, which are dominated by ultrafine particles, have remained more or less unchanged or have even increased while the mass-related concentrations (measured as PM<sub>2.5</sub>) have clearly decreased. Therefore, assessments or regulations based exclusively on particle mass concentration may not consider ultrafine particles adequately.

In the following presentation, mechanisms were discussed by which diesel soot and other kinds of particles may exert their influence on health (**Heinrich**). Diesel soot is only one kind of particles among others. A pure particle effect would mean that soluble compounds are not relevant to the effects found; however, soluble compounds are also supposed to have health effects. Inflammatory changes play an important role with respect to effects caused by particles. Still under study is how close the relationship between the extent of inflammation and the tumour risk is and to what extent results found in rats are also applicable to humans.

For ultrafine particles ( $< 0.1 \mu\text{m}$ ), the dose defined by particle number or surface correlates more closely to health effects than the mass-related dose.

**Section 2** was focused on approaches to reduce emissions from industry and traffic.

According to an assessment provided by the Länderausschuss für Immissionsschutz (LAI, Interstate Committee for protection from immissions), the  $\text{PM}_{10}$  limit values set by the EC Daughter Directive are expected to be exceeded frequently in Germany (**Remus**). The largest contributions to total emissions come from industrial processes (especially steel, iron, metal industry including processing), power plants and district heating, and road traffic. The contribution of secondary aerosols to immission concentrations is estimated to be 20-50 %, thus substantially contributing to long-range transport which is estimated to cause 50-60 % of total immission concentrations. Possible abatement measures include application of BAT (Best Available Technique), energy saving measures, switching to other fuels and particle traps for diesel vehicles.

In addition to primary and secondary traffic exhaust emissions, tyre dust and dust resuspension contribute to the concentrations of suspended particles (**Rodt**). Particle traps used in heavy and low duty vehicles and passenger cars can induce considerable reductions of elemental carbon emissions: By the year 2020, a reduction down to 20 % of the 1995 emissions would be achievable. Particle traps do not necessarily induce a downward shift in particle size and can also reduce ultrafine particles effectively.

The new limit values refer to  $\text{PM}_{10}$  instead of the currently measured TSP, and future limit values may even include  $\text{PM}_{2.5}$ . Therefore, **Section 3** dealt with measurement and assessment techniques.

In the framework of CEN activities, field studies were carried out aiming at standardisation of measurement methods for  $\text{PM}_{10}$  and the definition of  $\text{PM}_{10}$  reference devices (**Laskus**). The respective work for  $\text{PM}_{2.5}$  is currently being undertaken. A first result of the  $\text{PM}_{2.5}$  tests was the finding that losses of volatile constituents may occur, leading to clear differences between, e.g., the Kleinfiltergeraet and the TEOM device (with heating) in winter. This has a non-negligible influence on the results of  $\text{PM}_{2.5}$  measurements, but affects also  $\text{PM}_{10}$  results. Such losses need to be minimised if not avoided by appropriate construction of the measurement device.

The contributions of different sources to the total immission in Berlin could be quantified by an analysis of the concentration differences between several measurement sites (**Lenschow**). Large-scale sources contributed mainly to the regional background concentration which was  $19 \mu\text{g}/\text{m}^3$  according to the data set used. Sources in the agglomeration itself added to this regional background ( $17 \mu\text{g}/\text{m}^3$  in the case presented). Road traffic as a local source was responsible for an additional increase of PM concentration ( $14 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ). Thus, the resulting total concentration was  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  at traffic sites. Comparing immission and emission patterns, e.g., using intra-day and intra-week distributions, the influence of traffic and combustion in Berlin could be modelled. However, the database available for such modelling is still scarce.

The EC Framework Directive requires measurement activities as well as a combination of measurement and modelling activities or even modelling alone as tools for assessing immissions (**Müller**). By dispersion modelling, analyses of causes for non-attainment as well as immission forecasts can be carried out, and the results of emission abatement measures can be predicted. Using models that are available for commercial PCs, concentrations of PM in air as well as dust deposition levels can be calculated within reasonable time (processing time about 1 hour). Thus, application of these models is already feasible and could find more widespread use.

Keeping in mind the practical importance of the Daughter Directive and the responsibility of the Federal States to implement the Directive, the programme of the Symposium put special emphasis on the description of the situation in the Federal States. Examples of the current activities in the Federal States were given in **Section 4**.

The EC Member States have voluntarily agreed to start measurements according to the Daughter Directive on January 1<sup>st</sup>, 2001. This calls for activities concerning measurement network design, the number and equipment of measurement sites, quality assurance and abatement measures, and information of the public (**Bruckmann**). Most of the currently available measurement networks use continuously operated radiometric measurement devices which can only reach the data quality requirements under specific conditions and with strong efforts in maintenance. Northrhine-Westphalia, in a first step will run 17 measurement sites for PM<sub>10</sub> and 5 for PM<sub>2.5</sub>. In vast parts of the Rhine Ruhr Area and other agglomerations, but also in medium-sized cities, non-attainment of limit values can be expected. First results of a research project show high contribution from secondary aerosols and fugitive emissions.

In Berlin, about one half of the urban background concentration is due to long-range transport. At traffic sites, concentrations exceed background values by up to 40 %. The traffic-related contribution consists of motor emissions and tyre dust to one half, the other half being due to resuspension (**Kutzner**). Preliminary results (**Abraham**) show that the application of local abatement measures in Berlin can only be expected to lead to relevant reductions of carbon-containing components such as soot, and of dust resulting from resuspension and building construction activities. Around one half of the immission concentrations cannot be influenced by local measures. Ionic components and particulate organic oxidation products can, if at all, only be reduced by regional and interregional measures.

In Hesse, the measurement network currently encompasses 33 continuous air quality monitoring sites (**Jacobi**). For particle measurements,  $\beta$ -radiometers are used which have been equipped with PM<sub>10</sub> sampling heads in early 2000. In a preliminary approach, the results are "adapted" to the reference method by applying a general factor of 1.3. An initial assessment based on  $PM_{10} = 0.83 \times TSP$  shows that the upper assessment threshold (with respect to daily and annual means) is exceeded in all of Hesse. In this State, two agglomerations can be defined according to the definition of the Daughter Directive (Rhine Main Region, Kassel and surroundings), while the remaining area can be grouped into 3 more parts (South Hesse, Lahn Dill Region, and Hessian Highlands).

In Saxonia, too, there are problems with attainment concerning the limit values for particulate matter given in the Daughter Directive, especially for daily mean values, whereas the annual mean of the first stage (40  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  in 2005) is not expected to cause major difficulties (**Gräfe**).  $\text{PM}_{10}$  amounts to some 60 % of TSP, and  $\text{PM}_{2.5}$  contributes about 60-70 % of  $\text{PM}_{10}$ . Comparisons between  $\beta$ -absorption and gravimetric measurements showed  $\text{PM}_{10}$  concentrations (by gravimetry) to amount to 64-89 % of TSP concentrations (by  $\beta$ -absorption).

The final discussion addressed open questions (**Seifert**) that resulted from the contributions and discussions of the four Sections. As could be expected, there were open questions and uncertainties in all fields covered (sources, effects, and assessment). Many participants expressed their wish for a follow-up meeting on the subject of fine particulate matter. If possible such meeting should take place within one year, but at least before the review of the Daughter Directive by the European Commission scheduled for the year 2003.

*The Editors*

## **SEKTION 1**

### **WIRKUNGEN UND BEWERTUNG VON FEINSTAUB**



## **1.1 GESUNDHEITSBEZOGENE GRUNDLAGEN DER ABLEITUNG DER NEUEN EU-GRENZWERTE**

**Norbert Englert**  
**Umweltbundesamt, Berlin**

Rechtliche Grundlage:

**Rahmenrichtlinie:**

RICHTLINIE 96/62/EG DES RATES  
vom 27. September 1996  
über die Beurteilung und die Kontrolle der Luftqualität

*(ABl. EG vom 21.11.1996: L 296/55)*

Nach Art. 4 (1) und (2)

legt die Kommission dem Rat Vorschläge für die Festlegung von Grenzwerten vor

unter Berücksichtigung der jüngsten wissenschaftlichen Forschungsergebnisse in den betreffenden Umwelt- und epidemiologischen Bereichen und der jüngsten Fortschritte auf dem Gebiet der Metrologie.

Die Umsetzung erfolgt in **Tochterrichtlinien**.

**Arbeitsgruppen** sollen die wissenschaftlichen Grundlagen in **Positionspapieren** darstellen, ausgehend von WHO-Bewertungen (AQG-Überarbeitung).

Dass für die neuen Luftqualitätsgrenzwerte der EU die WHO-Erkenntnisse und Empfehlungen als Grundlage herangezogen werden sollen, ist eine politische Entscheidung der EU. Dies bedeutet aber keinesfalls automatisch eine direkte Übernahme der Leitwerte als Grenzwerte. Abweichungen sind also grundsätzlich möglich, sollen aber nachvollziehbar in den Positionspapieren begründet werden.

Die **Staub-Arbeitsgruppe** wurde gemeinsam von Deutschland (B. Seifert, WaBoLu/UBA, Berlin) und Großbritannien (M. Williams, DoE, London) geleitet. Mitglieder der Gruppe kamen aus Dänemark, Frankreich, den Niederlanden und Spanien sowie DG XI, WHO, EEA, JRC, UNECE, Industrie, NGOs)

## WHO-Bewertungen (Überarbeitung der WHO-Luftgüteleitwerte für Europa)

- Bei Zeitreihenuntersuchungen zeigt sich ein statistischer **Zusammenhang** zwischen Partikel-Konzentrationen und gesundheitlichen Wirkungen **schon bei sehr geringen Expositions-Konzentrationen**.
- Aus den zur Verfügung stehenden Daten lässt sich **keine Schwelle** ableiten, unterhalb derer keine Wirkungen vorkommen, und aus den Ergebnissen epidemiologischer Studien kann eine derartige Schwelle – sofern sie existiert – nicht genau definiert werden.
- Bei geringen Konzentrationen (als 24-Stunden-Mittelwerte gemessen) ist die Expositions-Wirkungs-Beziehung wahrscheinlich weitgehend **linear**.

**WHO  $\Rightarrow$  Keine Vorgabe von Konzentrationen, sondern Angabe von Risiko-Schätzungen als Grundlage für Entscheidungen über Grenzwerte.**

## Welche Wirkungen / Befunde sollen berücksichtigt werden?

### (1) Mortalität

Datenlage gut bei Zeitreihenuntersuchungen, aber nur wenige Kohortenstudien verfügbar. Statistisch signifikanter Zusammenhang zwischen Mortalität (Gesamt-Mortalität und ursachenspezifische Mortalität) und Staub-Konzentration.

### (2) Morbidität

(Krankenhausaufnahmen, Arztbesuche, Asthmaanfälle, Medikamentenverbrauch)

Datenlage gut bei Krankenhausaufnahmen (Atemwegserkrankungen, Herz-Kreislauf-Erkrankungen), statistisch signifikanter Zusammenhang mit Staub-Konzentration. Andere Endpunkte weniger gut auswertbar.

### (3) Funktionsveränderungen (Lungenfunktionsmeßwerte)

Gezielte Daten-Erhebung erforderlich, daher Probandenzahl klein, Aussagekraft geringer.

**Datenquellen:**

**WHO**

**Schätzungen des relativen Risikos (RR) für einige gesundheitliche Endpunkte und Änderungen beim Peakflow (exspiratorischer Spitzenfluß) für einen Konzentrationsanstieg von  $PM_{10}$  or  $PM_{2,5}$  um  $10 \mu\text{g m}^{-3}$  [nach WHO Arbeitspapier vom Oktober 1996].**

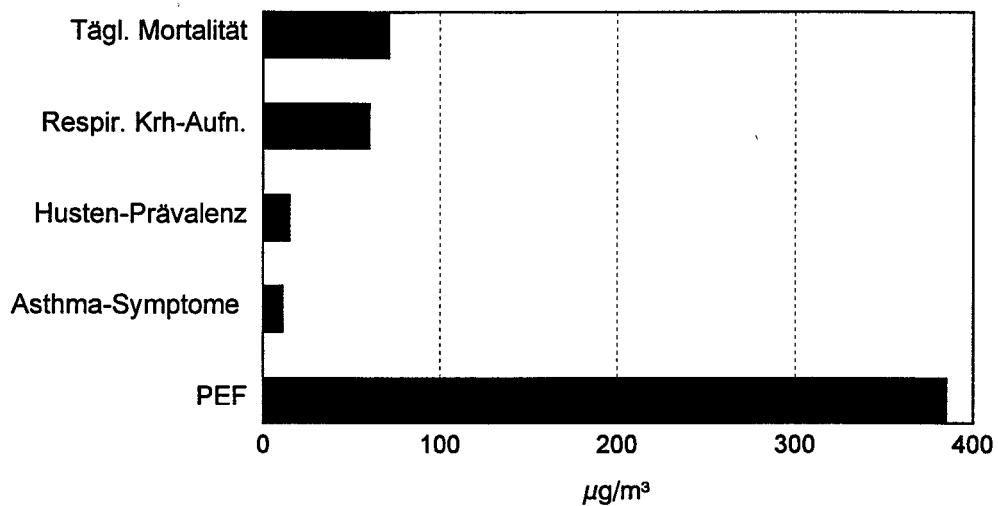
**UAS = Untere Atemwegs-Symptome, PEF = Peakflow, n.a. = nicht angegeben**

	$PM_{2,5}$	$PM_{10}$
<b>Wirkungs-Endpunkt</b>	<b>Relatives Risiko (95% K.I.)</b>	<b>Relatives Risiko (95% K.I.)</b>
Gebrauch von Bronchodilatatoren	n.a.	1,0337 (1,0205-1,0470)
Husten	n.a.	1,0455 (1,0227-1,0687)
UAS	n.a.	1,0345 (1,0184-1,0508)
Atemwegsbedingte Krankenhausaufnahmen	n.a.	1,0084 (1,0050-1,0117)
Tägliche Mortalität	1,0151 (1,0112-1,0190)	1,0070 (1,0059-1,0082)
<b>Wirkungen auf PEF</b>		
PEF-Änderung (bezogen auf Mittelwert)	n.a.	- 0,13% (-0,17%, -0,09%)

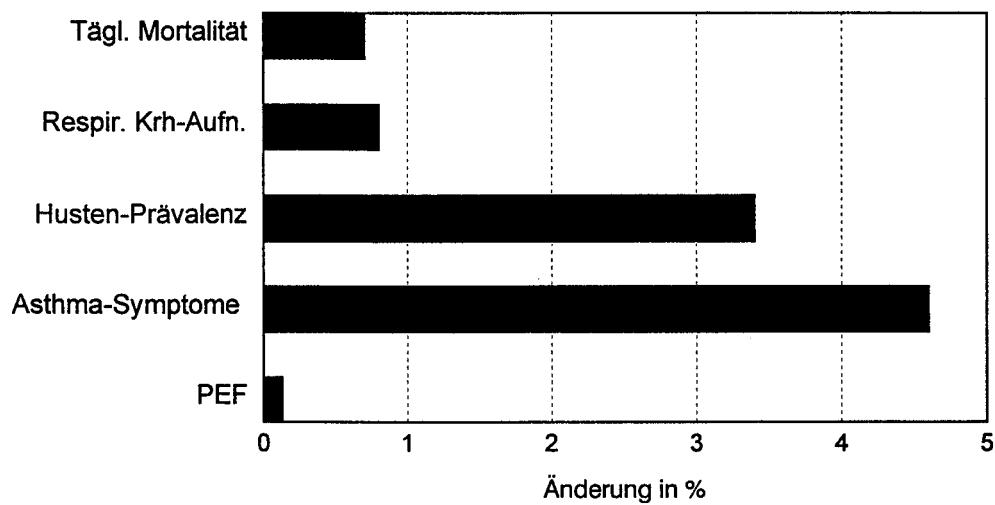
**Expositions-Wirkungs-Beziehungen für einige gesundheitliche Endpunkte (für  $PM_{10}$ ) aus Zeitreihenuntersuchungen.  $\Delta$  = Änderung, C = Konzentration.**

<b>Wirkungs-Indikator (WI)</b>	$\Delta C (\mu\text{g/m}^3)$	$\Delta WI (\%)$	$\Delta C (\mu\text{g/m}^3)$	$\Delta WI (\%)$
Tägliche Mortalität	71	5	10	0.7
Atemwegsbedingte Krankenhausaufnahmen	60	5	10	0.8
Prävalenz von Husten in der Allgemeinbevölkerung	15	5	10	3.4
Symptom-Verschlechterung bei Asthmatikern	11	5	10	4.6
PEF (mittlere Änderung in Bevölkerung)	385	5	10	0.13

## PM10 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) pro 5 % Effekt-Änderung



## Effekt-Änderung pro 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ PM10



**WHO-Bewertung (Stand 1999):**

Zusammenfassung von Studien über den Zusammenhang zwischen täglichen Schwankungen der **Gesamt-Mortalität** und täglichen Schwankungen von PM<sub>10</sub>, Relative Risiken geschätzt pro 10 µg/m<sup>3</sup>

Quelle	Relatives Risiko	95% Konfidenz-Intervall
Pope 1992, Utah Valley	1,015	1,009-1,021
Dockery 1992, St. Louis	1,015	0,999-1,029
Dockery, 1992, Kingston/Harriman	1,016	0,987-1,046
Schwartz 1993, Birmingham	1,010	1,002-1,018
Kinney 1995, Los Angeles	1,005	1,000-1,010
Ito 1995, Chicago	1,006	1,001-1,010
Verhoeff 1996, Amsterdam	1,006	0,999-1,014
Schwartz 1996, Boston	1,012	1,007-1,017
Schwartz 1996, Knoxville	1,009	1,001-1,018
Schwartz 1996, St. Louis	1,006	1,001-1,010
Schwartz 1996, Steubenville	1,009	1,001-1,016
Schwartz 1996, Madison	1,007	0,996-1,107
Schwartz 1996, Topeka	0,995	0,980-1,009
Ostro 1996, Santiago	1,008	1,006-1,010
Zmirou 1996, Lyon	1,002	0,994-1,010
Spix 1996, Cologne	1,003	1,000-1,006
Saldiva 1995, Sao Paulo	1,012	1,007-1,017
<b>Gemeinsame Schätzung</b>	<b>1,0074</b>	<b>1,0062-1,0086</b>

### WHO-Bewertung (Stand 1999):

Zusammenfassung von Studien über den Zusammenhang zwischen täglichen Schwankungen der **Krankenhaus-Aufnahmen wegen Atemwegserkrankungen** und täglichen Schwankungen von  $PM_{10}$ , Relative Risiken geschätzt pro  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$

Quelle	Relatives Risiko	95% Konfidenz-Intervall
Schwartz 1996	1,016	1,007-1,026
Schwartz 1995	1,012	1,000-1,025
	1,019	1,006-1,032
Dab 1996	1,004	1,000-1,008
Schwartz 1996	1,011	1,001-1,022
Thurston 1994	1,047	1,005-1,088
Gemeinsame Schätzung	1,0080	1,0048-1,0112

Gegenüber dem im Positionspapier berücksichtigten Stand haben sich also keine wesentlichen Änderungen mehr ergeben.

## APHEA (Air Pollution and Health : a European Approach)

Vorläufige Ergebnisse von APHEA [7th ISEE/5th ISEA conference, August 30 - September 1, 1995, Noordwijkerhout, The Netherlands]

Wirkungs-Indikator (WI)	$\Delta C$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	$\Delta WI$ (%)	$\Delta C$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	$\Delta WI$ (%)
Tägliche Mortaliät*	125	5	10	0.4
Atemwegsbedingte Krankenhausaufnahmen**	100	5	10	0.5

\* basierend auf RR=1,04 für einen  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ -Anstieg bei  $\text{PM}_{10}$  (24h).

\*\* basierend auf RR=1,019 (15-64 Jahre) und RR=1,033 (65+ Jahre) für einen  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ -Anstieg bei TSP (24h); die Gesamtzahl der Aufnahmen war für die beiden Altersgruppen fast gleich, daher zu RR=1,026 zusammengefaßt.

### Spätere Veröffentlichungen:

#### Gesamt-Mortalität:

6 Städte (Barcelona, Bratislava, Köln, Lyon, Mailand, Paris)

RR pro  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3 \text{PM}_{10}$ : 1,022 (1,013-1,031)

RR pro  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3 \text{PM}_{10}$ : 1,0044

(Katsouyanni K, Touloumi G, Spix C, Schwartz J, Balducci F, Medina S, Rossi G, Wojtyniak B, Sunyer J, Bacharova L, Schouten JP, Ponka A, Anderson HR, 1997. Short term effects of ambient sulphur dioxide and particulate matter on mortality in 12 European cities: results from time series data from the APHEA project. *BMJ* 314: 1658-1653.)

#### Krankenhaus-Aufnahmen (wegen Atemwegserkrankungen):

3 Städte (Amsterdam, Rotterdam, Mailand)

RR pro  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3 \text{TSP}$ : 15-64 Jahre: 1,010 (0,989 – 1,031)  
65+ Jahre: 1,016 (0,994 – 1,039)

RR pro  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3 \text{TSP}$ : 15-64 Jahre: 1,002  
65+ Jahre: 1,0032

(Spix C, Anderson HR, Schwartz J, Vigotti MA, LeTertre A, Vonk JM, Touloumi G, Balducci F, Piekarski T, Bacharova L, Tobias A, Pönkä A, Katsouyanni K, 1998. Short Term Effects of Air Pollution on Hospital Admissions of Respiratory Diseases in Europe: A Quantitative Summary of APHEA Study Results. *Archives of Environmental Health* 53: 54-64.)

## **HEI (Health Effects Institute)**

Reanalyse von Zeitreihen-Untersuchungen:

„Given that the Phase I analyses agreed with those of the Original Investigators, it is reasonable to conclude that, in these six data sets, daily mortality from all causes combined, and from cardiovascular and respiratory causes in particular, increased as levels of particulate air pollution indexes increased. However, the detailed analyses of the Philadelphia data set support a call for caution in assuming that this association represents an independent effect of particles alone. Also, as the New Analysts point out in their report, Phase I analyses were not intended to determine if the observed association of particulate air pollution with mortality is causal.“

(Angesichts dessen, daß die Analysen der Phase I mit denjenigen der ursprünglichen Untersucher übereinstimmten, ist der Schluß vernünftig, daß in diesen sechs Datensätzen die tägliche Mortalität für alle Ursachen zusammen und durch kardiovaskuläre und respiratorische Ursachen im Besonderen mit dem Anstieg der Maßzahlen der partikelförmigen Luftverunreinigung ebenfalls anstieg. Die detaillierte Analyse des Datensatzes aus Philadelphia spricht für Vorsicht bei der Annahme, daß diese Assoziation einen unabhängigen Effekt nur von Partikeln darstellt. Wie die Neuen Analysten in ihrem Bericht ausführen, hatten die Analysen der Phase I auch nicht das Ziel, zu klären, ob die beobachtete Assoziation zwischen der partikelförmigen Luftverunreinigung und der Mortalität kausal ist.)

Zur Frage der Linearität sahen die neuen Analysten (Samet et al.) Anzeichen dafür, daß nichtlineare Ansätze besser geeignet sein könnten. (vgl. Fig.9 S. 31; Fig.11 links S. 33; aber Fig.1 S 120).

(HEI August 1995, The Phase I Report of the Particle Epidemiology Evaluation Project)

## Methodische Fragen:

### (1) **Kausalität** (Epidemiologie; statistischer vs. kausaler Zusammenhang)

**Kriterien** von Arthur Bradford Hill:

#### **Stärke der (statistischen) Assoziation**

u.a. abhängig von Umfang der Datenbasis (Mortalität und Krankenhaus-Aufnahmen)

#### **Konsistenz** (Ergebnisse voneinander unabhängiger Untersuchungen)

HEI Particle Epidemiology Evaluation Project; APHEA

#### **Spezifität**

Gesamt-Mortalität, respiratorische und cardiovaskuläre Mortalität

#### **Zeitliche Abfolge** (Ursache vor Wirkung)

Assoziation mit Partikelwerten des Vortages oder Vorvortages

#### **Biologischer Gradient** (Dosis-Wirkungs-Beziehung)

Linearität? Vgl. HEI

#### **Kohärenz** (zueinander passende Effekte)

Asthmaanfälle, Krankenhaus-Aufnahmen wegen Atemwegserkrankungen, Mortalität

#### **Biologische Plausibilität** (keine notwendige Bedingung)

Vgl. Seaton (kleine Partikel verursachen Entzündungen im Alveolarbereich, dadurch Mediatoren-Freisetzung und Änderung der Blutkoagulabilität, kardiovaskuläres Risiko)

Hill AB, 1965. The Environment and Disease: Association or Causation? *Proc. Royal Soc. Med.* 58: 295-300.

Seaton, A, MacNee W, Donaldson K, Godden D, 1995. Particulate air pollution and acute health effects. *Lancet* 345: 176-178.

### (2) **Zuordnung** (Kombinationen)

Partikel allein (USA) vs. PM und SO<sub>2</sub> (APHEA, HEI?)

### (3) **Plausibilität** (Mechanismen)

(Vgl. Seaton)

#### (4) Zeitrahmen (Zeitreihen, Kohorten; akut, chronisch )

Mortalität als Sonderfall:

Keine Zunahme, sondern nur zeitliche Verschiebung.

Zahlenmäßig unterschiedliche Ergebnisse, aber:

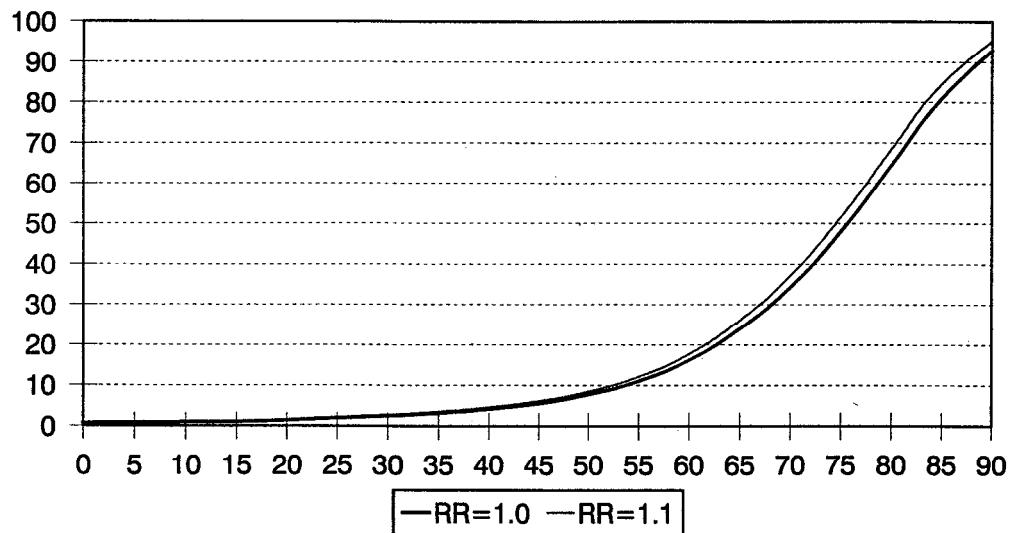
RR hat in Zeitreihen-Untersuchungen und Kohorten-Studien unterschiedliche Bedeutung (Erhöhung der Zahl der täglichen/jährlichen Todesfälle in Population; Erhöhung der Wahrscheinlichkeit, in einem bestimmten Zeitraum zu sterben).

Lebenszeitverkürzung als geeignetes Maß, nicht direkt meßbar. Altersabhängigkeit!

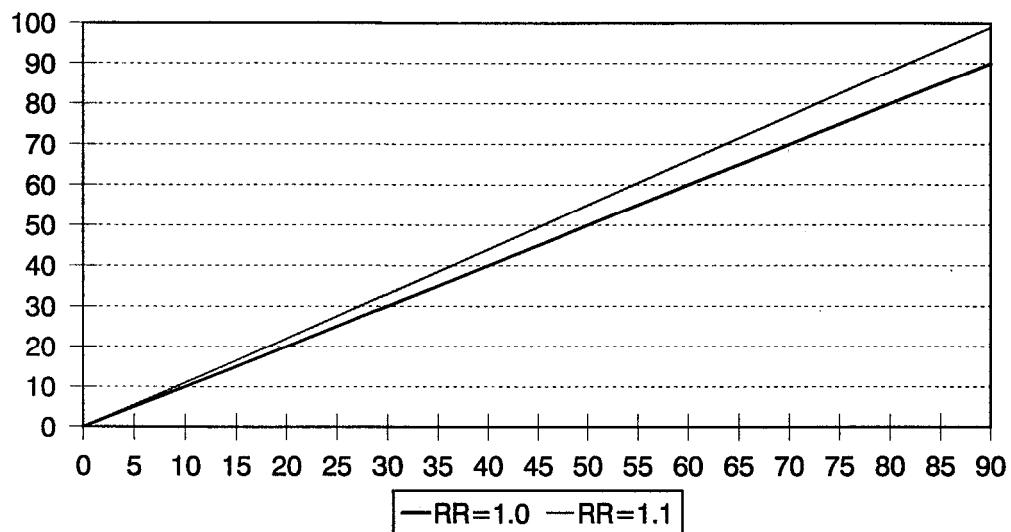
Plausibilitätskontrolle:

Bevölkerung = Mittlere Lebenszeit x Jährliche Mortalität		
Bevölkerung	Mittlere Lebenszeit	Jährliche Mortalität
1.000.000	80	12.500
1.000.000	76,2	13.125
1.000.000	72,7	13.750
1.000.000	40	25.000
1.000.000	100	10.000

x 1000



x 1000



**Einfluß der Altersabhängigkeit auf die Mortalität in einer Kohorte (Geburt bis Tod) mit einem Relativen Risiko (RR) von 1.1. Oberer Teil: „Reale“ Mortalitätskurve deutscher Männer [Stat. Jahrbuch 1995]. Unterer Teil: Hypothetische altersunabhängige Mortalitätskurve.**

Y-Achse: Zahl der Personen in einer Lebenszeit-Kohorte, die bis zu dem auf der x-Achse angegebenen Alter (in Jahren) gestorben sind.

## Was soll gemessen / begrenzt werden?

- (1) Korngröße (TSP, PM<sub>10</sub>, PM<sub>2,5</sub>, PM<2,5, UF)
- (2) Andere Eigenschaften (Oberfläche, Anzahl)
- (3) Wirkungs- und Meßtechnik-Gesichtspunkte
- (4) Was ist machbar / finanzierbar?

## Wirkungsaspekte:

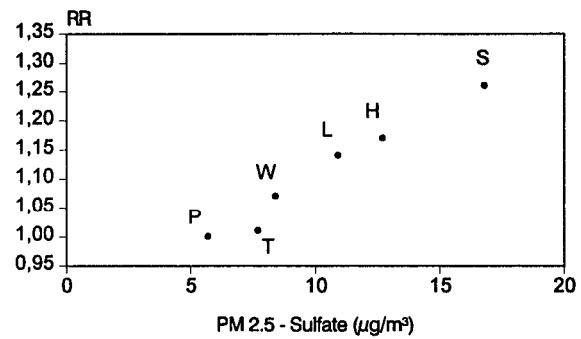
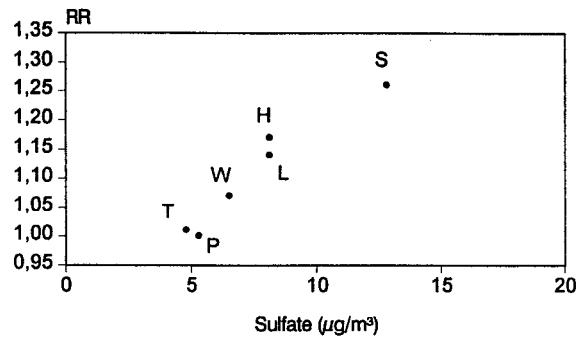
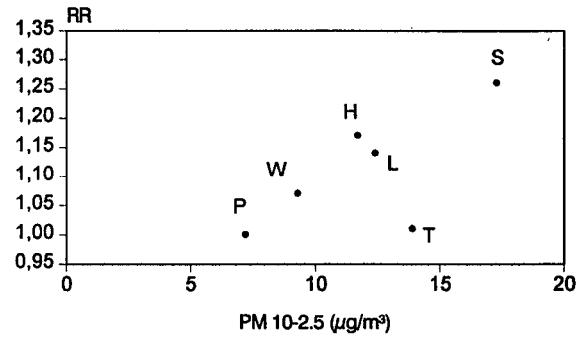
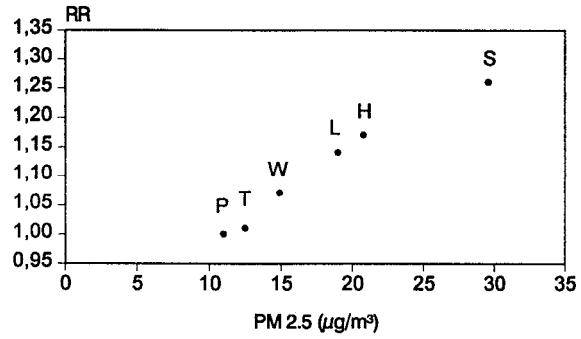
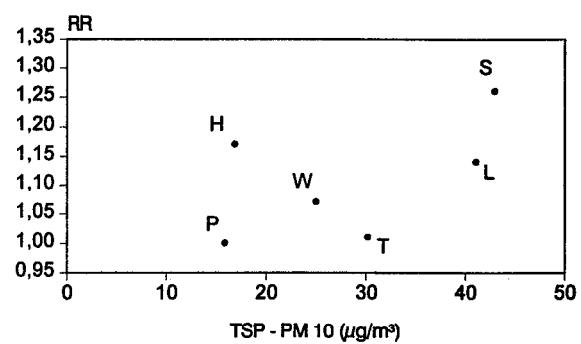
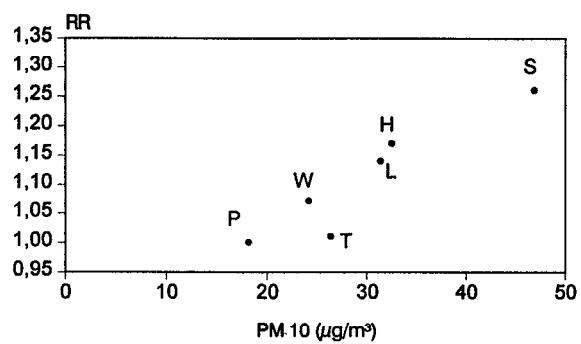
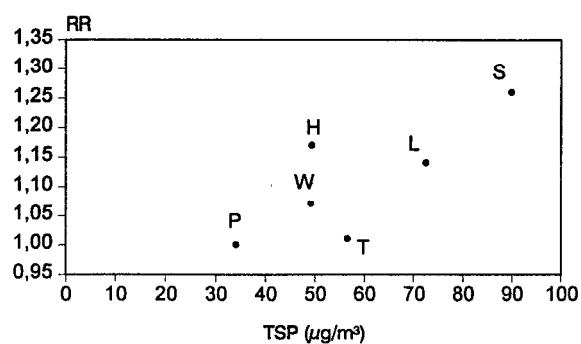
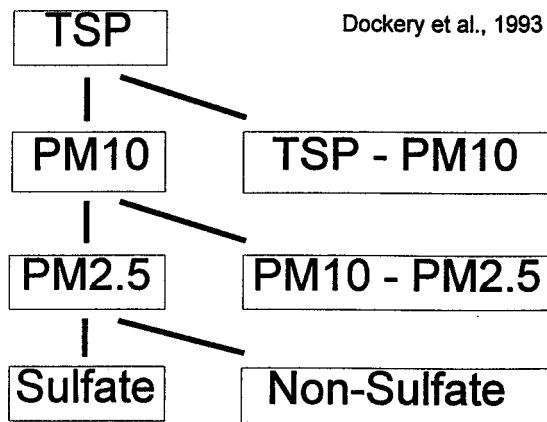
Korngröße:

Depositionsmöglichkeit im Atemtrakt (nur kleine Partikel kommen in den Alveolarbereich)

6-Städte-Studie (Konzentrationsangaben in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ):

Stadt	Adjust. RR	TSP	PM <sub>10</sub>	TSP- PM <sub>10</sub>	PM <sub>2,5</sub>	PM <sub>10-2,5</sub>	Sulfate	PM <sub>2,5-</sub> Sulfate
Portage, Wis.	1,00	34,1	18,2	15,9	11,0	7,2	5,3	5,7
Topeka, Kans.	1,01	56,6	26,4	30,2	12,5	13,9	4,8	7,7
Watertown, Mass.	1,07	49,2	24,2	25,0	14,9	9,3	6,5	8,4
Harriman, Tenn.	1,17	49,4	32,5	16,9	20,8	11,7	8,1	12,7
St. Louis	1,14	72,5	31,4	41,1	19,0	12,4	8,1	10,9
Steubenville, Ohio	1,26	89,9	46,9	43,0	29,6	17,3	12,8	16,8

Dockery DW, C. A. Pope I, Xu X, Spengler JD, Ware JH, Fay ME, Ferris BG, Speizer FE, 1993. An Association Between Air Pollution and Mortality in Six U.S. Cities. *New England J Med* 329: 1753-1759.



## **Meßtechnik:**

Vergleichsmessungen (u.a. Laskus) für PM<sub>10</sub> vorhanden, für PM<sub>2,5</sub> noch nicht

## **Schlußfolgerungen der Arbeitsgruppe:**

- PM<sub>10</sub> als vernünftiger Kompromiß zwischen theoretischen Argumenten für die Messung sehr kleiner Partikel und der Nutzung von Wissen und praktischer Erfahrung aus Messungen von TSP und PM<sub>10</sub>.
- Keine Angabe von Alarmschwellen

## **Wie kann ein Grenzwert festgelegt werden?**

(1) Zeitrahmen (zeitliche Auflösung 30 min, h, 24 h, a; absolut oder Perzentile)

Mittelungszeiten 24 Stunden und 1 Jahr

(2) Praktikabilität

Perzentile besser als Absolutwert (Stabilität)

(3) Schwelle, Zumutbarkeit

Ohne Schwelle politische Entscheidung.

Daher WHO: Nur Angabe von Exposition-Wirkungs-Beziehungen

## **Grenzwertvorschläge im Positionspapier**

### 1. Schritt: Bereiche

Mittelungszeit	PM <sub>10</sub> -Konzentration
24 h	30-100 µg/m <sup>3</sup>
Jahr	15-40 µg/m <sup>3</sup>

Damit wollte sich die Gruppe eigentlich begnügen, da die konkrete Festlegung eine politische Entscheidung sei. Schließlich - nachdem aus dem Steering Committee dringend ein entsprechender Wunsch geäußert wurde - entschloß sich die Gruppe aber doch, Werte vorzuschlagen.

## 2. Schritt: Konkrete Werte

Mittelungszeit	PM <sub>10</sub> -Konzentration
24 h	50 µg/m <sup>3</sup> (98%)
Jahr	20 µg/m <sup>3</sup>

Überlegungen der Arbeitsgruppe:

- Für **24-h-Wert** aus praktischen Gründen keine Absolutgrenze, sondern Perzentilen-Angabe (bzw. Angabe der zulässigen Zahl der Überschreitungen).
- Wegen Stabilität 98-Perzentil.
- Wenn Tagesmittelwert von 20 auf 50 µg/m<sup>3</sup> steigt, nimmt die Zahl der Krankenhaus-Aufnahmen wegen Atemwegserkrankungen um 0,5 bis 1 Patient pro Million Einwohner zu.  
(Lit.: Wordley J, Walters S, Ayres JG, 1997. Short term variations in hospital admissions and mortality and particulate air pollution. *Occupational and Environmental Medicine* 54: 108-116.)
- Zur Frage des Zusammenhangs zwischen Staubbelastung und Mortalität nimmt das Positionspapier zwar ausführlich Stellung, auch zur Frage, wie die Ergebnisse von Kohortenstudien zu sehen sind, aber zur Veranschaulichung, mit welchen Wirkungen noch bei Einhaltung der neuen Grenzwerte zu rechnen ist, wurde bewußt nicht die Mortalität gewählt, sondern Krankenhaus-Aufnahmen als weniger emotionsbeladenes Beispiel.
- 50 µg/m<sup>3</sup>
  - empfohlen von UK Expert Panel
  - Zielvorstellung aus Auto-Oil-Programm
- Unter üblichen Bedingungen wäre der zugehörige Jahresmittelwert 20 µg/m<sup>3</sup>.

### (1) Kosten-Nutzen

Stark von Mortalitäts-Ansätzen beeinflußt.

### (2) Weiterentwicklung (neue Erkenntnisse, Wirkung, Meßtechnik)

Keine Vorschläge zum Zeitrahmen, aber Empfehlung der Gruppe, daß die Grenzwerte innerhalb von 5 Jahren nach Inkrafttreten überprüft werden sollen (Höhe, PM<sub>2,5</sub>).

(vgl.: Health Effects Institute, 1999. The Health Effects of Fine Particles: Key Questions and the 2003 Review. HEI Communications Number 8. Cambridge, MA 02139: Health Effects Institute.)

## Ausnahmen

- (3) Mittelmerländer, geogener Staub; Straßenstreuung mit Sand

Als Alternative zu  $PM_{10}$  könnte  $PM_{2,5}$  geeigneter sein, da hierbei geringere Beeinflussung durch geogenen Staub anzunehmen ist.

Als weitere Ausnahme wird in der Richtlinie in Artikel 5 (5) die Aufwirbelung von Partikeln nach einer Streuung von Straßen mit Sand im Winter genannt.

Richtlinie 1999/30/EG des Rates vom 22. April 1999 über Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid und Stickstoffoxide, Partikel und Blei in der Luft.

ABL. EG vom 29.06.1999: L 163/41.

### Grenzwerte für Partikel ( $PM_{10}$ )

Mittelungszeitraum	Grenzwert	Zeitpunkt, bis zu dem der Grenzwert zu erreichen ist
<b>Stufe 1</b>		
1. 24-Stunden-Grenzwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit	24 Stunden <b>50 <math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math> <math>PM_{10}</math> dürfen nicht öfter als <b>35mal</b> im Jahr überschritten werden</b>	1. Januar 2005
2. Jahresgrenzwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit	Kalenderjahr <b>40 <math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math> <math>PM_{10}</math></b>	1. Januar 2005
<b>Stufe 2 (¹)</b>		
1. 24-Stunden-Grenzwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit	24 Stunden <b>50 <math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math> <math>PM_{10}</math> dürfen nicht mehr als <b>7mal</b> im Jahr überschritten werden</b>	1. Januar 2010
2. Jahres-Grenzwert zum Schutz der menschlichen Gesundheit	Kalenderjahr <b>20 <math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math> <math>PM_{10}</math></b>	1. Januar 2010

- (1) Richtgrenzwerte, die im Lichte weiterer Informationen über die Auswirkungen auf Gesundheit und Umwelt, über die technische Durchführbarkeit und über die bei der Anwendung der Grenzwerte der Stufe 1 in den Mitgliedstaaten gemachten Erfahrungen zu überprüfen sind.

**(Achtung: Toleranzmargen sind in dieser Tabelle nicht angegeben!)**

## **1.2 LUFTVERSCHMUTZUNG: DIE GESUNDHEITLICHEN FOLGEN IN ÖSTERREICH, FRANKREICH UND DER SCHWEIZ - EINE TRINATIONALE STUDIE**

**Nino Künzli**

**Institut für Sozial- und Präventivmedizin der Universität Basel**

Bei der trinationalen Studie handelt es sich um eine Applikation von interdisziplinärer Forschung in politischem Kontext. Die Schweizer Behörden beschäftigen sich seit Jahren mit den externen Kosten des Strassenverkehrs. Langfristiges Ziel ist die Internalisierung dieser Kosten als Instrument der Förderung nachhaltiger Entwicklung. Die Forschungsresultate aus den Schweizer Projekten SAPALDIA (Ackermann et al, 1997; Zemp et al, 1999) und SCARPOL (Braun-Fahrländer et al, 1997) haben die Frage nach den externen Kosten der verkehrsbedingten Luftverschmutzung aufgeworfen. Vorgängig wurden in der Schweiz bereits externe Kosten von Lärm, Gebäudeschäden sowie Unfällen erhoben. In einer ersten Phase wurde 1996 eine Monetarisierungsstudie für die Schweiz durchgeführt (Sommer et al, 1996). Die Schweizer Behörden haben anschliessend eine internationale Analyse initiiert. Die Behörden von Österreich, Frankreich und der Schweiz haben das Projekt gemeinsam finanziert. Fachleute aus den Bereichen der Ökonomie, der Biostatistik, der Umweltepidemiologie sowie der Lufthygiene haben sich in allen Ländern am gemeinsamen Projekt beteiligt. Die vollständigen Berichte sind auf der WHO-homepage erhältlich ([www.who.dk/london99/transport04.htm](http://www.who.dk/london99/transport04.htm)). Die Berechnung der attributablen Fallzahlen wurde in einem separaten Artikel publiziert (Künzli et al, 2000). Die Frage der Berechnung der externen Kosten steht in direktem Zusammenhang mit der Europäischen Frage zur Festlegung der Transitkosten für den (Schwer-)Verkehr durch die Alpen.

Die Berechnungsmethode umfasst folgende Schritte:

1. Die Verteilung der Schadstoffbelastung in der Bevölkerung mit und ohne Strassenverkehr muss abgeschätzt werden (Lufthygiene).
2. Die mathematische Wirkungsfunktion zwischen Luftverschmutzung und Gesundheit muss bekannt sein (Epidemiologie).
3. Aufgrund der beiden erstgenannten Informationen können die pro Schadstoffeinheit der Belastung attributablen Fallzahlen hochgerechnet werden (Epidemiologie).
4. Die attributablen Fallzahlen werden in Kostensätze umgewandelt (Ökonomie).

Auf allen Berechnungsstufen bestehen Unsicherheiten sowie Datenlücken, insbesondere an den Schnittstellen zwischen Epidemiologie, Lufthygiene und Ökonomie, da die entsprechende Grundlage in der Regel nur innerhalb der Spezialbereiche ohne interdisziplinäre Kollaboration erarbeitet wurde. Angesichts der inhärenten Unsicherheiten haben wir uns im trinationalen Projekt dafür entschieden, die methodischen Einzelschritte so festzulegen, dass das Gesamtresultat eher eine Mindestschätzung der Folgen reflektiert. Der berechnete statistische Unsicherheitsbereich beruht lediglich auf der Benutzung der Vertrauensintervalle der Belastungs-Wirkungs-Beziehungen aus der Epidemiologie. Die anderen Aspekte der Unsicherheit wurden bei diesem Vorgehen nicht quantifiziert.

## **Luftverschmutzung**

Die Berechnungen erfolgten auf der Grundlage der geschätzten Belastung durch  $PM_{10}$  (Schwebstaub mit Durchmesser bis zu  $10\text{ }\mu\text{m}$ ).  $PM_{10}$  wird in diesem Kontext als Indikator für die Gesamtbelastung verwendet. Summenbildung von Schadenshochrechnungen für einzelne Schadstoffe würden unweigerlich zur Überschätzung der Auswirkungen führen, da die Schadstoffe in der Umwelt teilweise hoch korreliert sind und aus den gleichen Quellen stammen.

In allen drei Ländern musste unter Verwendung der jeweils vorhandenen Daten eine räumliche Modellierung der Jahresmittelwerte für  $PM_{10}$ -Immissionen vorgenommen werden (Filliger et al, 1999). Mangels Immissionsdaten erfolgte die Modellierung in Frankreich und Österreich indirekt unter Nutzung anderer Partikeldaten (TSP, black smoke). Die Schweizer Belastungskarten konnten erstmals aus Emissionskataster-Daten hergeleitet werden, wobei sowohl primäre wie sekundäre Partikel berücksichtigt wurden. Diese Modelle ermöglichen die Abschätzung der verkehrsspezifischen Anteile. Das bevölkerungsgewichtete Mittel der  $PM_{10}$ -Belastung war in allen drei Ländern ähnlich, ebenso die Belastungsverteilung in der Bevölkerung (siehe Folien).

## **Definition der Gesundheit**

Bei der Operationalisierung von „Gesundheit“ wurde darauf geachtet, Parameter auszuwählen, für welche die Auswirkung epidemiologisch gut etabliert ist, die Belastungs-Wirkungs-Funktion publiziert wurde, die Grunddaten über die Häufigkeit der Gesundheitsstörung in der Bevölkerung verfügbar waren, die Abgrenzbarkeit zwischen den einzelnen Gesundheitsschäden gewährleistet ist, sowie deren Monetarisierbarkeit gegeben war. Obwohl für die Risikofunktion bisher in keiner Studie Hinweise für einen Schwellenwert gefunden wurden, haben wir die Folgeschäden lediglich ab einem Sockelwert von  $7,5\text{ }\mu\text{g}/\text{m}^3$   $PM_{10}$  hochgerechnet. Dieser Wert berücksichtigt sowohl den Mangel an Studien in Bevölkerungen mit noch tieferer Belastung als auch die Annahme eines natürlichen Hintergrundbelastungssockels für  $PM_{10}$  aus natürlichen Quellen. Die publizierten Belastungs-Wirkungs-Funktionen wurden der epidemiologischen Literatur entnommen und als varianzgewichtete Mittelwerte berechnet. Aus diesem Risikoschätzer sowie der Erkrankungsgrundhäufigkeit in der Bevölkerung lässt sich die Anzahl zusätzlicher Fälle pro Einheit Schadstoff und eine Million Einwohner hochrechnen (siehe Tabellen). Die Kombination dieser Daten mit der Belastungsverteilung in der Bevölkerung ergibt die der Luftverschmutzung anzulastenden attributablen Fälle. Dieselbe Berechnung kann mit der Belastungsverteilung ohne Straßenverkehr durchgeführt werden. Die Differenz der beiden Hochrechnungen ergibt die dem Verkehr anzulastenden gesundheitlichen Schäden.

## **Monetarisierung**

Bei der Monetarisierung stehen vor allem die Schwierigkeiten der Kostenberechnungen für Todesfälle im Vordergrund. Im trinationalen Projekt wurde die Monetarisierung auf Zahlungsbereitschaftswerte abgestützt. Die externen Kosten (600-800 Euro/Kopf/Jahr) zeigten für alle drei Länder vergleichbare Resultate. Mit 73% fällt dabei der grösste Teil zu Lasten der Todesfälle. Als Folge der Methodik (Zahlungsbereitschaft) sind diese Kostensätze nicht mit den üblicherweise im Gesundheitswesen ausgewiesenen Unkosten zu vergleichen. Die

direkten krankheitsbedingten Kosten (Behandlungen, Spitalaufenthalt etc.) umfassen lediglich einen Bruchteil der Gesamtsumme.

## Diskussion

Die Wahl der Kostensätze resp. der Methode der Monetarisierung hat einen erheblichen Einfluss auf das Schlussresultat. Sie ist die wichtigste Ursache von Abweichungen zwischen verschiedenen Studien zu ähnlichen Fragestellungen. Von grosser Bedeutung ist jedoch auch die Festlegung der „Sockelbelastung“, welche je nach Fragestellung sehr unterschiedlich gewählt wurde. Da in allen Ländern insbesondere im unteren Bereich (beispielsweise zwischen 10 und 20  $\mu\text{g}/\text{m}^3$   $\text{PM}_{10}$ -Jahresmittelwert) grosse Anteile der Bevölkerung leben, ist es sehr entscheidend, ob die gesamten attributablen Fälle berechnet werden oder - je nach Fragestellung - lediglich die Fälle, welche einer Belastung von beispielsweise mehr als 20  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  zugeordnet werden können (siehe Tabelle). Unsicherheiten in der Belastungs-Wirkungs-Kurve resp. der Belastungsmodellierung fallen insgesamt weniger stark ins Gewicht. Bei der Berechnung der attributablen Todesfälle stellt sich als einflussreicher Parameter die Wahl der Belastungs-Wirkungs-Beziehung heraus. Im trinationalen Projekt wurde die Wirkungsbeziehung der zum damaligen Zeitpunkt verfügbaren zwei amerikanischen Kohortenstudien benutzt. Im Gegensatz zu den sehr zahlreich publizierten Zeitreihenanalysen erfassen die Kohortenstudien die gesamten Folgen der Luftverschmutzung, das heisst sowohl die kurzfristig auf die Belastung kurz vor dem Tod zurückzuführenden Fälle als auch die langfristigen Auswirkungen der Luftverschmutzung auf die Lebenserwartung als Folge erhöhter Morbidität (zum Beispiel chronische Bronchitis) reduzieren die Lebenserwartung; die Schadstoffbelastung zum Zeitpunkt des Todes muss in diesen Fällen nicht unbedingt eine Mitursache des Todeseintritts sein. Die Verwendung von Wirkungskurven aus Kohortenstudien entspricht somit dem Versuch, die Gesamtwirkung zu erfassen. Der Nachteil dieses Vorgehens liegt darin, dass man sich derzeit auf eine geringe Anzahl Studien abstützen muss. Diese wurden zudem in den USA durchgeführt, und die Übertragbarkeit auf Europa ist bisher nicht klar belegt. Immerhin zeigt sich in den Studien betreffend kurzfristige Auswirkungen eine hohe Übereinstimmung der Resultate von Westeuropa und USA.

Trotz der inhärenten Unsicherheiten bei den Hochrechnungen lässt sich aus dem Projekt folgern, dass die Auswirkungen der Luftverschmutzung in Mitteleuropa nicht unerheblich sind. Eine konsequente europäische Luftreinhaltepolitik entspricht folglich einer klaren gesundheitspolitischen Forderung.

## Referenzen

Ackermann-Liebrich U, Leuenberger Ph, Schwartz J, et al, Künzli N, and SAPALDIA Team. Lung Function and Long Term Exposure to Air Pollutants in Switzerland. Am J Respir Crit Care Med 1997; 155 (1): 122-129

Braun-Fahrlander C, Vuille J, Sennhauser F, Neu U, Künzle T, Grizé L et al. Respiratory Health and Long-term Exposure to Air Pollutants in Swiss Schoolchildren. Am J Respir Crit Care Med 1997;155(3):1042-1049

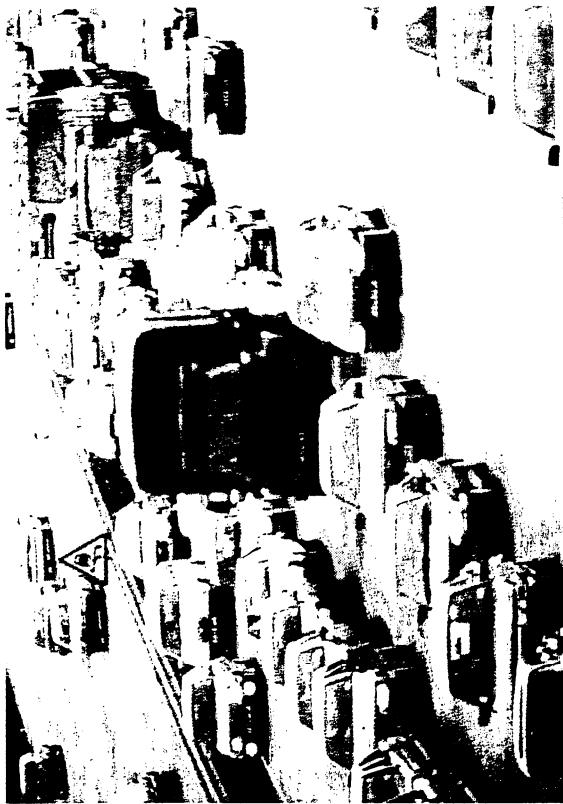
Filliger P, Puybonnieux-Texier V, and Schneider J. PM<sub>10</sub> Population Exposure Technical Report on Air Pollution. Health Costs due to Road Traffic-related Air Pollution. An impact assessment project of Austria, France and Switzerland. 1999. Bern, Paris, Wien, Prepared for the Third WHO Ministerial Conference for Environment and Health, London.

Künzli N, Kaiser R, Medina S, Studnicka M, Chanel O, Filliger P, Herry M, Horak F. Jr, Puybonnieux-Texier V, Quénel P, Schneider J, Seethaler R, Vergnaud J-C, Sommer H. Public Health Impact of Outdoor and Traffic-related Air Pollution: A Tri-national European Assessment. *Lancet* 2000; in press

Künzli N, Kaiser R, Rapp R, Sommer H, Wanner H, Ackermann-Liebrich U. Luftverschmutzung in der Schweiz - Quantifizierung gesundheitlicher Effekte unter Verwendung epidemiologischer Daten. *Schweiz Med Wochenschr* 1997; 127: 1361-1370

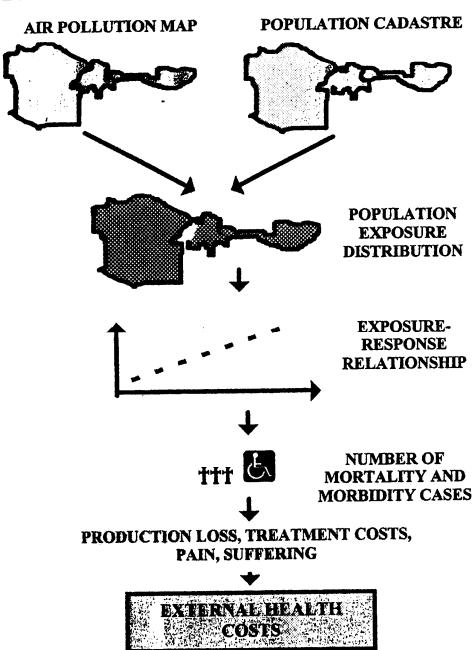
Sommer H, Neuenschwander RE. Monetarisierung der verkehrsbedingten Gesundheitskosten: Synthesebericht. Bern: GS EVED Dienst für Gesamtverkehrsfragen GVF, 1996

Zemp E; Elsasser S; Schindler C; Künzli N; Perruchoud AP, Leuenberger Ph et al. and SAPALDIA Team. Long-Term Ambient Air Pollution and Respiratory Symptoms in Adults. *Am J Respir Crit Care Med* 1999; 159:1257-1266



WHO Workshop European Centre for Environment and Health, Workshop 31.3.-1.4.99, Rome.  
Health Effects of Air Pollution: population exposure, risk estimates, population impact.

Figure 1: General framework of the impact assessment



## Luftverschmutzung: Die gesundheitlichen Folgen in Österreich, Frankreich und der Schweiz Eine trinationale Studie

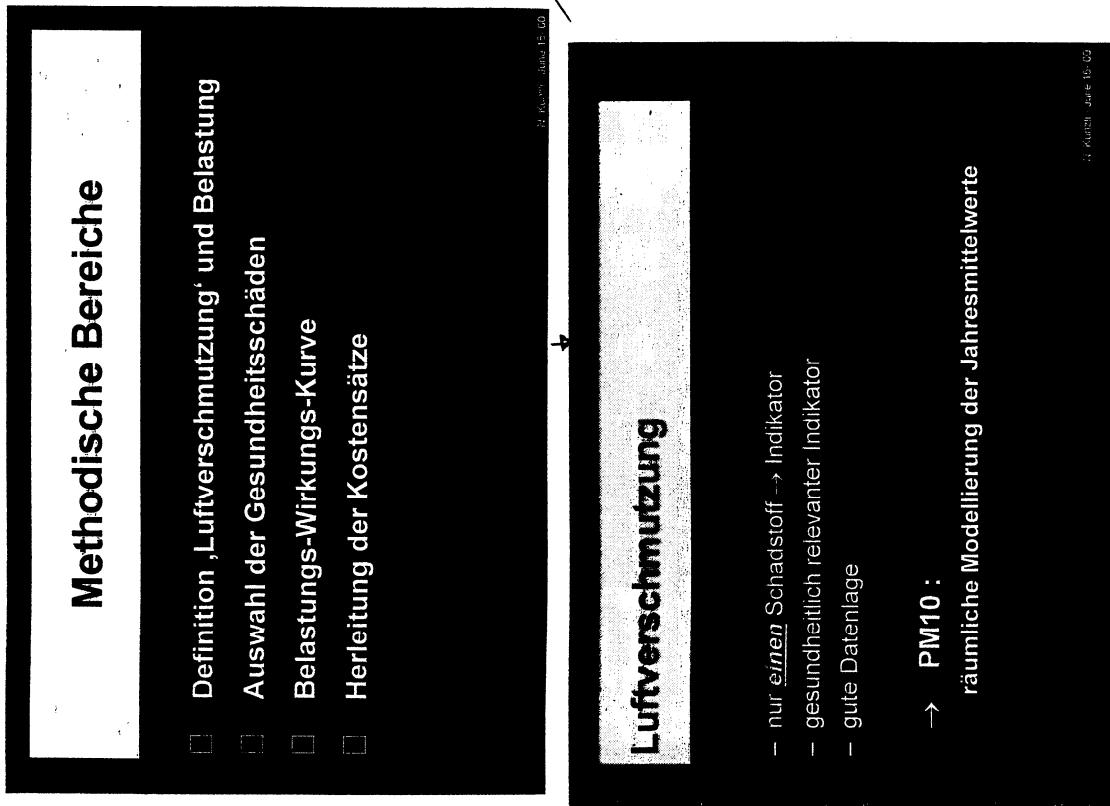
Dr. med. Nino Künzli, PhD  
Institut für Sozial- und Präventivmedizin der  
Universität Basel

N.Kuenzli@ispmbs.unibas.ch / <http://www.unibas.ch/ispmb>

All reports are available at:

[www.who.dk/london99/transport04.htm](http://www.who.dk/london99/transport04.htm)

N. Künzli / 19-June-00



## Methodische Bereiche

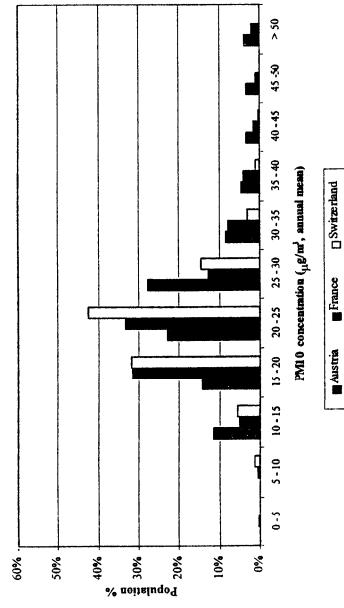
- Definition 'Luftverschmutzung' und Belastung**
- Auswahl der Gesundheitsschäden**
- Belastungs-Wirkungs-Kurve**
- Herleitung der Kostensätze**

## Luftverschmutzung

- nur einen Schadstoff → Indikator
- gesundheitlich relevanter Indikator
- gute Datenlage

→ **PM10 :**  
räumliche Modellierung der Jahresmittelwerte

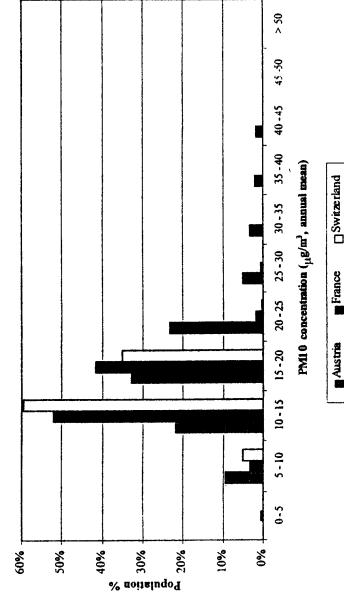
### Frequency distribution of total PM10 population exposure



### Auswahl der Gesundheitsschäden

- Auswirkung etabliert
- Belastungs-Wirkung-Funktion bekannt
- Häufigkeitsdaten verfügbar
- abgrenzbare Schäden
- Monetarisierbarkeit

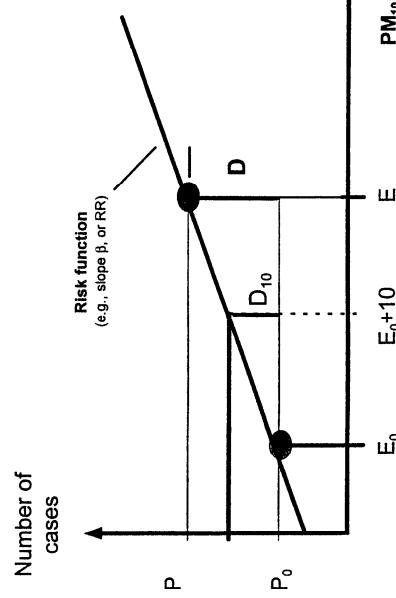
### Frequency distribution of PM10 population exposure without road traffic



### Belastungs-Wirkung - Funktion

- publizierte epidemiologische Literatur
- RR oder Betakoeffizient publiziert
- gewichteter Mittelwert der verfügbaren Schätzer

### Model to estimate Air Pollution Attributable Number of cases



### Effect Estimates (RR) and Health outcome frequencies per 1 Mio. inhabitants and year

Health outcome	Relative Risk (-95% (CI)) per 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ PM10	Health outcome frequency, $P_o$ Per 1 Mio. inhabitants and 1 year Switzerland
Total mortality (adults $\geq 30$ yrs.)	1.043 (1.026-1.061)	9'330 17'830 11'550 10'300 8'280
Respiratory Hospital Admissions (all ages)	1.013 (1.001-1.025)	36'790 17'270 24'640
Cardiovascular Hospital Admissions (all ages)	1.013 (1.007-1.019)	4'990 4'660 5'010
Chronic Bronchitis Incidence (Adults $\geq 25$ yrs.)	1.098 (1.008-1.194)	16'370 23'530 21'550
Bronchitis episodes (children $< 15$ yrs.)	1.306 (1.135-1.502)	
Restricted Activity Days (adults $\geq 20$ yrs.)	1.054 (1.079-1.108)	2'597'300 3'221'200 3'373'000
Asthma attacks (children $< 15$ yrs.)	1.044 (1.027-1.062)	56'700 62'800 57'500
Asthma attacks (adults $\geq 15$ yrs.)	1.039 (1.019-1.058)	173'400 169'500 172'900

adapted from Künzli et al., Lancet 2000

### Attributable number of cases per 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ PM10 ( $D_{10}$ ) and per 1 Mio. inhabitants

Health outcome	Attributable number of cases per 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ PM10 ( $D_{10}$ ) and 1 Mio. inhabitants ( $D_{10,0} - D_{10}$ , based on 95% CI estimates)		
	Austria	France	Switzerland
Total mortality (adults $\geq 30$ yrs.)	370 (230-520)	340 (210-480)	340 (200-470)
Respiratory Hospital Admissions (all ages)	230 (20-430)	150 (20-280)	130 (10-250)
Cardiovascular Hospital Admissions (all ages)	450 (230-670)	210 (110-320)	300 (160-450)
Chronic Bronchitis Incidence (Adults $\geq 25$ yrs.)	410 (40-820)	390 (40-780)	430 (40-860)
Bronchitis episodes (children $< 15$ yrs.)	3200 (1410-5770)	4830 (2130-8730)	4520 (2130-8730)
Restricted Activity Days (adults $\geq 20$ yrs.)	208'400 (175'400-241'800)	263'700 (222'000-306'000)	281'000 (236'500-326'000)
Asthma attacks (children $< 15$ yrs.)	2'330 (1490-3'230)	2'600 (1600-3'620)	2'400 (1480-3'340)
Asthma attacks (adults $\geq 15$ yrs.)	6'280 (3'060-9'560)	6'190 (3'020-9'430)	6'370 (3'100-9'700)

adapted from Künzli et al., Lancet 2000

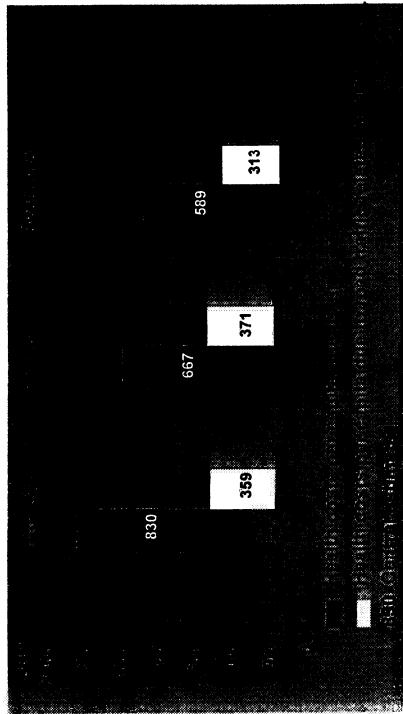
### Traffic Related Air pollution attributable number of cases or person-days in Austria, France and Switzerland

Health outcomes	Attributable number of cases or days (95% CI of the exposure-response function)		
	Austria	France	Switzerland
Long-term mortality (adults $\geq 30$ yrs.)	1'2400 (1'500-3'400)	17'500 (10'700-24'700)	18'000 (11'100-22'500)
Respiratory hospital admissions (all ages)	1'500 (160-2800)	7700 (800-14'600)	700 (70-1300)
Cardiovascular hospital admissions (all ages)	2'900 (1'500-4'300)	5'800 (5'800-16'300)	8'000 (8'000-24'000)
Chronic bronchitis incidence (adults $\geq 25$ yrs.)	2'700 (240-5'300)	20'400 (1'800-40'700)	23'300 (20'4-5'500)
Bronchitis (children $< 15$ yrs.)	21'900 (9'000-37'000)	250'000 (110'000-453'000)	24'000 (11'000-44'000)
Restricted activity days (adults $\geq 20$ years)	1.3 mill. (1.1-1.6)	13.7 mill. (11.5-15.8)	1.5 mill. (1.2-1.7)
Asthmatics: asthma attacks (children $< 15$ yrs.)	15'000 (8'000-21'000)	135'000 (83'000-188'000)	13'000 (8'000-17'000)
Asthmatics: Asthma attacks (adults $\geq 15$ yrs., person days)	40'000 (20'000-62'000)	321'000 (155'000-489'000)	33'500 (16'000-51'000)

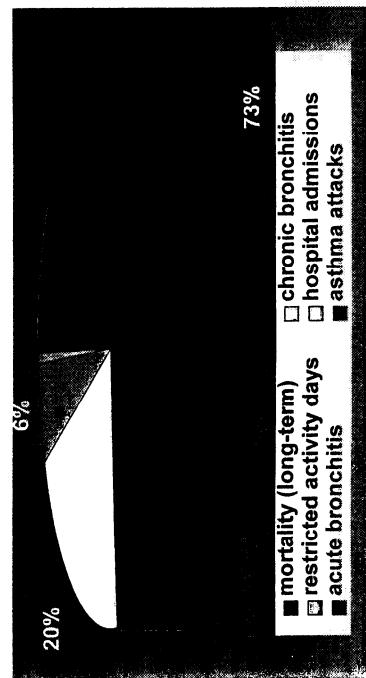
adapted from Künzli et al., Lancet 2000

adapted from Künzli et al., Lancet 2000

## Air pollution related health costs per capita



Breakdown of air pollution related health costs by mortality and morbidity



## Mortalität und Luftverschmutzung

2 Operationalisierungen von 'Tod':

- Eintretenswahrscheinlichkeit
- Zeit bis zum Ereignis (Lebenszeit)

## Sterblichkeit und Luftverschmutzung

Outcome	Quantifizierung	Ereignis Anzahl	Lebenszeit
Erfasster Effekt		Kurzfristig	Personen-Jahre lang- + Kurzfristig (kumulativ)

Kohorte	Zeitreihe	Ansatz	Zeitreihe
		Schätzer pro 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	$\sim 0.5\text{--}1\%$
		publizierte Studien	$> 80$
			3 (1999)

N. Künzli, Eur Respir J 15, 53

**Sensitivity of the estimation of air pollution attributable number of cases of death (mortality >30 years of age)**  
Swiss data only

Sensitivity Criteria and assumptions	Air Pollution Attributable number of cases	Sensitivity (i.e., alternative result in % of the main point estimates)
<b>Point estimate of the tri-national study</b>	3'300	100
<b>Quantified uncertainty:</b>		
Lower 95% CI value	2'000	60 %
Upper 95% CI value	4'700	140 %
<b>PM10 population exposure distribution from 1993 model (see Sommer et al. 1996)</b>	3'200	96 %
<b>Exposure reference value (<math>E_0</math>): 0 instead of <math>7.5 \mu\text{g}/\text{m}^3</math></b>	5'100	154 %
<b>Only impact of exposure <math>&gt;15 \mu\text{g}/\text{m}^3</math> (instead of <math>7.5 \mu\text{g}/\text{m}^3</math>)</b>	1'500	46 %
<b>Only impact of exposure <math>&gt;20 \mu\text{g}/\text{m}^3</math></b>	400	10 %

adapted from Künzli et al, Lancet 2000

## **1.3 NEUE ERKENNTNISSE DER EPIDEMIOLOGIE, BEDEUTUNG VON NANOPARTIKELN**

**H.-Erich Wichmann**  
**GSF-Institut für Epidemiologie in Neuherberg und**  
**LMU-Lehrstuhl für Epidemiologie, München**

### **Zusammenfassung**

Feine Partikel mit einem Durchmesser unter 2,5  $\mu\text{m}$  und ultrafeine Partikel mit einem Durchmesser unter 0,1  $\mu\text{m}$  entstammen vorwiegend Verbrennungsprozessen. Umweltepidemiologische Studien zeigen einen Anstieg der Mortalität und Morbidität, und zwar bei Atemwegserkrankungen und Herz-Kreislauf-Erkrankungen. Diese negativen Auswirkungen auf die Gesundheit werden auch unterhalb der geltenden Grenzwerte für feine Partikel festgestellt, und es konnte kein Anhaltspunkt für eine Risikoschwelle gefunden werden. Arbeitsplatzbezogene Studien zu ultrafeinen Partikeln fehlen, in Studien zu feinen Partikeln liegen nur Daten über Konzentrationen vor, bei denen bereits Effekte auf die Lungenfunktion beobachtet wurden. Tierexperimentelle Daten weisen darauf hin, daß feine und ultrafeine Partikel die Potenz besitzen, Entzündungen auszulösen und bei Tieren mit Vorschädigung der Lunge zum Tode zu führen. Ungeklärt ist zur Zeit, welche pathophysiologischen Mechanismen für diese Wirkungen verantwortlich sind.

Daneben gibt es eine Vielzahl toxischer, kanzerogener und mutagener Wirkungen durch die chemische Zusammensetzung und die an Partikeln adsorbierten Substanzen.

### **Einleitung**

Im Vortrag werden die gesundheitlichen Wirkungen durch feine und ultrafeine Partikel dargestellt. Da dies einer der wenigen Bereiche ist, wo die Datenlage für die Umweltbelastung ergiebiger ist als für die Belastung am Arbeitsplatz, wird die Situation in der Umwelt im Vordergrund stehen. Der Vortrag wird sich ferner auf nicht-kanzerogene Wirkungen konzentrieren.

### **Definitionen**

Im Umweltbereich wird zwischen inhalierbarem Schwebstaub ( $\text{PM}_{10}$ ; Durchmesser  $< 10 \mu\text{m}$ ), lungengängigem Schwebstaub (feine Partikel  $\text{PM}_{2,5}$ ; Durchmesser  $< 2,5 \mu\text{m}$ ) und ultrafeinen Partikeln (UP, Durchmesser  $< 0,1 \mu\text{m}$ ) unterschieden (Peters et al. 1998). Im arbeitsmedizinischen Bereich wird die Bezeichnung "alveolengängige Fraktion (Feinstaub)" verwandt, welche in etwa dem lungengängigen Schwebstaub ( $\text{PM}_{2,5}$ ) entspricht.

## Verbreitung

Bei Verbrennungsprozessen jeglicher Art (Industrie, Hausbrand, Verkehr) werden in mehr oder weniger großem Anteil ultrafeine Partikel gebildet (Nukleationsmode). Diese können aufgrund ihrer hohen diffusiven Eigenbeweglichkeit miteinander koagulieren, so daß es zur Bildung von größeren Teilchen kommt. Die Lebensdauer der ultrafeinen Partikel beträgt nur Bruchteile von Sekunden bis wenige Stunden in Abhängigkeit von der Aerosolkonzentration und den thermodynamischen Bedingungen. Haben die Teilchen einen Durchmesser von mehr als  $0,1 \mu\text{m}$  erreicht, nimmt ihre Diffusionsgeschwindigkeit ab, so daß sich ihre Lebensdauer in luftgetragenem Zustand bis auf mehrere Wochen verlängern kann. Diesen Bereich relativ stabiler Partikel mit Durchmesser von  $0,1$  bis  $1 \mu\text{m}$  bezeichnet man auch als den Akkumulationsmode. Neben diesen feinen Partikeln sind auch noch grobe Partikel zu betrachten, wozu z.B. aufgewirbelter Staub und biogene Teilchen zählen. Diese Teilchen sedimentieren aufgrund der Erddanziehung, so daß ihre Lebensdauer im luftgetragenen Zustand bei Minuten bis Stunden liegt.

Damit wird die Exposition der Bevölkerung durch Schwebstaub vor allem durch folgende Einflüsse bestimmt:

- Das Vorkommen von lokalen Quellen für ultrafeine Partikel, die vorwiegend durch Verbrennungsprozesse freigesetzt werden,
- Die thermodynamischen einschließlich der meteorologischen Bedingungen, die neben der Bildung von Dunst oder Nebeltröpfchen entweder die Koagulation von ultrafeinen Partikeln zu feinen Partikeln oder den Ferntransport von feinen Partikeln begünstigen,
- Oberflächendispersionsprozesse, die zur Freisetzung von groben Partikeln führen.

Die Messung der Partikel erfolgt entweder durch Angabe der Masse oder durch Messung der Anzahl. Hierbei zeigt sich, daß die Partikelanzahl überwiegend von den ultrafeinen Partikeln dominiert wird, während die Partikelmasse durch die Partikel oberhalb von  $0,1 \mu\text{m}$ , also feine und grobe Partikel, bestimmt wird.

Im Vortrag wird aufgezeigt, welche typische Partikelmassen- und -anzahlkonzentrationen am Arbeitsplatz und in der Umwelt gemessen werden (Peters et al. 1998, DFG 1997 a, b, Rödelsperger 1999).

## Deposition und Elimination von Partikeln in Atemtrakt

Die Wahrscheinlichkeit, mit der Partikel in den unterschiedlichen Bereichen der Lunge deponiert werden, hängt zum Einen von ihren physikalischen Eigenschaften und zum Anderen vom Atemmuster und der Anatomie der Lunge ab, die sich durch Wachstum oder Alter sowie Krankheiten verändert. Bei einem gesunden Erwachsenen werden bei ruhiger Mundatmung die meisten Partikel mit einem Durchmesser über  $5 \mu\text{m}$  im Mund-Rachen-Raum und den großen Bronchien abgeschieden. Kleinere Partikel gelangen jedoch auch in die Lungenperipherie, so daß sie sowohl in den kleinen Bronchien als auch in respiratorischen

Bronchiolen und Alveolen abgeschieden werden. Wird durch die Nase geatmet, verändern sich die Depositionsmuster deutlich. Die Nase filtert vor allem größere Partikel (über 2,5 µm) und einen Teil der Partikel mit einem Durchmesser von 1-2,5 µm.

In verschiedenen Regionen der Lunge stehen unterschiedliche Mechanismen zur Entfernung von Fremdkörpern zu Verfügung. In den extrathorakalen Atemwegen, der Trachea und den Bronchien, werden Partikel durch den Mukus gebunden. Im Zuge der normalen Reinigungsprozesse werden sie innerhalb von 1-3 Tagen aus den Atemwegen heraustransportiert. Die Verweildauer von Partikeln im alveolaren Bereich kann dagegen länger sein und Jahre dauern. Frei wandernde Alveolarmakrophagen können Partikel als Fremdkörper erkennen und phagozytieren. Die effektive Phagozytose erfolgt insbesondere für feine und grobe Partikel im Größenbereich zwischen 0,3 und 5 µm. Ultrafeine Partikel werden hingegen nur zu einem geringen Grad von Alveolarmakrophagen phagozytiert, sondern werden zu einem erheblichen Teil von Epithelzellen aufgenommen, so daß sie entweder dort verbleiben oder weiter in das Bindegewebe transportiert werden (Peters et al. 1998, DFG 1997b).

### **Wirkungen auf den Menschen**

Staubexposition am Arbeitsplatz kann je nach Zusammensetzung der Stäube zu akuten und chronischen Erkrankungen der Atemwege führen. Dabei unterscheiden sich die Konzentrationen am Arbeitsplatz, die ca. um einen Faktor 100 höher liegen können, und die Toxizität der in den Stäuben enthaltenen Substanzen deutlich von der Exposition der Bevölkerung unter heutigen Umweltbedingungen. Akut können Pneumonie, akute Bronchitis, Alveolitis oder Rauchfieber auftreten. Langjährige und hohe Expositionen können zu chronisch-obstruktiven Atemwegserkrankungen, Fibrosen, Pneumokoniosen, allergischer Alveolitis und Lungenkrebs führen.

Es liegen keine Ergebnisse über Erfahrungen am Menschen vor, von denen eine Staubkonzentration ohne Wirkung in Sinne eines NOEL ableitbar wäre. Aus den epidemiologischen Studien liegen nur Daten über Konzentrationen vor, bei denen bereits Effekte beobachtet wurden (DFG, 1997).

Daten zu kontrollierten Expositionsexperimenten am Menschen liegen nur in sehr geringem Umfang vor. Die einzigen Untersuchungen zur Auswirkung von Partikeln bei gesunden Personen und bei Asthmatikern wurden bisher mit sauren Aerosolen durchgeführt und zeigten widersprüchliche Resultate.

In umweltepidemiologischen Studien konnten Hinweise für Kurzzeit- und Langzeiteffekte gefunden werden. Die Ergebnisse zu Kurzzeitaffekten werden von der WHO (1996) folgendermaßen zusammengefaßt (zitiert in Peters et al., 1998):

„Ein Anstieg von PM<sub>10</sub> um 10 µg pro m<sup>3</sup> als Tagesmittelwert führt zu einem Anstieg der Mortalität um 0,7 %, von Krankenhauseinweisungen um 0,8 %, des Medikamentengebrauchs bei Asthmatikern um 3,4 %, vermehrtem Husten um 4,6 % und der Symptome der unteren Atemwege um 3,5 %. Hierbei ist von einer linearen Expositionswirkungsbeziehung

auszugehen, so daß ein Schwellenwert nicht angegeben werden kann. Zu Kurzzeiteffekten ultrafeiner Partikel gibt es nur wenige Untersuchungen aus Deutschland und Finnland. Diese zeigen bei Asthmatikern ein häufigeres Auftreten von Atemwegssymptomen und einen größeren Abfall des Peakflow, der in Assoziation mit der Anzahlkonzentration der ultrafeinen Partikel stärker war als in Assoziation mit der Masse der feinen Partikel“.

Im Hinblick auf Langzeitwirkungen liegen bisher nur wenige Studien vor, bei denen die Wirkung feiner Partikel untersucht wurde. Es zeigt sich, daß in Gegenden mit höherer Konzentration von  $PM_{10}$  die Sterblichkeit erhöht ist, die Lungenfunktion bei Kindern schlechter ist, diese mehr an bronchitischen Symptomen leiden, und daß auch bei Erwachsenen in höher durch Feinstäube belasteten Gebieten mehr Symptome der chronischen Bronchitis vorliegen. Eine Quantifizierung dieser Effekte ist derzeit noch schwierig.

### **Tierexperimentelle Befunde**

Versuchstiere wurden entweder in Expositionskammern mit gut charakterisierten Partikeln exponiert, die in der Außenluft gesammelt wurden, oder diese wurden intratracheal instilliert. Dabei lösten insbesondere Stäube, die hohe Konzentrationen von Übergangsmetallen enthielten, Entzündungsreaktionen bei Versuchstieren aus. Die Eigenschaft von Partikeln, Radikale freizusetzen, wurde als ein entscheidender Faktor für die Toxizität der Partikel identifiziert. Daneben wurden an Ratten mit bestehenden Lungenkomplikationen die Wirkungen von konzentrierter Außenluft untersucht. Tiere mit eingeschränkter kardiovaskulärer Funktion oder mit "chronischer Bronchitis" verstarben dabei. Ferner konnten Anzeichen von Bronchokonstriktion und Entzündungen der Atemwege nachgewiesen werden. Diese Befunde werden von Experimenten unterstützt, in denen Ratten mit beeinträchtigter Herz-Kreislauf-Funktion "Flugasche" instilliert wurde. Dies führte zu ausgeprägten Entzündungsreaktionen und zum Anstieg der Mortalität.

Von besonderem Interesse sind derzeit tierexperimentelle Untersuchungen zur Wirkung ultrafeiner Partikel. So wurde bei  $TiO_2$ -Partikeln nach Instillation eine deutliche Entzündungsreaktion im Interstitium nachgewiesen. Es zeigten sich ausgeprägtere Reaktionen für die ultrafeinen Partikel als für die feinen Partikel. Bei ultrafeinen Teflonpartikeln kam es sogar zum Versterben der Versuchstiere innerhalb weniger Stunden, wobei hier allerdings adsorbierte chemische Verbindungen eine Rolle gespielt haben dürften.

Die zugrundeliegenden biologischen Mechanismen sind nicht befriedigend erklärt. Während eine Verschlechterung des Gesundheitszustandes bei Personen mit Atemwegserkrankungen, die zu einem Anstieg der Symptomhäufigkeit, einem erhöhtem Einsatz von Medikamenten, einer vermehrten Inanspruchnahme von Krankenhausleistungen und in Einzelfällen sogar zum Tode führen kann, durch die Induktion einer Bronchiokonstriktion und/oder einer entzündlichen Reaktion in der Lunge erklärt werden kann, sind die Auswirkungen auf das Herz-Kreislauf-System weitgehend ungeklärt. Hier wird derzeit die Hypothese diskutiert, daß die ultrafeinen Partikel durch Auslösen von Entzündungsreaktionen in den Alveolen und im Interstitium zum Anstieg der Koagulation des Blutes und damit zur Verschlechterung des Zustandes bei Personen mit Erkrankungen des Herz-Kreislauf-Systems führen. Belege für diese Hypothese konnten mittlerweile in einigen Studien erbracht werden.

## **Bewertung des Gefährdungspotentials**

Insgesamt kann man feststellen, daß die relativen Risiken, die mit einer erhöhten Belastung durch lungengängigen Schwebstaub in der Außenluft assoziiert sind, zwar klein sind, aber die Mortalität und die Morbilität der gesamten Bevölkerung beeinflussen. Dies hat dazu geführt, daß für den Umweltbereich, insbesondere in den USA, verschärzte Grenzwerte für  $PM_{10}$  (150  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  als 24 h-Wert) und  $PM_{2,5}$ , (65  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  als 24 h-Wert) eingeführt wurden (Peters et al. 1998). Die EU folgt diesen Vorgaben mit teilweise erheblicher Verzögerung. Am Arbeitsplatz liegt der MAK-Wert für die alveolengängige Fraktion (Feinstaub) bei 1,5  $\text{mg}/\text{m}^3$ . Bei Einhaltung eines solchen Grenzwertes ist die Beeinträchtigung der Funktion der Atmungsorgane infolge einer allgemeinen Staubwirkung - als chronisch-bronchiale Reaktion bezeichnet - wenn überhaupt nur geringfügig gegenüber der Grundprävalenz erhöht (DFG 1997a).

Im Hinblick auf die Gefährdung durch ultrafeine Partikel ist eine abschließende Aussage derzeit nicht möglich. Sowohl die tierexperimentellen als auch die epidemiologischen Hinweise auf eine spezifische Wirkung ultrafeiner Partikel sollten Anlaß für vermehrte Aufmerksamkeit sein. Dies betrifft sowohl die Überwachung durch Messung der Partikelanzahl oder Oberfläche sowie vermehrte wissenschaftliche Anstrengungen zur Aufklärung dieser Phänomene.

## **Literatur**

DFG (Deutsche Forschungsgemeinschaft): Gesundheitsschädliche Arbeitsstoffe. Toxikologisch-arbeitsmedizinische Begründungen von MAK-Werten Wiley-VCH: Allgemeiner Staubgrenzwert (1997a), Aerosole-Stäube, Rauche und Nebel (1997b), Aerosole-Ultrafeine Aerosol-Teilchen, deren Agglomerate und Aggregate (1998).

Peters, A., Schulz, H., Kreyling, W.G., Wichmann, H.E. (1998): Feine und ultrafeine Partikel. In: Wichmann, H.E., Schlipkötter, H.W., Fülgraff, G. (Herausgeber): Handbuch der Umweltmedizin, Kap. VI-II, Seite 1-19, 14. Ergänzungslieferung 10/98, ecomed-Verlag Landsberg

Rödelsperger, K., Brückel, B., Barbisan, P., Walter, D., Woitowitz, H.J. (1999): Anteil ultrafeiner Partikel in Schweißrauchaerosolen. Symposium Medical 6/99 Seite 11-12.

WHO (World Health Organisation) (1996): Update and Revision of the WHO Air Quality Guidelines for Europe. European Centre for Environment and Health, Bilthoven, The Netherlands, Vol. 6 Classical

# **Neue Erkenntnisse der Epidemiologie, Bedeutung von Nanopartikeln**

**H.-Erich Wichmann <sup>1,2</sup>**

**<sup>1</sup> GSF - Institut für Epidemiologie, Neuherberg  
<sup>2</sup> LMU - Lehrstuhl für Epidemiologie, Universität München**

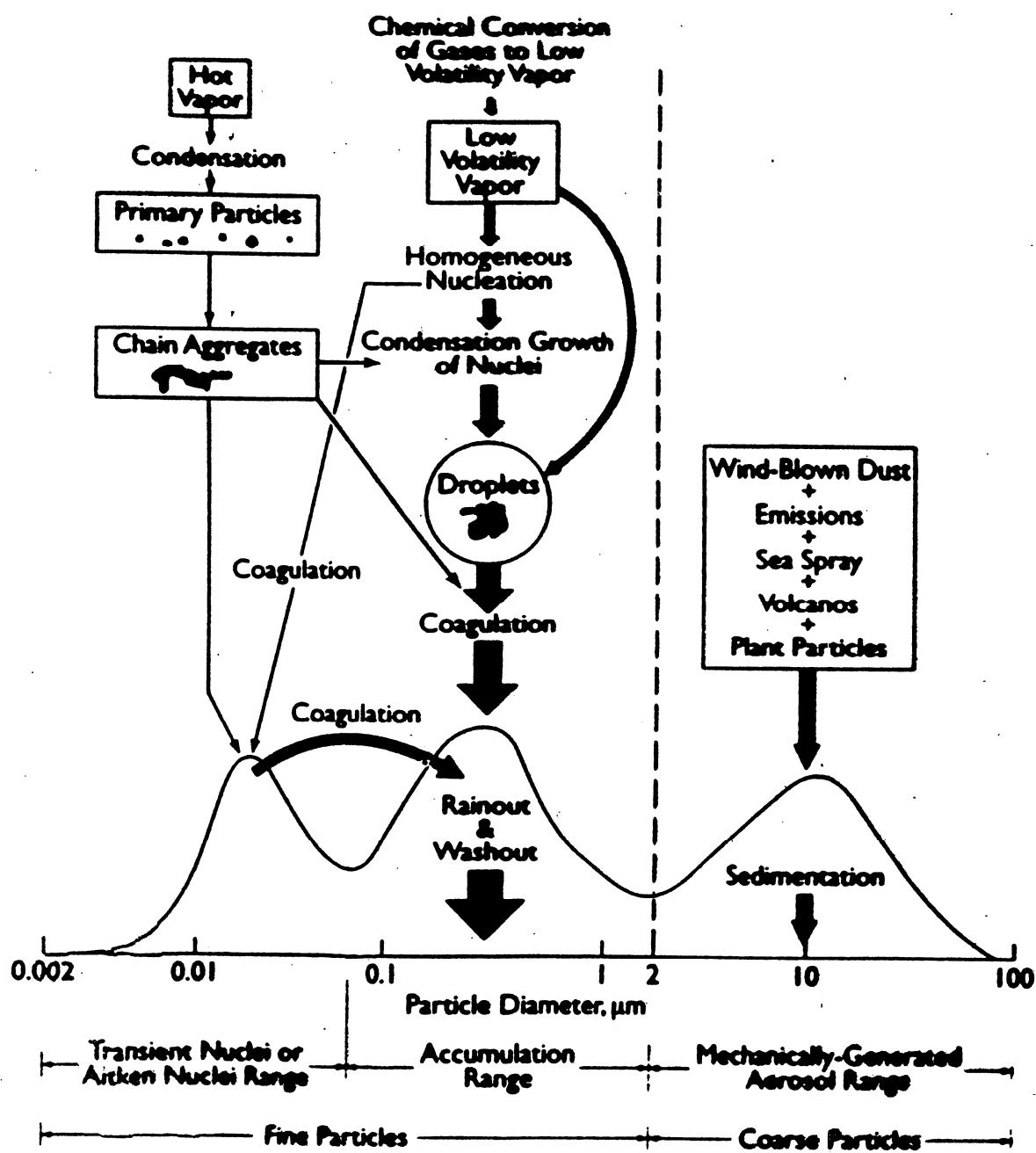
**Vortrag auf der Tagung 'Feinstaub – die Situation in Deutschland und  
der EU-Richtlinie' in Berlin, 26./27. Juni 2000**

# Gliederung

- Einleitung
- Exposition
- Wirkungen feiner Partikel
- Wirkungen ultrafeiner Partikel
- Forschungsbedarf
- Zusammenfassung



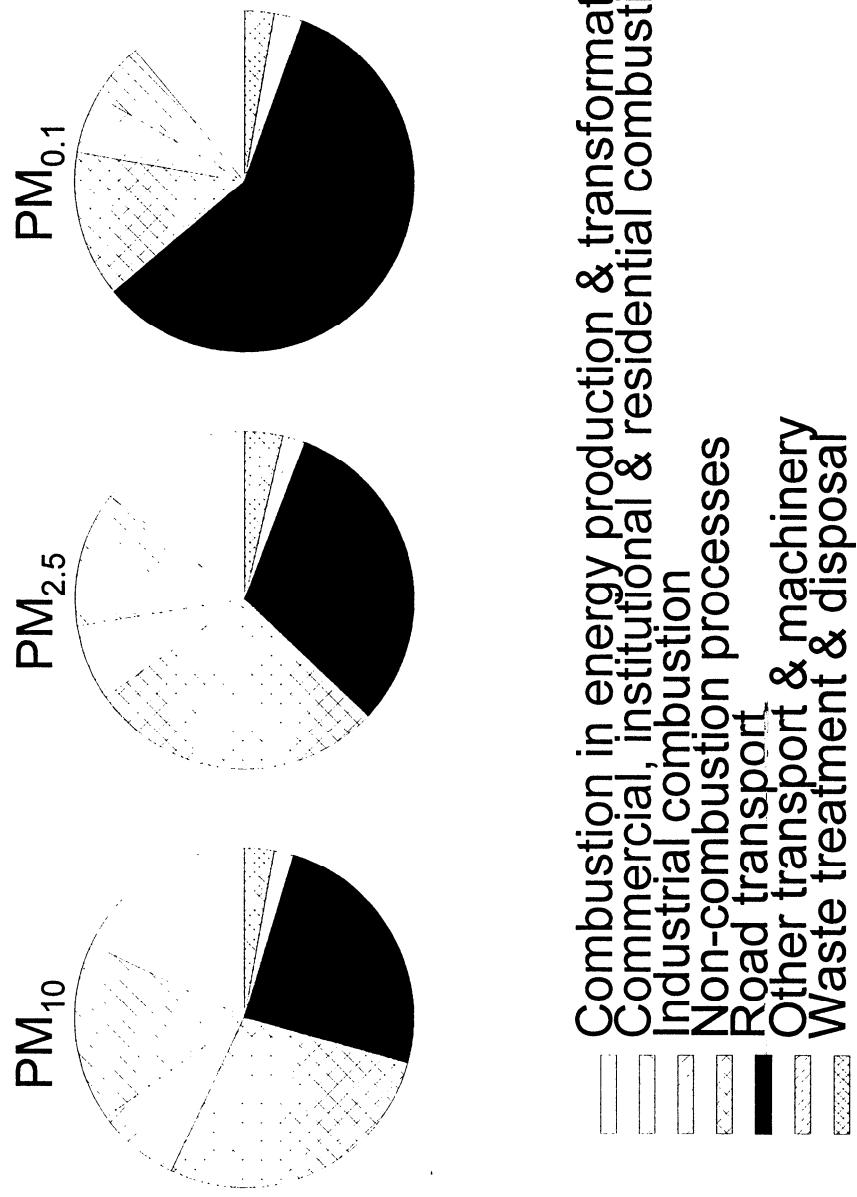
## Schematic of Deposition and Coagulation of Particles



Based on Whirby and Sverdrup (1980)

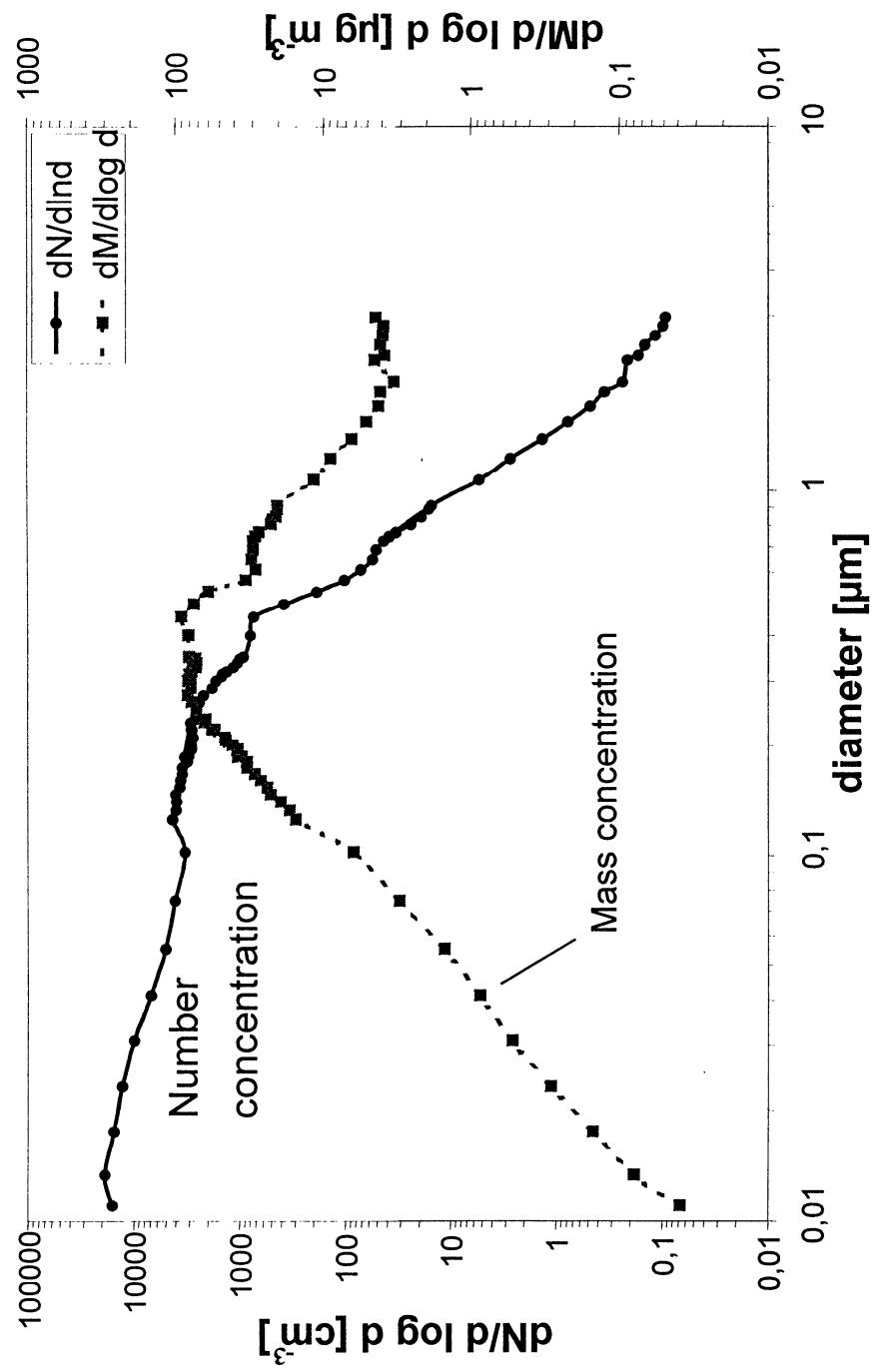
Spengler, Wilson (1996)

## Emissions of $PM_{10}$ , $PM_{2.5}$ and $PM_{0.1}$ in 1996 by sector

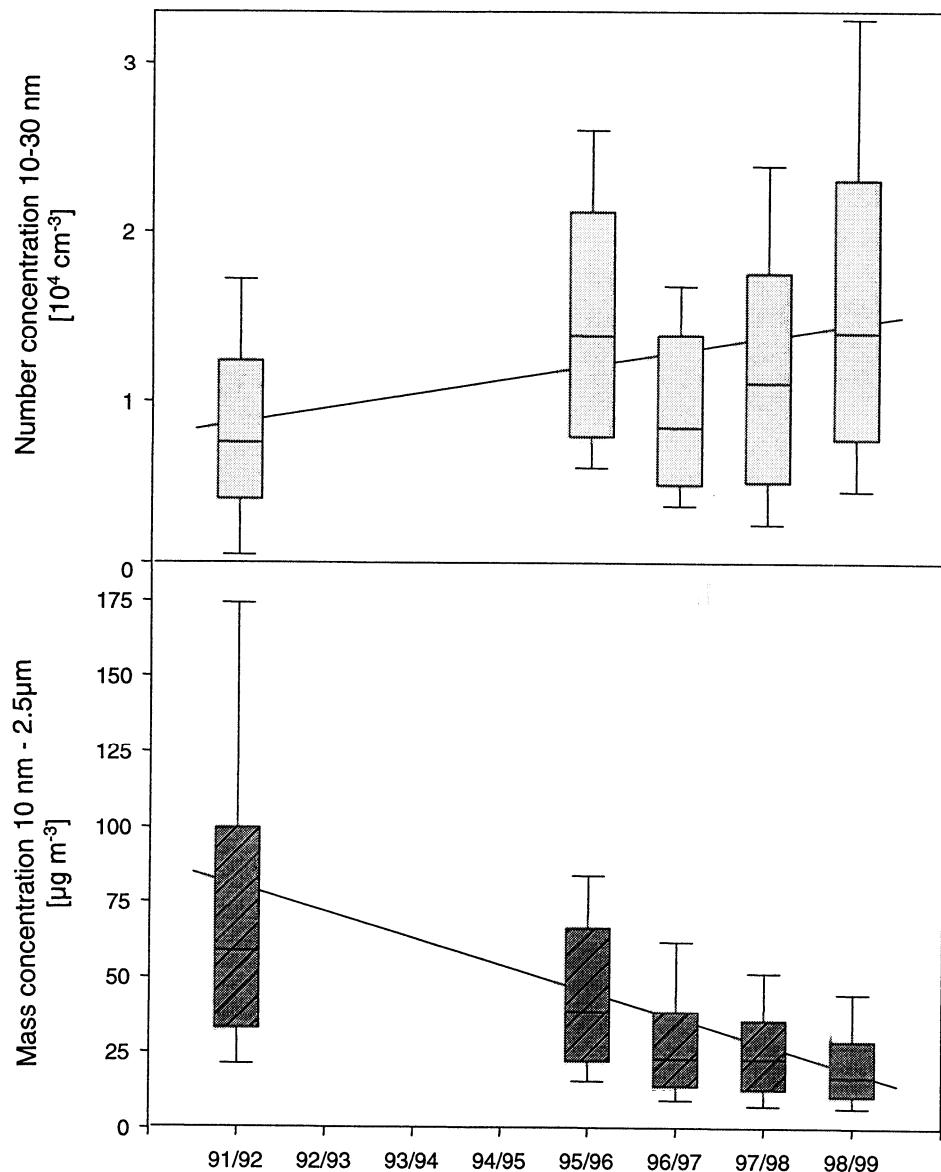


Combustion in energy production & transformation  
Commercial, institutional & residential combustion  
Industrial combustion  
Non-combustion processes  
Road transport  
Other transport & machinery  
Waste treatment & disposal

From: Source Apportionment of Airborne Particulate Matter in the United Kingdom.  
Report of the Airborne Particles Expert Group. January 1999.

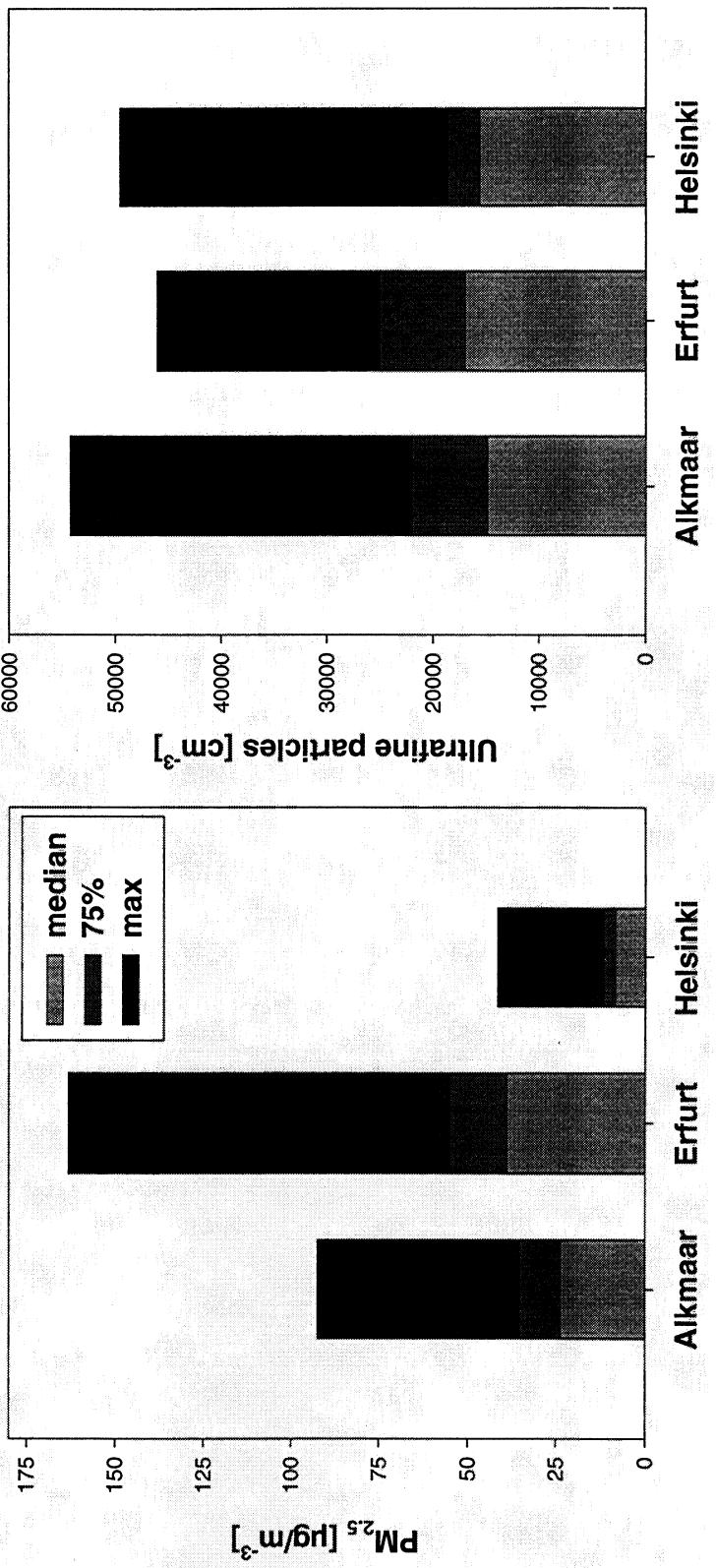


**Distribution of particle number and particle mass concentrations measured by an aerosol spectrometer,  
Erfurt 1991 - 1999 (winter time only)**

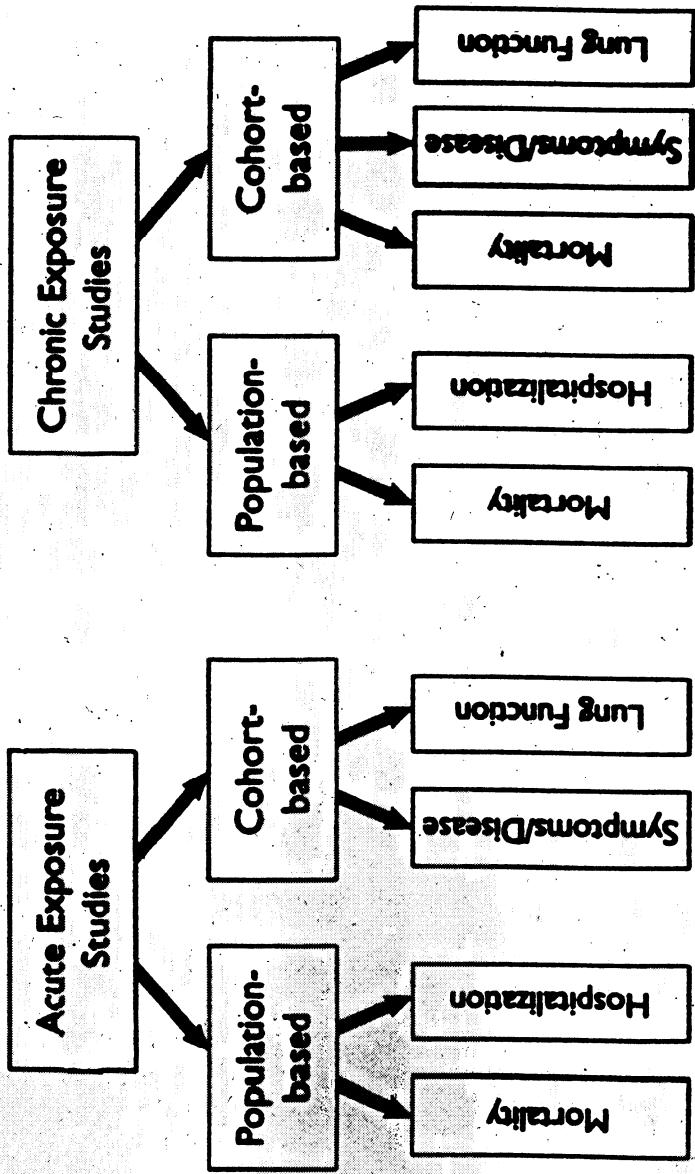


**Institute of Epidemiology**

# Fine and ultrafine particles in Europe



## Basic Study Designs of Currently Published Studies of Health Effects of Particulate Air Pollution



Dockery, Pope (1996)

**Tabelle 9: Zusammenfassung der in den Tabellen 2 bis 5 dargestellten Ergebnisse und eine Abschätzung der Auswirkungen von Episoden mit erhöhten  $PM_{10}$ -Konzentrationen (nach [121]).**

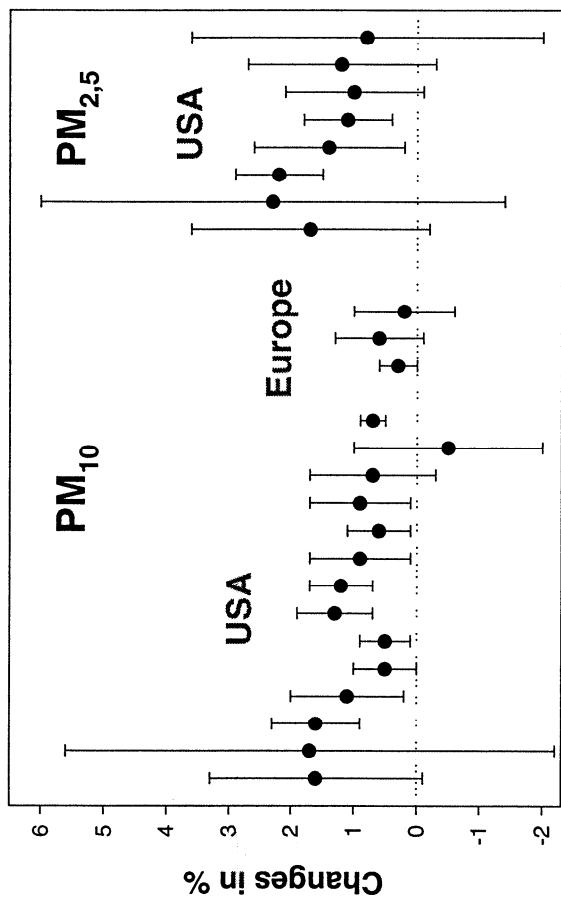
Gesundheitsindikator $PM_{10}$ -Werte	RR	95% CI	Anzahl der Personen <sup>1</sup> , die von einer 3-tägigen Episode <sup>2</sup> betroffen wären		
			10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
Mortalität, $PM_{10}$	1,007	1,006–1,008		3,5	7
Mortalität, $PM_{2,5}$	1,015	1,011–1,019			
Krankenhauseinweisungen (Atemwegserkrankungen), $PM_{10}$	1,008	1,005–1,012	3		6
Medikamentengebrauch, $PM_{10}$	1,034	1,021–1,047	5100		10 200
Husten, $PM_{10}$	1,046	1,023–1,069			
Symptome der unteren Atemwege, $PM_{10}$	1,035	1,018–1,051	6000 <sup>3</sup>		12 000 <sup>3</sup>

<sup>1</sup> bezogen auf 1 Million Einwohner

<sup>2</sup> Angaben der  $PM_{10}$ -Konzentrationen als Tagesmittel

<sup>3</sup> Angaben für Husten und Symptome der unteren Atemwege gemeinsam

# Particulate matter was associated with mortality



 - Institute of Epidemiology

WHO , 1997

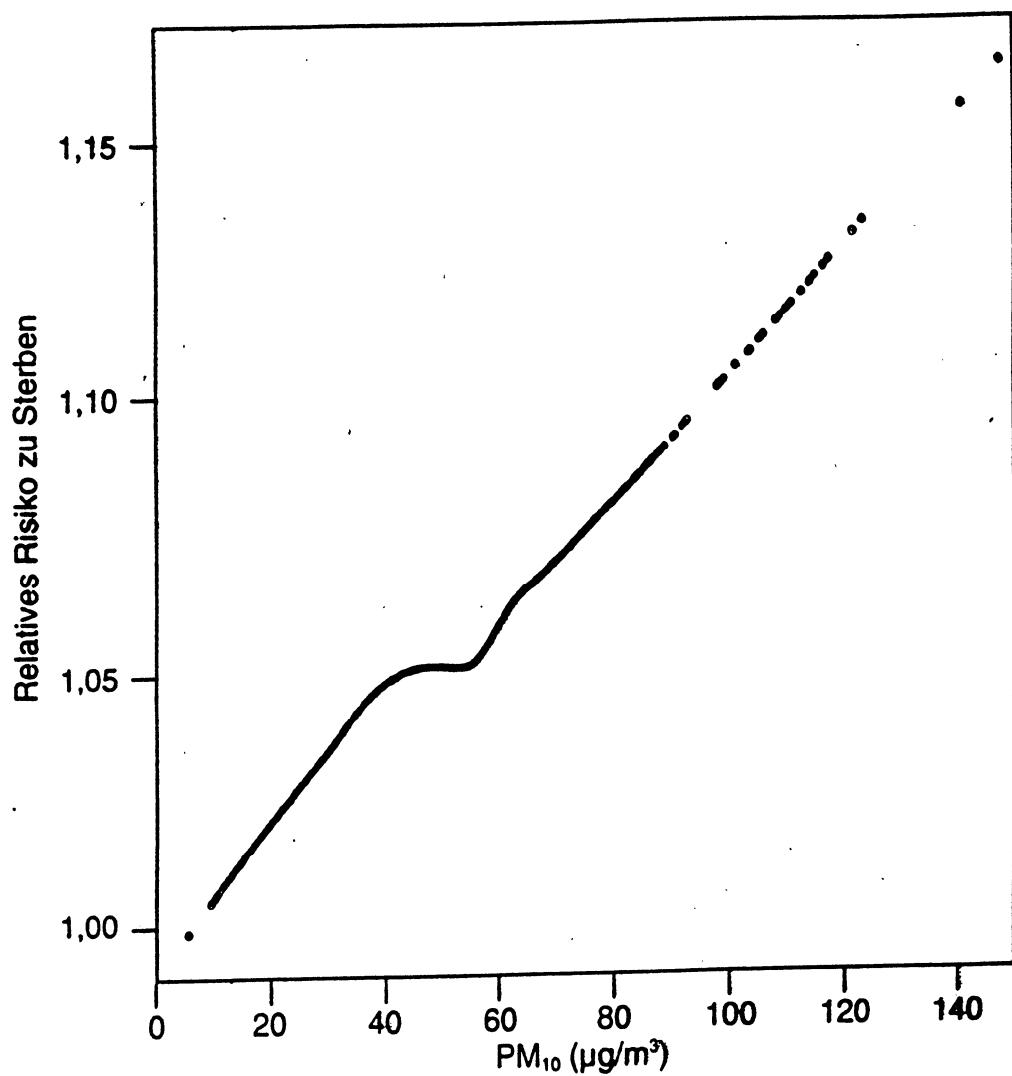
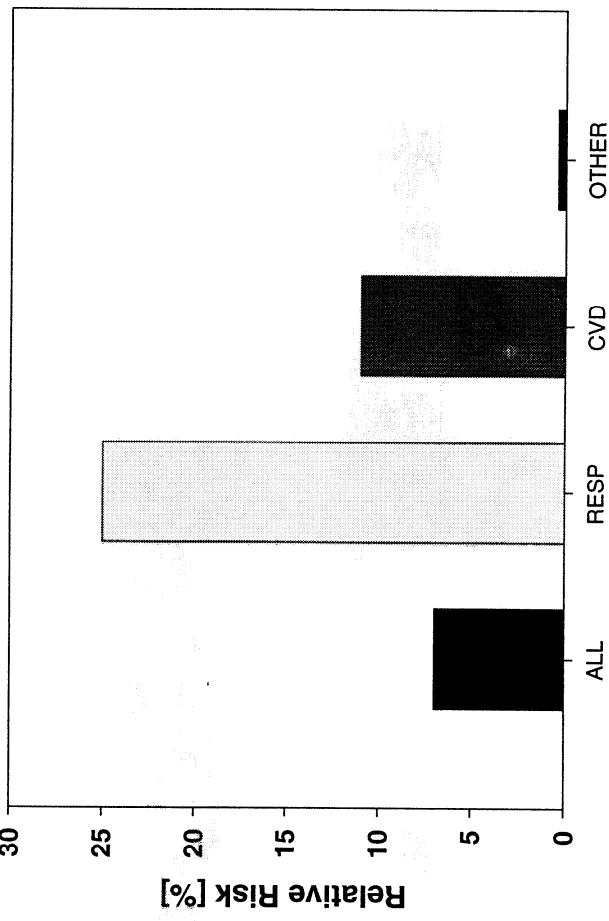
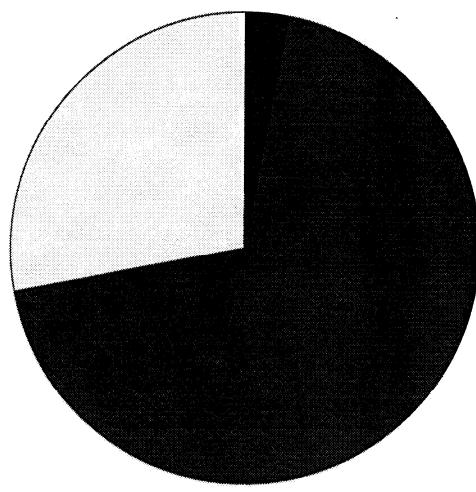


Abbildung 9: Geglättete Assoziation zwischen PM<sub>10</sub> und der Mortalität in generalisierten additiven Modellen adjustiert für Jahreszeit, Temperatur, Taupunkt und Wochentage [85].

## Cause specific results

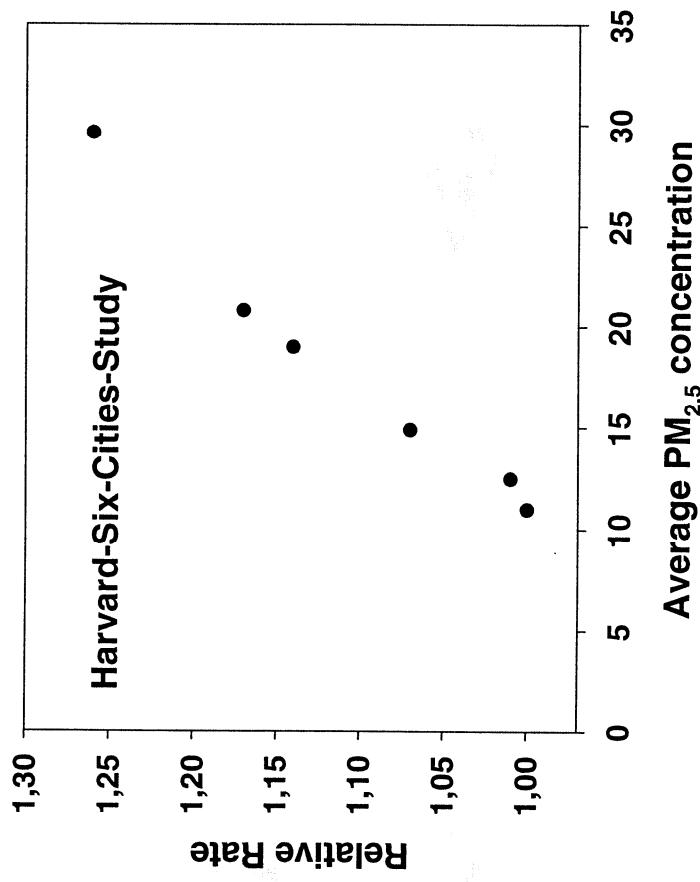
% Excess Deaths  
due to PM exposure



esf - Institute of Epidemiology

Pope et al., in press

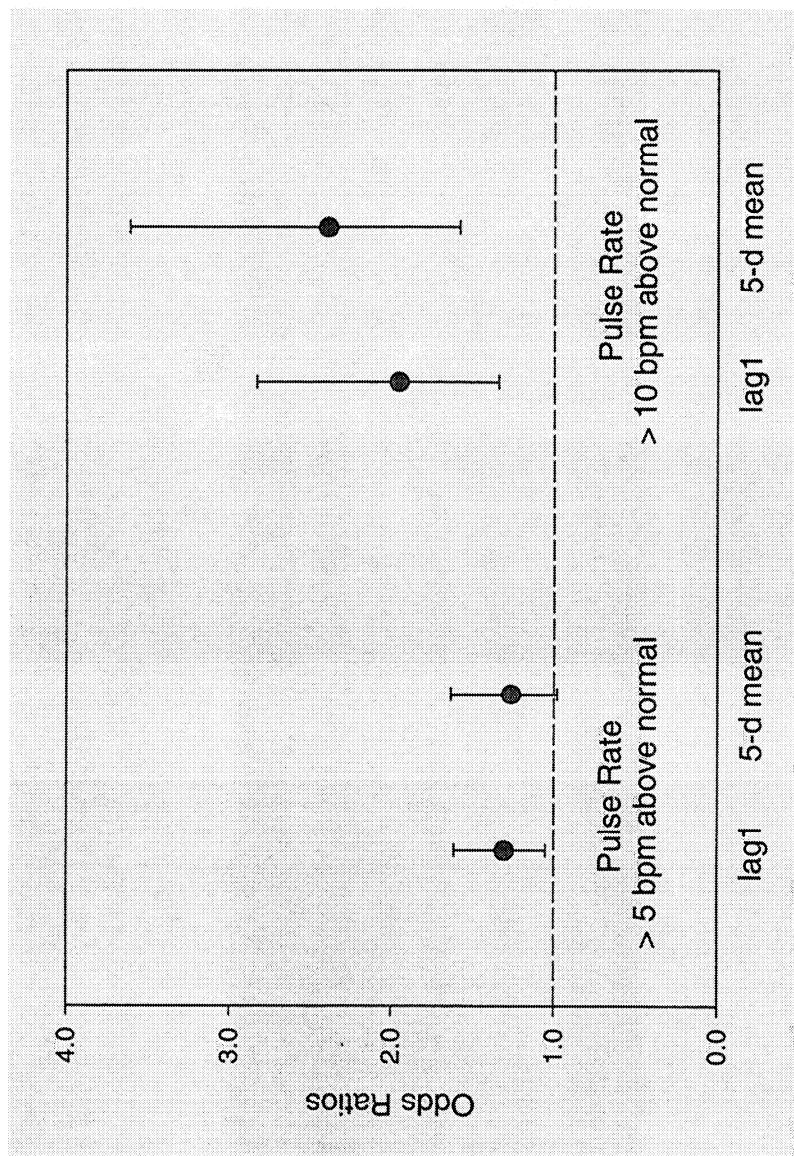
# Chronic effects of fine particles on mortality



Dockery et al., 1993

 - Institute of Epidemiology

## Pulse rates increased with $PM_{10}$



esf - Institute of Epidemiology

Pope et al., 1999 Am J Respir Crit Care Med 159

# Ambient air pollution increased during the episode

	$\text{SO}_2$ [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]	TSP [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]
Winter 84/85 (without episode)	48.1 (13 to 103)	47.4 (7 to 135)
Air pollution episode	200.3 (160 to 238)	97.7 (62 to 176)
Winter 87/88	23.6 (6 to 71)	48.3 (12 to 134)

# Plasma viscosity and C-reactive protein\* increased in association with air pollution in men

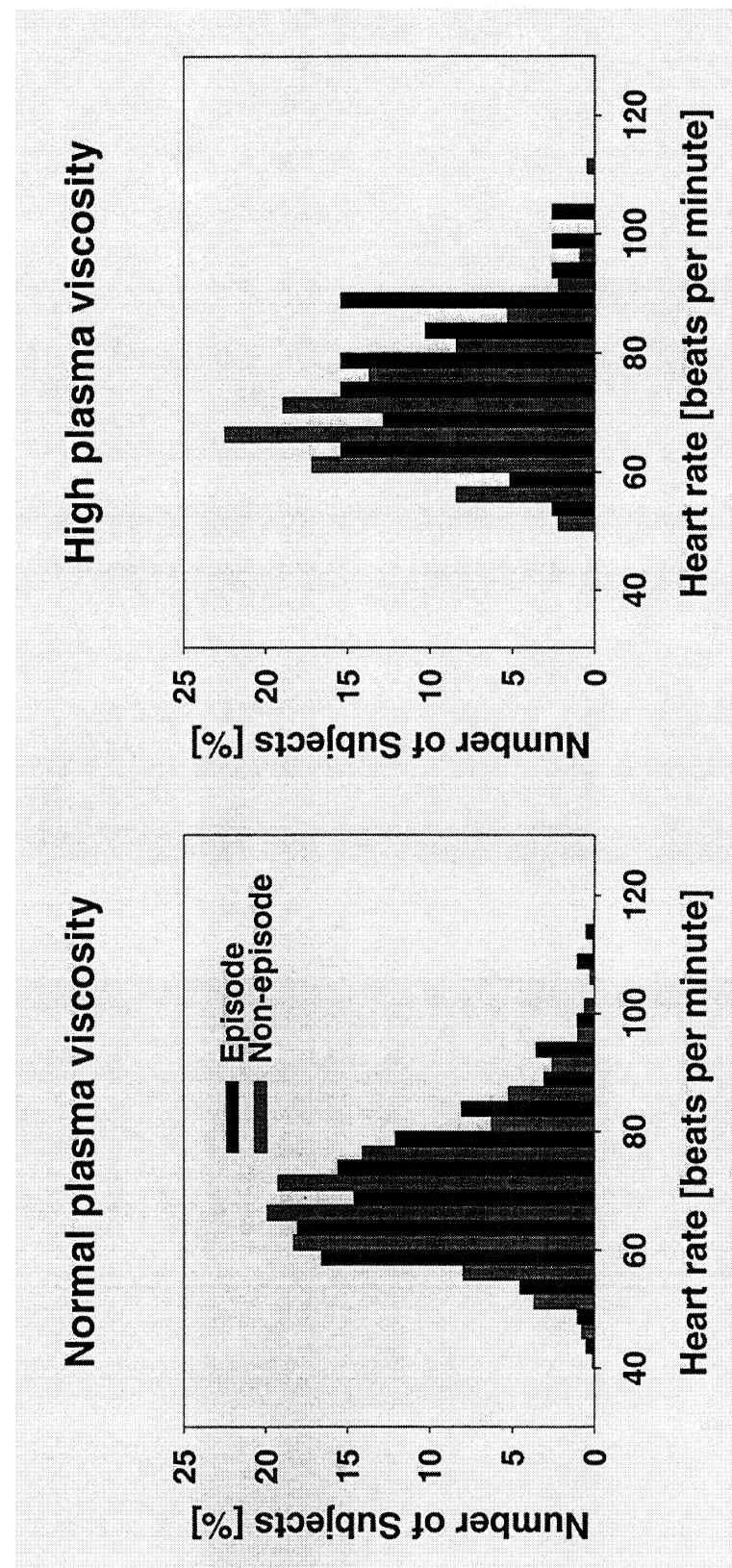
Plasma viscosity > 90 <sup>th</sup> percentile	95% CI	CRP > 90 <sup>th</sup> percentile	95% CI	
Odds Ratios:				
Episode	1.99	1.10 to 3.60	3.57**	0.68 to 18.7
SO <sub>2</sub> (80 µg/m <sup>3</sup> )	1.39	0.92 to 2.09	1.80	1.09 to 2.96
TSP (90 µg/m <sup>3</sup> )	1.65	0.81 to 3.40	2.31	1.29 to 4.13

\* 631 men aged 45 to 64  
\*\* adjusted for TSP

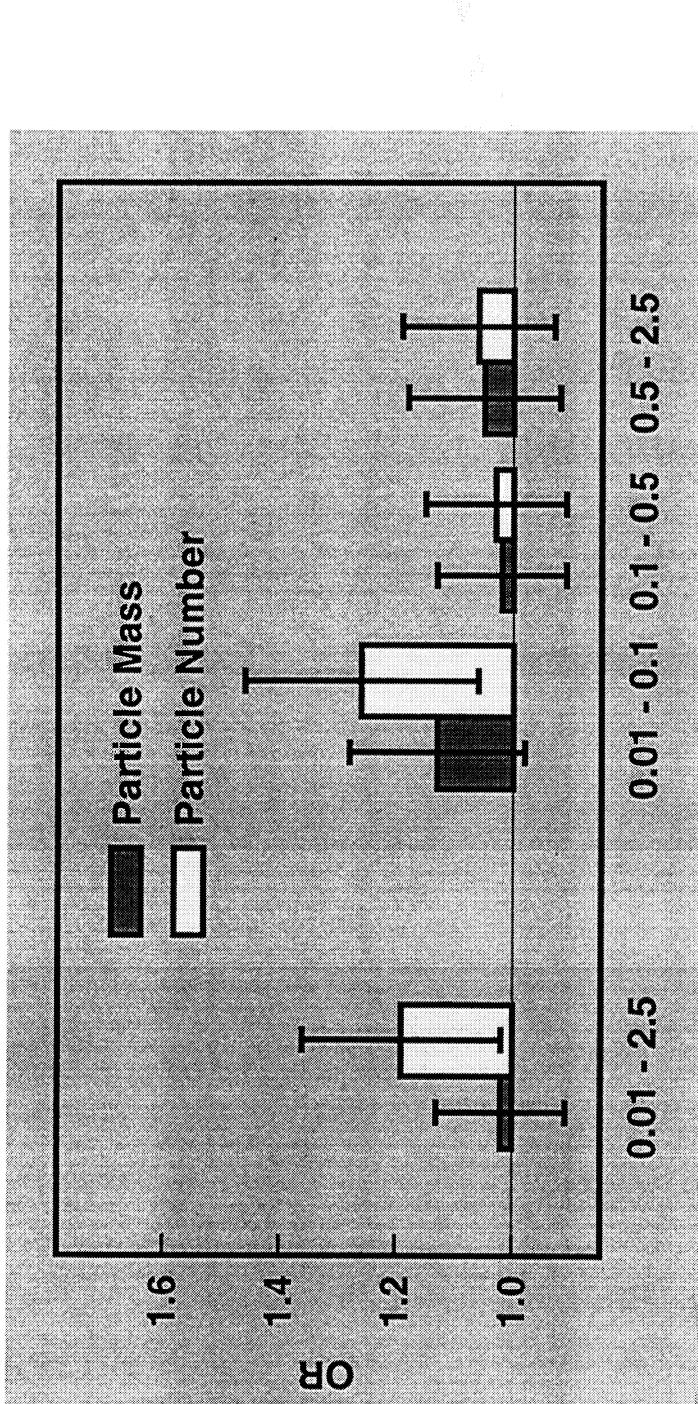
# Heart rate and blood pressure increased in association with air pollution

	Change in Heart Rate [bpm]	95% CI	Change in Systolic Blood Pressure [mmHg]	95% CI
Episode	1.79	0.72 to 2.87	0.19	-1.27 to 1.66
SO <sub>2</sub> (80 µg/m <sup>3</sup> )	1.04	0.60 to 1.49	0.70	0.09 to 1.30
TSP (90 µg/m <sup>3</sup> )	1.56	0.68 to 2.43	1.78	0.67 to 2.88

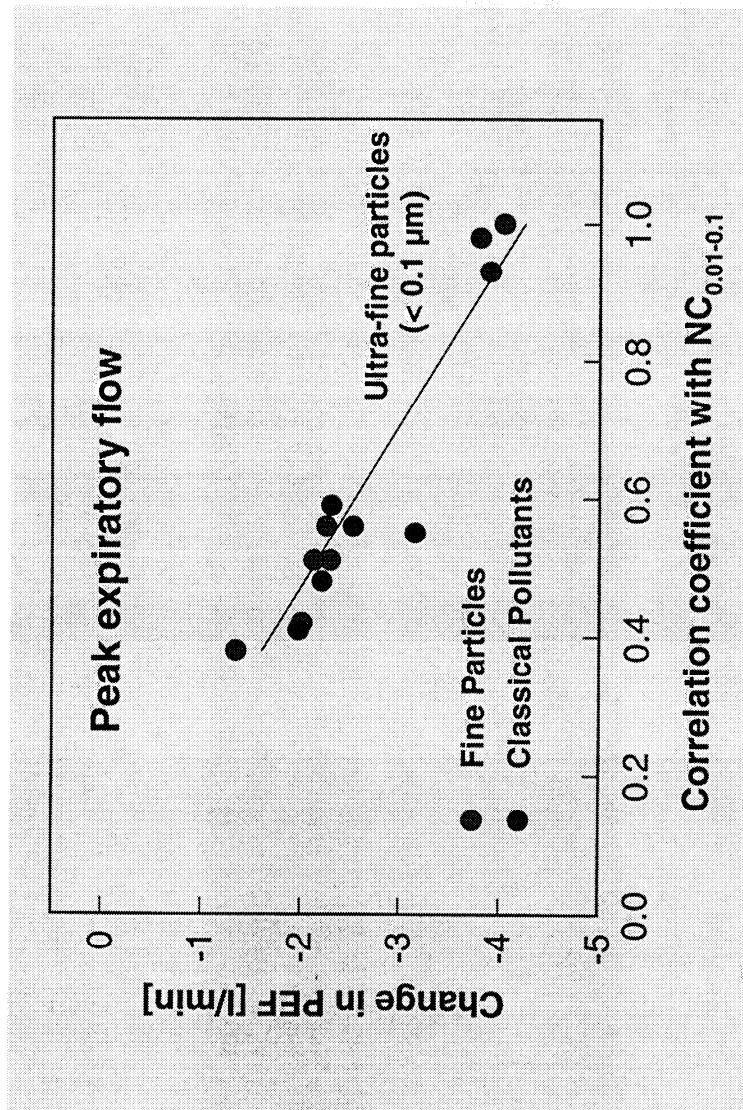
# Heart rates increase together with plasma viscosity



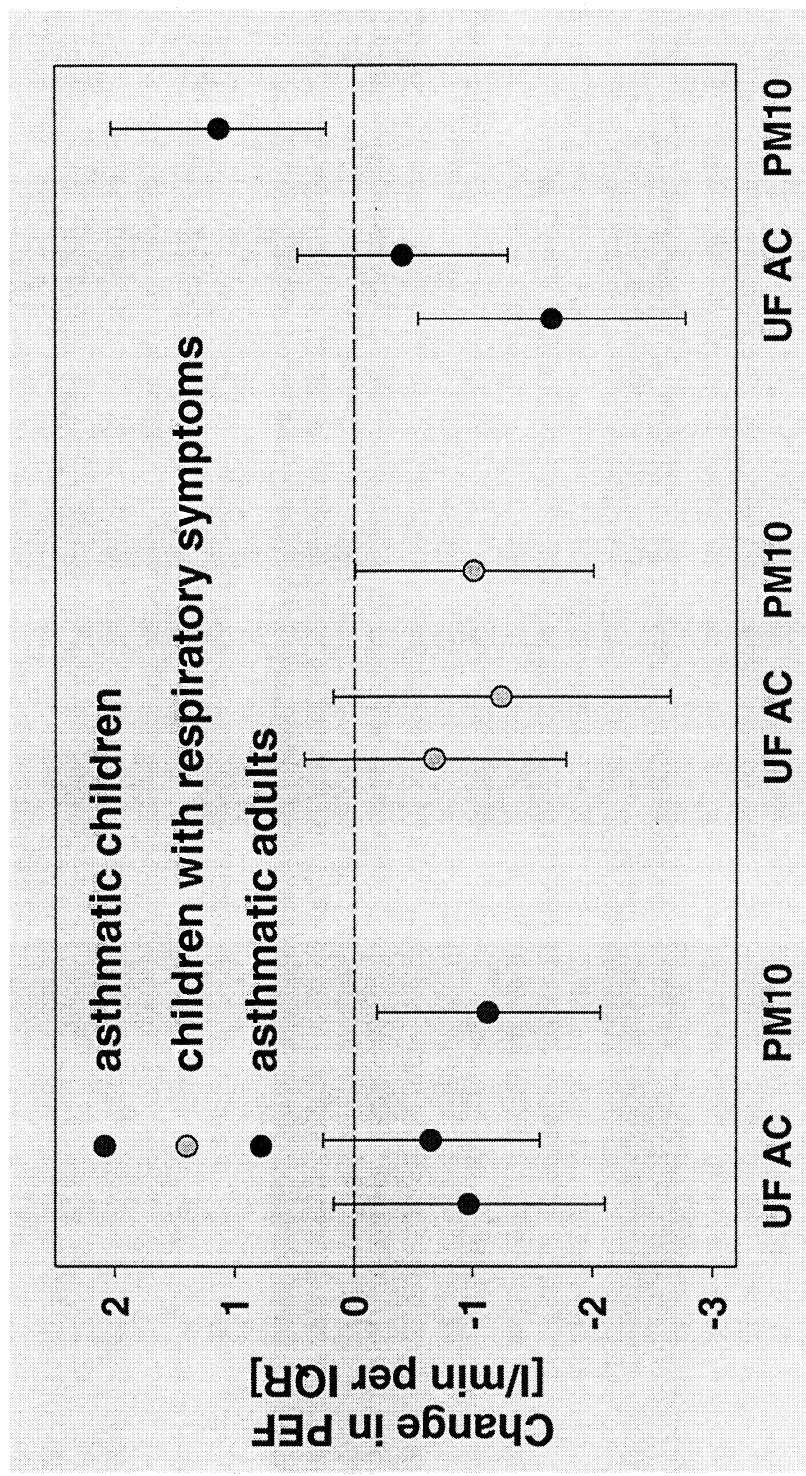
# The number of ultra-fine particles was associated with reporting of cough



# Associations between air pollutants and decreases in PEF for adults

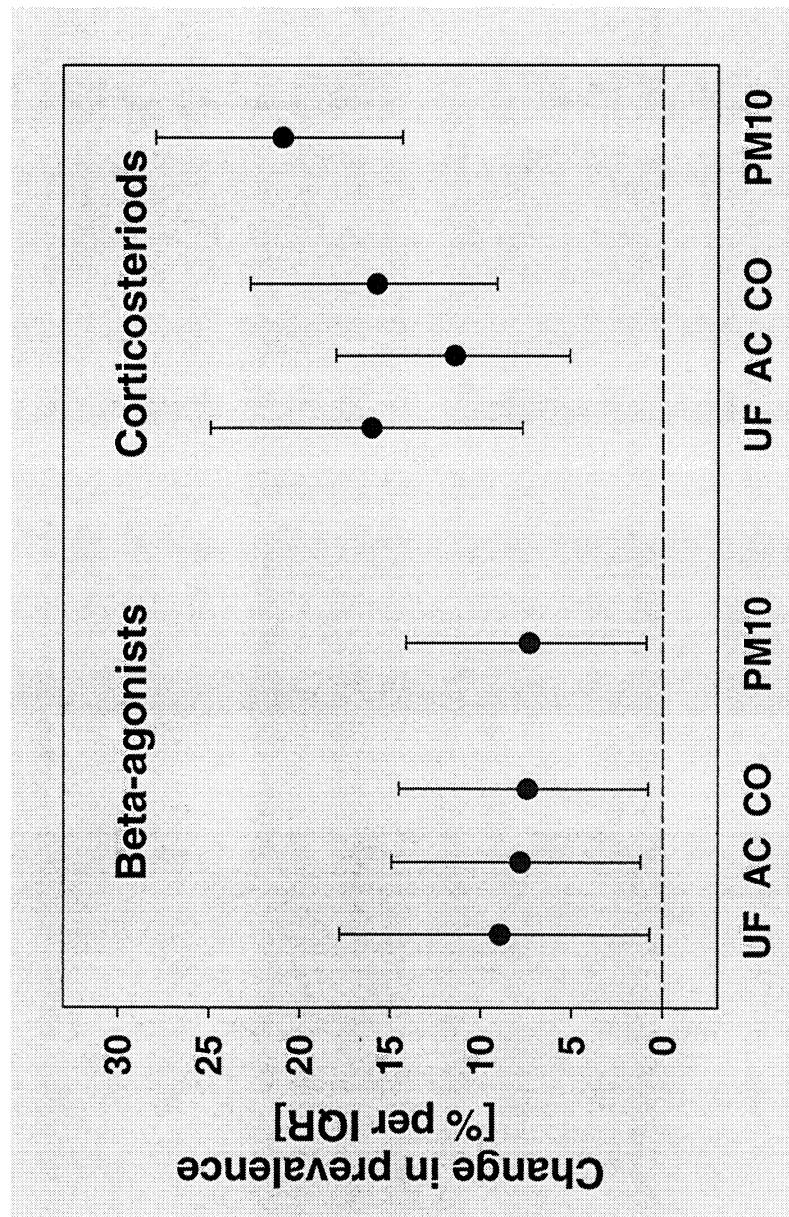


## Effects of particles on PEF (Finland)



Institute of Epidemiology

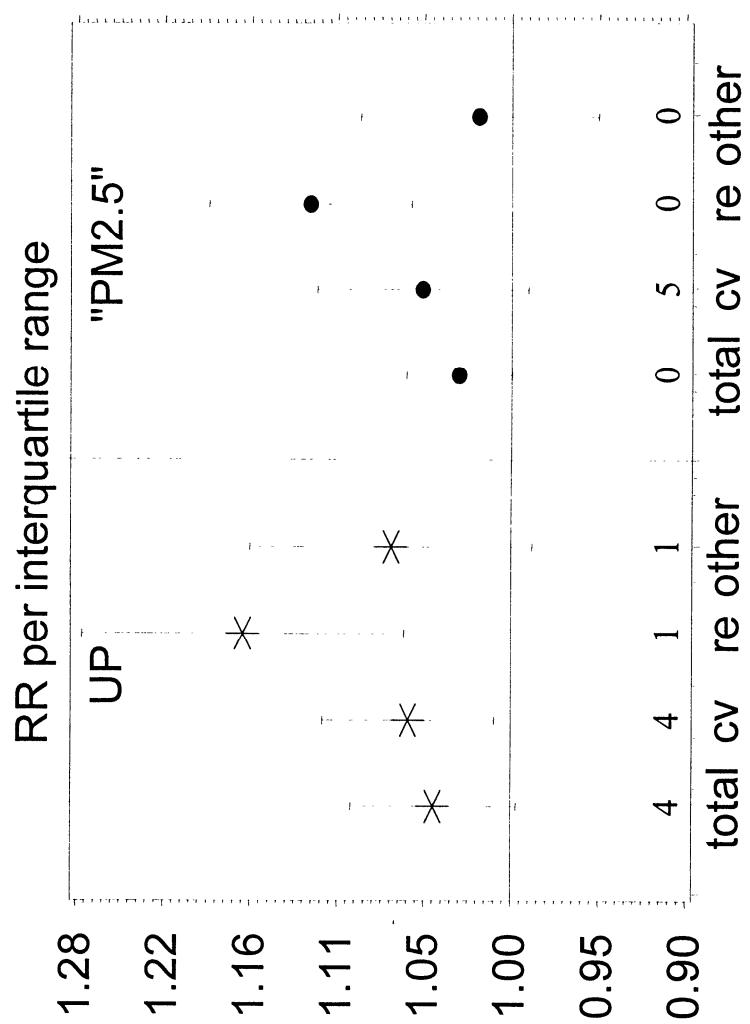
# Medication use increased in adult asthmatics\*

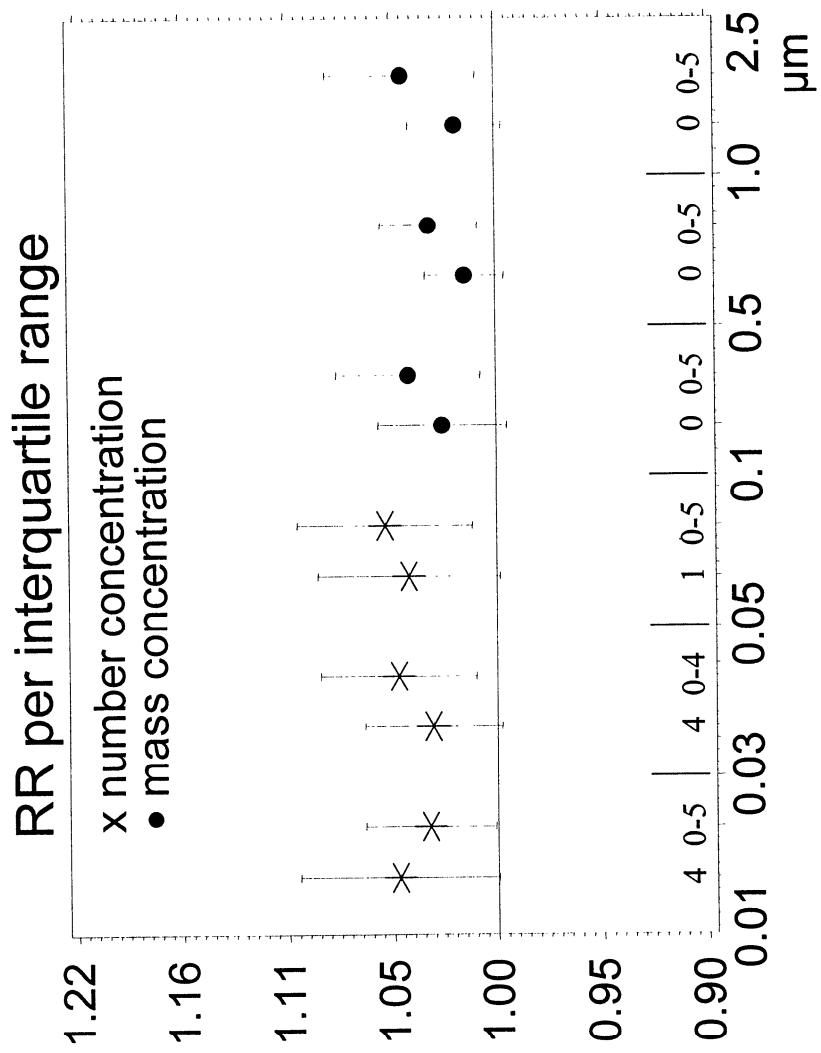


\*52 subjects followed for 5 months during winter 96/97

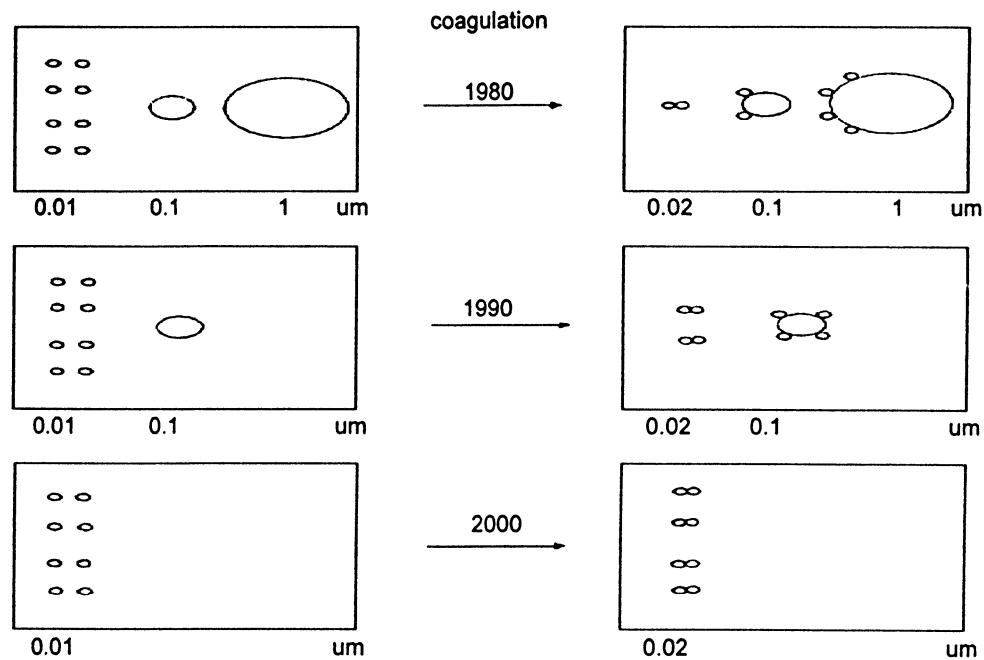


Institute of Epidemiology





**Figure 5:** Simplified model of the coagulation dynamics in Erfurt from 1980 to 2000: In 1980, large particles have been in the air, which effectively scavenged the ultrafine particles, leading to a short halflife of UP. In 2000, mainly very small particles are in the air. They coagulate much slower and the coagulation product still are UP. In total, in the year 2000 the halflife of UP is clearly longer than in the year 1980, i.e. if the production rate is constant, the measured ambient concentration of UP increases. From Spix et al., 2000a



# Forschungsbedarf

- **Charakterisierung des Beitrags der relevanten Quellen**  
(‘Source Apportionment’)
- **intensive Meßprogramme an wenigen Stellen zur Charakterisierung der Partikelimmision (‘Supersite’)**
- **abgestimmte toxikologische und epidemiologische Wirkungsstudien mit gutem Exposure Assessment**  
(‘Particle Centers’)

## Zusammenfassung (1)

- gesundheitliche Auswirkungen feiner (FP) und ultrafeiner (UP) Partikel sind tierexperimentell und epidemiologisch nachgewiesen
- Wirkungen auf Atemwege und Herz-Kreislauf-System
- sofortige und verzögerte Wirkungen

## Zusammenfassung (2)

- Unterschiedliche Wirkungsmechanismen von FP und UP?
- Wirkung von Masse oder Oberfläche oder Anzahl?
- Physische oder chemische Eigenschaften relevant?



gsf - Institut für Epidemiologie



## 1.4 MÖGLICHE WIRKUNGSMECHANISMEN VON DIESELRUß UND ANDEREN PARTIKELN

**Uwe Heinrich**

**Fraunhofer-Institut für Toxikologie und Aerosolforschung, Pharmaforschung und Klinische Inhalation, Hannover**

Erst einmal ist es wichtig zu definieren, welche Aerosole überhaupt eine Partikelwirkung in der Lunge verursachen können. Wenn von einem reinen Partikeleffekt die Rede ist, dann dürfen keine löslichen Stoffe wirkungsrelevant sein. Daraus ergibt sich zwangsläufig, dass ein wesentliches Charakteristikum der Partikelwirkung die quasi Unlöslichkeit des Stoffes ist, aus dem das Partikel besteht. Faktoren, die diese Wirkung partikelspezifisch modifizieren können, sind in Abbildung 5 aufgelistet. Eine reine Partikelwirkung wird in der Umwelt des Menschen aber die Ausnahme und nicht die Regel sein. Die Partikel treffen bei ihrer Entstehung wie auch bei ihrem Lufttransport mit vielen gasförmigen und rekondensierenden Stoffen zusammen, die sich in unterschiedlichster Weise mit dem Partikel verbinden können. Das Partikel dient hier als Carrier und transportiert diese Stoffe in Lungenbereiche, die sie ohne das Partikel möglicherweise gar nicht erreicht hätten. Auch die Bioverfügbarkeit dieser angelagerten Stoffe kann durch die Partikelanbindung deutlich verändert sein. Es kommt sowohl auf das Wirkungsprofil und die Wirkungsstärke als auch auf das Dosisverhältnis von Partikel und angelagertem Stoff an, ob die stoffspezifische oder die partikelspezifische Wirkung dominiert. Eine Organschädigung kann auch erst durch die Kombination der partikel- und stoffspezifischen Eigenschaften bedingt sein. Das Partikel kann auch gar nicht eigenständig wirkungsrelevant sein, sondern es verändert als Carrier und Depot nur die Wirkung der angelagerten Stoffe. Ein besonderes Problem stellen auch schwerlösliche Metalle und Metallverbindungen dar. Die Wirkung des Metallions z.B. in Richtung Tumorinduktion kann durch den Partikeleffekt verstärkt werden.

Was muss man sich unter einem Partikeleffekt in der Lunge vorstellen? Zwischen inhalierten und in der Lunge deponierten Partikeln einerseits und den aus der Lunge durch die verschiedenen Reinigungsmechanismen (Zilien und Schleimteppich, Makrophagen, Entzündungszellen, Lymphe) aus der Lunge eliminierten Partikeln andererseits stellt sich bei normal funktionierenden Reinigungsmechanismen ein Gleichgewicht zwischen aufgenommenen und eliminierten Partikeln ein. In Abhängigkeit von der Höhe der inhalierten Partikelkonzentration wird eine unterschiedlich hohe Partikelbelastung in der Lunge auftreten. Sind die Reinigungsmechanismen beeinträchtigt, werden überproportional mehr Partikeln in der Lunge abgelagert als wieder hinaus transportiert werden. Die länger in der Lunge verweilenden Partikeln stellen für die Zellen einen permanenten Reiz dar, der mit einer permanenten Abwehrreaktion in Form eines vielschichtigen Entzündungsgeschehens beantwortet wird. Werden die Reaktionsprodukte dieses perpetuierenden und überschießenden Entzündungsgeschehens nicht mehr hinreichend neutralisiert, kommt es zu einer entzündlichen proliferativen und fibrotischen Organschädigung. Die reaktiven Sauerstoffspezies, höchst effiziente Komponenten des Abwehrsys-

tems, können in permanent überschließenden und nicht mehr kontrolliert ablaufenden Entzündungssituationen auch das genetische Material so stark oxidativ schädigen, dass die vorhandenen DNA-Reparatur-Mechanismen überfordert werden. Eine erhöhte Mutationsfrequenz und ein erhöhtes Tumorrisiko sind die Folge.

Eine Partikelwirkungshypothese wurde schon vor nahezu 15 Jahren von Pott und Heinrich (Abbildung 7) für die kanzerogene Wirkung von Dieselruß in der Rattenlunge diskutiert. Der großen spezifischen Oberfläche des Rußkerns wurde ebenfalls schon damals eine mögliche Wirkungsrelevanz zugeschrieben. Aber auch Dieselruß ist ein Beispiel dafür, dass ein Partikel in den meisten Fällen andere wirkungsrelevante Stoffe angelagert hat und ein alleiniger Partikeleffekt für die beobachtete Wirkung hinterfragt werden muss. Bei Dieselruß und anderen Rußern sind es die polzyklischen aromatischen Verbindungen wie z.B. die kanzerogenen PAHs.

Ohne hier jetzt ins Detail gehen zu können, spricht der derzeitige experimentelle Kenntnisstand aber überwiegend für einen Partikeleffekt auch bei der kanzerogenen Wirkung von Dieselruß, auch wenn in einem Tierexperiment der native Dieselruß eine signifikant höhere Lungentumorraten erbrachte als der von allen organischen Komponenten befreite Rußkern des Dieselrußes. Die in der Lunge des Menschen im Vergleich zur Rattenlunge wesentlich größere Zellzahl und damit auch wesentlich höhere Anzahl von Zellteilungen als auch die ca. 30 mal längere Lebenszeit des Menschen, alles Faktoren, die für eine Tumorentstehung entscheidend sind, sprechen dafür, dass es keiner quantitativen Übertragung des partikelbedingten Entzündungsgeschehens von der Rattenlunge auf die Lunge des Menschen bedarf, um eine erhöhte Wahrscheinlichkeit für partikelbedingte Tumoren auch beim Menschen zu haben. Bei dieser Betrachtung wird allerdings unterstellt, dass die Empfindlichkeit, auf Partikel zu reagieren, bei Ratte und Mensch nicht wesentlich unterschiedlich ist. Beim Vergleich Ratte mit Maus und Hamster findet man solch einen Unterschied. Deutliche entzündliche Veränderungen in der Lunge nach Inhalation von Dieselmotorabgas wurde in der bronchoalveolären Lavage und in Bronchialbiopsien von exponierten Probanden in kontrollierten klinischen Studien nachgewiesen. Die Dieselrußkonzentrationen lagen bei diesen Studien bei 300 und 100  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .

Die Wirkungsstärke der feinen Partikel  $> 0,1 \mu\text{m}$  hängt in starkem Maße von der Größe ihres Volumens ab. Das heißt, je schneller das Makrophagenvolumen in den Alveolen mit nichtlöslichen Partikeln ausgefüllt wird, desto schneller ändert der Makrophage sein Normalverhalten (z.B. eingeschränkte Beweglichkeit) und begibt sich in eine permanente Abwehrreaktion, aus der die nachfolgende Entzündungssituation resultiert. Bei ultrafeinen Partikeln  $< 0,1 \mu\text{m}$  scheint die große spezifische Oberfläche der Partikeln und ihre leichtere Penetrationsfähigkeit durch Zellmembranen für die Wirkung von Bedeutung zu sein. Die Anzahl- oder Oberflächendosis korreliert hier besser mit der Wirkung als die Massendosis. Bei Partikelaggregaten bestimmen sowohl das Volumen als auch die spezifische Oberfläche die toxische Wirkung, wodurch sich eine besondere Wirkungsstärke für Partikelaggregate ableiten lässt.

Der Frage, welche ursächliche und dosisabhängige Beziehung zwischen partikelbedingter Entzündung und Tumorausbildung in der Lunge besteht, wird zur Zeit in einer vom Umweltbundesamt unterstützten experimentellen Untersuchung nachgegangen. Hier zeichnet sich ab, dass mit einer in der Vergangenheit nicht erfolgten detaillierten histologischen Untersuchung der Lunge (Stufenschnitte) die beobachtbare Schwelle für eine partikelbedingte Tumorentstehung in der Rattenlunge wahrscheinlich deutlich nach unten korrigiert werden muss. Hinsichtlich Fibrose und Tumorgeschehen ist in der Literatur beschrieben, dass PVNO zwar die durch kristallinen Quarz bedingte Lungenfibrose in der Rattenlunge reduziert, aber nicht die Lungentumorraten. Inwieweit nicht nur die Fibrose, sondern möglicherweise auch die Entzündung von einem partikelbedingten Tumorgeschehen abgekoppelt werden kann, sollen die laufenden Untersuchungen beantworten.

Bei Umweltaerosolen ( $PM_{10}$ ,  $PM_{2,5}$ ,  $PM_{0,1}$ ), die epidemiologisch mit einer erhöhten Morbidität/Mortalität korrelieren, wird ein Partikeleffekt wahrscheinlich nur eine untergeordnete Rolle spielen, da das Umweltaerosol aus vielen verschiedenen potentiell wirkungsrelevanten löslichen Komponenten besteht. Das Partikel als Carrier und Depot und als Wirkungsverstärker könnte aber durchaus auch für das Umweltaerosol wirkungsrelevant sein.

Bei der vergleichenden Betrachtung des Staubgrenzwertes am Arbeitsplatz und in der Umwelt muss berücksichtigt werden, dass dem allgemeinen Staubgrenzwert der Arbeitsstoffkommision der DFG (MAK) nur diejenigen Stäube unterliegen, die schwer- oder unlöslich sind und die keine genotoxische, krebserzeugende, fibrogene, allergisierende oder sonstige toxische Wirkung aufweisen. Auch ultrafeine Stäube fallen nicht unter diesen Grenzwert. Weiterhin sollen mit dem MAK-Wert die Arbeitnehmer und mit dem Staubgrenzwert in der Umwelt die gesamte Bevölkerung mit all ihren Risikogruppen geschützt werden. Der allgemeine Staubgrenzwert am Arbeitsplatz für alveolengängigen Staub (entspricht ungefähr  $PM_4$ ) liegt bei  $1500 \mu\text{g}/\text{m}^3$  als 8-Stunden-Mittelwert mit Überschreitungsfaktor 2, und der von der EU vorgesehene Staubgrenzwert für die Umwelt soll als 24-Stunden-Mittelwert bei  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  ( $PM_{10}$ ) liegen.

## **Mögliche Wirkungsmechanismen von Dieselruß und anderen Partikeln**

U. Heinrich, Hannover



### **Mögliche Wirkungsmechanismen von Dieselruß und anderen Partikeln**

#### **Folgende Themen sollen angesprochen werden**

- Welche Partikel können einen Partikelwirkungsmechanismus zeigen?
- Dieselruß und der Partikelwirkungsmechanismus
- Die Besonderheiten von ultrafeinen Partikeln
- Handelt es sich bei der gesundheitlichen Wirkung von Umweltaerosolen um einen Partikeleffekt?
- Wie ist der Unterschied zwischen dem Staubgrenzwert am Arbeitsplatz und der Umwelt zu verstehen?



Welche Arten von Partikeln gibt es und was soll unter einem Partikelwirkungsmechanismus verstanden werden?

Gibt es einen übergeordneten Partikelwirkungsmechanismus oder gibt es für verschiedene Partikel auch verschiedene Partikelwirkungsmechanismen?



**Wird die Partikelwirkung bestimmt durch**

- a) schwer-/unlösliche Komponenten?
  - b) lösliche Komponenten?
- oder
- c) durch Kombination von a) und b)?



Unter Partikelwirkung ist die primär nicht stoffspezifische Wirkung von schwer-/unlöslichen Partikeln zu verstehen, deren Wirkung maßgeblich bestimmt wird durch folgende Partikelcharakteristika

- Größe, Volumen, Dichte
- Spezifische Oberfläche
- Oberflächenreakтивität
- Kristallinität
- Bildung und Zerfall von Partikelagglomeraten
- Geometrische Form (Fasern)



Steht der Wirkungsmechanismus durch diese Partikelparameter nicht im Vordergrund, so liegt keine primäre Partikel- sondern eine primäre Stoffwirkung vor.

Das Partikel verstärkt in diesem Fall nur die stoffspezifische Wirkung z.B. durch seine Carrier- und/oder Depotfunktion.



### Möglicher Wirkungsmechanismus von Dieselruß

(Pott und Heinrich, 1986/1987; Heinrich et al., 1986)

- PAH-Adsorptionstheorie (PAH-Depot-Effekt)
- Oberflächentheorie (Aktivkohle-Effekt)
- Entzündungstheorie (unspezifische Partikelmasse-Effekt)
- Existenz von bisher unbekannten, stark kanzerogenen Stoffen

### Neue Experimentelle Befunde

- Industrieruß, extrahierter Dieselruß,  $TiO_2$ , Kohlengrubenstaub zeigen qualitativ gleiche Partikeleffekte in der Rattenlunge wie Dieselruß.
- Wie für die Hamsterlunge ist auch für die Mäuselunge keine neoplastische Partikelreaktion beobachtet worden; auch nicht mit Asbest und Quarz (als Humankanzerogen eingestuft).

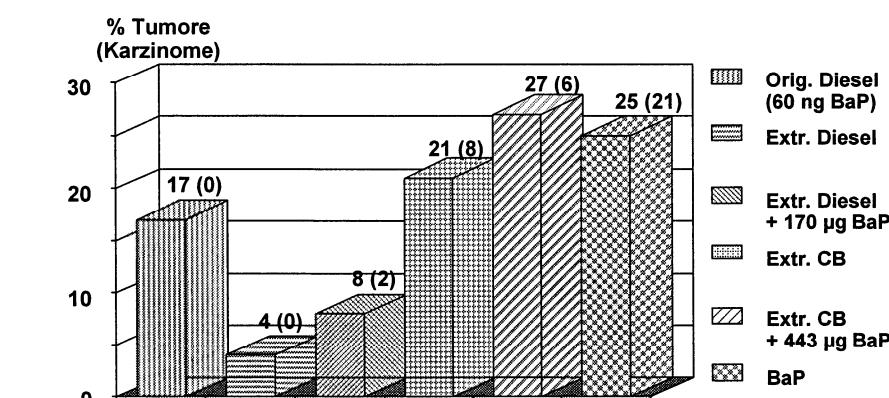
### Inhalationsstudien mit Ratten

	Dieselruß	Teer/Pech-Aerosol	Industrieruß
Aerosolkonzentration	7 mg/m <sup>3</sup>	1 mg/m <sup>3</sup>	11 mg/m <sup>3</sup>
Aerosoldurchmesser	0,3 µm	0,5 µm	0,8 µm
BaP-Konzentration	20 ng/m <sup>3</sup>	20.000 ng/m <sup>3</sup>	0,007 ng/m <sup>3</sup>
Lungentumorrat*	22%	33%	39%

\*Reinluftkontrolle 0%

Fraunhofer  
Institut  
Toxikologie und  
Aerosolforschung  
Pharmaforschung und  
Klinische Inhalation

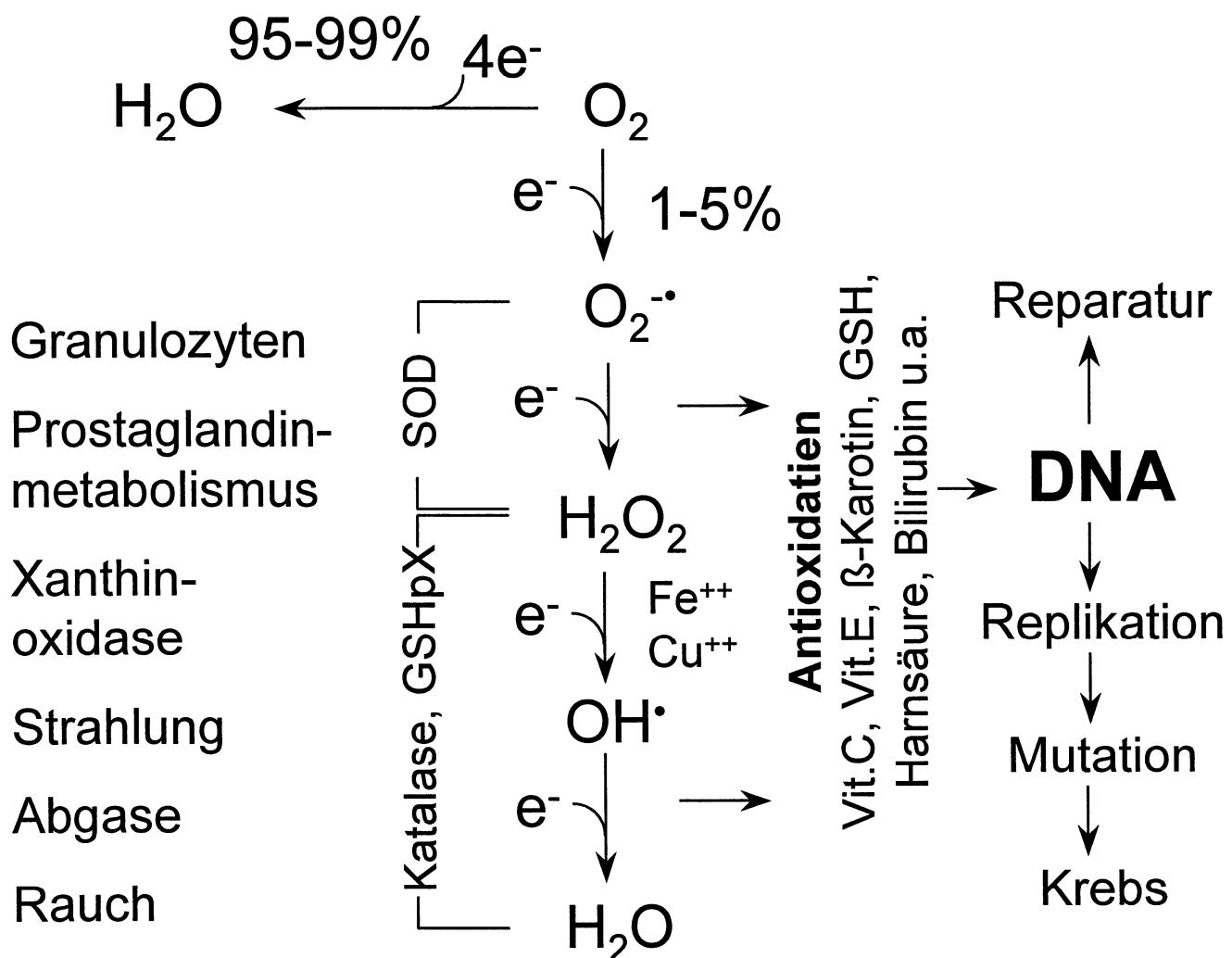
### Lungentumoren bei Ratten nach i.tr. Instillation von 15 mg Ruß bzw. BaP



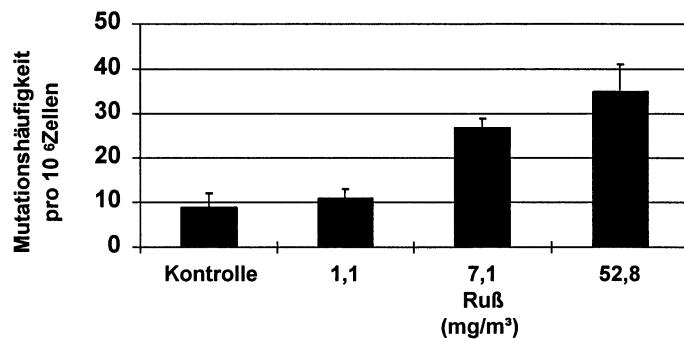
Fraunhofer  
Institut  
Toxikologie und  
Aerosolforschung  
Pharmaforschung und  
Klinische Inhalation

## Reaktive Sauerstoffspezies durch Ein-Elektronentransfer in den Mitochondrien (Atmungskette) und andere Quellen

11

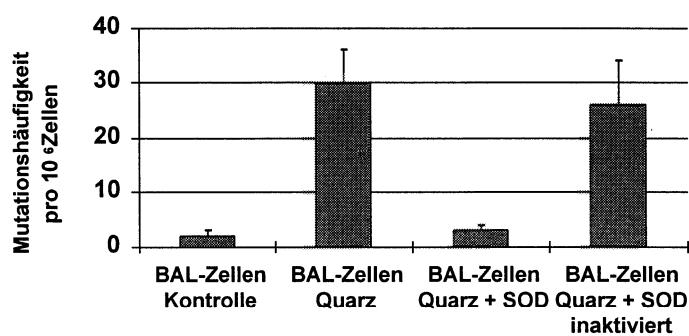


### HPRT-Mutationsfrequenz in alveolären Epithelzellen von Ratten nach Rußexposition (Driscoll et al., 1996)



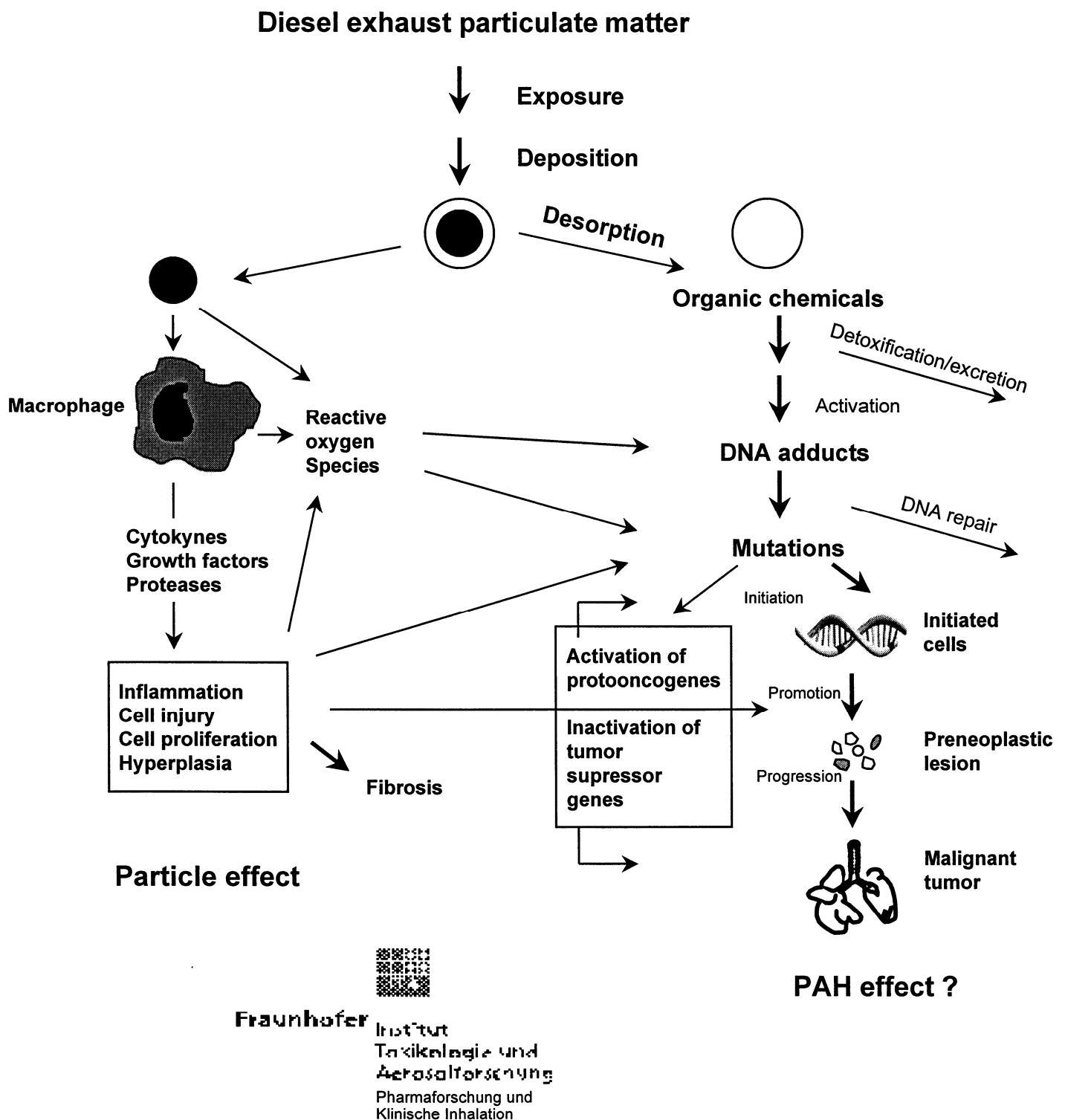
Fraunhofer  
Institut  
Toxikologie und  
Aerosolforschung  
Pharmaforschung und  
Klinische Inhalation

### Entzündungszellen aus Rattenlungen (BAL) nach Quarzexposition sind mutagen für Lungenepithezelzellen in vitro (Driscoll, 1996)



Fraunhofer  
Institut  
Toxikologie und  
Aerosolforschung  
Pharmaforschung und  
Klinische Inhalation

# Possible mechanisms for diesel exhaust-induced carcinogenesis (HEI, 1995, modified)



### Kontrollierte klinische Inhalationsstudien mit Dieselmotorabgas (Salvi et al., 1999)

Exposition	300 µg/m <sup>3</sup> PM, 1,6 ppm NO <sub>2</sub> , 7,5 ppm CO, 0,26 mg/m <sup>3</sup> Formaldehyd
Expositionszeit	2 Stunden
Probanden	n = 15 (11 m, 4 w) 21 - 28 Jahre, Nichtraucher
Untersuchungen	Lungenfunktion, BAL, bronchiale Biopsie, Hämatologie
Effekte	Deutliche entzündliche Reaktionen (BAL, Biopsie, Blut)



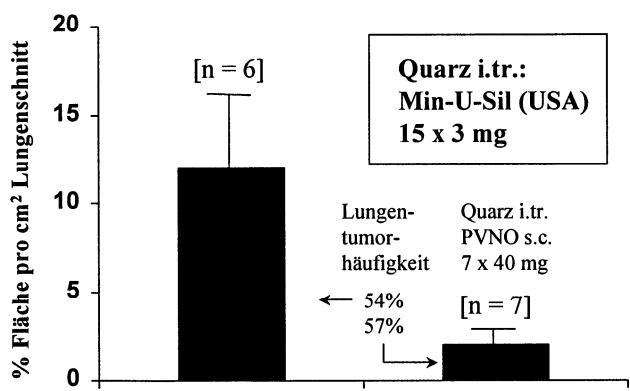
### Die partikelbedingte Entzündung als kanzerogenes Agens

- Gibt es einen ursächlichen Bezug zwischen Entzündungsstärke und Tumorrisiko?
- Welche Entzündungsstärke (DNA-Schädigung, Mutationsfrequenz) erhöht nicht mehr das Tumorrisiko?
- Müssen Ratte und Mensch für gleiches Tumorrisiko gleiche Entzündungstärke aufweisen?



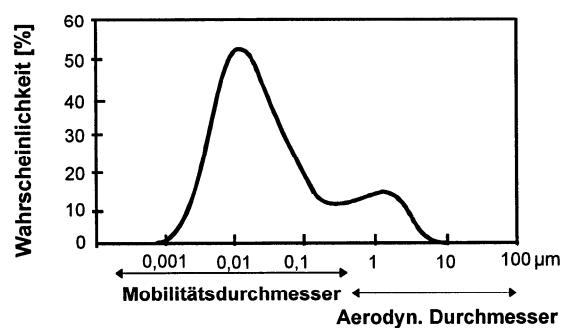
**Silikotisches Narbengewebe in der Rattenlunge**

(Pott et al. 1994; Friemann, 1995)



Fraunhofer  
Institut  
Toxikologie und  
Aerologie  
Pharmaforschung und  
Klinische Inhalation

**Depositionswahrscheinlichkeit von Partikeln im Alveolarbereich  
der menschlichen Lunge - ICPR (1994)**



Fraunhofer  
Institut  
Toxikologie und  
Aerologie  
Pharmaforschung und  
Klinische Inhalation

### Wirkungsvergleich feiner (F) und ultrafeiner (UF) Partikel in der Rattenlunge

Titandioxid F 250 nm, UF 20 nm

Technischer Ruß F 260 nm, UF 50 nm, UF 14 nm

- Bei gleicher Massendosis stärkere Wirkung durch UF
- Wirkung korreliert mit spezifischer Oberfläche

Oberdörster et al., 1994; Donaldson et al., 1999, Li et al., 1996



### Alveoläre Partikelclearance von feinem (0,25 µm) [F] und ultrafeinem (0,02 µm) [U] TiO<sub>2</sub> nach Inhalation bei der Ratte

Exposition/ Retinierte Dosis	% des AM- Volumens	Anzahl der Partikeln x 10 <sup>9</sup>	Retention T <sub>1/2</sub>
Reinluft	0	0	1
TiO <sub>2</sub> -F/340 µg	9	10,9	1,8
TiO <sub>2</sub> -U/100 µg	2,6	5420	8,2

AM = Alveolärer Makrophage, Oberdörster et al., 1994



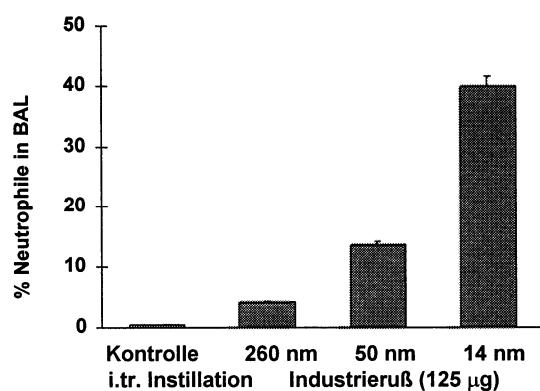
**Partikelmasse (mg/g Kontrollunge) und Tumorraten in der Rattenlunge nach Inhalation von  $\text{TiO}_2$**

	MMAD μm	Expositionsmonate				Tumorrat %
		3	6	12	24	
$\text{TiO}_2\text{-F}$	1,5 <sup>a</sup>	7	126	182	237	31
$\text{TiO}_2\text{-U}$	0,8 <sup>b</sup>	4	15	26	27	32

<sup>a</sup> Einzelpartikel, <sup>b</sup> Agglomerate aus ultrafeinen Primärpartikeln (15 - 40 nm), Heinrich et al., 1996

Fraunhofer  
Institut  
Toxikologie und  
Aerosolforschung  
Pharmaforschung und  
Klinische Inhalation

**Abhängigkeit der Entzündungreaktion in Rattenlungen von der Partikelgröße (Donaldson et al., 1999; Li et al., 1996)**



Fraunhofer  
Institut  
Toxikologie und  
Aerosolforschung  
Pharmaforschung und  
Klinische Inhalation

## Die Besonderheiten ultrafeiner, schwerlöslicher Partikeln

- Hohe alveoläre Deposition
- Geringe Massen- / hohe Anzahldosis
- Große spezifische Oberfläche
- Reduzierte Makrophagen-Phagozytose
- Lange Retentionshalbwertszeit ( $T_{1/2}$ )
- Erleichterter Durchtritt durch Zellmembranen
- Erhöhte epitheliale und interstitielle Reaktion
- Wirkung korreliert mit Anzahl/Oberfläche



## Entzündungsgeschehen bei alveolengängigen Partikeln korreliert mit

- Volumendosis bei Partikeln  $> 0,1 \mu\text{m}$
- Anzahl-/Oberflächendosis bei Partikeln  $< 0,1 \mu\text{m}$
- Volumen- und Anzahl-/Oberflächendosis bei Aggregaten



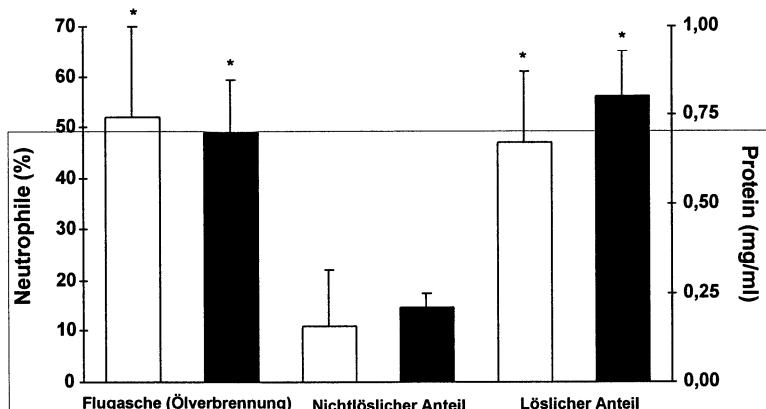
Beruhen die durch Umweltaerosole verursachten erhöhten Morbiditäten/Mortalitäten auf einem Partikeleffekt oder auf stoffspezifischen Wirkungen?

## Zusammensetzung von Umweltaerosolen

Sulfat, Nitrat, Chlorid, Ammonium	~ 40%
Organischer Kohlenstoff	~ 30%
Elementarer Kohlenstoff	~ 10%
Mineralien	~ 15%
Metalle	~ 5%

(Holgate et al., 1999; Maynard und Howard, 1999; RIVM, 2000; Israël et al., 1992)

**Neutrophile (PMNs) und Protein in BAL von Ratten (Kadiiska et al., 1997)**



Fraunhofer  
Institut  
Toxikologie und  
Aeroforschung  
Pharmaforschung und  
Klinische Inhalation

**Mögliche Ursachen der gesundheitlichen Wirkung von Umweltstaub**

- Azidität des Staubes
- Ultrafeiner Anteil des Staubes
- Veränderte intrapulmonale Verteilung der Staubdosis z.B. bei COPD
- Organische Fraktion des Staubes
- Vorhandensein von biologischem Material (Allergene, Pollenfragmente, Endotoxine, Schimmelpilzkomponenten)
- Übergangsmetalle im Staub
- Kombinationswirkung von Gas ( $O_3$ )- und partikelförmigen Schadstoffen
- Unlöslicher Staubanteil (Partikeleffekt)

Fraunhofer  
Institut  
Toxikologie und  
Aeroforschung  
Pharmaforschung und  
Klinische Inhalation

## Staubgrenzwerte

	Arbeitsplatz (DFG-MAK)	Umwelt (EU 2005)
Grenzwerte (Mittel)	1500 µg/m <sup>3</sup> (8 h)	50 µg/m <sup>3</sup> (24 h)
Partikelgröße	alveolengängig (~ PM4)	PM10
Ultrafeine Partikel	-	+
Lösliche Partikel	-	+
Stoffspezifische Tox.	-	+
Exponierte Menschen	Arbeitnehmer	gesamte Bevölkerung


**Fraunhofer** Institut  
 Toxikologie und  
 Aerosolforschung  
 Pharmaforschung und  
 Klinische Inhalation

## Zusammenfassung I

- 1) Nur schwer- und unlösliche Partikel haben eine Partikelwirkung.
- 2) Beim Dieselruß steht der Partikeleffekt im Vordergrund.
- 3) Es ist nicht wahrscheinlich, dass Entzündung und Tumorrisiko bei Ratte und Mensch eine ähnliche quantitative Korrelation aufweisen.


**Fraunhofer** Institut  
 Toxikologie und  
 Aerosolforschung  
 Pharmaforschung und  
 Klinische Inhalation

## Zusammenfassung II

- 4) Sowohl Oberflächendosis ( $PM > 0,1 \mu\text{m}$ ) als auch Anzahl-Oberflächendosis ( $PM < 0,1 \mu\text{m}$ ) korrelieren mit der Entzündungsstärke.
- 5) Der Partikeleffekt steht bei der Wirkung von Umweltaerosolen wahrscheinlich nicht im Vordergrund.
- 6) Staubgrenzwerte von Arbeitsplatz und Umwelt beziehen sich auf unterschiedliche Staubqualitäten.



## **SEKTION 2**

### **ANSÄTZE ZUR MINDERUNG VON FEINSTAUB-EMISSIONEN**



## 2.1 ENTSTEHUNG UND QUELLEN DER FEINSTAUB-EMISSIONEN

### -Neue gesetzliche Regelungen für Feinstaub-

**Rainer Remus**  
**Umweltbundesamt, Berlin**

#### **Einleitung**

Im Juli 1999 trat die 1. Tochterrichtlinie zur Luftqualitätsrahmenrichtlinie der EU (1999/30/EG) in Kraft. Sie wurde im ABl. L 163/41 am 29.6.1999 bekannt gegeben. Mit ihr werden neue, in der gesamten Europäischen Union verbindliche Immissionswerte für Schwebeldioxid, Stickoxide, Partikel und Blei festgesetzt. Die Mitgliedsstaaten sind verpflichtet, sie bis 19. Juli 2001 in nationales Recht umzusetzen.

Die neuen Immissionsgrenzwerte für Partikel sind in Tabelle 1 dargestellt.

#### **Umsetzung der Luftqualitätsrahmenrichtlinie und der 1. Tochterrichtlinie**

Die Umsetzung in Deutschland erfordert insbesondere eine Änderung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (BImSchG) und der 22. Verordnung zum Bundes-Immissionsschutzgesetz (22. BImSchV), in der sich die bisher gültigen Immissionsgrenzwerte der EU wiederfinden. Darüber hinaus sind ggf. weitere bestehende Bestimmungen und gesetzliche Regelungen anzupassen, z.B. die 23. BImSchV und die 4. allgemeine Verwaltungsvorschrift zum BImSchG.

Weiterhin wird eine Berücksichtigung der neuen Anforderungen durch die in der Novellierung befindliche TA Luft erfolgen. Dabei werden die neueren Erkenntnisse über die gesundheitsschädliche Wirkung mineralischer Feinstäube bei der Festlegung neuer allgemeiner und spezifischer Emissionswerte für Staub berücksichtigt werden müssen.

Der Vollzug der nationalen Vorschriften zur Umsetzung der Anforderungen der Luftqualitätsrahmenrichtlinie bzw. der 1. Tochterrichtlinie obliegt den Bundesländern. Die Zuständigkeit der Behörden regelt das jeweilige Landesrecht.

Bereits seit der 91. Sitzung 1996 fanden im Länderausschuss für Immissionsschutz (LAI) zahlreiche Beratungen zur Umsetzung der Luftqualitätsrichtlinie und nachfolgend auch der 1. Tochterrichtlinie statt.

Auf der Grundlage erster Recherchen der Länder (LAI UA-Luft/Technik und Luft/Überwachung sowie Arbeitskreis-Emissionskataster) kam der LAI zu der Bewertung, dass die vorgesehenen Immissionswerte für Feinstaub ( $PM_{10}$ ) in Deutschland häufig überschritten sind.

Folgende Fragen waren und sind Gegenstand der Diskussion bei der Umsetzung der EU-Richtlinien:

- Aktuelle Immissionssituation für Feinstaub ( $PM_{10}$ )
- Ursachen und Quellen der Feinstaubbelastung und Quantifizierung der Emissionen
- Beiträge der Emissionen zur Immissionsbelastung
- Festlegung wirkungsvoller Maßnahmen zur Einhaltung der Anforderungen der EU-Richtlinien.

### **Feinstaubfachgespräche im UBA**

Zur Umsetzung eines Auftrages des LAI bat der UA Luft/Technik das Umweltbundesamt, Fachgespräche, u.a. zur Ermittlung der Ursachen der Feinstaubbelastung, durchzuführen.

In zwei Fachgesprächen des Umweltbundesamtes mit den Ländern und weiteren Experten (22.07.1998 und 09.12.1999) wurden Ursachen und Quellen der Feinstaubbelastung sowie erste Schätzungen für Gesamt- und Feinstaubemissionen aus stationären Quellen ermittelt. Weiterhin wurden Feinstaubemissionsmessprogramme an wesentlichen Quellen beschlossen.

Die ersten Ergebnisse der Messprogramme und die Schätzungen der Staubemissionen aus stationären Quellen sind in den folgenden Seiten (Tabellen) dargestellt. Die Evaluierung der Daten wird fortgesetzt, so dass Ende 2000 die Ergebnisse für alle wesentlichen stationären Quellen vorliegen werden.

- Neue gesetzliche Regelungen für Feinstaubimmissionswerte

Tabelle 1: Anforderungen der 1. Tochterrichtlinie 1999/30/EG vom 22.4.1999 für Partikel (PM<sub>10</sub>) in der Luft

Schadstoff/ Schutzobjekt	Mittelungszeit- raum	Grenzwert [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]	Erlaubte Überschrei- tungen pro Jahr	Toleranzmarge <sup>1</sup> (Bemes- sungsbasis 19.7.1999)	Grenzwert gültig ab
Partikel PM <sub>10</sub> ) <sup>2</sup> /mG	24 Stunden	50	$\leq 35$	50%	1.1.2005
Partikel PM <sub>10</sub> /mG	24 Stunden	50	$\leq 7$	- <sup>3</sup>	1.1.2010
Partikel PM <sub>10</sub> /mG	Kalenderjahr	40	keine	20%	1.1.2005
Partikel PM <sub>10</sub> /mG	Kalenderjahr	20	keine	50% ab 1.1.2005	1.1.2010

mG: menschliche Gesundheit

- 
- 1 Die Toleranzmarge verringert sich linear am 1. Januar 2001 und danach alle 12 Monate um einen gleichen Prozentsatz bis auf 0% am 1. Januar 2005.
- 2 Generelle Überprüfung mit Stichtag 31.12.2003. Dann Festlegung von Grenzwerten für 2010 (Angaben für 2010 bislang nur Richtgrenzwerte) und Prüfung, ob für PM<sub>2,5</sub> Immissionsgrenzwerte eingeführt werden sollen.
- 3 Wird noch festgelegt

### Wie entsteht Feinstaub?

- primäre und sekundäre Quellen (Vorläufersubstanzen, Atmosphärische Umwandlung möglich (gas-particle-conversion (GPC)))
- natürliche und anthropogene Quellen
- diffuse Quellen oder gefasste, definierte Quellen
- Ferneintrag (bezogen auf Deutschland)

### Primäre Quellen:

z.B. Brände, Vulkantätigkeit, Landwirtschaft, Bautätigkeit, mechanische Beanspruchung, Verkehr, Wind, industrielle Prozesse einschließlich Energieerzeugung, Rohstoffgewinnung, Feuerungsanlagen

### Sekundäre Quellen:

Quellen, die Ammoniak, Schwefeldioxid, Stickstoffoxide, VOC freisetzen → atmosphärische Umwandlung zu Partikeln (GPC)

### Übersicht der Quellen und deren Berücksichtigung in den Schätzungen

Quellen	Berücksichtigung bei der Ermittlung
stationäre Quellen	weitgehend
Verkehr	vollständig, außer Aufwirbelung
Schüttgutumschlag	weitgehend
natürliche Quellen	unberücksichtigt
Ferneintrag	unberücksichtigt
übrige diffuse Quellen	unberücksichtigt
sekundäre Quellen (Vorläufersubstanzen)	unberücksichtigt (Schätzungen: 20 bis 50% der Immissionsbelastung)

**Tabelle 2: Staubemissionen 1996 in Deutschland<sup>1</sup>, Schätzung Feinstaub PM<sub>10</sub>**

Herkunft der Stäube/ Anlagen -art oder Quelltyp	Gesamtstaub 1996 [kt]	Feinstaubanteil [%]	Feinstaub [kt]	Anteil am Gesamtfeinstaub 1996 [%]
Industrieprozesse	103	60 <sup>2</sup>	<b>61,8</b>	31,3
Kraft- und Fernheizwerke	33	95	31,4	15,9
Industriefeuerungen	7	95	6,7	3,4
Haushalte <sup>3</sup>	16	90	14,4	7,3
Kleinverbraucher	7	90	6,3	3,2
Schüttgutumschlag	47	20	9,4	4,8
Straßenverkehr (Abgas)	41	100	41	20,8
Übriger Verkehr	19	100	19	9,6
Straßenverkehr (Reifenabrieb)	73	10	7,3	3,7
<b>Summe</b>	<b>346</b>		<b>197,2</b>	<b>100</b>

<sup>1</sup> Primäre Staubemissionen (Bildung von Sekundäraerosolen aus Vorläufersubstanzen nicht enthalten)

<sup>2</sup> 60% ist eine aggregierte Größe aus: 90 bis 100% Feinstaubanteil bei gefassten Punktquellen mit effektiven Abscheidern, ca. 80% bei Teilweise gefassten und gereinigten Abgasströmen und ca. 30% bei diffusen Prozessemissionen ohne Abgasreinigung.

<sup>3</sup> Anlagen im Geltungsbereich der 1. BlmSchV (Bezugsjahr 1995)

**Tabelle 3: Branchenspezifische Feinstaubemissionen aus  
Industrieprozessen 1996 in Deutschland**

<b>Industrieprozesse</b>	<b>Feinstaubemission [t/a]</b>
Stahl, Eisen, Metalle einschließlich Verarbeitung	ca. 35.900
Steine, Erden, Glas, Keramik, Baustoffe	ca. 13.500
Bergbau	ca. 4.800
Chemische Industrie	ca. 4.100
Holz, Zellstoff	ca. 2.300
Nahrungs-, Genuss- und Futtermittel	ca. 800

**Tabelle 4: Darstellung wesentlicher Ergebnisse der Bund/Länder-Feinstaubmessungen an stationären Quellen**

Industrieanlagen z.B.	Abscheider	Gesamtstaub [mg/m <sup>3</sup> ]	PM <sub>10</sub> -Anteil	PM <sub>2,5</sub> - Anteil	PM <sub>1</sub> -Anteil
Kraftwerke, Industriefeuerung, Brechanlagen für Gestein,	Gewebefilter	0,1 bis 20 häufig < 5	80 bis 99%	55 bis 80%	40 bis 70%
Zementherstellung, Eisengießereien, Düngemittelherstellung, Feinkeramik und Asphaltherstellung.	Elektrofilter	1 bis 30 häufig < 10	(häufig > 95%)		
	Nasselektrofilter	< 3			
	Nassabscheider	1 <sup>1</sup> bis 5 <sup>2</sup> einmal 80 <sup>3</sup>			
	Zyklon <sup>2</sup>	16			
Kleinfeuerungsanlage 6 kW	-----	20 bis 50	Mittel: 90%	Mittel: 82%	Mittel: 70%

<sup>1</sup> Aminwässcher bei Eisengießerei

<sup>2</sup> Kombination mit Elektrofilter

<sup>3</sup> Kombination Zyklon mit Venturiwässcher am Kupolofen

**Tabelle 5: Wirkungsgrad von Staubabscheidern für PM<sub>10</sub>**  
 (Messergebnisse aus Forschungsvorhaben in 1985)

Anlagenart	PM <sub>10</sub> Anteil	Staubkonzentration pro m <sup>3</sup>	Rohgas	Staub-Abscheider	PM <sub>10</sub> Anteil	Staubkonzentration pro m <sup>3</sup>	Reingas	Wirkungsgrad [%]
Braunkohlefeuerung	Ca. 20%	4 bis 10 Gramm	Elektrofilter	80 bis 85	10 bis 20 Milligramm	97,9 bis 99,6		
Zirk. Wirbelschicht-Feuerung	Ca. 20%	60 bis 80 Gramm	Gewebefilter	Ca. 85	10 bis 20 Milligramm	99,86 bis 99,95		
Drehstromofen zum Schmelzen von Zinksschrott	Ca. 20%	1 bis 3 Gramm	Venturiwäscher	80 bis 98%	40 bis 10 Milligramm	81 bis 98,5		
<b>Schätzungen für heutige Abscheider</b>								
sonstige ind. Prozesse einschl. Energieerzeugung	20 bis 90 %	Grammbereich 1 bis 100 (z.B. 10)	Gewebefilter Elektrofilter Nassabscheider	80 bis 99% häufig > 95	0,1 bis 30 Milligramm häufig < 10	95 bis 99,999 häufig > 99		

## Schätzung der Immissionsbeiträge der einzelnen Quellen

- Zusammenhang Emission-Transmission-Immission nicht hinreichend untersucht
- Zur Zeit werden folgende Schätzungen für Deutschland im LAI diskutiert:
  - Immissionsanteil der Sekundäraerosole: 20 bis 50%
  - Immissionsanteil durch Ferntransport: 50 bis 60%
- Schweiz:
  - Jahresdurchschnitt 1997 und 1998  
Stadt: 30 bis 45  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  Land: 26 bis 33  $\mu\text{g}/\text{m}^3$
  - Grundbelastung durch Ferntransport: ca 10  $\mu\text{g}/\text{m}^3$
- England
  - Jahresdurchschnitt 1996  
Stadt: 20 bis 40  $\mu\text{g}/\text{m}^3$
  - Tagesdurchschnitt 1996  
Stadt: 50 bis 70  $\mu\text{g}/\text{m}^3$
  - Im Mittel stammen 25% aus dem Verkehr  
Stadt: bis zu 77% Land ca. 12%
  - Grundbelastung durch Ferntransport: 10 bis 12  $\mu\text{g}/\text{m}^3$
  - Verteilung auf die Quellen:

Primäre Quellen:	ca. 40%
Sekundäre Quellen:	ca. 36 (bis zu 70%)
Sonstige Quellen:	ca. 24%

## **Sinnvolle Maßnahmen**

- Was macht es so schwer, Maßnahmen festzulegen?
  - Beitrag der Quellen zur Immissionsbelastung?
  - Prognosen der Entwicklung bei den einzelnen Quellbereichen
  - Wirksamkeit und Kosten der Maßnahmen?
- Maßnahmen bei stationären Anlagen
  - Fortentwicklung TA Luft, Großfeuerungsanlagen VO und sonstiger Regelungen gemäß dem Stand der Technik
  - Energiesparmaßnahmen zur Erreichung des CO<sub>2</sub>-Minderungsziels
  - Brennstoffumstellung und Energiesparmaßnahmen im Bereich der Haushalte und Kleinverbraucher
- Maßnahmen im mobilen Bereich
  - neben den bereits beschlossenen Maßnahmen (z.B. EURO III und EURO IV) Einsatz von Rußfiltern bei Dieselfahrzeugen.

## 2.2 PARTIKELEMISSIONEN DES STRASSENVERKEHRS – WAS IST NOCH ZU TUN ?

**Stefan Rodt**  
**Umweltbundesamt, Berlin**

Die Fortschreibung der Abgasgrenzwerte in den EU-Richtlinien für die Typprüfung von Pkw und schweren Nutzfahrzeugen hat mit den Stufen EURO III, IV und V einen Stand erreicht, der nach weitgehender Durchdringung des Bestandes mit derartigen Fahrzeugen voraussichtlich die Einhaltung der Luftqualitätsziele in Europa und Deutschland ermöglicht.

Aufgrund der beschlossenen Abgasgesetzgebung werden die Partikelemissionen des Straßenverkehrs (Innerorts) nach Berechnungen mit dem Modell TREMOD ausgehend vom Höchststand im Jahr 1994 bis 2010 um ca. 80% abnehmen. Dies gilt auch für den wirkungsrelevanten EC-Anteil. Dabei wird bereits die Einführung von Partikelfiltern für Nutzfahrzeuge unterstellt. Eine weitere Fortschreibung der Abgasgesetzgebung wird u.a. einen „wirkungsgerechteren“ Parameter für die Begrenzung der Partikelemission anstelle der Masse oder zusätzlich zur Masse sowie die Definition entsprechender Messverfahren betreffen. So unterscheiden sich z.B. heutige Diesel-Pkw mit gleicher Massenemission in g/km bezüglich der gesamten Partikelzahl mindestens um den Faktor 2 bis 3, was einen erheblichen Unterschied bezüglich der Wirkung vermuten lässt.

In Hinblick auf den Immissionsschutz und Immissionsmessungen gilt es, die unterschiedlichen durch die jeweiligen Messverfahren vorgegebenen Definitionen der fahrzeugseitigen Partikelemission einerseits und des Schwebstaubs andererseits sowie den Beitrag verschiedener Quellen zu berücksichtigen, wenn Maßnahmen zur Minderung der  $PM_{10}$ -Konzentrationen diskutiert werden.

Die Analyse von Immissionsmessungen zeigt, dass die vom Verkehr stammenden primären  $PM_{10}$ -Anteile z.B. in Straßenschluchten mit hoher Verkehrsdichte bezüglich der Massenkonzentration in der Größenordnung von 20% liegen, bezüglich der Größenverteilung jedoch weit unter 1  $\mu m$ . Eine Minderung der Partikelemissionen des Verkehrs kann demnach immissionsseitig zu einer erheblichen Reduzierung der wirkungsrelevanten Anzahl von Feinstpartikeln führen, hat jedoch auf die massenbezogene  $PM_{10}$ -Konzentration nur einen relativ geringen Einfluss.

Partikelfilter sind die derzeit greifbare technische Lösung, um die Partikelemission von Diesel-Kfz und somit das von den Partikeln ausgehende Krebsrisiko um mehr als 90 Prozent zu reduzieren. Für Nutzfahrzeuge sind verschiedene technische Lösungen verfügbar und werden spätestens mit Einführung der Grenzwertstufe EURO IV ab 2005 weitgehend Serienstandard sein. Heute sind in Deutschland ca. 3000 bis 4000 Stadtbusse mit Partikelfilter im Einsatz, überwiegend mit dem sog. CRT-System (Continuously Regenerating Trap). Die Berliner BVG rüstet z.Zt. über 1000 Busse mit diesem System nach.

Die Firma Peugeot bietet als erster Pkw-Hersteller seit Frühjahr 2000 den neuen Typ 607 serienmäßig mit Partikelfilter an. (Die Firma Volkswagen hat den neuen Typ D 1 im August 2000 mit Partikelfilter vorgestellt.) Weitere Hersteller werden folgen. Die Grenzwertstufe

EURO IV ab 2005 wird zumindest für mittlere und schwere Diesel-Pkw den Einsatz von Partikelfiltern erfordern. Falls ein Additiv zur Unterstützung der Filterregeneration eingesetzt wird, ist darauf zu achten, dass der Filter auch die vom Additiv stammenden Feinstpartikel vollständig ausfiltert.

Eine vergleichende Bewertung des Wirkungspotentials von Ottomotorabgas und Dieselmotorabgas zeigt als positive Perspektive, dass mit Einführung von Partikelfiltern für Diesel-Kfz die kanzerogene Wirkung auf ein den Ottomotoren vergleichbar niedriges Niveau sinken würde. Damit wäre die langjährige Diskussion über dieses Thema beendet.

Umweltbundesamt (UBA), Berlin  
I 3.2 - Schadstoffminderung und Energieeinsparung  
im Verkehr



## Partikelemissionen des Straßenverkehrs

### Was ist noch zu tun ?

Stefan Rodt, UBA Berlin

- Entwicklung der Abgasgesetzgebung und der Partikelemissionen des Verkehrs
- Charakterisierung der Partikelemissionen und deren Anteil an den Staubimmissionen
- Anforderungen an die Schadstoffminderungstechnik

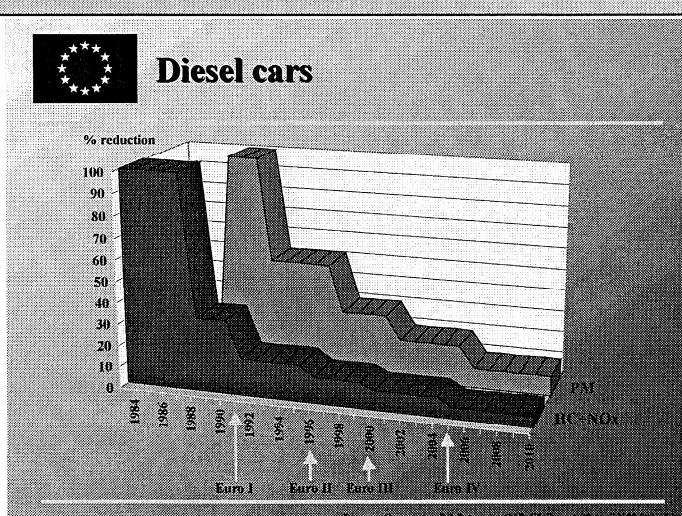
Tagung „Feinstaub“  
WaBoLu e.V., Berlin, 26. – 27. Juni 2000

Fig. 1

Umweltbundesamt (UBA), Berlin  
I 3.2 - Schadstoffminderung und Energieeinsparung  
im Verkehr



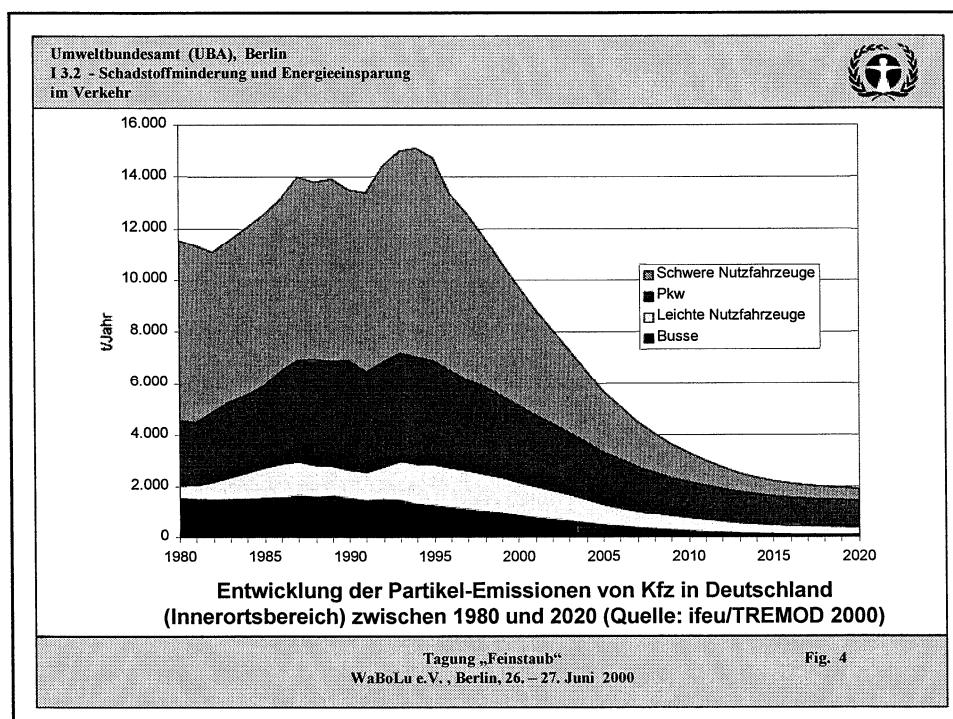
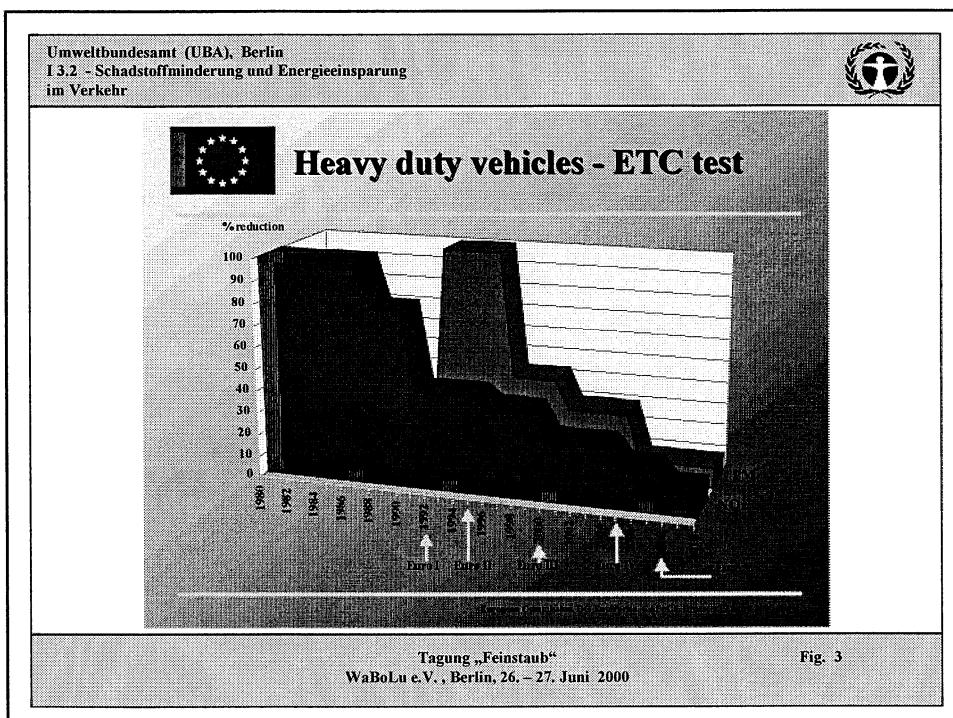
### Diesel cars

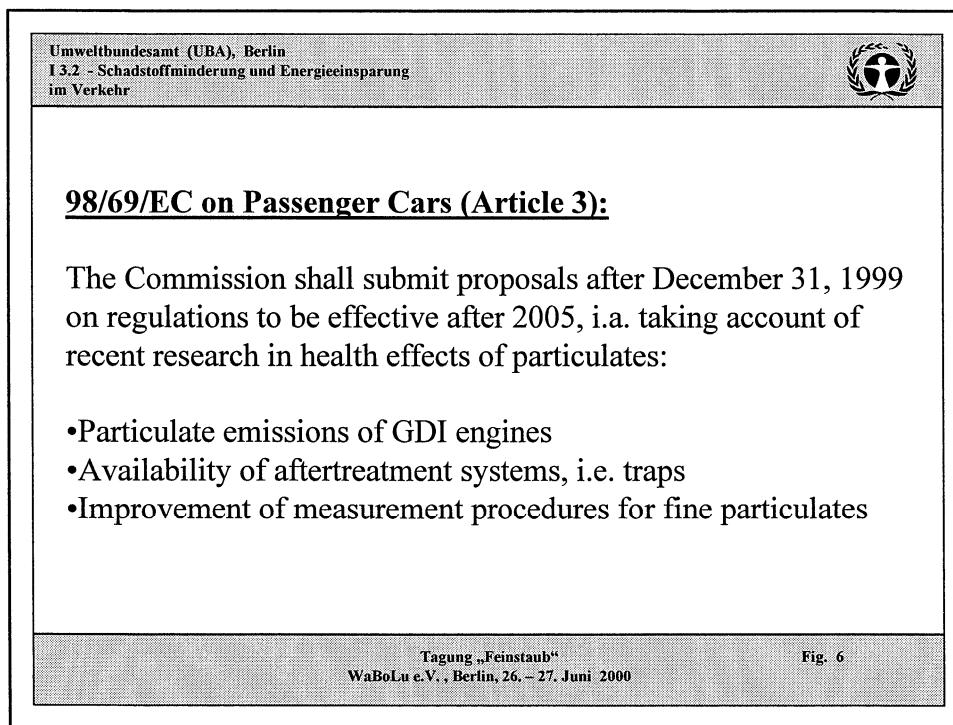
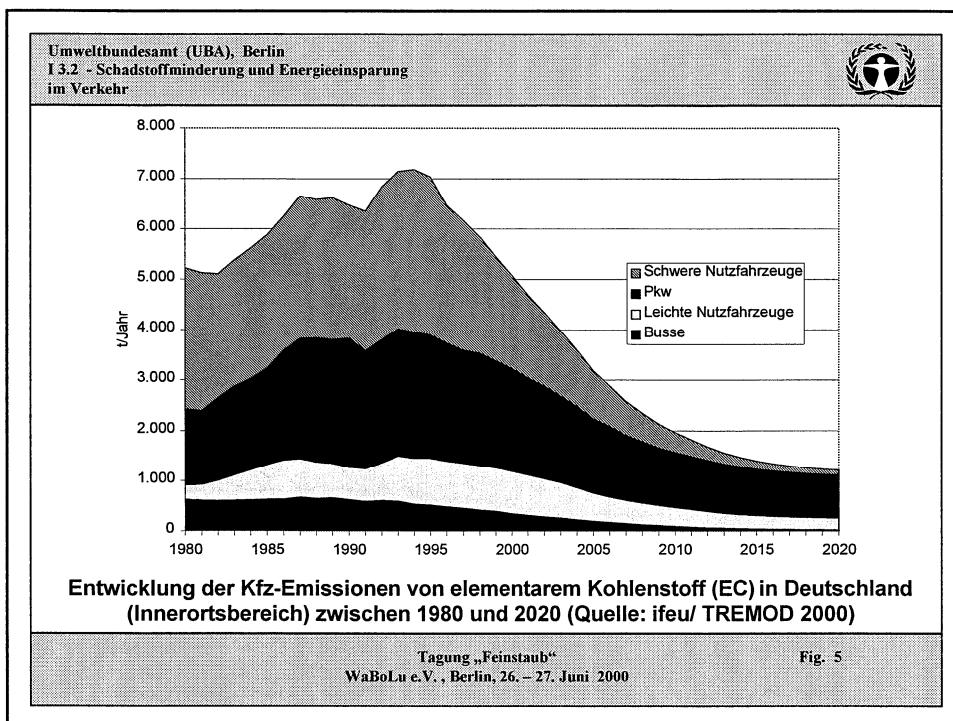


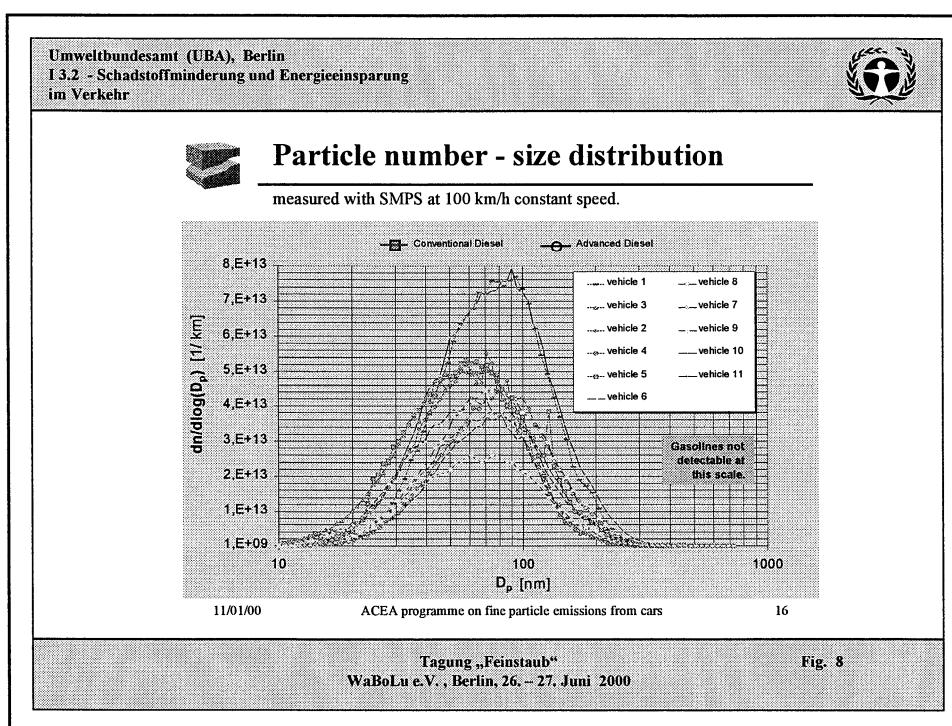
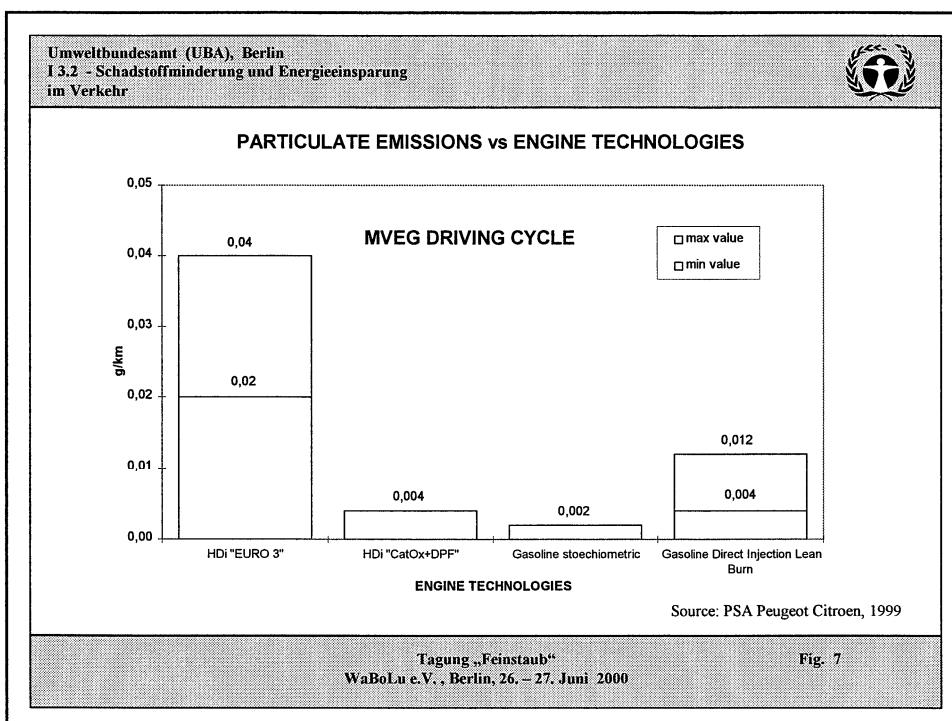
Year	PM Reduction (%)	NOx Reduction (%)
1984	~100	~100
1986	~95	~95
1988	~85	~85
1990	~75	~75
1992	~65	~65
1994	~55	~55
1996	~45	~45
1998	~35	~35
2000	~25	~25
2002	~20	~20
2004	~15	~15
2006	~10	~10
2008	~5	~5
2010	~2	~2

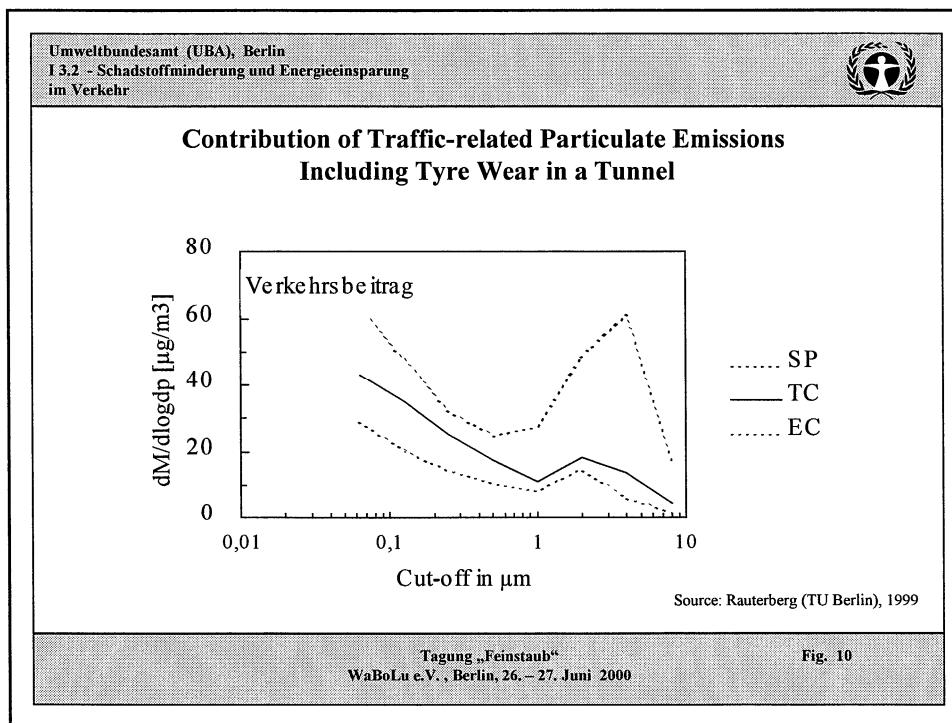
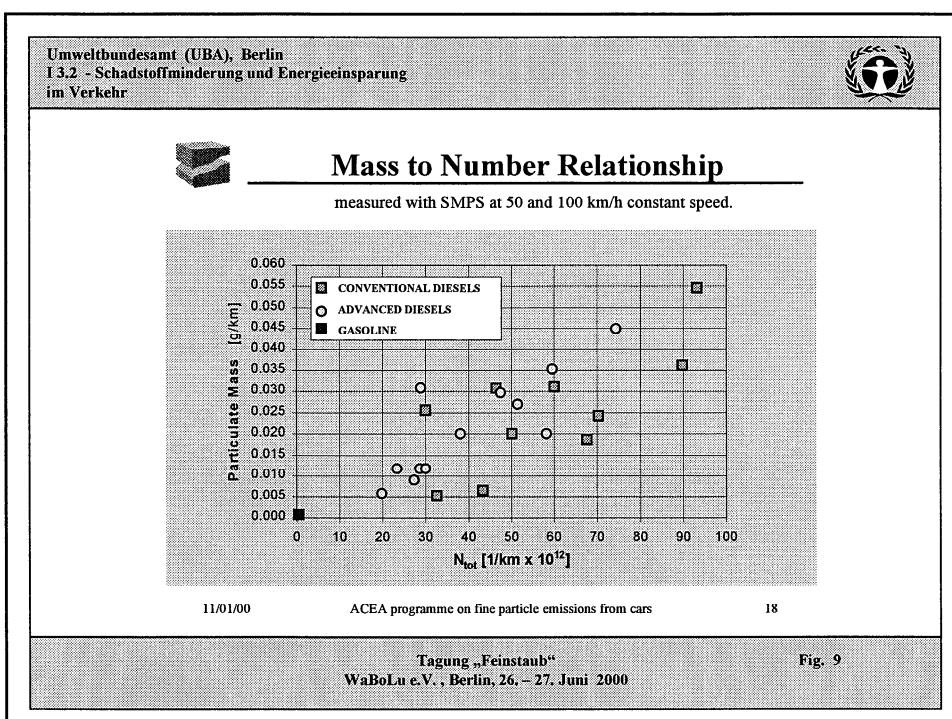
Tagung „Feinstaub“  
WaBoLu e.V., Berlin, 26. – 27. Juni 2000

Fig. 2



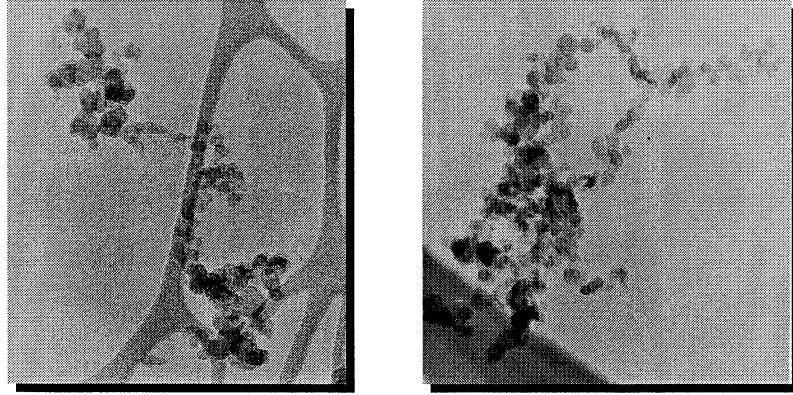






Umweltbundesamt (UBA), Berlin  
I.3.2 - Schadstoffminderung und Energieeinsparung  
im Verkehr

Electron Microscopy of Agglomerated Particles  
from Different Diesel Passenger Cars



Source: Metz (BMW) et al., 1999

Tagung „Feinstaub“  
WaBoLu e.V., Berlin, 26. – 27. Juni 2000

Fig. 11

Umweltbundesamt (UBA), Berlin  
I.3.2 - Schadstoffminderung und Energieeinsparung  
im Verkehr

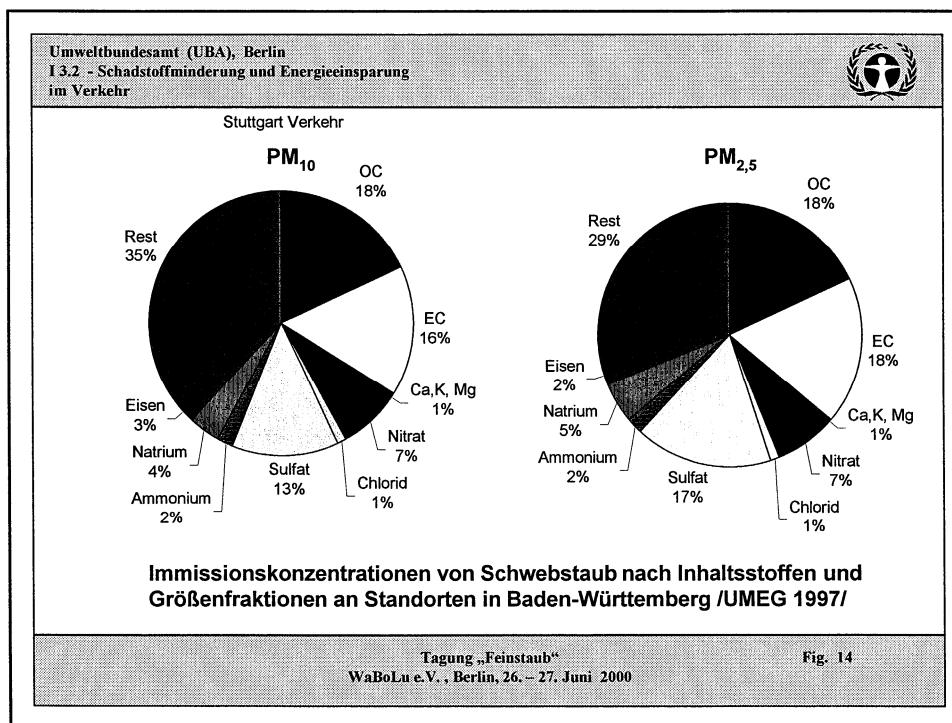
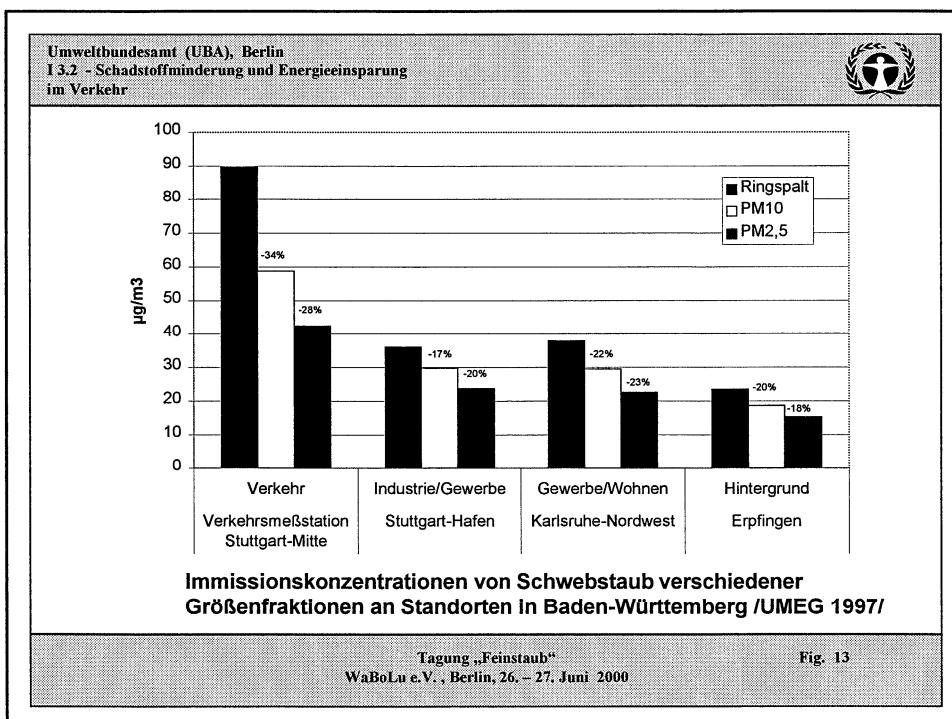
EC-Anteil an der Partikelemission nach Partikelfilter

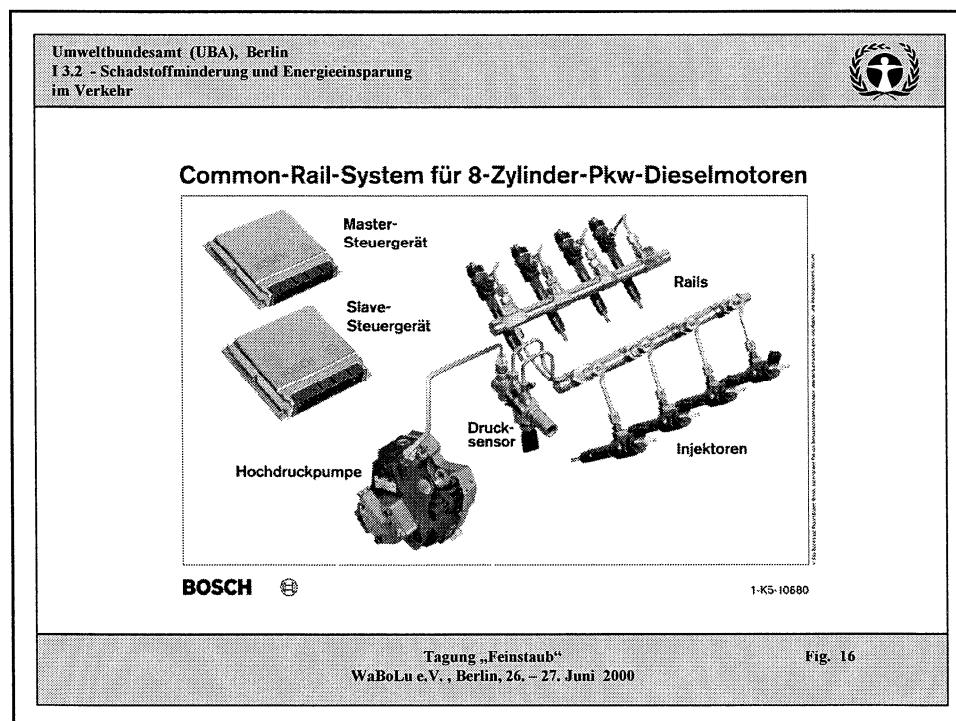
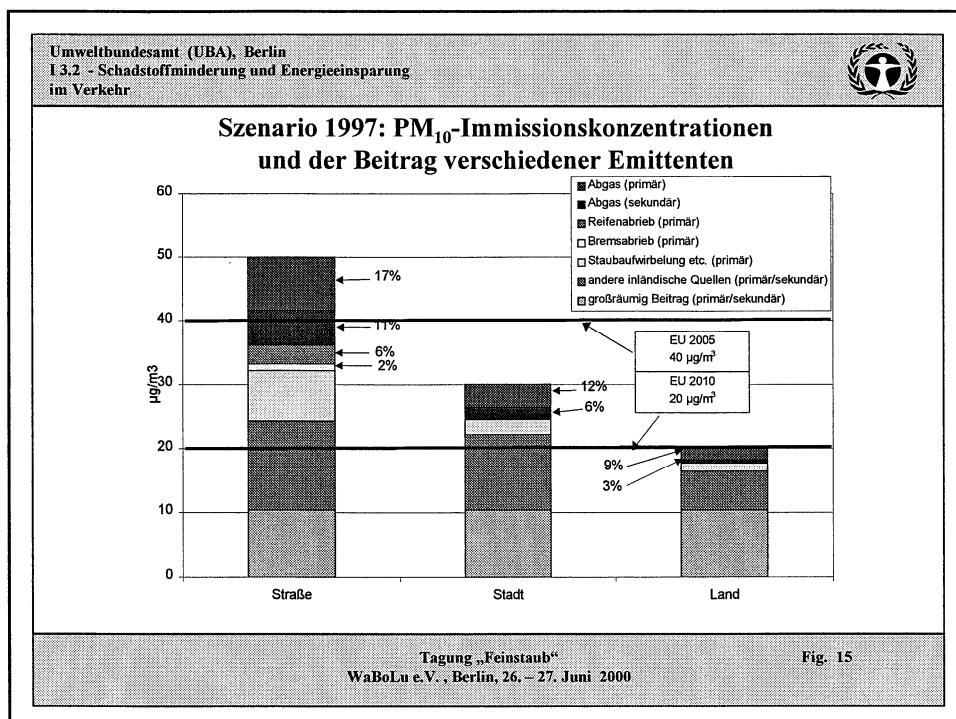
nach Partikelfilter:	EC-Gehalt von...bis %	EC typischer Bereich %	EC arithm. Mittelwert %	EC typischer Wert %
Nfz Teillast	1 bis 51	5 bis 40	23	25
Nfz Vollast	3 bis 50	7 bis 20	19	15
Pkw Teillast	16 bis 57	20 bis 30	30	25

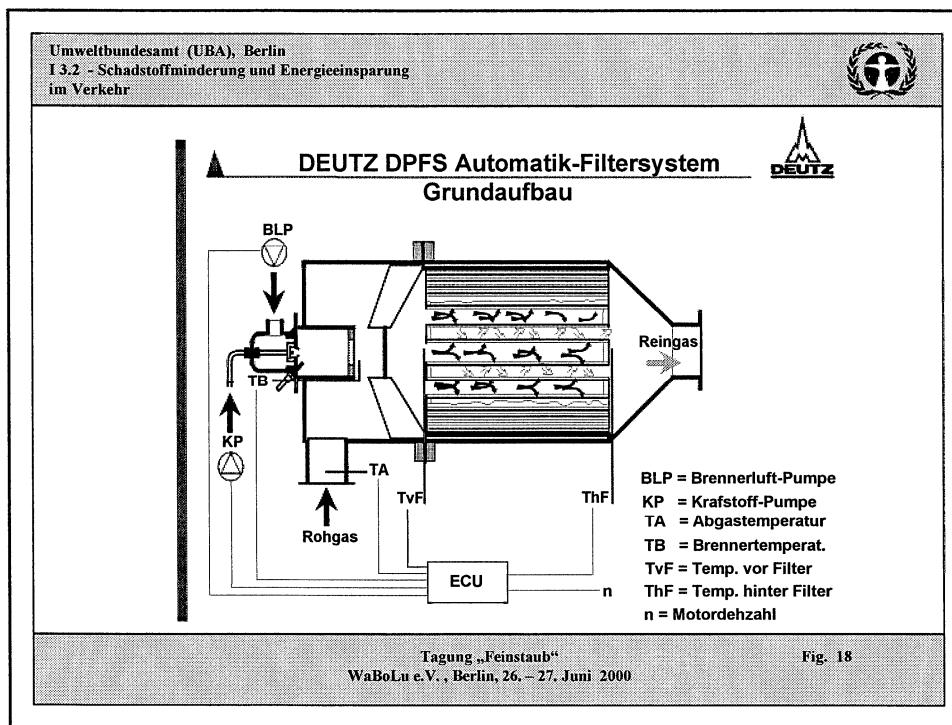
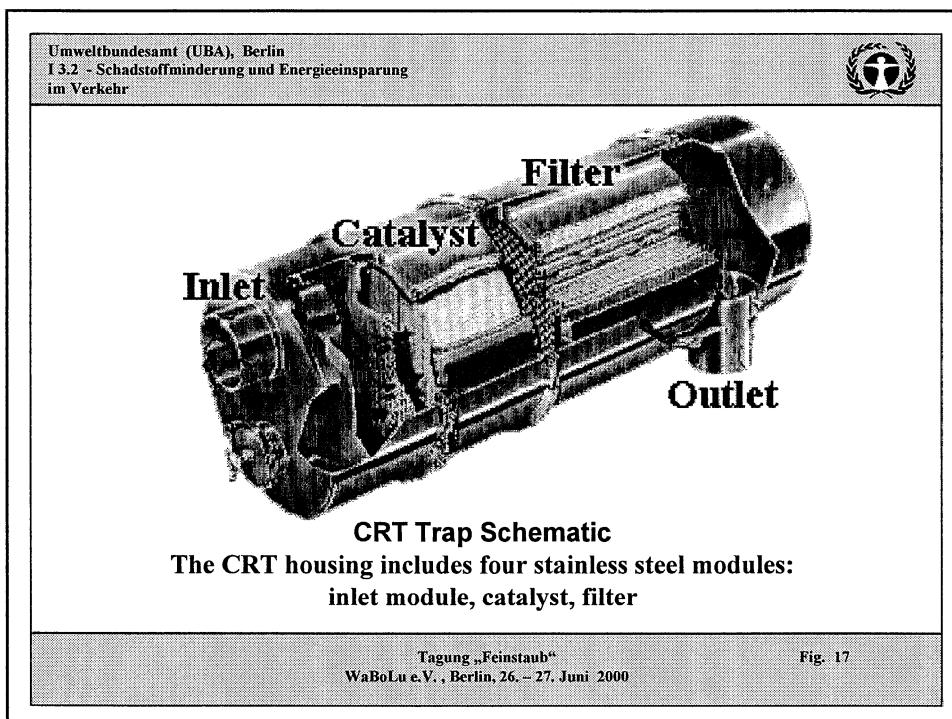
Quelle: VERT et al, Literaturoauswertung 9/99

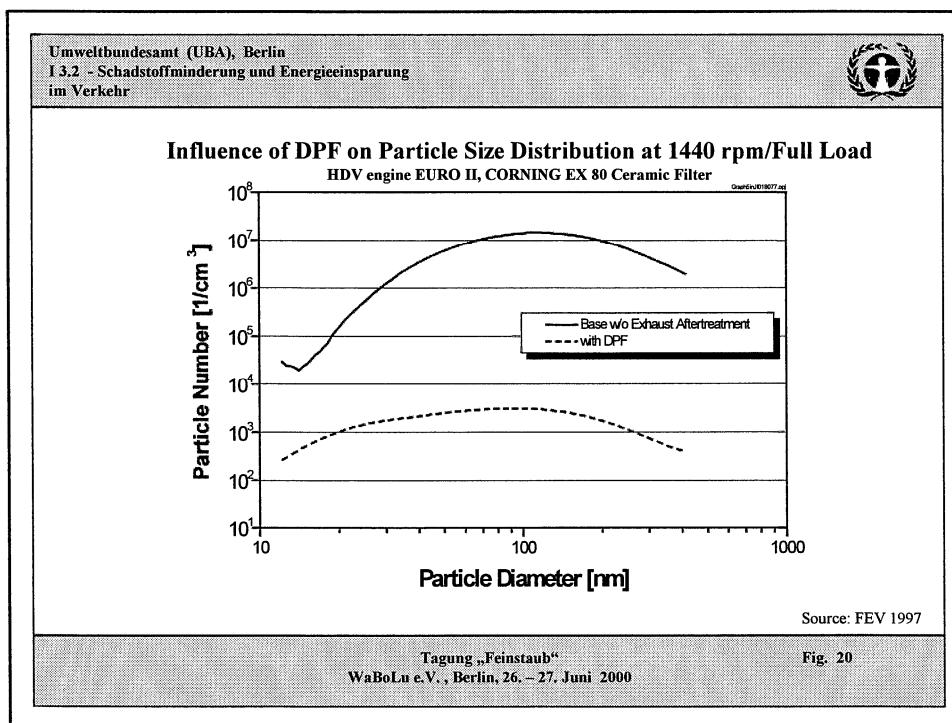
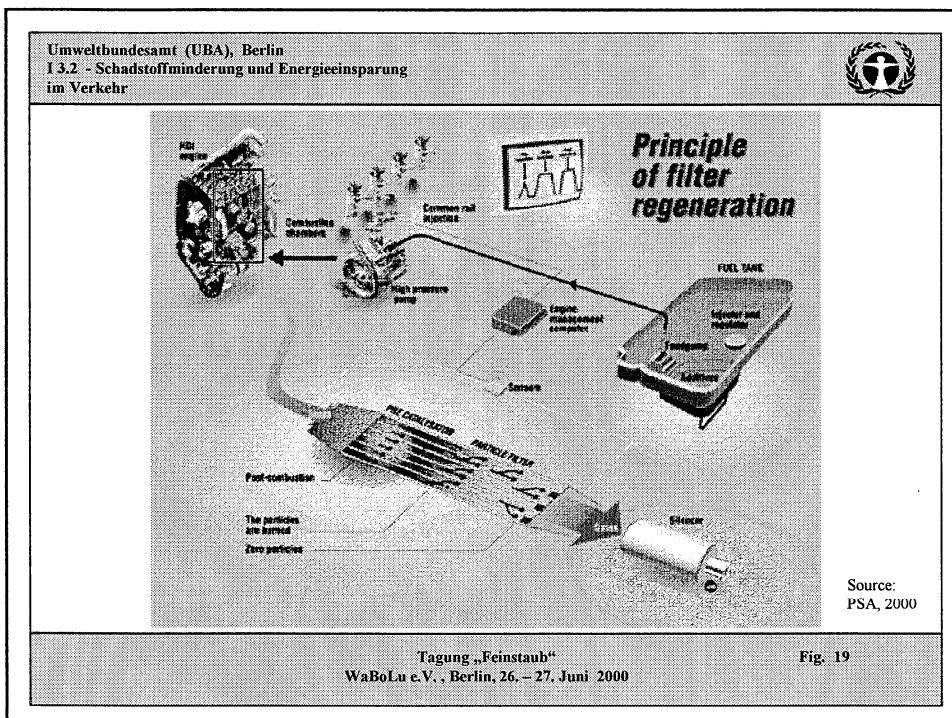
Tagung „Feinstaub“  
WaBoLu e.V., Berlin, 26. – 27. Juni 2000

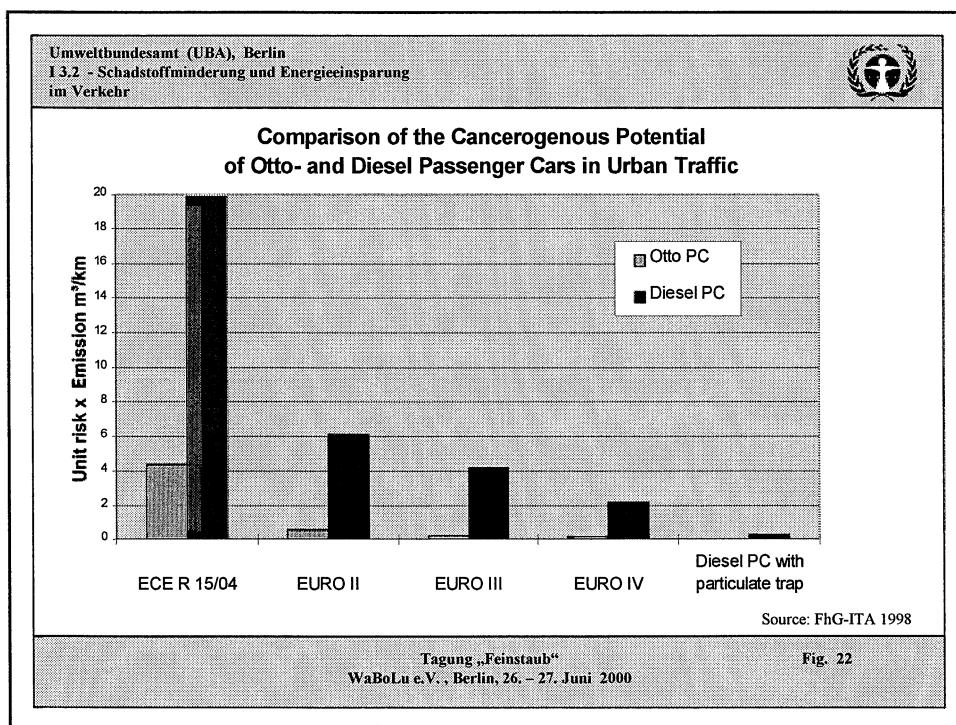
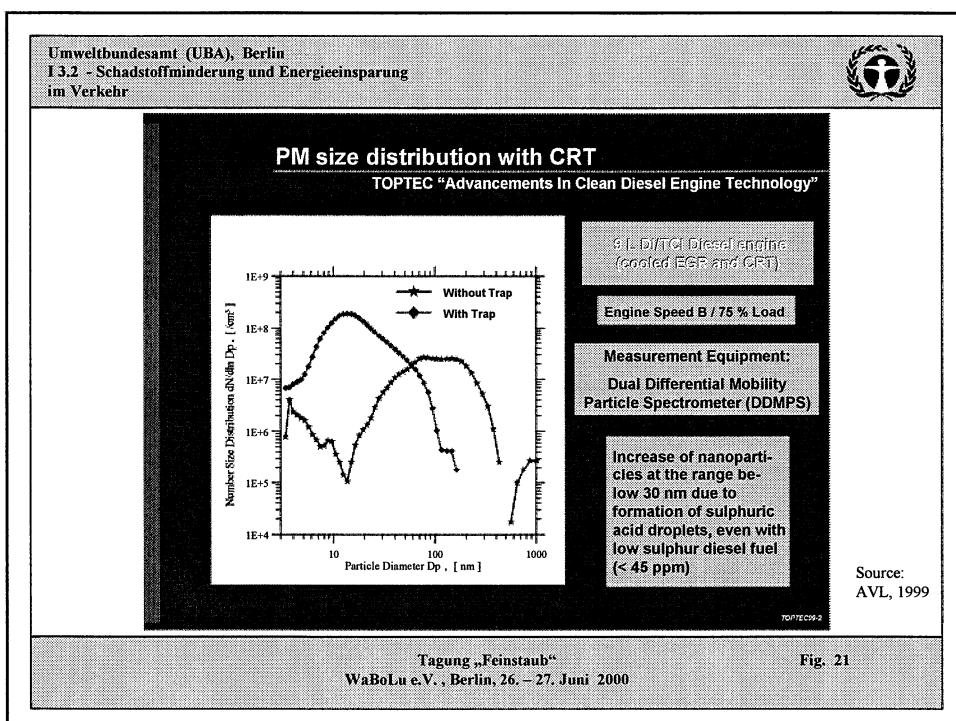
Fig. 12













## **SEKTION 3**

### **MÖGLICHKEITEN DER ERFASSUNG VON FEINSTAUBKONZENTRATIONEN**



### **3.1 CEN-FELDUNTERSUCHUNGEN ZUR STANDARDISIERUNG VON PM<sub>10</sub>- UND PM<sub>2,5</sub>-MESSVERFAHREN**

**Lothar Laskus**  
**Umweltbundesamt, Berlin**

Zur Harmonisierung der in europäischen Ländern verwendeten Schwebstaubmesstechnik führte die EG-Kommission bereits in der Periode von 1982 bis 1986 erste Vergleichsstudien mit Black-Smoke- und Gesamtstaub-Sammelgeräten durch. Die Ergebnisse zeigten, dass mit diesen Geräten keine äquivalenten Schwebstaub-Messergebnisse erzielt wurden. Aus diesen Untersuchungen zog die Kommission den Schluss, ein europäisches PM<sub>10</sub>-Referenzverfahren zu entwickeln. Mit der PM<sub>10</sub>-Strategie sollte zum einen der in die thorakalen Atemwege eindringende Staub definiert erfasst und bewertet und zum anderen bei der Probenahme der Grobstaub ausgeschaltet werden, der z.T. für die Abweichungen der nicht-fraktionierenden Geräte voneinander verantwortlich war.

Im Rahmen eines weiteren von der EG-Kommission 1986 initiierten Forschungsvorhabens, der sogenannten „WRAC-Studie“, wurde von W. Holländer der in Bild 1 schematisch wiedergegebene „Wide-Range-Aerosol-Classifier“ [1] – im Folgenden kurz „WRAC“ genannt – nach einem Entwurf von D.A. Lundgren entwickelt. Aufgrund seiner speziellen Auslegung, seiner Abmaße (Durchmesser des Ansaugrohres: 60 cm) und seines hohen Luftdurchsatzes (2.340 m<sup>3</sup>/h) erlaubt dieses Gerät bis zu Windgeschwindigkeiten von etwa 10 m/s die physikalisch richtige Erfassung des Gesamtstaubes und der Fraktionen von ca. 60 µm,  $\leq$  37 µm,  $\leq$  20 µm und  $\leq$  10 µm aerodynamischer Partikeldurchmesser. Wegen seiner Größe und Unhandlichkeit ist das auch heute noch zu Studienzwecken verwendete WRAC-Gerät allerdings nicht für praxisgerechte Vergleichsmessungen z.B. zwischen PM<sub>10</sub>-Kandidat- und PM<sub>10</sub>-Referenzgerät oder zur PM<sub>10</sub>-Grenzwertüberwachung geeignet.

Von den an der WRAC-Studie beteiligten Geräte zeigte lediglich das amerikanische High-Volume-Sammelgerät für Gesamtstaub und das amerikanische PM<sub>10</sub>-High-Volume-Sammelgerät (Design: A.R. McFarland) befriedigende Übereinstimmungen mit der WRAC-Gesamtstaub- bzw. der WRAC-PM<sub>10</sub>-Stufe. Die anderen PM<sub>10</sub>-Geräte wie auch das Dichotomous-Gerät und das als praktikables europäisches PM<sub>10</sub>-Referenzgerät vorgesehene, von dem Institute of Occupational Medicine, Edinburgh, entwickelte sogenannte IOM-Sammelgerät versagten. Es ist anzumerken, dass alle getesteten PM<sub>10</sub>-Geräte nach Untersuchungen in Windtunnellen und Staubkanälen einen Trenndurchmesser von exakt 10 µm aufwiesen.

Neben diesen wenig befriedigenden Resultaten konnten jedoch bei der WRAC-Studie wertvolle Ergebnisse über die Partikelmassenverteilung, dabei insbesondere in städtischen Gebieten, erzielt werden [2]. In diesem Zusammenhang zeigt die in Bild 2 wiedergegebene Tabelle, dass in städtischen Gebieten (Bilthoven und Berlin) ein PM<sub>10</sub>-Anteil von ca. 80 % festgestellt wurde. Auch heutige Messungen in Stadtgebieten ergeben denselben Befund. Des Weiteren ist der Tabelle zu entnehmen, dass selbst noch die PM<sub>37</sub>-Fraktion als relativ

konstanter Anteil des bodennahen Aerosols anzusehen ist. Bild 3 zeigt die deutliche Abgrenzung des Grobstaubbereichs von dem Anreichungsbereich (PM<sub>2,5</sub>-Feinstaub).

Auf der Grundlage der in einer von D.-H. Zierock erarbeiteten „Executive Summary on Studies of the Commission of the European Communities on the Development of a SPM Reference Method“ (Dec. 1990) niedergelegten Empfehlung wurde 1992 eine CEN-Arbeitsgruppe (CEN/TC 264/WG 6) gegründet, die den Auftrag hatte,

- eine geeignete und praktikable PM<sub>10</sub>-Referenzmethode und
- eine praxisgerechte Feldtestprozedur zur Bewertung und Auswahl weiterer PM<sub>10</sub>-Probnahmeverfahren

zu erarbeiten. Als erstes PM<sub>10</sub>-Referenzgerät wurde wieder das WRAC-Gerät ausgewählt. Des Weiteren sollte sich die PM<sub>10</sub>-Feldtestprozedur wegen der im Rahmen der WRAC-Studie festgestellten, z.T. gravierenden Abweichungen zwischen den verschiedenen manuellen PM<sub>10</sub>-Geräten ausschließlich auf die Prüfung von PM<sub>10</sub>-Probenahmeköpfen mit nachgeschaltetem Filter und geregelter Pumpe beziehen, nicht jedoch auf automatische Messverfahren. Entsprechend wurden auch die Messstellen zur Durchführung der Testprozedur ausschließlich zur Prüfung manueller gravimetrischer Geräte ausgewählt.

Die Ergebnisse der in der Periode von 1994 bis 1995 durchgeführten PM<sub>10</sub>-Feldtestprozedur sind in der in Bild 4 wiedergegebenen Tabelle aufgeführt. Die geforderten Kriterien hinsichtlich der Ergebnisse aus Doppelbestimmungen und aus den Vergleichsmessungen mit dem WRAC-Gerät (PM<sub>10</sub>-Stufe) wurden lediglich von den Geräten „B“ und „C“ erfüllt. Diese beiden Geräte wurden ebenfalls in dem CEN-Standard EN 12341 neben dem WRAC-Gerät als PM<sub>10</sub>-Referenzgeräte festgelegt.

Da in der inzwischen erlassenen EU-Richtlinie 1999/30/EG – allgemein als Tochterrichtlinie „Staub“ bezeichnet – die Verpflichtung enthalten ist, auch den PM<sub>2,5</sub>-Feinstaub zu messen, wurde 1998 eine neue CEN-Arbeitsgruppe (CEN/TC 264/WG 15) gebildet, die ebenfalls den Auftrag hat, eine geeignete und praktikable PM<sub>2,5</sub>-Referenzmethode und eine praxisgerechte PM<sub>2,5</sub>-Feldtestprozedur zu erarbeiten.

Anders als bei der vorangegangenen PM<sub>10</sub>-Feldtestprozedur sind in den jetzt anlaufenden PM<sub>2,5</sub>-Außenlufttests neben manuellen gravimetrischen Geräten auch komplett automatische Messverfahren eingeschlossen, da die Konstruktion von zuverlässig arbeitenden PM<sub>2,5</sub>-Probenahmeköpfen – anders als früher die Konstruktion von zuverlässigen PM<sub>10</sub>-Probenahmeköpfen – heute keine Schwierigkeiten mehr bereitet. Allerdings ist bereits im Vorfeld festgelegt worden, dass nur manuelle gravimetrische Verfahren für ein Referenzverfahren zur Auswahl stehen können; die automatischen Geräte werden hinsichtlich ihrer Eignung als Äquivalenzverfahren geprüft.

Bei der PM<sub>2,5</sub>-Feldtestprozedur steht jedoch auch eine andere Problematik mit im Vordergrund, die durch die Bilder 5 und 6 verdeutlicht wird. Bild 5 zeigt, dass das bei 50°C betriebene PM<sub>10</sub>-TEOM-Gerät im Winter etwa 30 % an flüchtigen Staubbestandteilen (im wesentlichen NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>) im Vergleich zum PM<sub>10</sub>-KleinfILTERgerät durch die Aufheizung

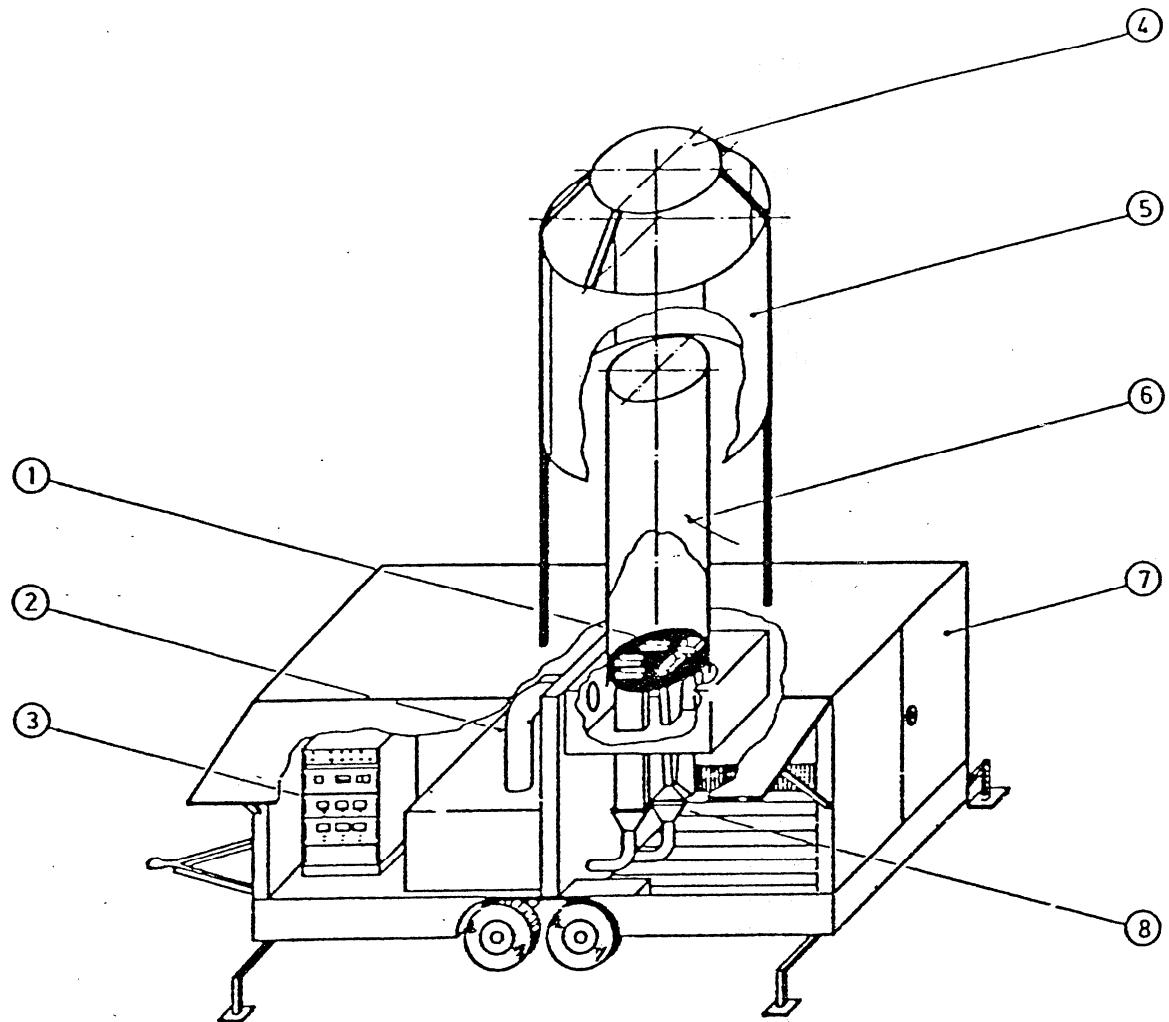
verliert. Bild 6 dokumentiert, dass an heißen Sommertagen das TEOM- und das Kleinfiltergerät dieselben Messergebnisse liefern. Daraus ist zu schließen, dass auch das Probenahmesystem des Kleinfiltergerätes durch die Erwärmung an heißen Tagen den gleichen Anteil an flüchtigen Staubbestandteilen verliert wie das TEOM-Gerät. Daraus leitet sich die zusätzliche Forderung für das auf der Grundlage des CEN-PM<sub>2,5</sub>-Tests festzulegende PM<sub>2,5</sub>-Referenzgerät ab, konstruktionsmäßig derartige Verluste zu vermeiden. Dazu ist anzumerken, dass die Verluste an flüchtigen Staubbestandteilen bei der PM<sub>2,5</sub>-Fraktion höher einzuschätzen sind als bei der PM<sub>10</sub>-Fraktion.

## Literatur

Holländer, W.: WRAC – eine Referenzmethode für Schwebstaub. VDI-Berichte Nr. 608, Düsseldorf: VDI-Verlag, 1987, 343-352

Laskus, L., Bake, D., König, R., van der Meulen, A., and B.G. van Elzakker: Measurements of particle size distribution and dust concentration. Staub – Reinhaltung der Luft 49, 1989, 395-400

BILD 1: Schematische Darstellung des WRAC-Gerätes



1 Gitter, 2 Turbinen, 3 Elektronik-Regelschrank, 4  
Regendach, 5 Windschild, 6 Einlaßrohr, 7 Anhänger, 8  
Filterhalter mit integrierten hyperbolischen Einlässen und  
Impaktionsstufen

BILD 2: Mit dem WRAC-Gerät gemessene Partikelgrößenverteilung

Number of values	Bilthoven		Coast site		Berlin		Wetzlar	
	Mean	S	Mean	S	Mean	S	Mean	S
Wind velocity (m/s)	3.0 ± 1.3	6.0 ± 3.4	2.2 ± 1.1	1.1 ± 0.6				
TPM ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	51.6 ± 27.4	176.3 ± 63.3	122.7 ± 58.7	118.4 ± 38.4				
PM $\leq$ 60.2 $\mu\text{m}$ (%)	97.2 ± 2.6	90.3 ± 5.0	96.4 ± 1.5	90.0 ± 3.9				
PM $\leq$ 37.4 $\mu\text{m}$ (%)	94.2 ± 4.1	84.0 ± 6.6	92.9 ± 2.0	85.3 ± 3.6				
PM $\leq$ 20.4 $\mu\text{m}$ (%)	89.5 ± 5.6	71.4 ± 11.5	87.6 ± 4.4	75.7 ± 6.6				
PM $\leq$ 10.0 $\mu\text{m}^*$ (%)	79.2 ± 8.9	53.6 ± 15.4	79.0 ± 6.6	64.0 ± 8.5				

S: Standard deviation; TPM: Total particulate matter; PM  $\leq$  60.2  $\mu\text{m}$ :  
 Particulate matter  $\leq$  60.2  $\mu\text{m}$  AD; \*) Interpolated

BILD 3: Partikelmassenverteilung

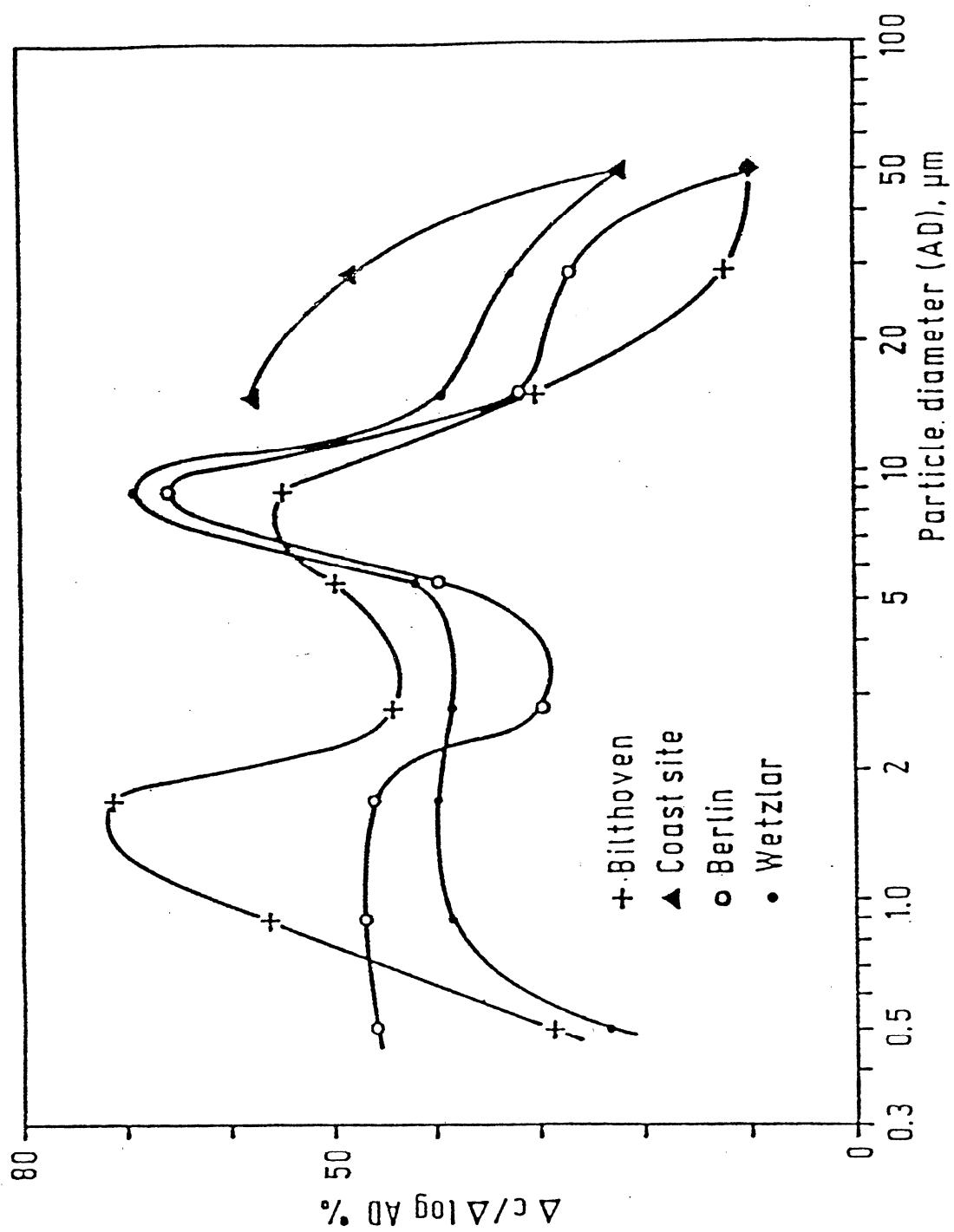


BILD 4: Ergebnisse der CEN-PM10-Feldtestprozedur

	Comparability: candidate 1 vs. 2 <i>Mean difference</i>	Comparability: candidate vs. reference <i>Reference equivalence function</i>	
WRAC(10 $\mu\text{m}$ )	2.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ; 3.5 %;		
WRAC(total)	5.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ; 11.2 %;		
A: HVS-total (68 $\text{m}^3/\text{h}$ )	3.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ; 3.4 %;		
Candidate sampler	$\leq 5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ or $\leq 5 \%$	$\leq 10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ or $\leq 10 \%$	$R^2 \geq 0.95$
B: HVS-PM10 (68 $\text{m}^3/\text{h}$ )	2.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ; 4.0 %;	Yes	0.98
C: LVS-PM10 impactor (2.3 $\text{m}^3/\text{h}$ )	4.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ; 4.1 %;	Yes	0.95
F: LVS-PM10 impactor (1.2 $\text{m}^3/\text{h}$ )	7.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ; 9.0 %;	Yes	0.89
E: LVS-PM10 impactor (1.0 $\text{m}^3/\text{h}$ )	7.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ; 11.7 %;	Yes	0.95
D: LVS-PM10 impactor (0.6 $\text{m}^3/\text{h}$ )	12.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ; 12.9 %;	Yes	0.77
G: LVS-PM10 cyclone (3 $\text{m}^3/\text{h}$ )	10.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ; 19.8 %;	No	0.77

BILD 5: PM10 - KFG vs. TEOM 50 °C (Winter)  
Messstelle: Stadtautobahn Berlin

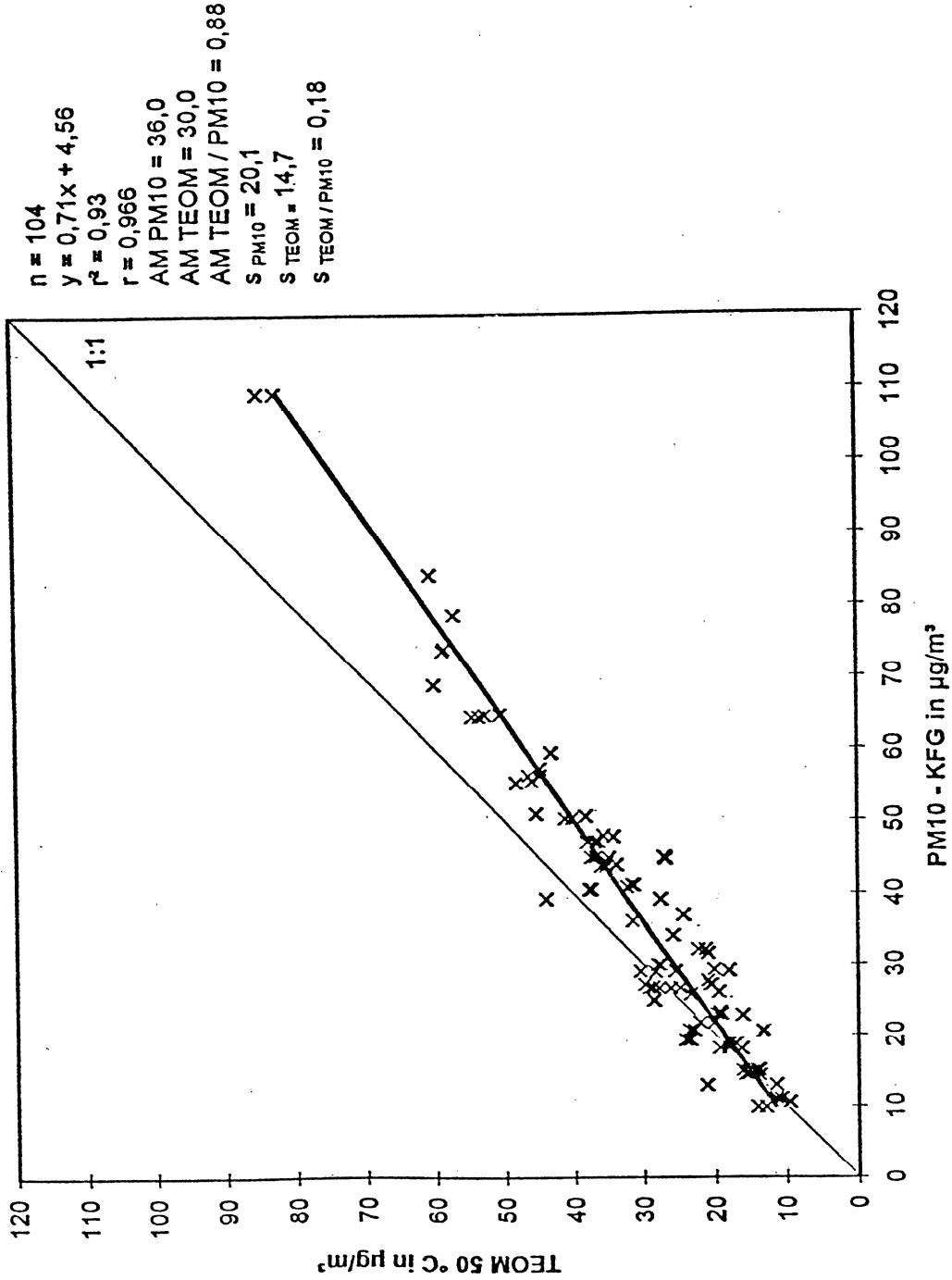
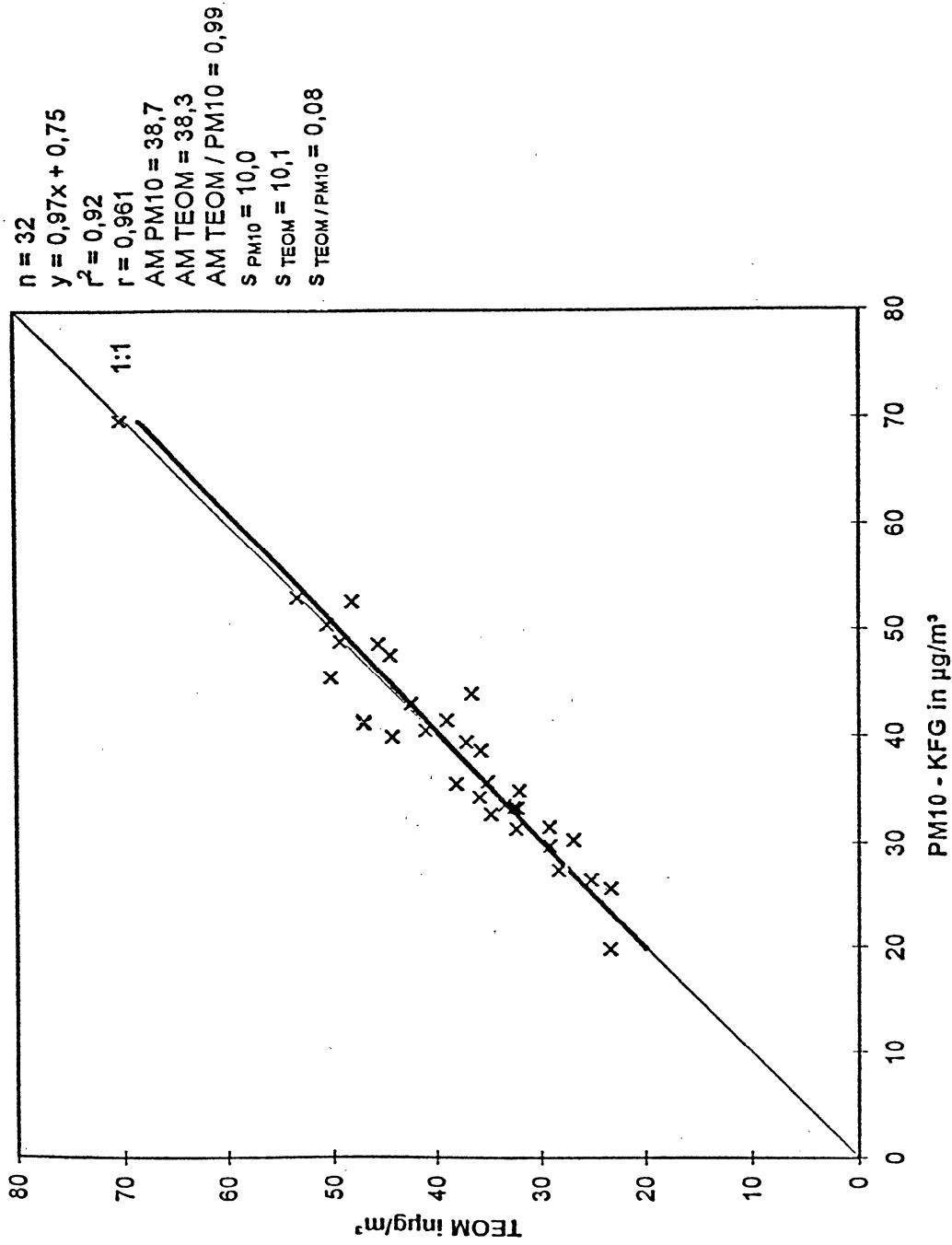


BILD 6: PM10 - KFG vs. TEOM 50°C (heisse Tage  $\geq 25^\circ\text{C}$ )  
 Messstelle: Stadtautobahn Berlin





## 3.2 ZUORDNUNG VON IMMISSIONEN ZU QUELLEN

**Peter Lenschow und Markus Pesch**  
**Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Berlin**

Die beste Art der Zuordnung von Immissionen zu Quellen ist die Erhebung der Emissionen, Messung der meteorologischen Bedingungen und Modellierung der Immissionen durch Ausbreitungsrechnungen. Insbesondere bei der Modellierung der Schwefeldioxidkonzentration und ihrer Folgeprodukte sind in dieser Beziehung gute Erfolge erzielt worden, sowohl kleinräumig bei der Simulation der Immission, die von einzelnen Anlagen hervorgerufen wird, als auch regional (z.B. Luftreinhaltepläne NRW und Berlin) und europaweit (OECD, EMEP, RIVM).

Als hilfreich und unverzichtbar hat sich erwiesen, den Sitz der Modellergebnisse im Leben durch Immissionsmessungen zu überprüfen und zu belegen. Dabei zeigten sich in der Vergangenheit mindestens in Berlin zum Teil Unvollkommenheiten der Emissionsabschätzungen, sowie Entscheidungsspielräume, deren Nutzung zu wesentlich verbesserten Modellergebnissen beigetragen hat. So führte zum Beispiel eine Verschiebung des Mixes der zwei Braunkohlensorten Lausitzer Braunkohle und Braunkohle aus dem Leipzig-Bornaer Revier zu einer Halbierung der SO<sub>2</sub>-Emission im Ostteil Berlins und wesentlich besser vergleichbaren Windrichtungsabhängigkeiten und Jahreskennwerten im Stadtgebiet.

In Bezug auf die Schwebstaubimmission konnten vergleichbare Erfolge bisher nicht erzielt werden. So konnten beispielsweise bei Ausbreitungsberechnungen mit dem Emissionskataster zum Luftreinhalteplan Berlin 1994 bis 2000 nur 32 von 92 µg/m<sup>3</sup> Schwebstaub erklärt werden. Die restlichen zwei Drittel der Schwebstaubimmission wurden mit Hilfe von windrichtungsabhängigen Auswertungen des Immissionsfeldes dem Ferntransport zugerechnet (1).

Entsprechend schreibt eine Arbeitsgruppe der EU in ihrer Guidance on Assessment under the EU Air Quality Directives:

Es gibt mehrere Techniken, die Ursachen der Schadstoffbelastung zu analysieren. Die Methoden lassen sich wie folgt kategorisieren:

- a) Analyse der Konzentrationsdifferenzen verschiedener Stationen**
- b) Ausbreitungsrechnung mit bekannten Emissionen**
- c) Rezeptormodellierung: Vergleich von Immissionsmustern mit bekannten Emissionsmustern**

Im folgenden werden die Punkte a) und c) am Beispiel Berlins behandelt.

### **Zu a) Analyse der Konzentrationsdifferenzen verschiedener Stationen**

Bild 1: Jahresmittelwerte und 98 %-Werte der PM<sub>10</sub>-Konzentration in Berlin 1999

Die Schwebstaubkonzentration zeigt (nicht nur) in Ballungsgebieten nur verhältnismäßig geringe örtliche, aber sehr hohe zeitliche Unterschiede. Messreihen von Stationen, die bis zu 100 km auseinander liegen können, sind hoch korreliert oder haben wesentliche Anteile, die miteinander korreliert sind. Dementsprechend können auch verhältnismäßig geringe Unterschiede als systematisch eingestuft werden und es ist andererseits möglich, Bezugspunkte zu definieren, auf die die übrigen Messungen bezogen werden können. Es mangelt allerdings noch an einheitlichen Kriterien, nach denen die Vergleichsstationen auszuwählen sind.

Bild 2: Vergleich Berlin Stadtrand - Funkturm Frohnau (324 m) - Neuglobsow 1996

#### Bezugspunkte für Berlin:

1. Aufgrund von Messungen des Umweltbundesamts in Neuglobsow (100 km nördlich von Berlin) sowie von Messungen des Landesamts für Umweltschutz, Brandenburg, in Burg (ca. 100 km südlich von Berlin) gehen wir davon aus, dass im Jahresmittel 1998 für das Stadtgebiet von Berlin eine PM<sub>10</sub>-Konzentration von

ca. 19 µg/m<sup>3</sup> als regionaler Hintergrundwert

angenommen werden kann. Neuglobsow hat das gleiche Klima wie Berlin. Es wird von allen europäischen Quellen beeinflusst. Gegenüber allen übrigen Quellen hat Berlin nur einen vernachlässigbar geringen Einfluss und es gibt keine hervortretenden lokalen Quellen. Für Burg gelten diese Aussagen mit Einschränkungen.

2. Ein Vergleich von gleichwertigen Wohngebietsmessstellen in Berlin (Bild 1) ergibt, dass für die Innenstadt ein Wert von

ca. 36 µg/m<sup>3</sup> als innerstädtischer Hintergrund

im Citybereich angenommen werden kann. Die innerstädtische Wohngebietsmessstelle Nansenstraße, Neukölln, wird von allen Berliner Quellen beeinflusst. Es gibt keine hervortretenden lokalen Einflüsse.

3. Ein Vergleich der drei Verkehrsmessstellen (Bild 1) ergibt, dass die Messstation Frankfurter Allee mit einem Wert von

ca. 50 µg/m<sup>3</sup> als repräsentativ für die straßennahe Belastung an Hauptverkehrsstraßen

angenommen werden kann. An dieser Messstelle hat der benachbarte Kfz-Verkehr zusätzlich zum innerstädtischen Hintergrund einen hohen lokalen Einfluss.

Dieses Vorgehen entspricht dem Vorgehen in Baden-Württemberg (2), Nordrhein-Westfalen (3), Sachsen (4), der Schweiz (5) und England (6).

Die Strukturierung ermöglicht eine Zuordnung der Immission an den beiden Ballungsgebiet-Messstellen zu den drei räumlich differenzierten Quellengruppen:

- Großräumige Quellen
- Quellen im Ballungsgebiet
- Nahquellen.

Eine weitere Strukturierung nach den hauptsächlichen Quellengruppen kann mit Hilfe der für sie typischen Inhaltsstoffe erfolgen, wobei eine Reihe von Nebenbedingungen zu berücksichtigen sind:

- Im Ballungsgebiet haben bodennahe Quellen einen wesentlich höheren Einfluss als Quellen mit hohen Schornsteinen
- spielen Quellen von relativ grobem  $PM_{10}$  eine mit dem Abstand vom Rezeptor abnehmende Rolle
- spielt die photochemische Umwandlung von Schwefeldioxid in Partikel nur eine untergeordnete Rolle. Die Analyse ergibt einen erheblichen Nitratzuwachs, der aber auch messtechnisch bedingt sein kann
- Im regionalen Hintergrund wächst der relative Anteil von Umwandlungsprodukten aus gasförmigen Emissionen mit dem Abstand vom Rezeptor
- Sowohl die Umwandlungsprodukte von Stickoxiden als auch die Anteile an organisch gebundenem Kohlenstoff werden mit den gängigen Schwebstaubssammelverfahren nicht quantitativ und unterschiedlich erfasst. Es wird vermutet, dass hiervon nicht nur das TEOM-Gerät betroffen ist, sondern auch High- und LowVol-Geräte
- Wenn man die Emissionsangaben der Tabelle 1 zu Hilfe nimmt, fällt auf, dass die kohlenstoffhaltigen Partikel nicht extra ausgewiesen sind, während sie bei der Immissionsanalyse als mengenmäßig wesentlicher Bestandteil auftreten. Es kann unzweifelhaft angenommen werden, dass der elementare Kohlenstoff als Primäremission vor allem Teil der Staubemission des Verkehrs und an zweiter Stelle der Hausbrandemission ist. Auch der organisch gebundene Kohlenstoff, der etwas mehr als die Hälfte des kohlenstoffhaltigen Materials ausmacht, stammt im Wesentlichen aus diesen beiden Quellen, es gibt aber auch natürliche Anteile (z.B. Waldbrand) und in manchen Gegenden kann auch das Abbrennen der Felder im Herbst hierzu beitragen.

- Der partikelförmige organisch gebundene Kohlenstoff nimmt eine Zwitterstellung zwischen den primären Partikelemissionen und den erst in der Atmosphäre entstandenen Sekundärprodukten ein. Er entsteht vermutlich im Wesentlichen schon bei oder unmittelbar nach der Emission, wird aber bei der Emissionsbestimmung nur unvollständig erfasst. In diesem Fall würde er emissionsseitig bei den organischen Gasen verbucht sein. Ein Teil entsteht aber auch als reales Sekundärprodukt durch photochemische Umwandlung von VOC in der Atmosphäre.

1998	Stäube	Schwefel-dioxid	Stickoxide	organische Gase
genehmigungsbedürftige Anlagen	1900	7900	7500	2200
Hausbrand	500	2500	3000	1000
Haushalte				10000
Kleingewerbe	140	40	1000	10000
Verkehr (nur Kfz)	2400	500	17000	28000
Aufwirbelung durch Kfz	2400			
Verkehr (sonstiger)	240	140	1700	2800
sonstige Quellen	1800	1	2	4000
Summe	9380	<b>11081</b>	<b>30202</b>	<b>58000</b>
Immission Innenstadt Hintergrund	36	9	47	-
	(PM <sub>10</sub> )			1

Tabelle 1: Emissionsangaben (t/a) und Immissionsangaben ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) in Berlin für das Jahr 1998 (Hochrechnung von 1994)

Mit Hilfe der in Tabelle 1 enthaltenen Angaben und der genannten Zusatzannahmen wurde die Tabelle 2 erstellt, die in (7) zur Abschätzung der bis 2005 erwarteten Minderungen und der zusätzlich notwendigen Maßnahmen verwendet wird. Sie ist als erste Schätzung zu verstehen. Eine Zusammenfassung bietet Tabelle 3.

Weitergehende Auswertungen hat das BUWAL, Schweiz, vorgelegt, indem es die Emissionen und Immissionen mit Hilfe von mehr oder weniger vereinfachten Ausbreitungsberechnungen unter Berücksichtigung der Bildung von Sulfat, Nitrat, Ammonium und organischem Material miteinander verknüpft hat. Die Deposition von Staub wurde dabei ebenfalls berücksichtigt. Wenn man diese und andere Auswertungen (NRW (3), Baden-Württemberg (2), Berlin (7)) miteinander zu vergleichen versucht, muss man feststellen, dass sowohl die Inhaltsstoffe der Staubimmission als auch die Quellkategorien unterschiedlich zusammengefasst wurden. Bei einigen Untersuchungen wurden nur Teile der Immission den Quellen zugeordnet. Hier besteht noch Ordnungs- und Erhebungsbedarf.

Für Berlin müssen beispielsweise die Kategorien "kohlenstoffhaltiges Material" und "Sekundärmaterial" aufgespalten werden in EC, OM, SO<sub>4</sub>, NO<sub>3</sub> und NH<sub>4</sub>, auch wenn dann für

die einzelnen Quellgruppen nur noch sehr geringe Anteile übrigbleiben, die bei geringem Anspruch an die Genauigkeit der Angabe aus systematischen Gründen auch Stellen hinter dem Komma haben müssen.

### **Zu c) Rezeptormodellierung: Vergleich von Immissionsmustern mit bekannten Emissionsmustern**

Die Rezeptormodellierung kann mit ausgefeilten mathematisch-statistischen Methoden (z.B. Faktorenanalyse, chemische Massenbilanz) durchgeführt werden, wenn ausreichend umfangreiche und auf bestimmte Fragestellungen gezielt ermittelte Messwertkollektive, sowie entsprechende Angaben für die wesentlichen Emittenten vorliegen. Für die Schwebstaubanalyse bieten sich solche Methoden wegen der ausgeprägten Heterogenität des Messobjektes an, andererseits ist bisher die Datenbasis noch sehr schmal und unsicher. Es ist auch unwahrscheinlich, dass die zur statistischen Herausarbeitung von nicht trivialen Quellen notwendigen Daten überhaupt beschafft werden können. Insofern können vorläufig nur einfache qualitative Analysen, wie zum Beispiel die Herausarbeitung des Verkehrseinflusses, durchgeführt werden, und für besondere Fragestellungen muss man sich mit Einzelfallbetrachtungen befassen.

#### 1. Verkehrseinfluss

Als Immissions- und Emissionsmuster kann man die Stoffprofile sowie die zeitlichen Gänge und die Windrichtungsabhängigkeit der Stoffe und ihrer Relationen zueinander bezeichnen. Dabei erweist es sich als nützlich, nicht nur die Staubinhaltsstoffe, sondern auch gasförmige Emissionen und Immissionen zu berücksichtigen.

Bild 3: Tages-/Wochengänge an der Straßenstation MC 1 74, Berlin Frankfurter Allee

Die Darstellung der Tages-Wochengänge von Ruß und Stickoxid (gerechnet als  $\text{NO}_2$ ) zeigt einen hohen Gleichlauf. Der Quotient von Ruß zu  $\text{NO}_x$  beträgt 4  $\mu\text{g}$  Ruß pro 100  $\mu\text{g}$   $\text{NO}_x$  pro Kubikmeter.

Israel und Mitarbeiter (8) haben in einer 1994/95 durchgeführten Untersuchung Quotienten von etwa 3/100 angegeben und in London wurden an der Marylebone Road ca. 5/100 ermittelt (6). Die Schwankungsbreite dieser Werte ist nicht sehr groß, wenn man berücksichtigt, dass noch Verbesserungen bei der Rußbestimmung sowie durch Berücksichtigung der mittleren Fahrgeschwindigkeit und evtl. eines Jahresganges möglich sind. Israel et al. (8) haben in ihrer Untersuchung darauf hingewiesen, dass die Relation unabhängig vom LKW-Anteil ist. Dies wird durch die Darstellung im Wesentlichen bestätigt.

Dass sich das vom KFZ-Verkehr verursachte Stickoxid nicht nur als Leitsubstanz für Ruß eignet, sondern auch für  $\text{PM}_{10}$  aus dem benachbarten Verkehr, zeigt der untere Teil der Abbildung 3, in der ein mit Hilfe des Stickoxids modellierter Verlauf dem gemessenen  $\text{PM}_{10}$  gegenübergestellt ist. Demnach ergibt sich eine Relation von 17  $\mu\text{g}/\text{m}^3$   $\text{PM}_{10}$  zu 100  $\mu\text{g}/\text{m}^3$

$\text{NO}_x$ , wenn man einen Offset von  $19 \mu\text{g}/\text{m}^3$  berücksichtigt, der aus Quellen stammt, die nicht den Tages-/Wochengang des  $\text{NO}_x$  haben. Dieser Offset hat den gleichen Wert wie der Hintergrundwert, der sich durch Vergleich der Messstationen ergibt.

Bild 4: Windrichtungsabhängigkeit der Konzentration von Ruß,  $\text{PM}_{10}$  und  $\text{NO}_x$  an der Stadtrand-Hintergrundstation MC077, Berlin Buch

Bei der Betrachtung von Zeitreihen der Stickoxid- und Rußkonzentration (Aethalometer oder FH-Rußzahl) fällt sowohl an Straßen- als auch an Hintergrundmessstellen auf, dass dem Gleichlauf von  $\text{NO}_x$  und Ruß zeitweise bei Ostwind eine zusätzliche Rußkomponente überlagert ist. Deshalb wurde östlich von Berlin eine besondere Rußquelle vermutet. Um die Hypothese zu prüfen, wurden die Windrichtungsabhängigkeit von Ruß,  $\text{NO}_x$  und  $\text{PM}_{10}$  an der am Nordostrand von Berlin gelegenen Hintergrundstation Buch ausgewertet. Die Station sollte einen Stadteffekt bei Wind aus Südsüdost bis West zeigen und bei Ostwind sollte überproportional viel Ruß im Vergleich mit dem  $\text{NO}_x$  beobachtet werden.

Der obere Teil der Abbildung 4 zeigt dies deutlich, er zeigt aber auch, dass das  $\text{PM}_{10}$ -Maximum gegenüber dem  $\text{NO}_x$  noch stärker nach Osten verschoben ist als beim Ruß.

Erstaunlicherweise lässt sich die  $\text{PM}_{10}$ -Konzentration sehr gut modellieren, indem man das alte englische Modell "PM = Faktor \* Schwärzung" aufnimmt, den Ruß aber vorher um eine an das Stickoxid gebundene Komponente vermindert. Der zur bestmöglichen Anpassung notwendige Ruß/ $\text{NO}_x$ -Quotient beträgt 0,03. Die Abnahme gegenüber dem Quotienten an der Frankfurter Allee (0,04) kann einerseits damit erklärt werden, dass auf dem im Mittel ca. 30 km langen Transportweg über die Stadt Ruß ausfällt, während das  $\text{NO}_x$  erhalten bleibt. Es kann aber auch angenommen werden, dass die Relation der Frankfurter Allee erhalten bleibt. Die mittlere Differenz von  $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (20%) zwischen Messung und Modell kann dann als "Stadteinfluss" auf diese Station interpretiert werden. Es bleibt ein Rest von etwa  $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , der nicht mit dem Ruß korreliert.

Harrison et al. (6) schlagen vor, das alte englische Modell einer Berechnung des Schwebstaubes mit Hilfe von Messwerten von Black Smoke als Leitsubstanz für Verbrennungsabgase um Sulfat als Leitsubstanz für Sekundärstoffe und Chlorid als Leitsubstanz für Meereseinflüsse zu ergänzen. Das hier vorgestellte Modell könnte mindestens für Ballungsgebiete eine Alternative sein, insbesondere deshalb, weil es die Sekundärschadstoffe mit dem Ruß in die Kategorie Verbrennung einbezieht, weil mit Hilfe des  $\text{NO}_x$  die überproportional hohe Rußemission des Kfz-Verkehrs berücksichtigt wird und weil damit auch der Einfluss des Kfz-Verkehrs abgeschätzt werden kann. Das Modell benötigt nur die automatisch gut messbaren Substanzen  $\text{PM}_{10}$ , Ruß (Aethalometer, FH-Rußzahl) und  $\text{NO}_x$ .

## 2. Einfluß einer einzelnen potentiellen Quelle

Nachdem man die Einflussgrößen Partikel aus "Verbrennung" und "Verkehr" voneinander getrennt hat, stellt sich die Frage, ob sich im Block "Verbrennung" besondere Quellen

verbergen. Da östlich von Berlin eine große Zementfabrik liegt und bei Ostwind die höchsten Konzentrationen auftreten (Bild 4) wird eine Fragestellung sein, den Einfluss dieser Anlage abzuschätzen. Da es sich um eine genehmigungsbedürftige Anlage handelt, deren Emissionen bestimmt werden, bietet sich eine Ausbreitungsrechnung an. Unabhängig davon kann man prüfen, ob bei entsprechender Strömungsrichtung Staubinhaltsstoffe vermehrt auftreten, die für diese Anlagen typisch sind.

Für weiter entfernte und im Ausland gelegene Quellen kommt in erster Linie die Staubinhaltsstoffanalyse in Betracht.

Hierfür haben Israel und Mitarbeiter (1) ein Verfahren entwickelt, mit dem Trajektorienhäufungen erhöhter Werte von bestimmten Substanzen dargestellt werden können. Wichtige Informationen über große Quellen (Quellgebiete) liefert dieses Verfahren insbesondere dann, wenn man die Trajektorienhäufungen von zwei weit voneinander entfernten Stationen überlagert. Dazu wurden Messungen an Stationen in Berlin und der etwa 200 km westlich der Stadt gelegenen EMEP-Station Waldhof-Langenbrügge des UBA verwendet.

Bild 5: Trajektoriendichteverteilungen für Waldhof und Berlin (1)

Auf diese Weise konnte die Kupfergewinnung nördlich Breslaus als eine von zwei wesentlichen Quellen für hohe Arsenbelastung der Luft in Berlin identifiziert werden.

Die Anlagen wurden inzwischen saniert, so dass erwartet werden kann, dass die extrem hohen Arsenkonzentrationen nicht mehr auftreten. Demgegenüber zeigen die Trajektorienhäufungen für Natrium, dass hohe Konzentrationen vor allem mit westlichen bis nordwestlichen Winden vom Meer nach Berlin transportiert werden.

## Literaturverzeichnis

- (1) Israel, G. W., Erdmann, A., Shen, I., Frenzel, W. "Herkunft und Zusammensetzung der Schwebstaubimmission" VDI Fortschritt-Berichte, Reihe 15, Nr. 15, VDI Verlag, Februar 1992
- (2) LfU und UMEG, Schwebstaubbelastung in Baden-Württemberg, Karlsruhe, Mai 1998
- (3) Kuhlbusch, Th., A. John, Abschlussbericht zum Projekt "Korngrößenabhängige Untersuchungen von Schwebstaub und Inhaltsstoffen", Gerhard Mercator-Universität Duisburg im Auftrag Ministerium für Raumordnung, Landwirtschaft und Umweltschutz NRW, Duisburg, Januar 2000
- (4) OMKAS Teilprojekt 3, "Die Luftbelastung in Sachsen mit feinen Partikeln, Schwermetallen und polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen", Sächsische Landesanstalt für Umwelt und Geologie, Ref. Luftreinhaltung, Dresden, März 2000

- (5) BUWAL, "Modellierung der PM<sub>10</sub>-Belastung in der Schweiz", Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft (BUWAL), Schriftenreihe Umwelt Nr. 310, Bern 1999
- (6) Airborne Particles Expert Group, "Source Apportionment of Airborne Particulate Matter in the United Kingdom" Prepared on behalf of the Dept. of Environment, Transport and Regions, January 1999, ISBN 0-7058-1771-7
- (7) Abraham, H.J., K. Kutzner, P. Lenschow, W. Reichenbächer, "Some Ideas about the Sources of PM<sub>10</sub> in Berlin", Atmospheric. env., in press
- (8) Israel, G. W., Ch. Schlums, R. Treffeisen, M. Pesch, "Rußimmission in Berlin", VDI Fortschritt-Berichte, Reihe 15, Nr. 152, VDI Verlag Februar 1996
- (9) EU-Guidance on Assessment under the EU Air Quality Directives, Version XX, March 2000

					Main Sources	natural ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	anthrop ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	natural ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )
$\mu\text{g}/\text{m}^3$	$\mu\text{g}/\text{m}^3$		$\mu\text{g}/\text{m}^3$	%	Main Sources	natural ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	anthrop ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	natural ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )
PM10 annual mean	Partition		50.3	100				
regional background 18.6	hemispheric origin 18.6	inorganic secondary	8.3	16.5	combustion (SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> ) industries (SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> ) fertilization (NH <sub>3</sub> ) traffic (NO <sub>x</sub> ) volcanoes, oceans, flashes etc.	0.5	2.0 1.0	4.0 0.5 0.5
		carbonaceous material	4.8	9.5	combustion of coal etc. (OM, EC) industries (OM, EC) diesel vehicles (EC, OM) petrol vehicles (OM, EC) agriculture, pollens etc. (OM)	0.3	1.5 0.3 1.7 0.4 0.4	3.5 0.4 2.0 1.0
		soil etc.	5.5	10.9	wind, resusp. traffic, agriculture combustion of coal industries etc. volcanoes and other natural	2.0	2.0 1.0	1.4 0.3 1.6 0.3 0.2
urb. background 35.6	urban origin 17.0	inorganic secondary	5.2?	10.5	combustion (SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> ) traffic (NO <sub>x</sub> )	0.5	1.0 0.5	1.9 1.0
		carbonaceous material	7.3	14.5	combustion of coal etc. (OM, EC) diesel vehicles (EC, OM), tyres petrol vehicles (OM, EC), tyres industries (OM, EC) pollens and other natural (OM)	1.0 4.3 1.2 0.1	1.2 0.7	3.7 1.0
		soil etc.	4.5	8.7	resuspension by traffic and wind combustion of coal etc. construction	0.2	1.6 0.4 2.3	1.4 0.3 2.0
street 50.3	traffic 14.7	carbonaceous material	7.7	15.5	diesel vehicles (EC, OM) petrol vehicles (OM, EC) tyres abrasion	5.1 0.6 2.0	5.1 0.6 2.0	4.3 0.5 2.0
		soil etc.	7.0	13.9	resuspension by traffic and wind	1.0	6.0 5.9	1.0 5.5 3.80
sum	50.3		50.3	100		5.9	44.4	5.9

Tabelle 2: Composition and sources of PM10 near a busy street (Frankfurter Allee) in Berlin in 1998

Zuordnung von Immissionen zu Quellen

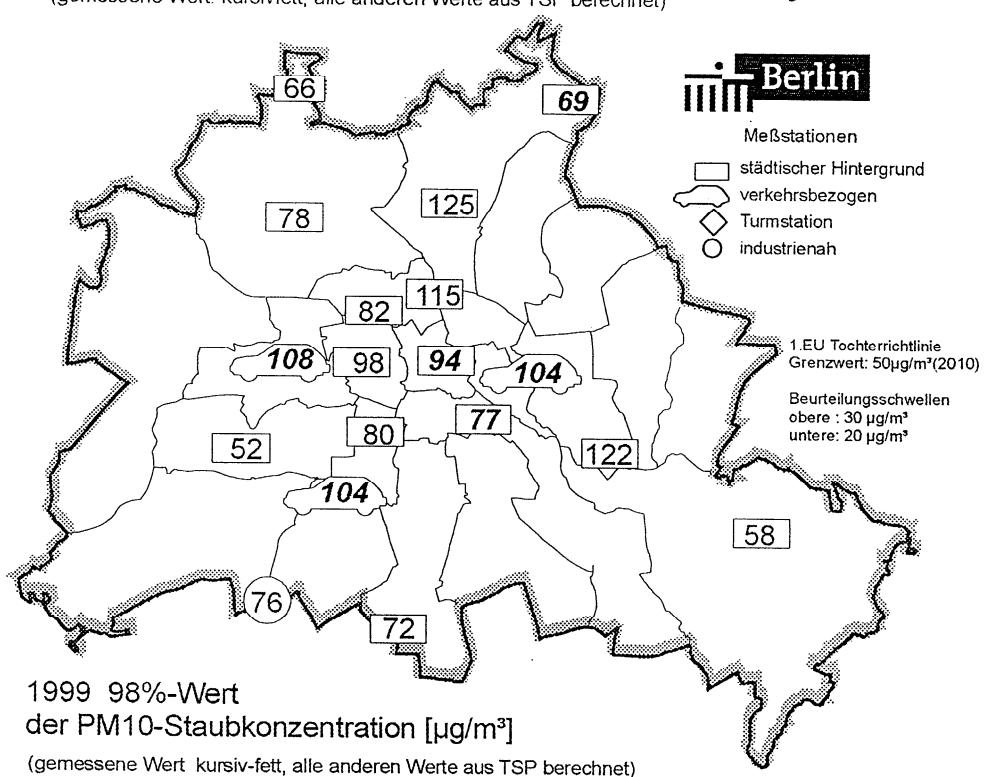
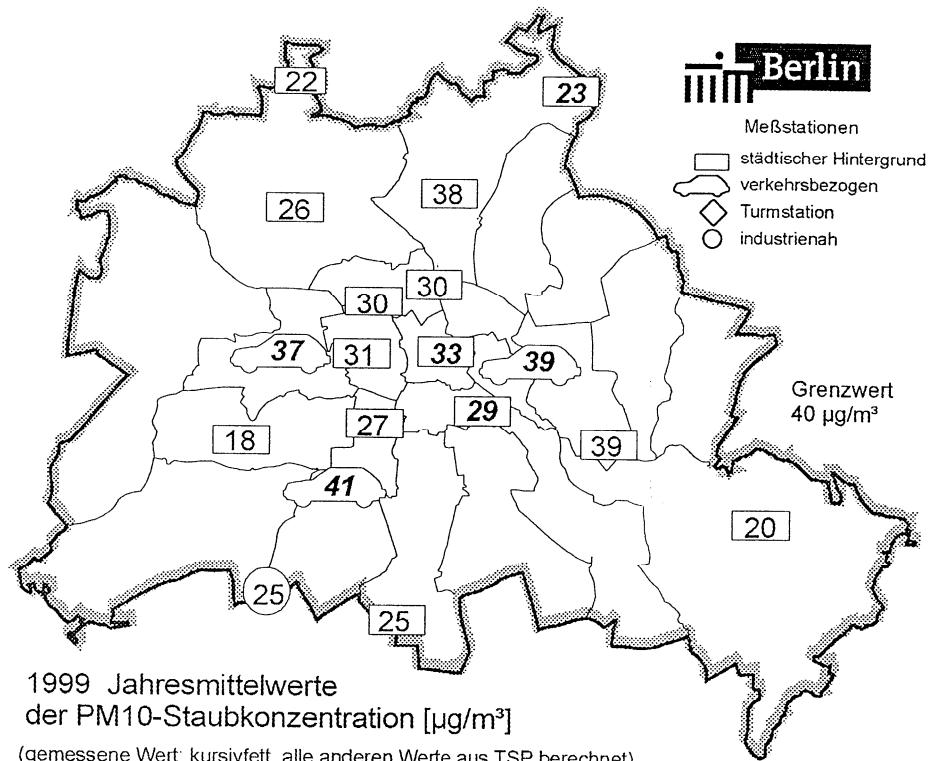


Bild 1: Jahresmittelwerte und 98 %-Werte der PM10-Konzentration in Berlin 1999

Zuordnung von Immissionen zu Quellen

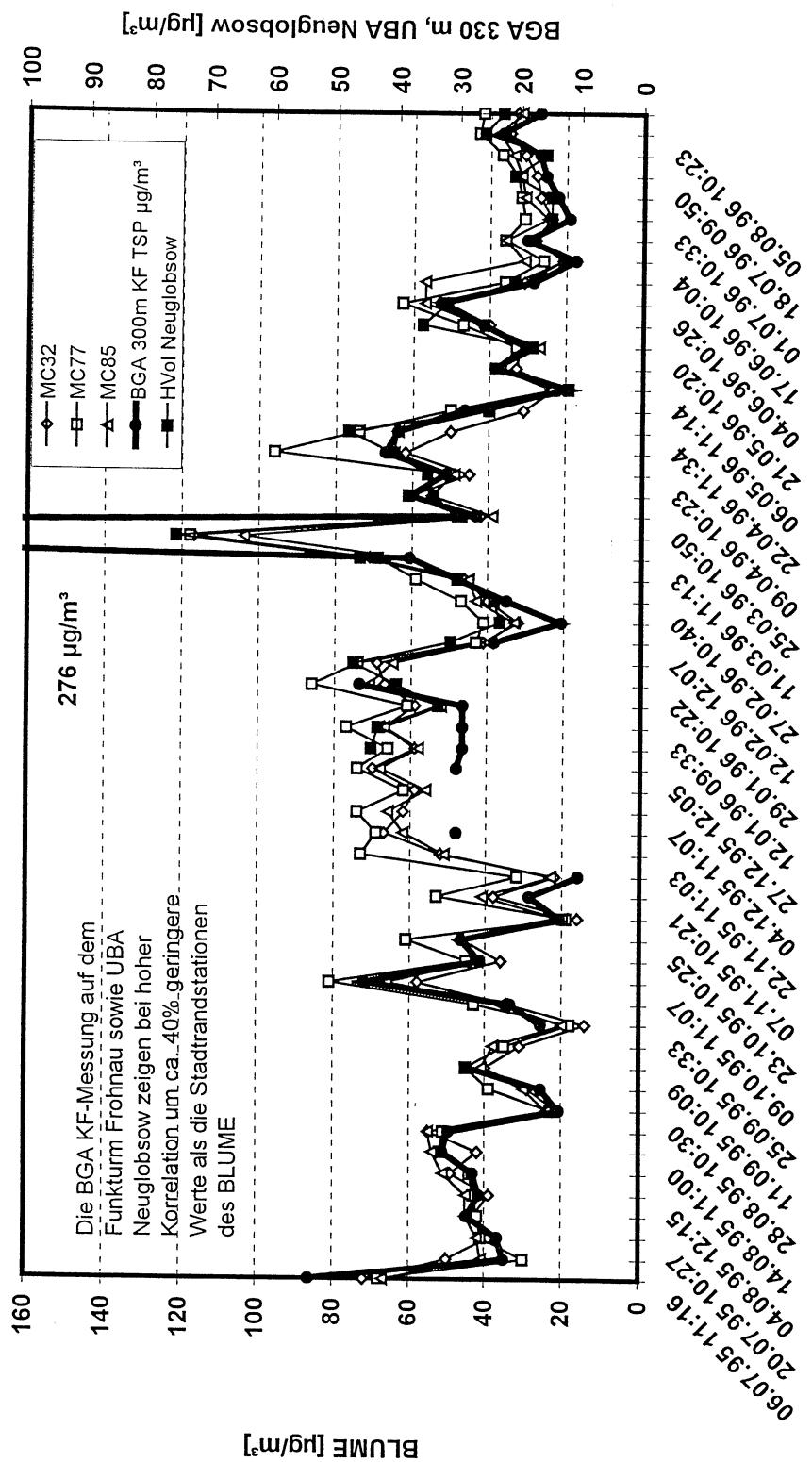


Bild 2: Vergleich Schwebstaub (TSP): Berlin Strandturm – Berlin Funkturm Frohnau (324m) – UBA Neuglobsow 1996 (HiVol ab 1/96)

Zuordnung von Immissionen zu Quellen

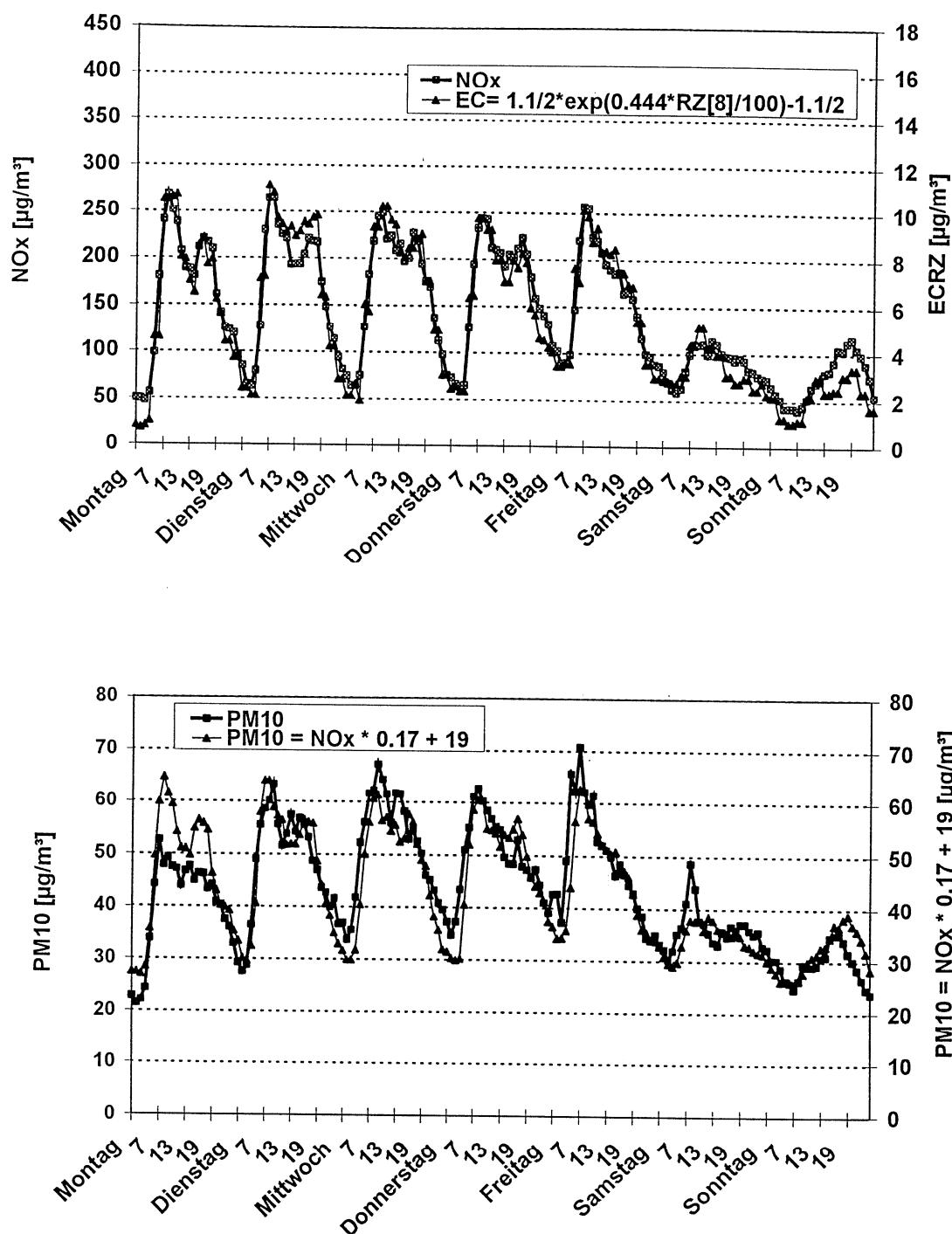


Bild 3: Tages/Wochengänge an der Straßenstation MC174, Berlin Frankfurter Allee  
(April bis Dezember 1999)

Zuordnung von Immissionen zu Quellen

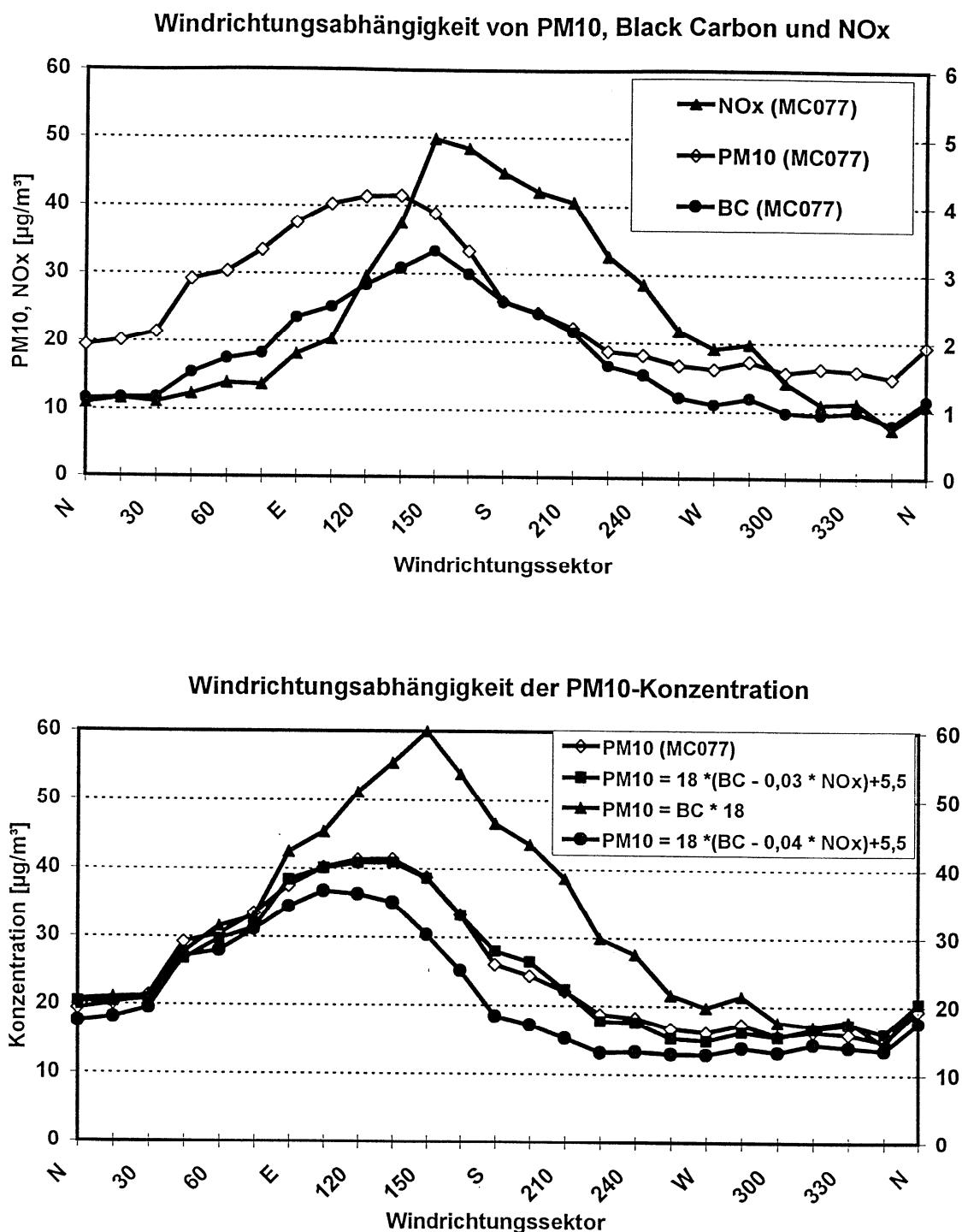


Bild 4: Windrichtungsabhängigkeit der Konzentration von Ruß, PM10 und NO<sub>x</sub> an der Stadtrand-Hintergrundstation MC077 Berlin Buch (01.07.98 bis 31.05.00)

Zuordnung von Immissionen zu Quellen

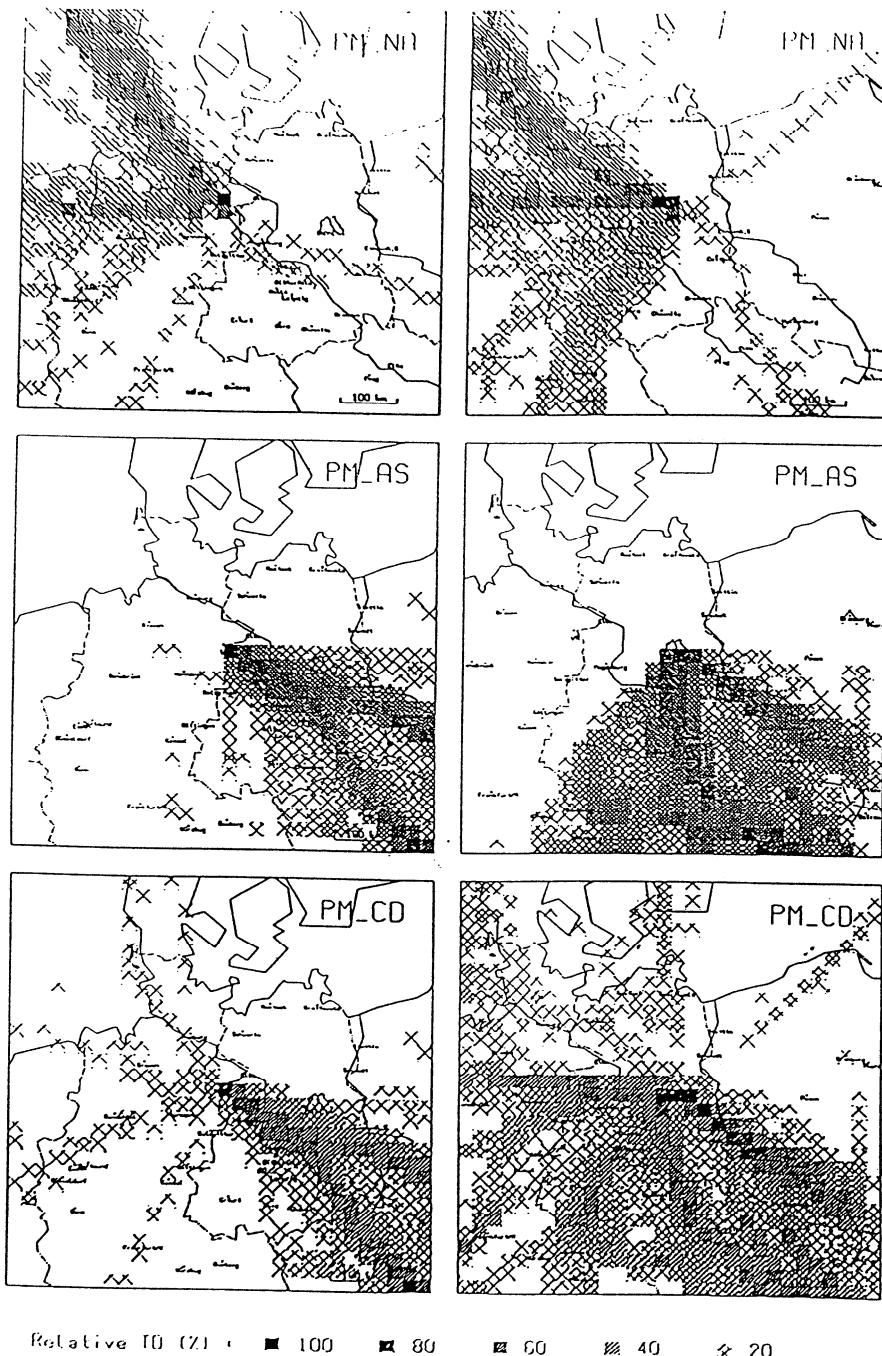


Bild 5: Trajektoriendichteverteilungen für Waldhof (links) und Berlin (rechts)

Zuordnung von Immissionen zu Quellen

Verursacher	Beitrag [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ] (%)	Verbrennung/ Industrie [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ] (%)	Verkehr [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ] (%)	Landwirt- schaft/Bau [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ] (%)	natürlich [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ] (%)
entfernte quellen	18,6 (100 %)	7,3 (39 %)	3,1 (17 %)	4,2 (23 %)	4,0 (21 %)
Quellen in Berlin	17,0 (100 %)	5,5 (32 %)	8,3 (49 %)	2,3 (14 %)	0,9 (5 %)
Quellen in der Straßenschlucht	14,7 (100 %)	0 (-)	13,7 (93 %)	0 (-)	1,0 (7 %)

Tabelle 3: Zuordnung der PM10-Immission an der Straßenmeßstelle Frankfurter Allee, Berlin zu Verursachergruppen 1998 (Zusammenfassung von Tabelle 2)

Zuordnung von Immissionen zu Quellen



### 3.3 KOMBINATION MESSUNG UND MODELLIERUNG

**Wolfgang J. Müller**  
**Niedersächsisches Landesamt für Ökologie, Hannover**

Die EU - Rahmenrichtlinie schreibt die Anwendungsmöglichkeit von Modellrechnungen zur flächendeckenden Ermittlung der Luftqualität in einer gesetzlichen Regelung fest, die von den Mitgliedstaaten rechtsverbindlich umzusetzen ist. Nach Artikel 6 EU- RRL wird der kombinierte Einsatz von Messung und Ausbreitungsrechnung vorgesehen. Nach Artikel 8 EU - RRL sind in Gebieten und Ballungsräumen, in denen die Konzentrationswerte die Summe aus Grenzwert und Toleranzmarge überschreiten, Maßnahmen vorzusehen, mit denen der jeweilige Grenzwert künftig eingehalten werden kann. Hierzu sind die Hauptverursacher zu identifizieren und die Auswirkungen emissionsmindernder Maßnahmen abzuschätzen. Derartige Ursachenanalysen sowie Immissionsprognosen können mit Methoden der Ausbreitungsrechnung durchgeführt werden.

Aus Gründen der Rechtssicherheit und der Verwaltungsvereinfachung sollten die Methoden der Ausbreitungsrechnung zur Umsetzung der EU - RRL und EU- TRL sowie der TALuft gleich sein.

#### **Anforderungen an die Modellverfahren zur Ausbreitungsrechnung nach EU - RL und TALuft**

Die Grenzwerte der EU - RL und der TALuft besitzen unterschiedliche Zeitbezüge:

- Stundenmittel
  - Tagesmittel
  - Jahresmittel
- und sind mit Überschreitungshäufigkeiten kombiniert.

Explizit können diese Anforderungen konsistent bei Messung und Modellrechnung nur durch Verarbeitung von Zeitreihen auf der kleinsten Basis von Stundenwerten erfüllt werden.

Bei der Ausbreitungsmodellierung sind weiterhin zu berücksichtigen:

- Punktbezug
- Ausfüllung von 2.6.4.1 der TALuft
  - a) Gebäude
  - b) Gelände
  - c) Schwachwind
  - d) physikalisch, chemische Umwandlung
  - e) Stationaritätsannahme

- nasse/ trockene Deposition
- Entwicklungsfähigkeit für die Fragestellung sekundäre Aerosolbildung
- Explizite Berücksichtigung der Immissionsvorbelastung
- Kompatibilität mit Geruchsausbreitungsmodell.

Den LAI - Gremien wurde von dem BAK AR (Bisheriger AK Ausbreitungsrechnung), im Rahmen der TALuft-Novellierung, ein Modell vom LASAT - Typ entsprechend VDI 3945 Bl. 3 vorgeschlagen. Dieses Modellsystem erfüllt die Qualitätssicherungsanforderungen des HA II -Umweltmeteorologie (VDI) in Bezug auf Offenlegung, Nachvollziehbarkeit, Verifikation und Validierung. Umfangreich wurde die Verifikation und Validierung mit Naturdatensätzen (u.a. Experimente der Kernforschungsanlage Karlsruhe) dokumentiert.

Das grundlegende Modellsystem wurde seit mehreren Jahren in Genehmigungsverfahren von verschiedenen Gutachtern erfolgreich eingesetzt.

Die Praktikabilität und Rechenzeiten bewegen sich in einer Größenordnung wie bei der Einführung des bisherigen Gauß-TALuft-Modells im Jahr 1986. Auf handelsüblichen Standard-PC's haben sich bei Mehrquellsystemen für die Staubkonzentrations- und Depositionsberechnung mittels einer Jahreszeitreihe Rechenzeiten um 1 Stunde ergeben. Bei ggf. notwendigen abnehmenden Stichprobenfehlern (wegen Nähe des Ergebnisses zum Grenzwert) kann die Rechenzeit bis auf mehrere Stunden erhöht werden.

Arbeiten zur Erstellung einer "Verwaltungsausgabe" des LASAT Modelltyps sind angelaufen.



# **Kombination**

## **Messung und Modellierung**

**Wolfgang J. Müller**

[wmj-met.nloe@t-online.de](mailto:wmj-met.nloe@t-online.de)



- Anwendungsbereiche der Ausbreitungsrechnung nach TALuft
  - Anlaß zur Änderung – EU Richtlinien zur Luftqualität Bodenschutz, Versauerung
  - Stand der Praxis in Genehmigungsverfahren
  - Internationale Entwicklung
  - Qualitätssicherung
- 
- Auftrag des LAI an BAK AR
  - Basis für Novellierung des Teiles Ausbreitungsrechnung in der TALuft
  - VDI Richtlinien, FuE Vorhaben des Bundes und der Länder
- 
- Verfügbarkeit meteorologischer Daten
  - Vergleich der Ergebnisse GAUßmodell und Lagrange Modell
  - Praktikabilität, Rechnerplattform, Rechenzeit
  - Plausibilitätskontrolle von Gutachten
- 

## Fazit

-

Abb.2 Tabelle der Beurteilungsstufen mit Konzentrationsangaben nach 1. TRL zur Luftqualität

EU - Stufen	Komponente Ziel Zeitbezug	SO2		SO2		NO2		PM10		PM10-b		Benzol		CO	
		GS	ÖS	GS	ÖS	GS	Veg.	GS	GS	GS	GS	GS	GS	GS	8 h
5	GW + TOL	1h	24h	Jahr	Winter	1h	Jahr	24h	Jahr	24h	Jahr	24h	Jahr	24h	Jahr
4	GW	350	125	20	20	200	40	30	50	40	20	0,5	1	5	10
3	OBS < Wert =< GW					12	12	140	32	24	30	14	30	14	35
2	UBS < Wert =< OBS					75	12	140	32	24	30	14	30	14	35
1	Wert =< UBS					50	8	8	100	26	19,5	20	10	20	0,25
0	Keine Angabe					24	3	18	35	35	35	35	35	35	35
	zul. Überschreitung														

Legende

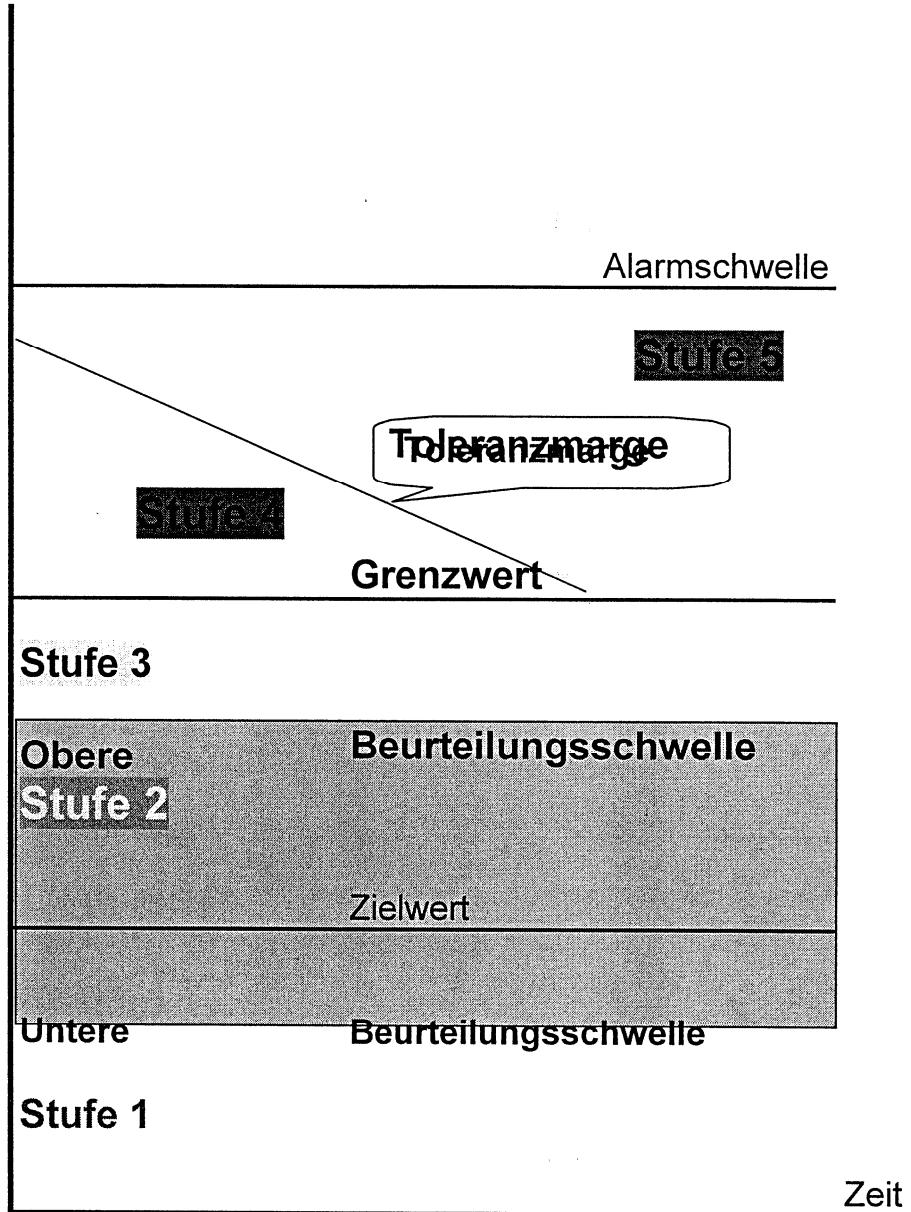
GW	Grenzwert
OBS	Obere Beurteilungsschwelle
UBS	Untere Beurteilungsschwelle
	Angaben in Mikrogramm/m <sup>3</sup> bei CO in Milligramm/m <sup>3</sup>

GS  
Schutz Gesundheitsschutz  
ÖS  
Schutz Ökosystem  
Veg.  
Schutz Vegetation  
PM-10-b  
2. Stufe  
PM-10-a  
1. Stufe



# Rahmenrichtlinie Luftqualität 96/62/EG

Konzentration/  
Deposition



- Stufe 4 + 5 Meßpflicht, Ursachenanalyse  
Stufe 2 + 3 Meßpflicht, ergänzende Modellrechnung  
Stufe 1 Modellrechnung/Schätzung (nicht Stoffe mit Alarmschwellen)  
In Ballungsräumen gilt grundsätzlich Meßpflicht.

Abb.1 Stufung und zeitliche Entwicklung der Beurteilungsschwellen nach 1. TRL zur Luftqualität



### 3. Anforderungen an die Ausbreitungsrechnung aus der Richtlinie 96/62/EG

- **Artikel 5 EU-RRL**

Im Rahmen der Ausgangsbeurteilung ist eine **flächenrepräsentative Klassifizierung** der Immissionsbelastung durchzuführen. Hierzu wird der Einsatz der Methodik der Ausbreitungsrechnung als notwendig angesehen. Von einer Beurteilung allein auf Basis von Meßwerten ist abzusehen, da im allgemeinen nicht festzustellen ist, inwieweit Meßorte als repräsentativ anzusehen sind.

- **Artikel 6 EU-RRL**

Zur Beurteilung der Luftqualität sieht die Richtlinie einen **kombinierten Einsatz von Messung und Ausbreitungsrechnung** vor. Insbesondere kann in Gebieten, die eine Überschreitung der 'oberen Beurteilungsschwelle' aufweisen, die Ausbreitungsrechnung als Instrument eingesetzt werden. In Gebieten, die eine Unterschreitung der **unteren Beurteilungsschwelle** aufweisen (Art. 6 Abs. 4), ist die Ausbreitungsrechnung als Instrument vorrangig einzusetzen.

- **Artikel 8 EU-RRL**

In Gebieten und Ballungsräumen, in denen die Werte eines oder mehrerer Stoffe die Summe von **Grenzwert und Toleranzmarge überschreiten**, sind Maßnahmen vorzusehen, mit denen der jeweilige Grenzwert zukünftig eingehalten werden kann. Hierzu sind die Hauptverursacher zu identifizieren und die Auswirkungen emissionsmindernder Maßnahmen abzuschätzen. Derartige **Ursachenanalysen** sowie Immissionsprognosen können nur mit Methoden der Ausbreitungsrechnung durchgeführt werden.



## Nutzung von Modellverfahren für

- effektive Umsetzung der EU-Richtlinien,
- geforderte Ursachenanalyse gegenüber der EU,
- Erarbeitung von Maßnahmeplänen,
- Umsetzung des Bodenschutzgesetzes und
- 
- 
- 
- 
- 
- 

## TALuft

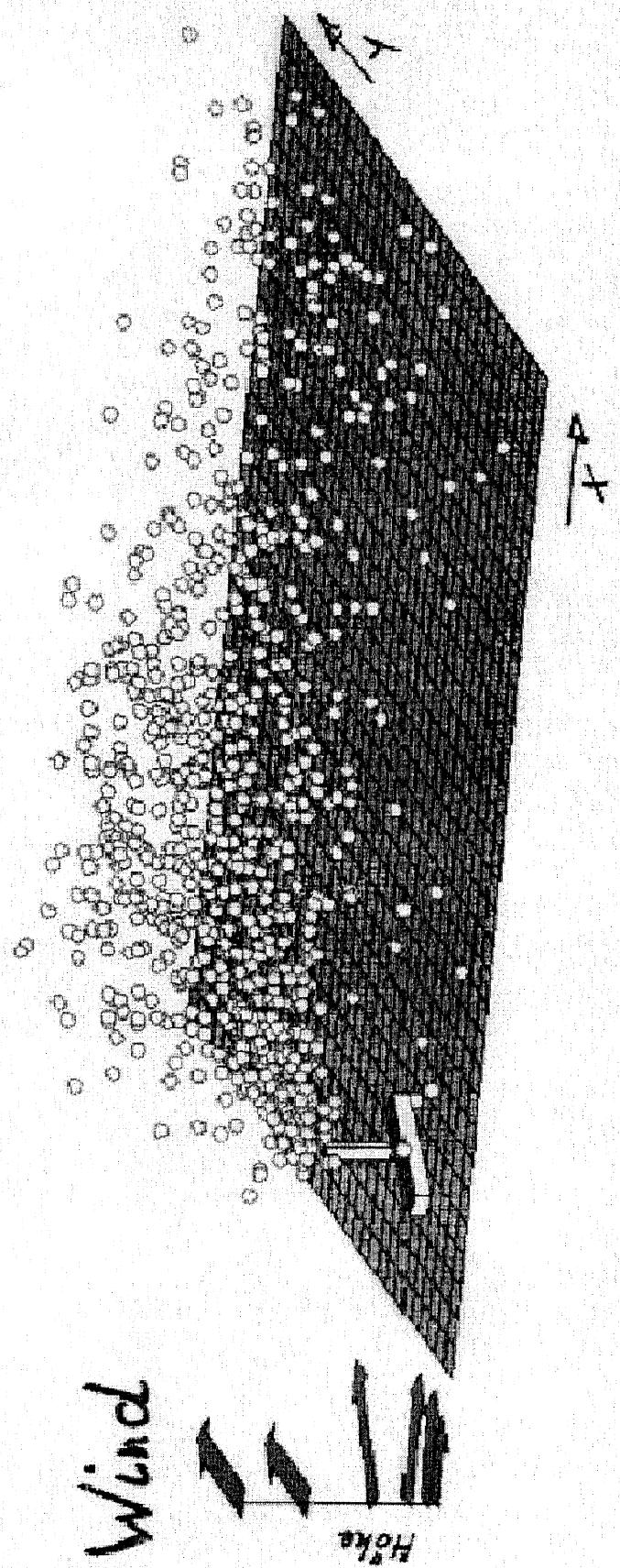
d.h. **identische Modellverfahren** sind notwendig

wg. Rechtssicherheit, Vereinfachung...

# AUSTAL 2000

Modell vom  
Vorschlag des BAK AR : **LASAT -Typ**  
entsprechend  
VDI 3945 Bl. 3 (W)

# Beispiel Lagrange Modell H5HT





## Argumente für eine Novellierung der Ausbreitungsrechnung mit Modell nach LASAT Typ

- EU RL Kurzzeitbelastungswerte – Zeitreihe
- Möglichkeiten zur Verbesserung bei TAL 2.6.4.1  
Gelände, Gebäude, Staionarität, Schwachwind, einfache Chemie
- Internationale Entwicklung zu „höherwertigen Modellen“
- Anpassung an Stand der Technik nach über 25 Jahren  
Verwaltungspraxis
  - VDI Richtlinie im Weißdruck
  - Genehmigungspraxis in den Bundesländern
  - Einsatz im Kernreaktorfernüberwachungssystem Niedersachsen
  - Bodenschutz
- Zeitreihen meteorologischer Daten und luftchemischer Daten
- Umfangreiche Verifikation
- Umfangreiche Validierung
  - KfK Experimente
  - Prairie-Grass Experimente
  - TALuft
  - Kopenhagen Experimenten
- Verfügbarkeit des Programmsystems
- Akzeptable Rechenzeiten

# Qualitätssicherungspapier des VDI KRdL HA II

## Umweltmeteorologie

- *Nachvollziehbarkeit*
  - *Offenlegung*
  - *Verifikation*
  - *Validierung*



## Laufzeituntersuchungen

Von verschiedenen Seiten wird der große Rechenzeit - Aufwand für LASAT Zeitreihen rechnen als Gegenargument für den Novellierungsvorschlag der TALuft vorgebracht.

### Testrechnungen

Zwei (Supermarkt- Aldi und MediaMarkt) handelsübliche PC aus dem aktuellen Sonderangebot Ende März und Mai 2000, die zu Preisen unter 2000 DM angeboten wurden, dienten als Plattformen für die Laufzeituntersuchungen.

#### Aldi PC : 667 MHz    Mediamarkt PC : 700 MHz

Die Konfiguration des Aldi PC ist in Zeitschriften (ComputerBild 7/2000) dokumentiert. Der MediaMarkt PC stammt von dem gleichen Hersteller Medion und ist außer dem Prozessor offenbar baugleich. Für Lauf 4 und 5 wurde ein COMPAQ Deskpro eingesetzt. Unterschiedliche Betriebssysteme wurden verwendet.

Die Rechenzeiten wurden in 5 Läufen bestimmt.

Rechenzeiten **unter 1 Stunde** treten bei einer Partikelemissionsrate von 0,1 P/s auf. Diese Rate ist allgemein den Problemen (Nähe des Grenzwertes) angemessen. Bei den Läufen kann auch der Stichprobenfehler überprüft werden und in Sonderfällen können weitere Rechnungen mit geringerem Stichprobenfehler infolge höherer Partikelemissionsraten durchgeführt werden. Die Rechenzeiten betragen dann bis zu 24 Stunden.

In einem weiteren Lauf zur

#### Staubkonzentrations- und Depositionsbestimmung

mit 3 Quellen wird ebenfalls eine Rechenzeit von **unter 1 Stunde** ermittelt.



---

- **Lauf 1**

**Rechenzeit:** 24 h, PC 700 MHz – Windows 98

2 Quellen : Punktq. 100 m (100 kg/h)

Flächenq. in 15 m Höhe (10 kg/h)

**Rechengebiet:** 16 km\* 16 km, Raster 500 m

Intervalle: 32 \* 32, 6 Höhen, 81 Monitorpunkte für Zeitreihe

**Verzeichnisgröße:** 97 MB

**Rechnung für 8760 Stunden**

**Rate: 10 P/s**

---

- **Lauf 2**

**Rechenzeit:** 14 h, PC 667 MHz – Windows 98

2 Quellen : Punktq. 100 m (100 kg/h)

Flächenq. in 15 m Höhe (10 kg/h)

**Rechengebiet:** 8 km\* 8 km, Raster 500 m

Intervalle: 16 \* 16, 6 Höhen, 81 Monitorpunkte für Zeitreihe

**Verzeichnisgröße:** 30MB

**Rechnung für 8760 Stunden**

**Rate: 10 P/s**

---

- **Lauf 3**

**Rechenzeit:** 54 min, PC 700 MHz – Windows 98

**Wie Lauf 1, aber**

**Rate: 0,1 P/s**

---

- **Lauf 4**

**Rechenzeit:** 57 min, PC 500 MHz – Windows NT 4.0 SP5

**30m Quelle 1kg/h**

**Rechengebiet:** 4 km\* 4 km, Raster 50 m

Intervalle: 81 \* 81, 6 Höhen, 81 Monitorpunkte für Zeitreihe

**Rate: 0,1 P/s**

---

- **Lauf 5**

**Rechenzeit:** 50 min, PC 500 MHz – Windows NT 4.0 SP5

**100m Quelle 1 kg/h**

**Rechengebiet:** 4 km\* 4 km, Raster 50 m

Intervalle: 81 \* 81, 6 Höhen, 81 Monitorpunkte für Zeitreihe

**Rate: 0,1 P/s**



**Computer Bild**

Verständlich • 14-täglich • Aktuell

**NUR 2,80 MARK**

Profi-Wissen

**10 neue Soundkarten**

Video

**10 Digital-Camcorder**

Brandaktuell

**Hittliste: Die 20 schnellsten Prozessoren**

Ratgeber

**Test: Computer-Sonderangebote**

**Aldi-Tag**

...oder bietet die Konkurrenz bessere Schnäppchen?

**Briefe schreiben mit Word 2000**

**So leicht geht's**

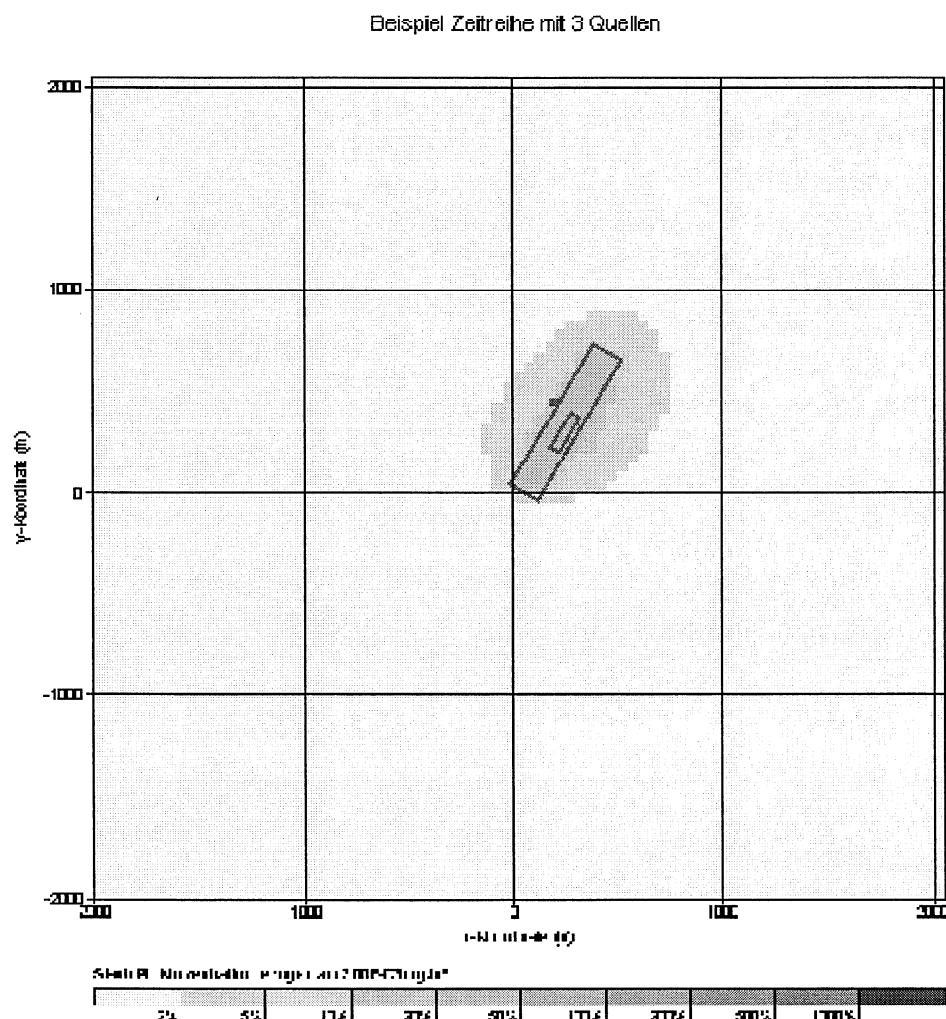
**Komprimierungs-Programme**

TV  
Rex im COMPUTERFELD:  
Die besten Premieren-  
Wahl-Spielfilme mit  
• Altersangaben  
• Tonverfahren



### Anwendungsbeispiel

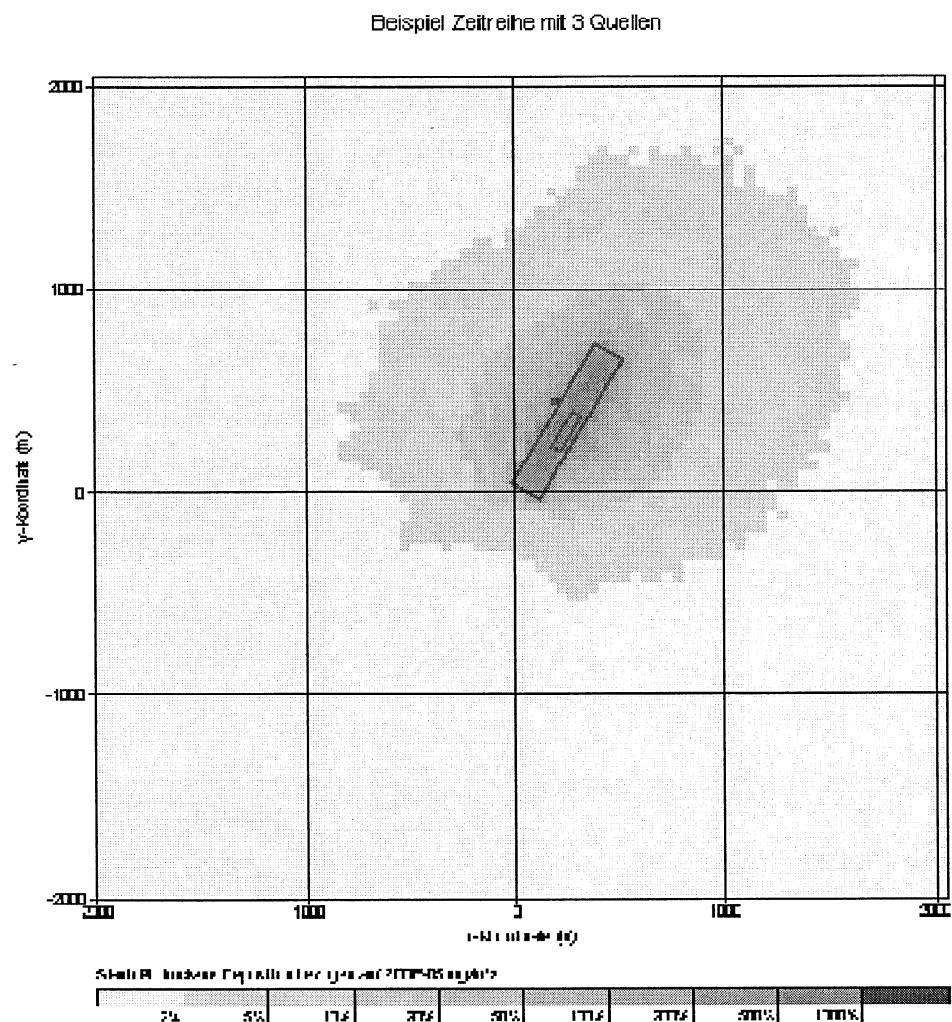
Prognose auf der Basis einer meteorologischen Zeitreihe von Stundenwerten über 1 Jahr. Bestimmung der Staubkonzentration und der trockenen Deposition. Räumliche Auflösung  $dx=50$  m, Rechenzeit 52 Minuten auf PC Pentium 700 MHz.





### Anwendungsbeispiel

Prognose auf der Basis einer meteorologischen Zeitreihe von Stundenwerten über 1 Jahr. Bestimmung der Staubkonzentration und der trockenen Deposition. Räumliche Auflösung  $dx=50$  m, Rechenzeit 52 Minuten auf PC Pentium 700 MHz



# AUSTAL 2000

**„Verwaltungsausgabe  
AUSTAL 2000“**

von LASAT

**Gemeinsames Projekt von**

- BAK AR + UBA
- d.h. Bund + Länder

# AUSTAL 2000

## Problembereiche :

- zeitliche /räumliche Repräsentativität
- sekundäre Aerosolbildung PM10/ PM2.5
- Naturdaten für Validierung



## **SEKTION 4**

**BEISPIELE FÜR DIE UMSETZUNG**

**DER ANFORDERUNGEN**

**DER EU-TOCHTER-RICHTLINIE**



## **4.1 ALLGEMEINE EINFÜHRUNG, SITUATION IN NORDRHEIN-WESTFALEN ALS ÜBERREGIONALER BALLUNGSRAUM**

**Peter Bruckmann**  
**Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen, Essen**

Die Richtlinie 1999/30/EG (1. Tochterrichtlinie zur Luftqualität) enthält zahlreiche Vorgaben, die von der bisherigen deutschen Messpraxis abweichen. Zahlreiche Vorgaben müssen bereits bis zum 19.07.2001 (nach freiwilliger Selbstverpflichtung der Mitgliedstaaten 01.01.2001), dem Beginn der systematischen Luftqualitätsüberwachung nach den neuen Vorschriften in den Mitgliedstaaten, umgesetzt sein. Die Anforderungen auf den Gebieten Messplanung und Anzahl der Messstationen, Messverfahren, Datenqualitätsziele, Maßnahmenpläne bei Grenzwertüberschreitungen, Information von Öffentlichkeit und Kommission sowie der Einteilung des Landes in Zonen unterschiedlicher Luftbelastung und in Ballungsgebiete werden erläutert.

Eine der wichtigsten Neuentwicklungen betrifft den Übergang von der Schwebstaubmessung zur fraktionierenden Messung der Staubfraktionen  $PM_{10}$  (flächendeckend) und  $PM_{2,5}$  (an einigen repräsentativen Messstationen). Die EU hat die Anforderungen an die Messtechnik durch die Festlegung eines gravimetrischen Referenzverfahrens (EN 12341) und von zu erreichenden Datenqualitätszielen konkretisiert.

Die bisher in den deutschen Messnetzen überwiegend verwendeten kontinuierlichen radiometrischen Messgeräte können, auch wenn sie mit einem  $PM_{10}$ -Messkopf ausgerüstet sind, die vorgegebenen Datenqualitätsziele nur bedingt und unter hohem Wartungsaufwand erfüllen. Bei der Messung flüchtiger Aerosole treten erhebliche Minderbefunde bis zu 30 % und mehr auf.

Die in Nordrhein-Westfalen getroffenen Maßnahmen zur Umsetzung der 1. Tochterrichtlinie in Bezug auf die Bewertung von  $PM_{10}$  und  $PM_{2,5}$  werden erläutert. Sie umfassen eine Umstrukturierung des Messnetzes (Stilllegung von 36 Stationen im städtischen Hintergrund, dafür Aufstellung zusätzlicher 7 Verkehrs- und 2 industrienaher Stationen), die Einrichtung von zunächst 17  $PM_{10}$ - und 5  $PM_{2,5}$ -Messstationen (mit gravimetrischen Geräten), die Fertigstellung der Ausgangsbeurteilung der Luftqualität mit einem Vorschlag zur Einteilung in Belastungszonen sowie vor allem die Vorbereitung von Maßnahmenplänen zur Verminderung der Staubbelastung.

Diese werden in Nordrhein-Westfalen erforderlich werden, da in weiten Teilen des Rhein-Ruhrgebietes, aber auch in einzelnen Mittelstädten (Borken) und Ballungsräumen außerhalb des Rhein-Ruhrgebietes (Bielefeld) mit Grenzwertüberschreitungen insbesondere für die Anzahl zulässiger Tagesmittel zu rechnen ist.

Die Vorbereitungen der Maßnahmenpläne umfassen die Durchführung von F+E-Vorhaben mit der Universität Duisburg zur Ursachenanalyse, ein Programm zur systematischen Erfassung industriell verursachter Belastungsschwerpunkte zusammen mit den staatlichen Umweltämtern und ein fachtechnischer Arbeitskreis aus Umweltministerium, Landesumweltamt sowie VertreterInnen der Industrie und wichtiger Interessengruppen wie z.B. der Gewerkschaften und der Ärzte.

Wichtige Ergebnisse des F+E-Vorhabens und Zwischenergebnisse des Programms industrieller Belastungsschwerpunkte werden dargestellt. So konnte z.B. durch Untersuchung von Einzelepisoden erhöhter  $PM_{10}$ -Konzentrationen (Tagesmittel  $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) der überraschend große Beitrag des sekundären Aerosols in einer Mehrzahl der Fälle nachgewiesen werden. Bei der Untersuchung von mehreren hundert Industrieanlagen auf Emissionen, Immissionen im Umfeld und technischem Minderungspotential wurde die erhebliche Bedeutung diffuser Emissionen deutlich. Mit einem neu entwickelten 3-stufigen Impaktor ( $PM_{10}$ ,  $PM_{2,5}$  und backup-Filter) werden fraktionierende Emissionsmessungen zur Verbesserung des Kenntnisstandes bei industriellen Feinstaubemissionen vorgenommen.

Die Vorbereitungen zur Umsetzung der 1. Tochterrichtlinie sind in Nordrhein-Westfalen bereits weit vorangetrieben und haben insgesamt für neue Impulse in der Luftreinhaltung gesorgt. Insbesondere die Maßnahmen zur Verringerung der Staubbelastung werden ein bestimmendes Element der Luftreinhaltung im begonnenen Jahrzehnt bilden.

# **Umsetzung der 1. EU-Tochterrichtlinie Allgemeine Einführung, Situation in NRW als überregionaler Ballungsraum**

**Dr. Peter Bruckmann**

**Landesumweltamt, NRW**

- **Anforderungen der 1. Tochterrichtlinie**
- **Belastungssituation in NRW**
- **Ausgangsbeurteilung**
- **Messtechnik**
- **Vorbereitung von Maßnahmenplänen:**
  - **Ursachenanalyse**
  - **Programm "Belastungsschwerpunkte"**
  - **AK Feinstaub mit Industrie**



Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen

LUA NRW  
Dr. P.  
Bruckmann

Bruck-32-

## Umstrukturierung des Messnetzes

- **Richtiger "Stationsmix":**
  - **Stilllegung von 36 Stationen im urbanen Hintergrund**
  - **7 neue Verkehrsstationen**
  - **4 neue Stationen in Ballungsräumen**
  - **2 neue Stationen im Umfeld von Industrieanlagen**
- **PMX-Messstationen (Jahr 2000):**
  - **TSP: 65**
  - **PM10: 11 + 6 (Digitel)  
(8 städt., 1 ländl.,  
4 Verkehr, 4 Industrie)**
  - **PM2.5: 5 (Kleinfiltergeräte)  
(2 städt., 1 ländl.,  
1 Verkehr, 1 Industrie)**
- **Tests mit 2 neuen  $\beta$ -Absorpt. (PM10)  
und 2 neuen TEOM (mit Trockner)  
(PM10)**



Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen

LUA NRW  
Dr. P.  
Bruckmann

Bruck-32-  
folie.doc

## Datenqualitätsziele für PM10

**Parameter:** **Unsicherheit**

**Kont. Messung:** **25 % (p=0,95)**

**Stichprobenmessung,  
bezogen auf kont.  
Messung:** **± 10 % (2 s)**

**orientierende Messung:** **50 %**

**Modellierung, Jahresmittel:** **50 %**

**Objektive Schätzung:** **100 %**

**Referenzmethode:**

**EN 12341 (Gravimetrie)**



Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen

LUA NRW  
Dr. P.  
Bruckmann

Bruck-32-  
folie doc

## Anforderungen aus Rahmen- und 1. Tochterrichtlinie:

- Überwachung der Grenzwerte (Beurteilung)
- Messplanung
- Mindestanzahl von Messstationen
- Datenqualitätsziele für Messung und Modellierung, Referenzmessverfahren
- Einteilung des Landes in Ballungsgebiete und (Belastungs)zonen
- Information der Öffentlichkeit und der Kom.
- Maßnahmenpläne (bei Überschreitung von Grenzwerten bzw. Toleranzmargen)
- Umsetzung bis 19.07.2001, 1. Maßnahmenplan bis Ende 2003



Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen

LUA NRW  
Dr. P.  
Bruckmann

Bruck-32-  
folie doc

# Systematische Ermittlung und Beseitigung von Belastungsschwerpunkten Projekt von MURL, LUA, StUÄ (1)

- Erstellung eines Prüfrasters durch LUA
- Überprüfung von mehreren Hundert Betrieben durch StUÄ, Relevanzkriterien für PMX:
  - 100 Anlagen mit höchsten Emissionsmassenströmen
  - einfache Immissionsabschätzung (Immissionsbeitrag IK ~ Emissionsmassenstrom x Faktor (Funktion der Schornsteinhöhe))
  - erhebliche diffuse Emissionen



Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen

LUA NRW  
Dr. P.  
Bruckmann

Bruck-32-  
folie.doc

# Systematische Ermittlung und Beseitigung von Belastungsschwerpunkten Projekt von MURL, LUA, StUÄ (2)

- ggf. weitere Emissions- und Immissionsmessungen
  - Erhebung des technischen Minde rungspotentials (StUÄ)
- ☞ Weiterfolgung: Maßnahmenpläne, AK Feinstaub (Industrie, LUA, MURL)



Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen

LUA NRW  
Dr. P.  
Bruckmann

Bruck-32-  
folie.doc

## Zusammenfassung

- **Anforderungen aus Rahmen- und 1. Tochter RL erfordern Umstellung von Messplanung und Messtechnik (PM10, PM2.5)**
- **Kontinuierliche Staubgeräte ( $\beta$ -Absorpt.) können Datenqualitätsziele nur unter wartungsintensiven Randbedingungen erfüllen**
- **Zoneneinteilung (Ausgangsbeurteilung) liegt vor. In Ballungsräumen verbreitet Grenzwertüberschreitungen**
- **Auch Episoden mit hohem Anteil sek. Aerosol führen zu Überschreitungen der Tagesmittelwerte**
- **Vorbereitung von Maßnahmenplänen durch**
  - **Programm Belastungsschwerpunkte (Anlagen)**
  - **Emissionsmessungen**
  - **AK Feinstaub (mit Industrie)**



Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen

LUA NRW  
Dr. P.  
Bruckmann  
Bruck-32-  
folie.doc

# Korngrößenabhängige Untersuchungen von Schwebstaub und Inhaltsstoffen - Projekt von Uni Duisburg und LUA

## Ziele:

- Charakterisierung von Partikeln < 10 µm (u.a. *Anzahlgrößenverteilungen, PM10, PM1.0, Ruß, Inhaltsstoffe*)
- Test vorhandener Messgeräte (u.a. *Digitel, TEOM, LVS3, Kaskadenimpaktor, Grasby und Andersen*)

## Durchführung:

- 5 Messkampagnen an 4 Standorten über 4 Wochen (*Verkehrsstat. D, urbane Stat. Oberhausen, Duisburg, ländl. Stat. Spellen*)



Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen

LUA NRW  
Dr. P.  
Bruckmann  
Bruck-32-  
folie.doc

# Untersuchungen von Episoden erhöhter Staubkonzentrationen, Spellen (Tagesmittel PM10 $\geq$ 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )

Episode		Typ I		
Nr.	Anzahl d	c/c	PM2.5/ PM10	Mass. % PM10 von $\text{NO}_3^-$ , $\text{NH}_4^+$ , $\text{SO}_4^{2-}$
1	1	1,5	>0,6	63
2	3	2,6	>0,6	80
3	2,5	1,5	>0,6	65

Episode		Typ I			
Nr.	Anzahl d	Anteil Fe, Ca, Zn, Mg	Trajektorie (24 h)	Wind	Regen
1	1	↓	115 km	↓	↓
2	3	↓	133 km	↓	↓
3	2,5	↓	170 km	↓	↓

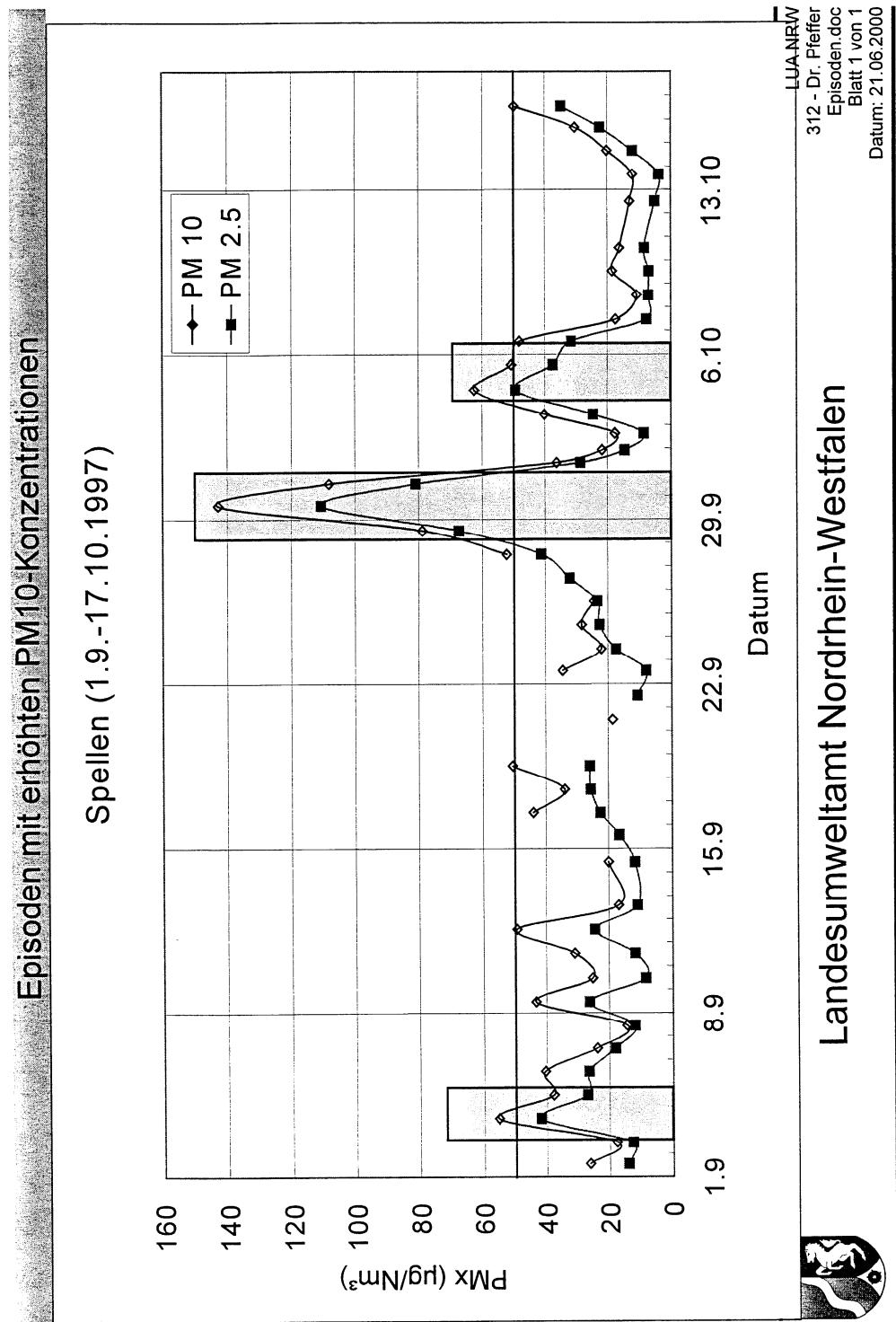
☞ 79 % der 32 Tage  $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  PM10, Typ 1  
(hoher Beitrag sekundären Aerosols)



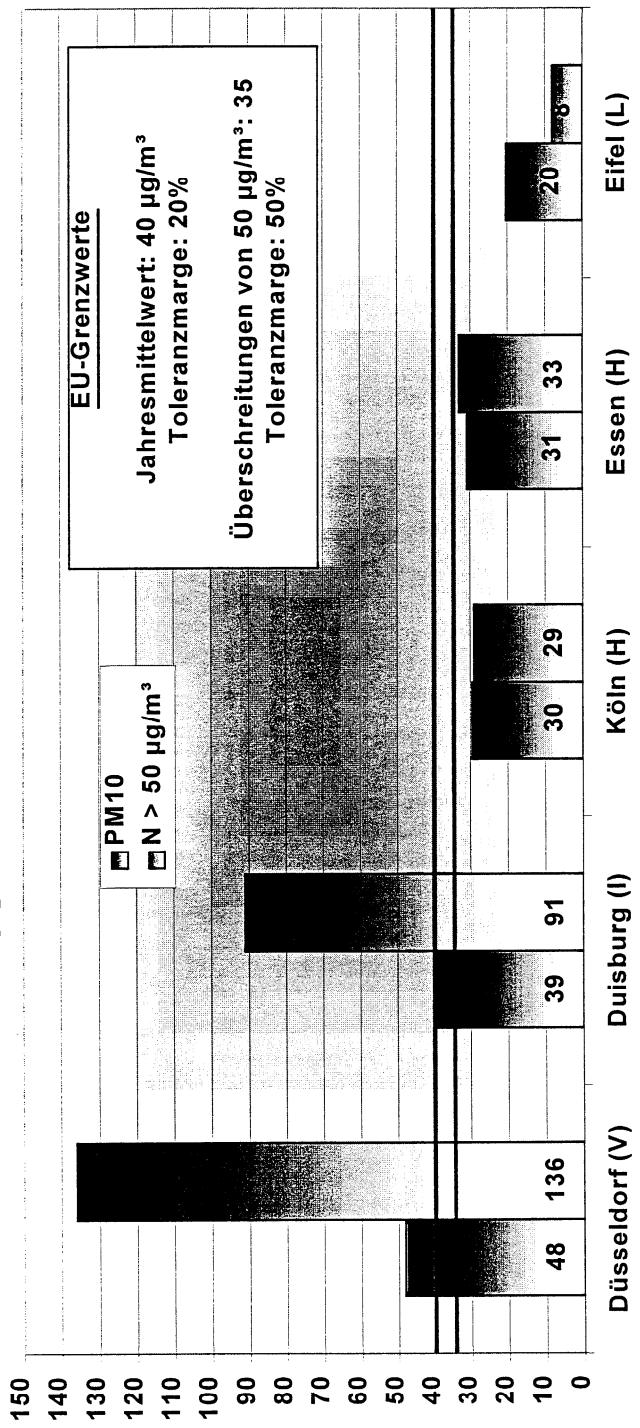
Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen

LUA NRW  
Dr. P.  
Bruckmann

Bruck-32-  
folie.doc



**PM10 - Grenzwertvergleiche**  
**Jahresmittelwerte  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  Anzahl Tageswerte  $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$**

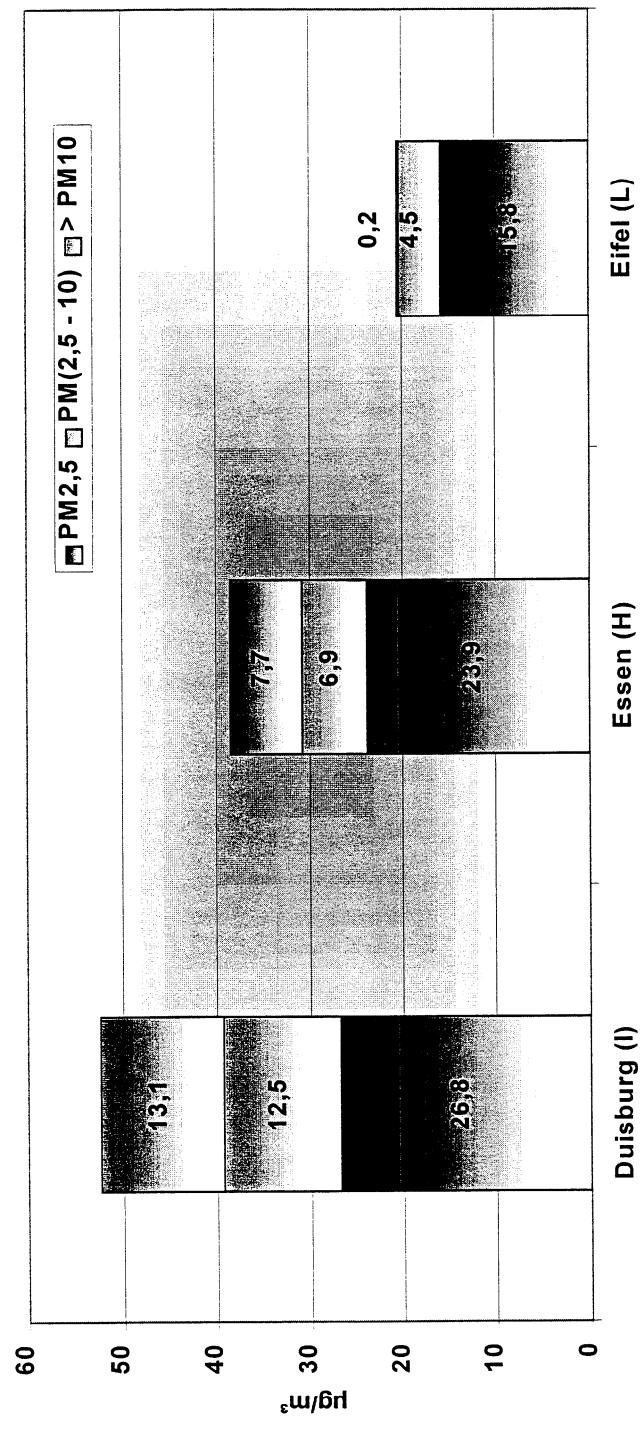


V: Verkehr   I: Industrie   H: Hintergrund   L: Land



**Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen**

## Zusammensetzung der Staubfraktionen

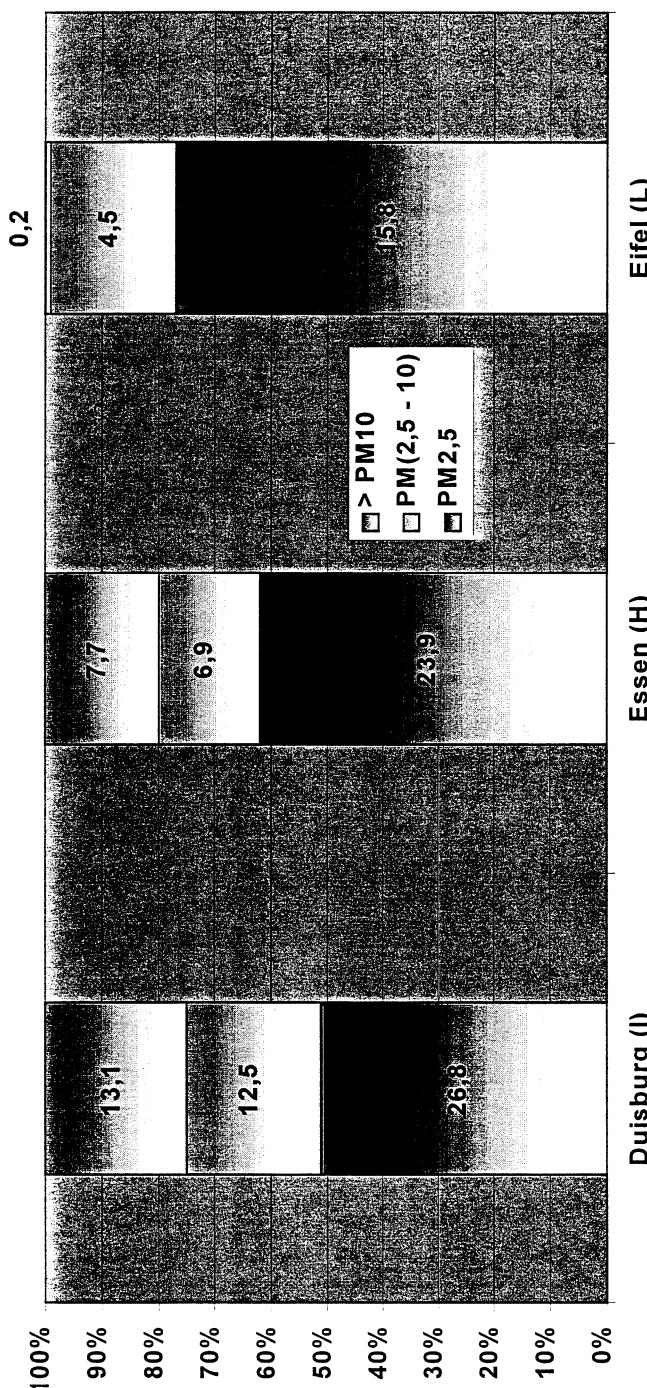


Duisburg (I)      Essen (H)      Eifel (L)  
I: Industrie      H: Hintergrund      L: Land



Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen

### Prozentuale Zusammensetzung der Staubfraktionen



Duisburg (I)

I: Industrie

H: Hintergrund

L: Land

Essen (H)

H: Hintergrund

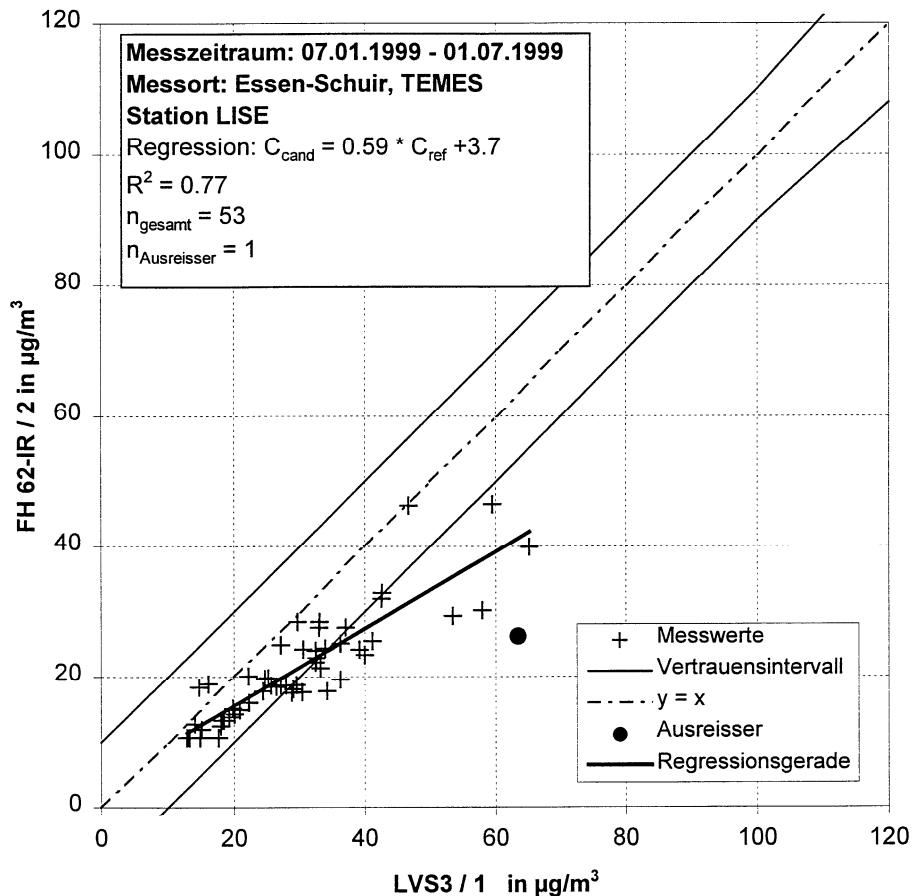
Eifel (L)

LUANRW  
312 - Dr. Pieffer  
PMx-1999.doc  
Blatt 3 von 3  
Datum: 21.06.2000



Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen

## PM 10 / PM 2,5 - Gerätevergleiche



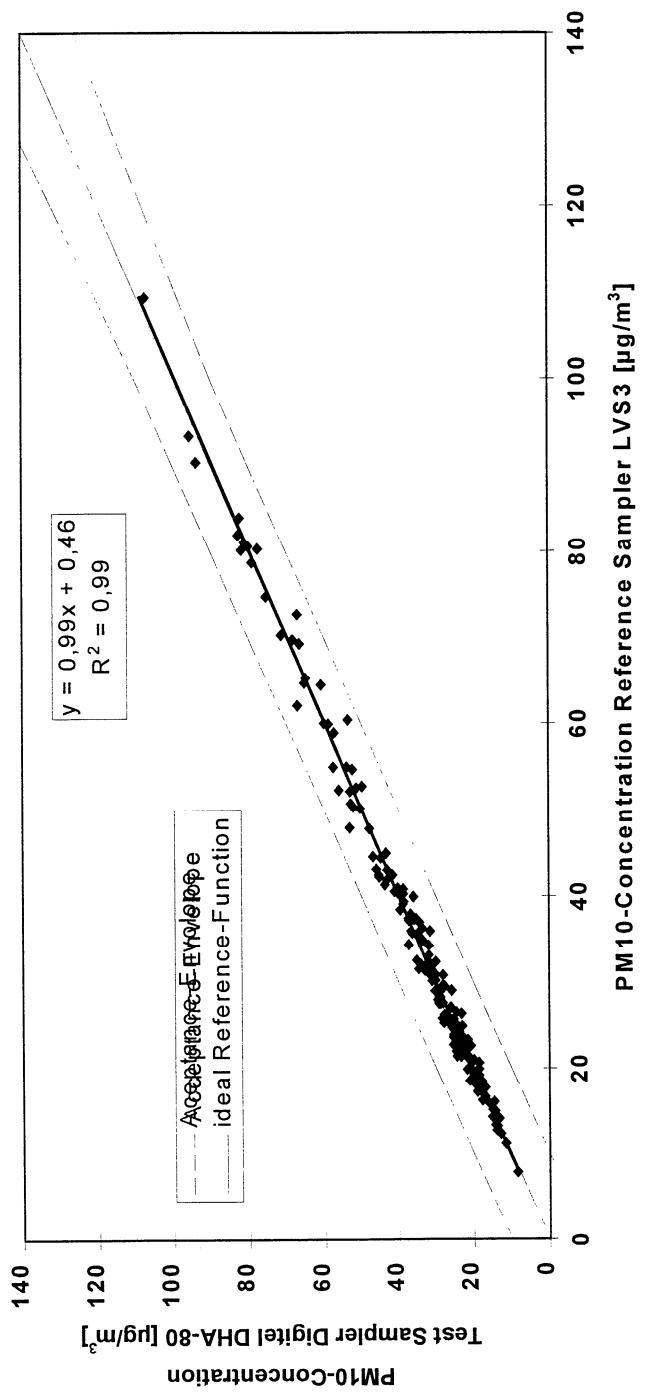
Vergleich zwischen den Tagesmittelwerten des Referenzsammelers  
 LVS3 Nr. 1 und des Kandidatsammlers FH-62 IR Nr. 2  
 Messort Essen Schuir, TEMES-Station LISE des LUA NRW



Landesumweltamt  
 Nordrhein-Westfalen

LUA NRW  
 312 - Dr. Pfeffer  
 Gerätevergleich.doc  
 Blatt 1 von 1  
 Datum: 04.09.2000

Reference Equivalence of High Volume-Sampler  
Digital DHA-80 (EN 12341)



Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen

## **Grenzwerte für Partikel (PM10)**

Stufe	Bezugs-zeit	Wert ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	Toleranz-marge	Datum
1	24 h	50 (35 Über-schr./Jahr)	50 %, lineare Redukt. auf 0 in 2005	1.1.2005
1	1 Jahr	40	50 %, lineare Redukt. auf 0 in 2005	1.1.2005
2* (Revi-sionsvor-behalt 2003)	24 h	50 (7 Über-schr./Jahr)	noch festzu-legen	1.1.2010
2* (Revi-sionsvor-behalt 2003)	1 Jahr	20	50 % in 2005, lineare Redukt. auf 0 in 2010	1.1.2010

**\* vorläufige Richtwerte**



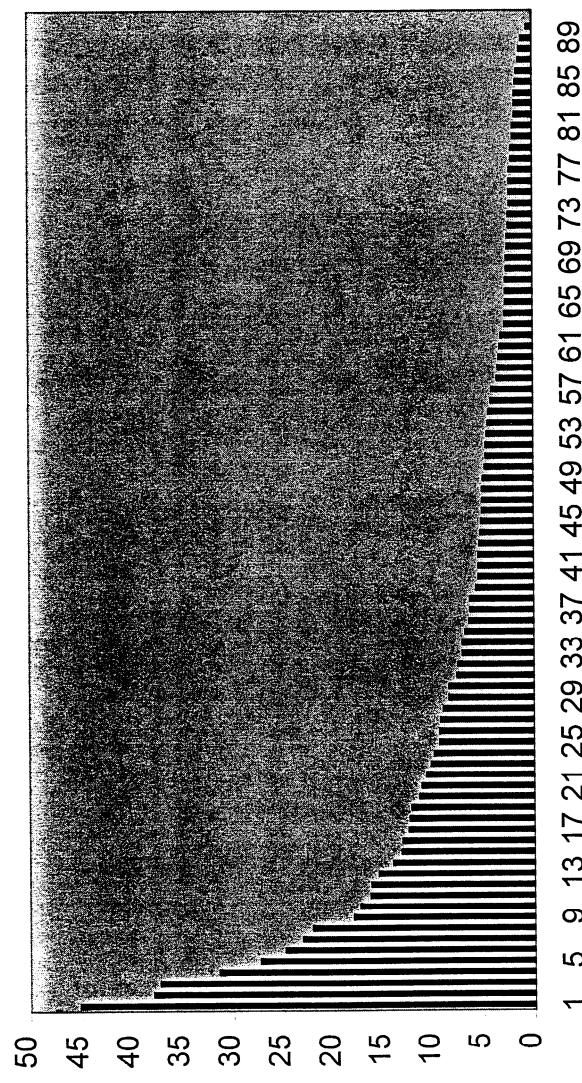
Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen

LUA NRW  
Dr. P.  
Bruckmann

Kraftwerke: Reststaubgehalt des Rauchgases

---

Konzentration / mg/m<sup>3</sup>



Quellen-Nummer



LUA NRW  
Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen  
9.12.99

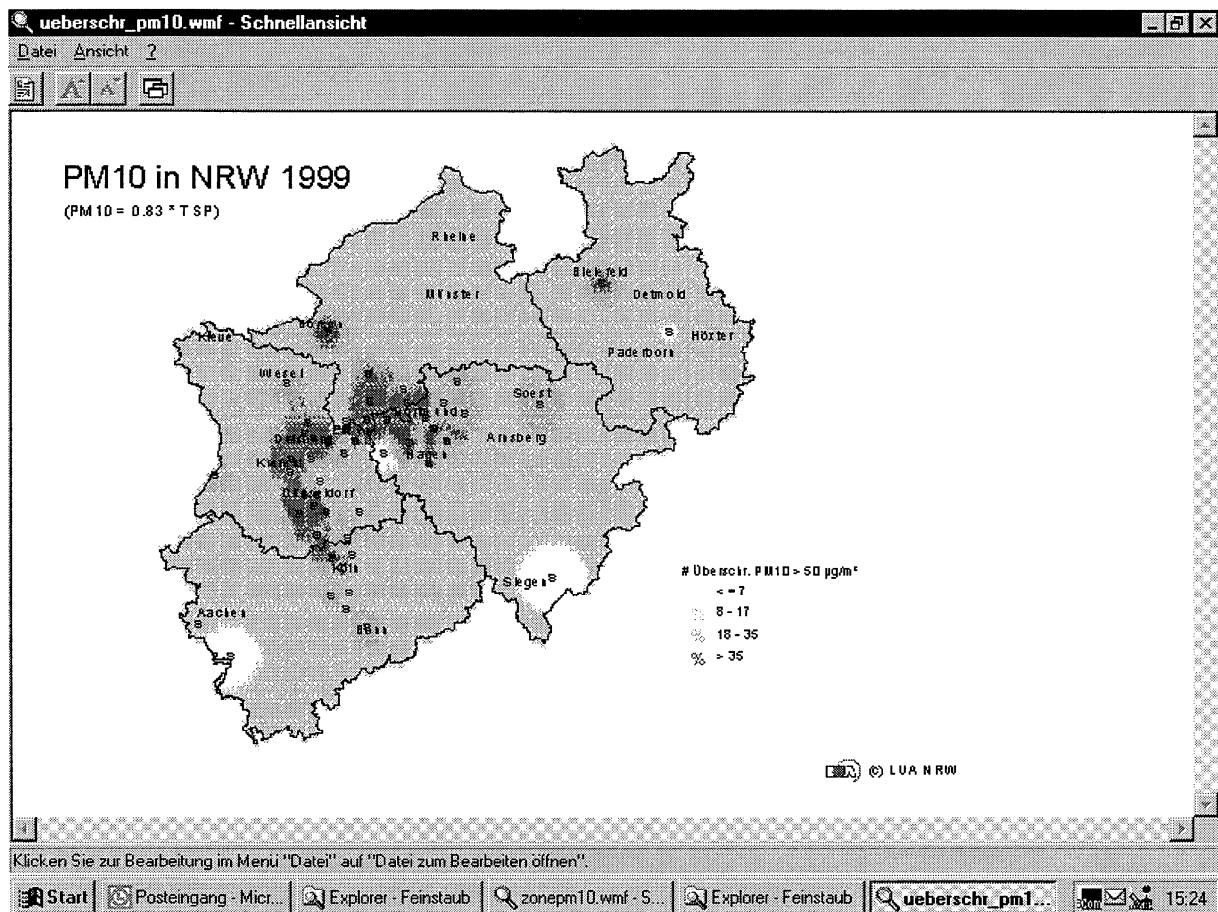
---

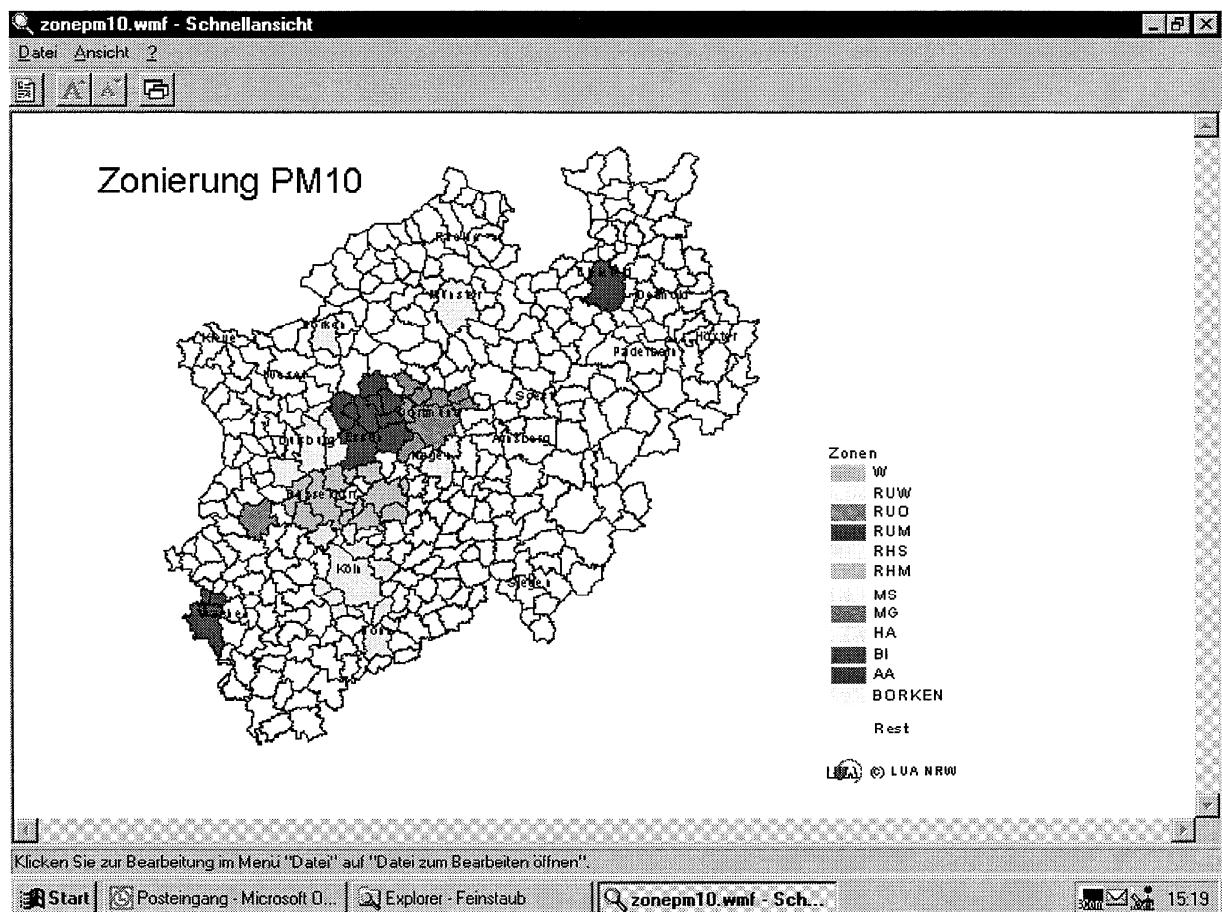
## Kraftwerke als Belastungsschwerpunkte?

Beispiel Großfeuerungsanlage  
700  $10^3$  kg/a Staubauswurf, IK = 22  $\mu\text{g}/\text{m}^3$

Emissionen	Quelle	Höhe	Anteil am IK
480 $10^3$ kg/a	Kamine (5)	>100 m	0,5 %
220 $10^3$ kg/a	Grabenbunker	15 m	99,5 %







## 4.2a SITUATION IN BERLIN ALS REGIONALER BALLUNGSRAUM

### - Some Ideas about the Sources of PM<sub>10</sub>

H.-J. Abraham, K. Kutzner, P. Lenschow, J.-D. Preuß and W. Reichenbächer

Ministry of Town Development, Berlin, Germany

E-mail: [klaus.kutzner@senstadtverwalt-berlin.de](mailto:klaus.kutzner@senstadtverwalt-berlin.de)

**Abstract-** The analyses of PM<sub>10</sub> data shows, that about 50 % of the urban background concentration is caused by long range transport - mainly secondary aerosols (ammoniumnitrate and -sulfate). Nearby traffic, the PM<sub>10</sub> concentration is up to 40 % higher than the urban background. Half of this additional pollution is motor emission and tyres abrasion and the other half are resuspended soil particles. On the basis of the chemical composition, an estimation of the source apportionment for the main sources is developed. Possible measures of reduction are discussed.

**Key word index-** source apportionment, chemical composition, secondary aerosols, resuspension by traffic, measures of reduction

In Berlin the concentration of suspended particles has been routinely measured for many years at 19 to more than 35 points with  $\beta$ -ray absorption instruments<sup>1)</sup>. Since 1998, PM<sub>10</sub> monitors are operated at three automatic stations. 1990 and 1998 gravimetric PM<sub>10</sub> and PM<sub>2,5</sub> measurements have been conducted at some points together with some chemical analysis (Israel 1992).

Figure 1 shows time series of monthly mean values of total suspended particles (TSP) and SO<sub>2</sub> at three urban background stations in the inner city of Berlin. Both series show a distinct downward trend. In summer there was always much less SO<sub>2</sub> than TSP. In winter, however, in the period before 1991 peak levels of both substances were quite similar, while after 1991 much less SO<sub>2</sub> than TSP has been found. A special feature of TSP is that the downward trend seems to decrease with winter peaks nearly vanishing, whereas SO<sub>2</sub> still has clear winter peaks.

1) The  $\beta$ -ray absorption instruments are recalibrated by parallel measurements with gravimetric method. The gravimetric method comprises low vol collection and equilibration of filters at 20° C and 50 % relative humidity.

Figure 1: Average monthly values of Total Suspended Particles (TSP) and SO<sub>2</sub> in the inner City of Berlin (MC010, 042, 071)

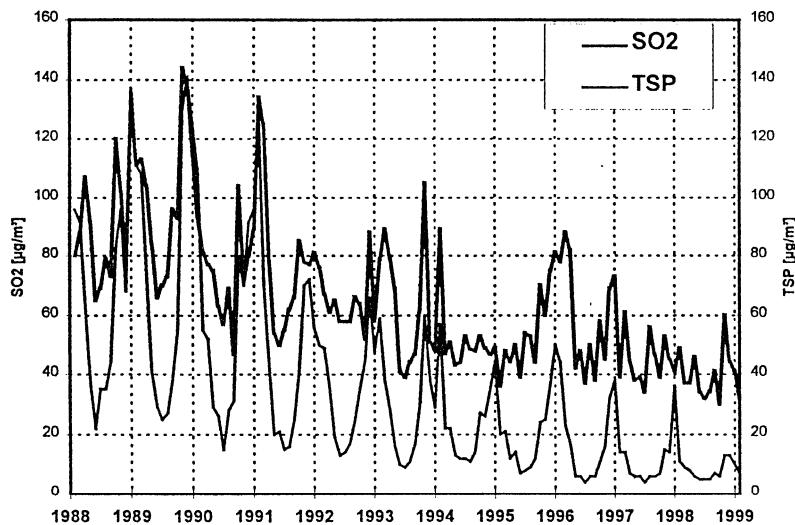


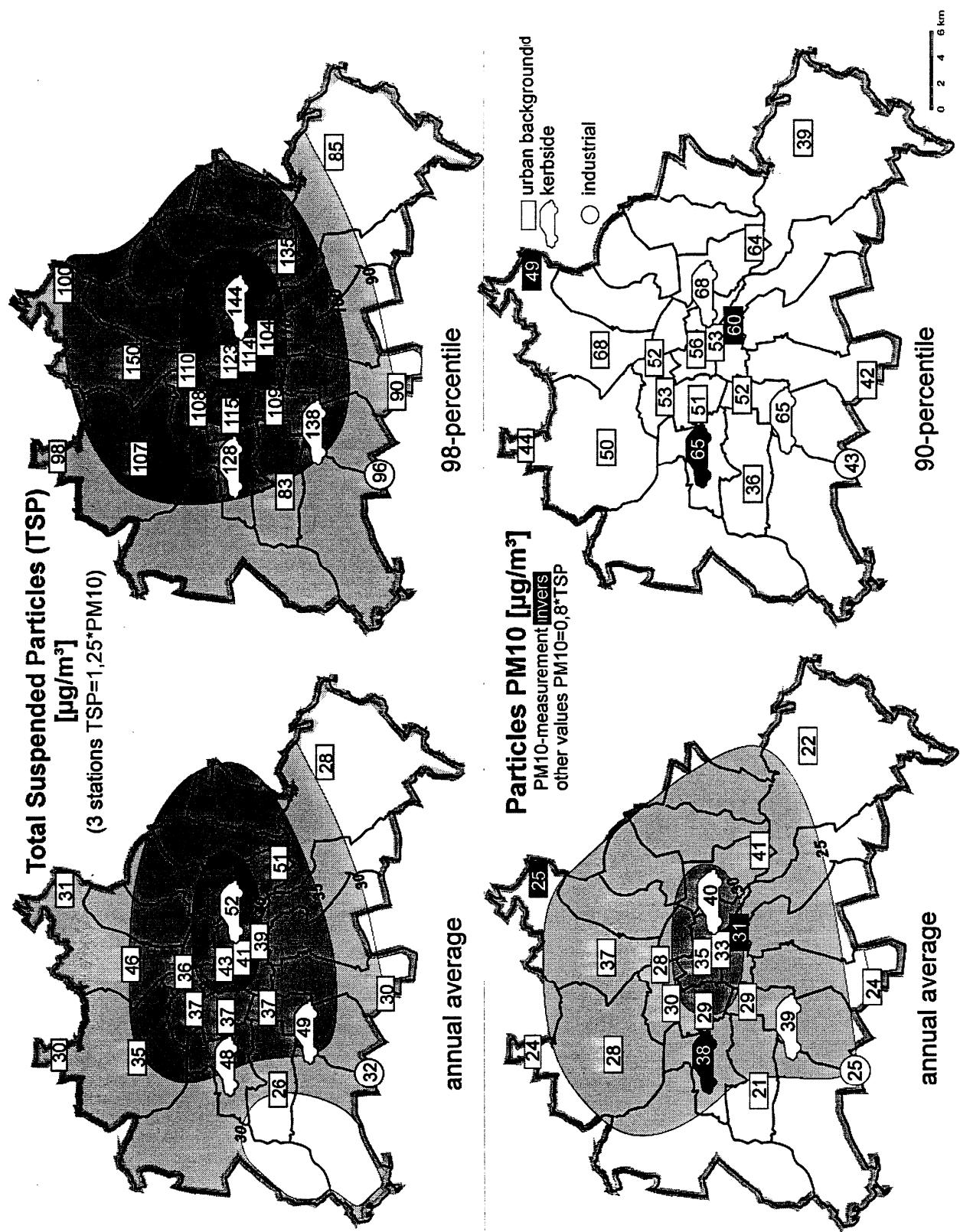
Table 1 depicts the downward trend between 1990 and 1998 on the basis of annual concentrations for TSP, PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub> measured at one urban background station. The last column of the table reveals that the downward trend of PM<sub>2.5</sub> is less pronounced than of PM<sub>10</sub> and even less than TSP.

Table 1: Downward trend of TSP, PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub>

Particles (µg/m <sup>3</sup> )	1990	1998	1998/1990 (%)
	(Yearly Mean: ± 15% Uncertain)		
TSP	77 (67-88)	43 (37-49)	56
PM10	58 (50-67)	36 (31-41)	62
PM2.5	39 (34-45)	29 (25-33)	74

Figure 2 shows the annual mean concentrations and relevant percentiles of TSP and PM<sub>10</sub> at 19 automatic stations in Berlin. Three of them (one suburban, one urban background and one kerbside station) measure PM<sub>10</sub> since 1998. The isolines illustrate the estimated distribution of urban background concentrations. To give full information about TSP and PM<sub>10</sub>, the PM<sub>10</sub> data have been converted into TSP values using a factor of 1.25 and, conversely, TSP concentrations were scaled down by 0.8 into PM<sub>10</sub>.

**Figure 2: Distribution of Suspended Particles in 1998**

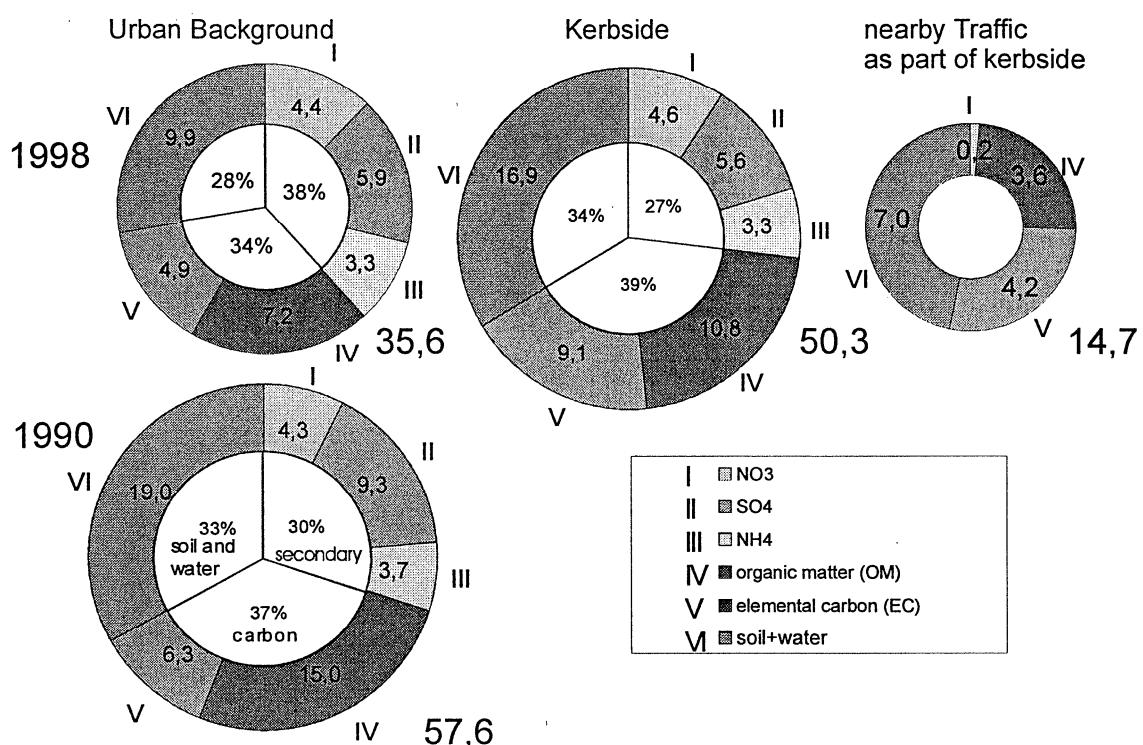


As can be seen, the 2005 EU limit value for  $PM_{10}$  of  $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$  as an annual mean is met at nearly all stations in 1998, even at traffic sites. However, the EU limit value of  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  for the daily mean is much more stringent. It must not be exceeded by 2005 at more than 35 days. This limit corresponds to a 90-percentile of  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . As illustrated in figure 2, the measured values exceed this limit value almost within the entire built up area of the city. Especially at traffic sites the excess reaches up to 35 %. The situation looks even worse with regard to the indicative limit values for 2010 of  $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$  as annual mean and of  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  as 98-percentile. It should be noted, that 1998 was a year with prevailing westerly winds, accompanied by low particle concentrations, whereas situations with easterly winds associated with high particle concentrations occurred less frequently than normal.

In order to meet the short-term limit value for 2005 also in hot spots with intense traffic we have to reduce the  $PM_{10}$  pollution by about 35 % until 2005. So as to develop an efficient abatement strategy we need more information about the sources of  $PM_{10}$ .

As a means of source apportionment we analysed the chemical composition of particles to distinguish between contributions from different sources. The method used for chemical analysis was mainly ion chromatography after solution in ethanol or acetone and water and thermography of carbonaceous material. Figure 3 shows the main chemical components of  $PM_{10}$  in 1990 (Nov 1989 - Nov 1990) and 1998. In 1990, only background measurements have been made while in 1998 a station near a very busy main street (Frankfurter Allee) was operated as well. Bearing in mind that there are problems with probing of ammonium and organic material as well as with the separation of organic material and elemental carbon, the figures give an impression of the main chemical composition of  $PM_{10}$ .

**Figure 3:** Chemical composition of PM<sub>10</sub> in the city of Berlin [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]



About one third of the mass of PM<sub>10</sub> in the urban background are secondary aerosols originating from Europe-wide gaseous emissions, another third is material containing carbon, which is emitted by motor vehicles and by coal combustion in stoves, while the remaining third consists of soil and ash particles and water.

Near streets there is a higher pollution of elemental carbon (EC), organic matter (OM) and soil, because these materials stem directly from car traffic - emitted by motor-emission, by tyres abrasion and by resuspension.

The development since 1990 shows

- a strong reduction by about 50 % of ash particles and of organic material
- a medium reduction of about 20 % of sulfate and elemental carbon
- but a much smaller reduction of nitrate and ammonium.

The difference between the urban background and the kerbside pollution is the traffic influence of the individual street. One can clearly recognise, that in a busy street the PM<sub>10</sub> pollution is up to 40 % higher than in the surrounding urban background. 55 % of this additional pollution consists of elemental carbon (30 %) and organic material (25 %) resulting from motor-emission and tyres abrasion. 45 % of the additional PM<sub>10</sub> pollution in busy streets can be attributed to resuspended soil material.

For a more detailed source apportionment we used in a first step in addition to our measurements regional background data. As a result we saw, that about 50 % of the urban background pollution is caused by long range transport from outside of our region. That is especially the case with the secondary aerosols, ammonium sulfate and ammonium nitrate. But as the analyses had been done by different laboratories, the data match not so very well. In a second step we combined the measured pollution data for "regional background", "city background" and "street" with results of dispersion modelling based on the emission inventory of Berlin. Table 2 gives the results of our source apportionment of  $PM_{10}$  - as detailed as possible. Similar investigations on different ways have been conducted by, e.g., Harrison (1997), Chow (1996) and Thurston (1985).

### **Remarks to table 2**

The table shows our estimation on the explained basis. As this source attribution is still being discussed, suggestions are welcome.

In estimating the pollution for 2005, the predicted emissions of Berlin sources are taken as a basis. It is assumed, that the long range transport of pollution from other European countries will go down somewhat faster than emissions of Berlin and that the national emission ceiling in the Gothenburg protocol of the UN-ECE Convention and/or Commission proposal for a Directive on national emission ceilings will not be attained before 2010. If expressed on a "per capita" basis, emissions in Berlin will decrease more slowly than in other countries, because present emissions are already quite close to the national emission ceilings required for 2010.

Only the main sources of air pollution are mentioned. The rests are called "etc."

It is assumed, that the "regional background" concentration in Berlin can be estimated by interpreting the measurements of the UBA-Station "Neuglobsow" about hundred km north of Berlin and the Brandenburg-Station "Burg" about hundred km south of Berlin. The levels of "carbonaceous material" had to be derived from lowest measurements of EC at other sites in the region.

"Urban origin" is defined as urban background (BLUME station Nansenstrasse) minus regional background.

"Traffic" is defined as kerbside measurement (BLUME station Frankfurter Allee) minus urban background.

EC: Elemental Carbon, OM: Organic Material = Organic Carbon \* 1.2

**Table 2: Composition and sources of PM10 near a busy street (Frankfurter Allee) in Berlin in 1998**

µg/m <sup>3</sup>	µg/m <sup>3</sup>	µg/m <sup>3</sup>	µg/m <sup>3</sup>	%	1998	1998	2005
PM10 annual mean	Partition	50.3	100		Main Sources	natural (µg/m <sup>3</sup> )	anthrop (µg/m <sup>3</sup> )
regional background 18.6	hemispheric origin 18.6	inorganic secondary	8.3	16.5	combustion (SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> ) industries (SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> ) fertilization (NH <sub>3</sub> ) traffic (NO <sub>x</sub> ) volcanoes, oceans, flashes etc.	0.5	4.0 0.5 2.0 1.0
		carbonaceous material	4.8	9.5	combustion of coal etc. (OM, EC) industries (OM, EC) diesel vehicles (EC, OM) petrol vehicles (OM, EC) agriculture, pollens etc. (OM)	0.3	1.5 0.3 1.7 0.4 0.4
		soil etc.	5.5	10.9	wind, resusp. traffic, agriculture combustion of coal, industries etc. volcanoes and other natural volcanoes and other natural	2.0 1.0	2.0 2.0
	urb. backgrnd 35.6	urban origin 17.0	inorganic secondary	5.2?	10.5	combustion (SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> ) traffic (NO <sub>x</sub> )	4.0 1.2
		urban origin: all emissions in the conglomeration	carbonaceous material	7.3	14.5	combustion of coal etc. (OM, EC) diesel vehicles (EC, OM), tyres petrol vehicles (OM, EC), tyres industries (OM, EC) pollens and other natural (OM)	1.0 4.3 1.2 0.1
			soil etc.	4.5	8.7	resuspension by traffic and wind construction combustion of coal etc.	0.2 0.7
street 50.3	traffic 14.7	carbonaceous material	7.7	15.5	diesel vehicles (EC, OM) petrol vehicles (OM, EC) tyres abrasion	5.1 0.6 2.0	4.3 0.5 2.0
sum	sum	soil etc.	50.3	100	resuspension by traffic and wind	1.0 5.9	1.0 44.4 5.9
	Remarks						38.0

## Remarks

According to table 2, traffic is of course the most important group of sources (50%) causing high PM<sub>10</sub> pollution in a busy street. About one quarter of the traffic influence is motor-emission and tyres abrasion in the individual street, one further quarter is resuspension of soil particles in the individual street, and the remaining half is traffic influence on the city background - containing also the regional background.

The second group of sources is combustion (24 %) - from single stove for house heating up to big power plants. About two thirds of it consist of secondary aerosols, mostly ammonium sulfate and ammonium nitrate, formed from Europe-wide SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> and ammonia emissions. One third is due to a source somehow unique to eastern European cities: emission from brown coal combustion in small stoves.

The third group are different natural sources (12 %).

These three groups are the sources of about 90 % of PM<sub>10</sub> pollution in a busy street. In the urban background the partition is similar but shifted to combustion (traffic 31 %, combustion 33 %, natural origin 14 %).

It should be noted that the results of the PM<sub>10</sub> source apportionment presented here should be considered as a preliminary estimate based on a first set of data. Comparing these data with results from other cities would help in improving this analysis and in gradually removing factors of uncertainty.

#### What will be the future development ?

1. The Directive on National Emission Ceilings proposed by the European Commission with SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> and ammonia emissions in Europe decreasing by about 50% until 2010 will result also in a reduction of about 15 % of PM<sub>10</sub> within the last years before that date.
2. As the impact of the traffic sector is not confined to motor emission only but also includes tyres abrasion and resuspended soil particles, even zero-emission-vehicles still cause about half the PM<sub>10</sub> pollution of "dirty" vehicles. Therefore, the reduction of the traffic impact will be much smaller than the reduction of motor emission. We therefore expect that the continuous replacement of old cars (with ages more than 10 years) by new cars with lower emission will cause a reduction of only about 1 - 2 % per year.
3. The introduction of cleaner fuels by 2005 according to Directive 98/70/EC will result in decreasing PM<sub>10</sub> pollution by about 3 - 5 %. Therefore, Germany reinforces introduction of these fuels in 2001 by reducing the tax rate.
4. An important step in Berlin is, that the total public bus fleet of 1200 busses will be equipped with particlefilters (CRT) until the end of 2000. This big step will reduce the PM<sub>10</sub> pollution by about 2 % (corresponds to a 10 % reduction of the carcinogenic EC-pollution). Particle filters also trap ultrafine particles quite effectively.
5. The further substitution of brown coal by gas, light heating oil or district heating is still a quite important development.

6. A very important problem is the reduction of the resuspended soil particles by traffic. Up to now we do not know, how the big influence of about 5 % in the urban background and up to 15 % nearby urban main streets can be reduced.

In conclusion, there is a lack of effective measures to control PM emissions with the aim of attaining the limit values, in particular the short-term limit value of  $PM_{10}$  for 2005 in the vicinity of traffic sources. As this is probably a widespread problem, it is necessary to intensify mutual exchange of experiences between European cities on investigations about the sources of  $PM_{10}$  pollution as well as on the development of effective control strategies. Apart from that, it is also necessary - as planned by the European Commission - to review and investigate, what part of the PM mixture actually affects human health. This ought to be followed by a definition of appropriate limit values with the aim of as far as possible avoiding costly and eventually ineffective or even regrettable abatement strategies.

## References

- Chow, J.C., Watson, J.G., Lowenthal, D.H., Countess, R.J., 1996. Sources and chemistry of  $PM_{10}$  aerosol in Santa Barbara County, CA. *Atmospheric Environment* 30, 1489-1499.
- Harrison, R.M., Deacon, A.R., Jones, M.R., Apleby, R.S., 1997. Sources and Processes affecting concentrations of  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$  particulate matter in Birmingham (U.K.). *Atmospheric Environment*, 31, 4103-4117.
- Israel, G., Erdmann, A., Shen, J., Frenzel, W., 1992. Analyse der Herkunft und Zusammensetzung der Schwebstaubimmission (Analysis of origin and composition of particulate matter pollution). *VDI Fortschritt Berichte, Reihe 15: Umwelttechnik*, Nr.15.
- Thurston, G.D., Spengler, J.D., 1985. A quantitative assessment of source contributions to inhalable particulate matter pollution in Metropolitan Boston. *Atmospheric Environment* 19, 9-25.

## 4.2b SITUATION IN BERLIN ALS REGIONALER BALLUNGSRAUM

### - PM<sub>10</sub>, PM<sub>2,5</sub> und PM<sub>1</sub>-Staubmessungen und Inhaltsstoffanalysen in Berlin im Jahr 2000 -

**Hans-Jürgen Abraham**  
Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Berlin

#### Meßvorhaben und Auswertung

An zwei Meßstellen des Berliner Luftgütemeßnetzes, dem Meßcontainer 174, an einer stark befahrenen innerstädtischen Straße sowie am Meßcontainer 42, im innerstädtischen Hintergrund, wurden mit jeweils drei KFG (KleinfILTERgeräten) die PM<sub>10</sub>-, die PM<sub>2,5</sub>- und die PM<sub>1</sub>-Staubbelastung ermittelt. Mit erfaßt wurden dabei Inhaltsstoffe, dies waren wie schon in der Vergangenheit die ionenchromatografische Messung der wasserlöslichen Anionen und Kationen, gemessen nach Benetzen des beaufschlagten Filters mit Aceton und Elution mit Wasser sowie der organisch gebundene- und elementare Kohlenstoff gemäß der 23. BImSchV (Konventionsruß) gemessen mit dem thermographischen Verfahren nach VDI 2465 Blatt 2.

Es wurden an je zwei Tagen in der Woche parallel je eine PM<sub>10</sub>-, PM<sub>2,5</sub>- und PM<sub>1</sub>-Probe auf vorgeglühte Quarzfilter pro Meßstelle gesammelt und analysiert. Zu den folgenden Auswertungen wurden nur die Meßergebnisse der Tage herangezogen, bei denen alle Proben mit gleichen Probenahmezeiten und allen Inhaltsstoffanalysen komplett ausgewertet werden konnten, so daß ihre statistischen Auswertungen miteinander vergleichbar wurden. Auf Grund dieser Ausschlußkriterien mußten einige Meßtage eliminiert werden, so dass die hier vorgestellten Ergebnisse nur eine vorläufige Einschätzung darstellen können. Die Ionen Ca, Mg und K lagen in etlichen Proben, insbesondere in der PM<sub>1</sub>-Fraktion unterhalb der Bestimmungsgrenze. Sie wurden bei analytischem Nachweis in der Probe zur besseren Vergleichbarkeit dem "Rest" hinzugefügt.

Die statistische Aussagekraft wird sich in der Folgezeit durch eine größere Anzahl von Proben noch verbessern. Geplant ist die Fortsetzung der Messungen bis April 2001.

#### Ergebnisse

Die Abb. 1 a und b zeigen den zeitlichen Verlauf und damit auch die Spannweite der an beiden Stationen ermittelten Staubkonzentrationen im bisherigen Untersuchungszeitraum. Vom parallelen Verlauf aller 3 Staubfraktionen an beiden Meßorten wird nur am 9. März mit einem etwas höheren Feinstaubanteil abgewichen. Dieser in der Regel gleichförmige Verlauf wird auch durch den EC-Gehalt der Proben im Bild 2a-b wiedergegeben.

Grundlage der ab Bild 3 gezeigten Abbildungen ist die Tabelle 1. Die Bilder 3a-c und 4a-c zeigen die prozentuale Zusammensetzung der Staubfraktionen beider Meßorte, wobei die wasserlöslichen Ionen zusätzlich getrennt dargestellt werden. Bei beiden Meßorten nimmt der unidentifizierte Rest vom PM<sub>10</sub> zum PM<sub>2,5</sub> ab, um dann beim PM<sub>1</sub> etwa gleich zu bleiben. Der EC-Gehalt ist erwartungsgemäß am Straßenstandort höher als im Hintergrund, er nimmt auch prozentual zu kleineren Partikeln hin zu. Dies gilt auch für den organischen Anteil im Staub,

beide Bestandteile haben seit 1998 abgenommen. Bei den Ionen ist eher eine Gleichverteilung über alle Partikelgrößen mit einem leichten Zuwachs im  $PM_{2,5}$ -Bereich, also bei den Partikelgrößen zwischen 1 und 2,5  $\mu m$ , zu sehen.

Die Auswertung der Ionenäquivalente zeigt folgendes Ergebnis:

Ammonium dürfte weitgehend als Ammoniumnitrat und Diammoniumsulfat vorliegen, während Na und Cl als NaCl überwiegend aus maritimen Quellen herstammen sollten. Das Ammoniumhydrogensulfat, welches in den 80'er Jahren dominierte, kommt kaum noch vor. Die relativ große Ammoniumnitratmasse mit ihrer hohen Flüchtigkeit ist neben den flüchtigen organischen Bestandteilen vermutlich auch einer der Gründe für unterschiedliche Meßergebnisse bezüglich der Staubmassen mit Meßverfahren, die sich durch eine unterschiedliche thermische Behandlung des Meßgutes unterscheiden.

Erstaunlich bei den Ionen sind die schon 1998 bei den  $PM_{10}$ - und  $PM_{2,5}$ -Untersuchungen aufgefallenen nahezu identischen Konzentrationen jeweils in den drei Staubfraktionen an den beiden durch nahe Quellen doch sehr unterschiedlich belasteten Meßorten (siehe Bild 5a-c). Dies deutet darauf hin, dass die Ionen nahezu vollständig aus dem Ferntransport stammen und somit durch lokale Minderungsmaßnahmen kaum beeinflußbar sind. Dies gilt auch bei unterschiedlich hohen Staubbelastungen. In der Tabelle 1 wird beispielhaft auch der Tag mit der höchsten Staubbelastung an beiden Meßorten aufgeführt, bei schwachem Wind aus südwestlichen Richtungen ergaben sich folgende Messungen: Die Ionen sind wieder nahezu gleich verteilt, die anderen Bestandteile unterscheiden sich in allen Staubfraktionen. Bei der prozentualen Verteilung fällt der erhöhte Nitratgehalt auf, der hier aufgrund der geringen Windgeschwindigkeit zum Teil aus lokalen Quellen stammen kann. Der geringe NaCl-Gehalt zeigt, dass maritime Quellen aus dieser Windrichtung kaum einen Einfluß haben. Auch mit Bild 6a-b wird die Aussage verdeutlicht, in der auf die Gehalte der Inhaltsstoffe von der  $PM_{10}$ -Fraktion bezug genommen wird. Die mittlere prozentuale Zusammensetzung der Ionen läuft im Gleichklang mit der des Staubes, die OM und EC-Anteile sind im  $PM_{2,5}$ - und  $PM_1$ -Staub deutlich höher, werden also erwartungsgemäß vom Feinststaub dominiert, so wird hier wie beim Ammonium die größere Feinstauboberfläche prozentual mehr OM absorbieren. Zusätzlich werden noch partikelförmige Oxidationsprodukte organischer Verbindungen aus natürlichen und anderen Quellen wie z.B. Dicarbonsäuren oder Chinone einen Beitrag zum Ferntransportanteil der OM leisten. Der unidentifizierte Rest ist fast nur im  $PM_{10}$ -Staub mengenmäßig relevant.

## Zusammenfassung

Die hier vorgestellten vorläufigen Meßergebnisse zeigen zusammen mit dem Vorwissen der 1998 durchgeführten  $PM_{10}$  und  $PM_{2,5}$ -Messungen, dass lokale Minderungsmaßnahmen nur im Bereich der kohlenstoffhaltigen Komponenten wie dem Ruß und der Restmasse in der  $PM_{10}$ -Fraktion, vorwiegend aufgewirbeltem Feinstaub und Baustäube zu einer nennenswerten Reduzierung der Staubbelastung führen werden. Minderung bei den Ionen, die immerhin rund die Hälfte des Staubes ausmachen sowie auch bei den partikelförmigen organischen Oxidationsprodukten, können allenfalls durch regionale und überregionale Maßnahmen nennenswert beeinflußt werden.

## Staubbelastung und Inhaltsstoffe an zwei Berliner Meßstellen

PM 10 Messungen	Anionen			Kationen		Staub		Thermographie		Rest	Summe Ionen, OM und EC
	Cl	NO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub>	Na	NH <sub>4</sub>	KF	FHIR	OM	EC		
MW MC 174 [µg/m <sup>3</sup> ]	1,5	5,8	5,4	0,8	3,0	37,6	36,8	7,3	5,1	8,7	28,9
MW MC 42 [µg/m <sup>3</sup> ]	1,3	5,2	4,9	0,7	2,9	28,6	27,9	5,2	2,8	5,5	23,2
MC 174 [%]	4,0	15,4	14,3	2,2	7,9	100,0	97,8	19,5	13,5	23,1	76,9
MC 42 [%]	4,7	18,3	17,1	2,5	10,2	100,0	97,4	18,3	9,7	19,1	80,9
Tageswerte bei höchster Staubbelastung MC 174 [µg/m <sup>3</sup> ] in %	1,2	16,4	10,9	0,5	7,5	86,8	84,0	15,3	11,9	23,1	63,7
	1,4	18,9	12,5	0,6	8,7	100,0	96,7	17,6	13,7	26,7	73,3
Tageswerte bei höchster Staubbelastung MC 42 [µg/m <sup>3</sup> ] in %	1,2	16,6	10,7	0,4	6,9	65,8	60,0	10,7	7,4	11,9	53,9
	1,8	25,2	16,3	0,5	10,6	100,0	91,2	16,2	11,3	18,1	81,9
Mikroäquivalente MC 174	0,04	0,09	0,11	0,04	0,17						
Mikroäquivalente MC 42	0,04	0,08	0,10	0,03	0,16						
Summe Mikroäquivalente Anionen, Kationen MC 174	Summe:			0,25	Summe:		0,20				
Summe Mikroäquivalente Anionen, Kationen MC 42	Summe:			0,22	Summe:		0,19				

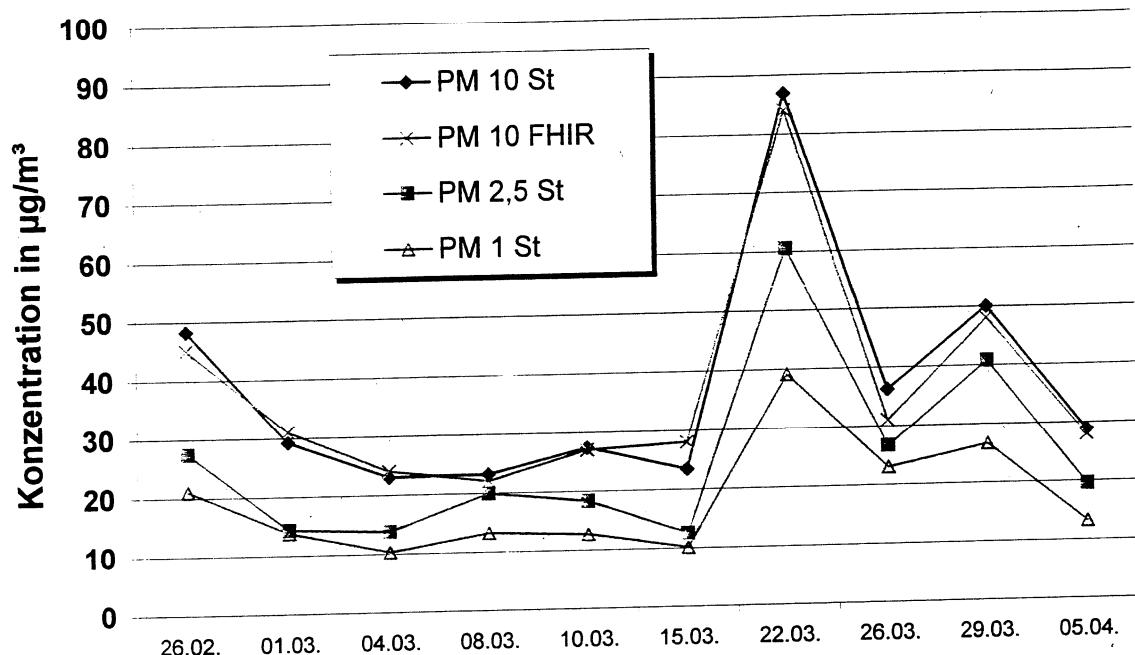
PM 2,5 Messungen	Anionen			Kationen		Staub		Thermographie		Rest	Summe Ionen, OM und EC
	Cl	NO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub>	Na	NH <sub>4</sub>	KF	OM	EC			
MW MC 174 [µg/m <sup>3</sup> ]	0,7	4,6	4,6	0,3	2,9	25,4		5,9	4,7	2,4	23,6
MW MC 42 [µg/m <sup>3</sup> ]	0,6	4,6	4,6	0,3	2,8	21,8		4,1	2,6	2,3	19,5
MC 174 [%]	2,7	18,3	18,1	1,2	11,4	100,0		23,1	18,3	9,6	93,1
MC 42 [%]	2,8	20,9	21,7	1,4	12,7	100,0		19,0	11,7	10,6	89,5
Tageswerte bei höchster Staubbelastung MC 174 [µg/m <sup>3</sup> ] in %	0,9	14,0	9,6	0,2	7,4	60,5		13,1	10,8	4,5	56,1
	1,4	23,2	15,9	0,3	12,3	100,0		21,6	17,9	7,4	92,6
Tageswerte bei höchster Staubbelastung MC 42 [µg/m <sup>3</sup> ] in %	0,8	14,2	9,6	0,2	6,6	51,1		5,8	6,4	7,5	43,6
	1,5	27,8	18,7	0,3	12,9	100,0		11,4	12,6	14,7	85,3
Mikroäquivalente MC 174	0,02	0,07	0,10	0,01	0,16						
Mikroäquivalente MC 42	0,02	0,07	0,10	0,01	0,15						
Summe Mikroäquivalente Anionen, Kationen MC 174	Summe:			0,19	Summe:		0,17				
Summe Mikroäquivalente Anionen, Kationen MC 42	Summe:			0,19	Summe:		0,17				

PM 1 Messungen	Anionen			Kationen		Staub		Thermographie		Rest	Summe Ionen, OM und EC
	Cl	NO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub>	Na	NH <sub>4</sub>	KF	OM	EC			
MW MC 174 [µg/m <sup>3</sup> ]	0,4	2,6	2,6	0,1	2,1	18,3		4,8	4,1	1,9	16,7
MW MC 42 [µg/m <sup>3</sup> ]	0,3	2,6	2,9	0,1	2,0	15,3		4,0	2,3	1,5	14,2
MC 174 [%]	2,2	13,9	14,2	0,8	11,7	100,0		26,2	22,1	10,6	91,1
MC 42 [%]	1,7	17,3	19,1	0,7	12,8	100,0		26,4	14,8	10,1	92,8
Tageswerte bei höchster Staubbelastung MC 174 [µg/m <sup>3</sup> ] in %	0,5	6,6	4,9	0,2	4,3	39,2		10,4	8,4	3,8	35,4
	1,4	16,8	12,6	0,5	10,9	100,0		26,6	21,6	9,7	90,3
Tageswerte bei höchster Staubbelastung MC 42 [µg/m <sup>3</sup> ] in %	0,5	8,0	5,6	0,1	4,0	34,3		8,0	5,4	2,6	31,6
	1,3	23,4	16,2	0,3	11,7	100,0		23,5	15,9	7,7	92,3
Mikroäquivalente MC 174	0,01	0,04	0,05	0,01	0,12						
Mikroäquivalente MC 42	0,01	0,04	0,06	0,00	0,11						
Summe Mikroäquivalente Anionen, Kationen MC 174	Summe:			0,11	Summe:		0,13				
Summe Mikroäquivalente Anionen, Kationen MC 42	Summe:			0,11	Summe:		0,11				

Hinweis: OM = 1,2 \* OC

Tabelle 1

**Vergleich Schwebstaub verschiedener Fraktionen  
(PM 10, PM 2,5 und PM 1) am MC 174**



**Vergleich Schwebstaub verschiedener Fraktionen  
(PM 10, PM 2,5 und PM 1) am MC 42**

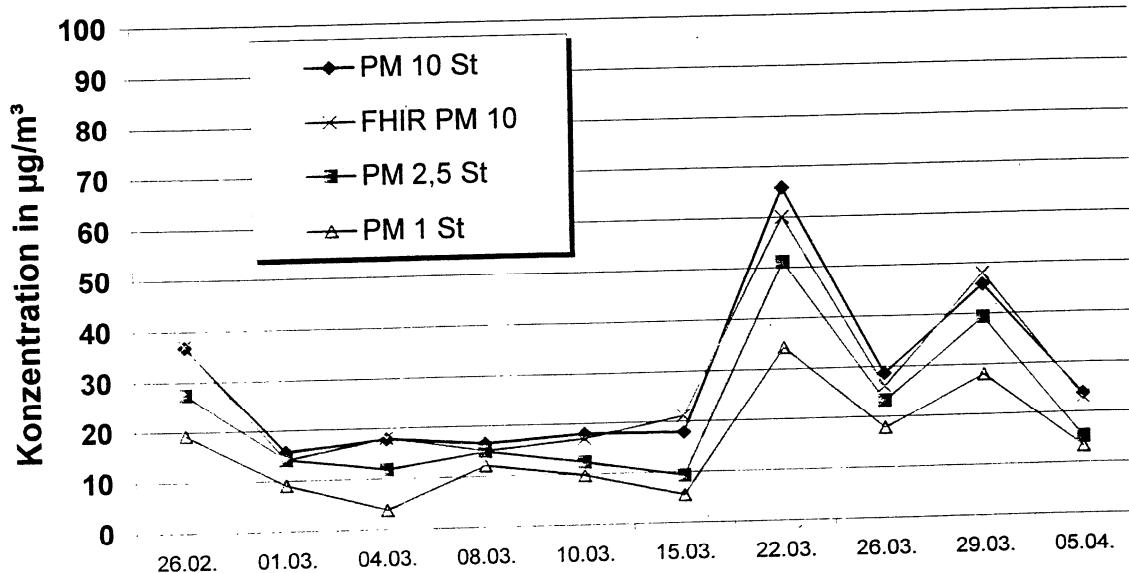
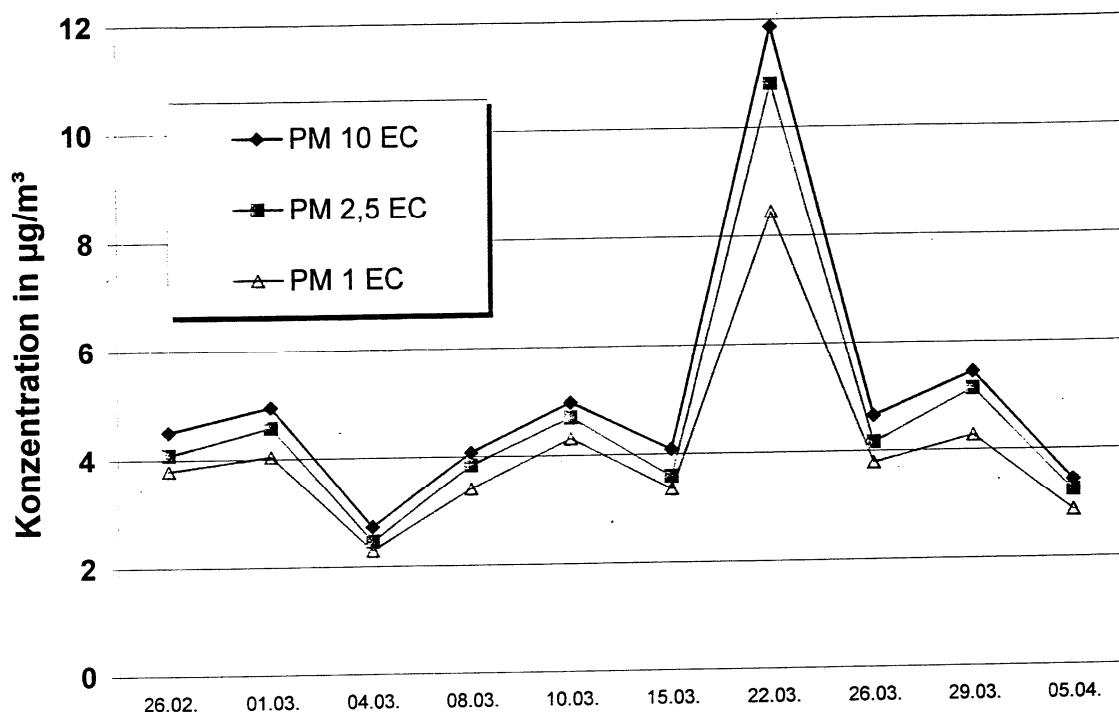


Bild 1a bis 1b

### EC Vergleich PM 10, PM 2,5 und PM 1 am MC 174



### EC Vergleich PM 10, PM 2,5 und PM 1 am MC 42

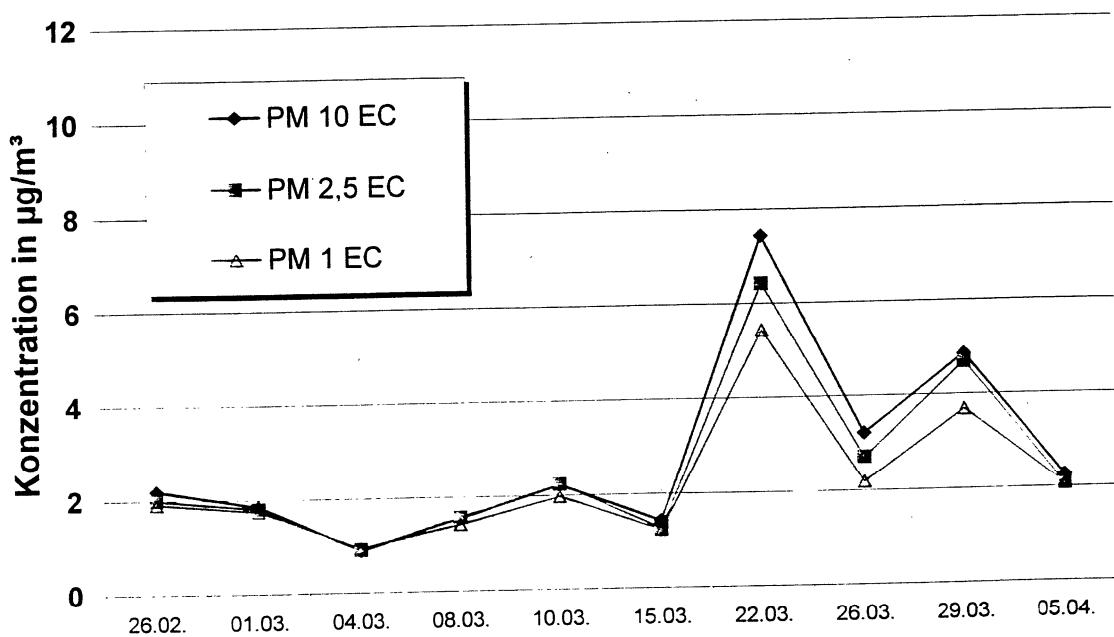


Bild 2a bis 2b

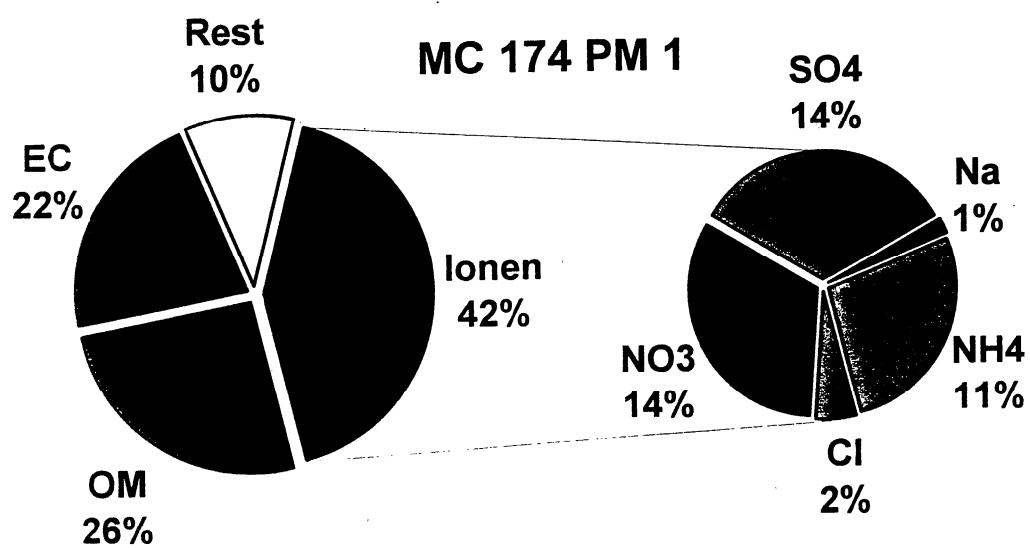
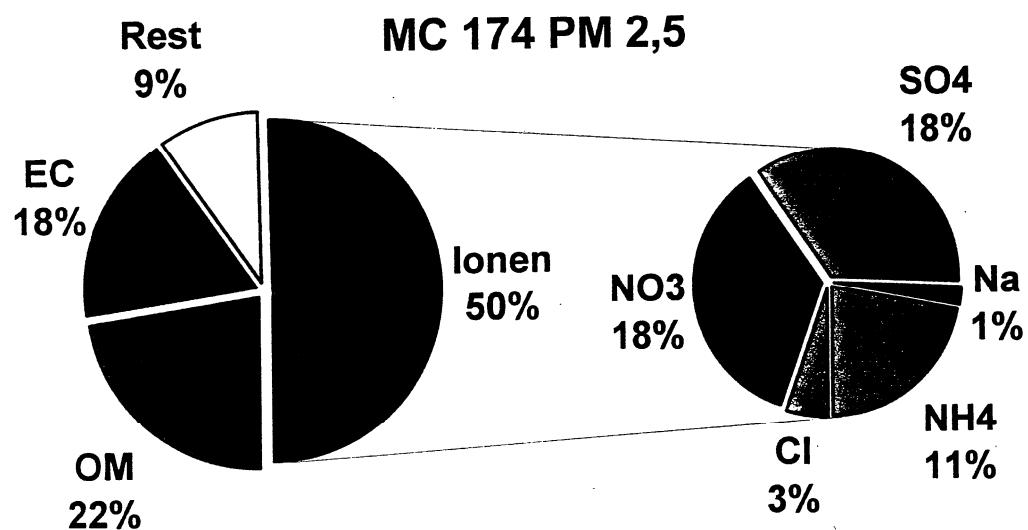
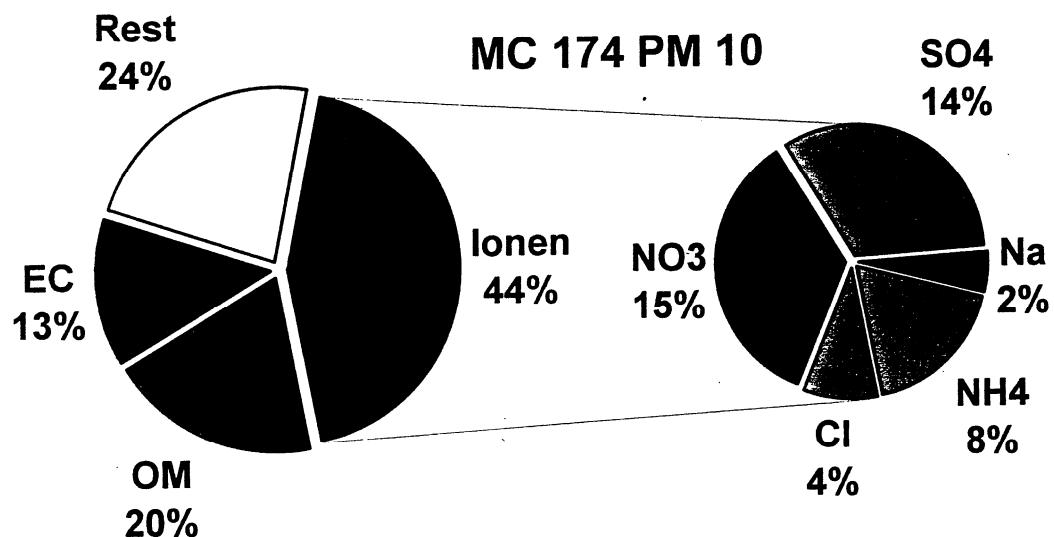


Bild 3 a bis c

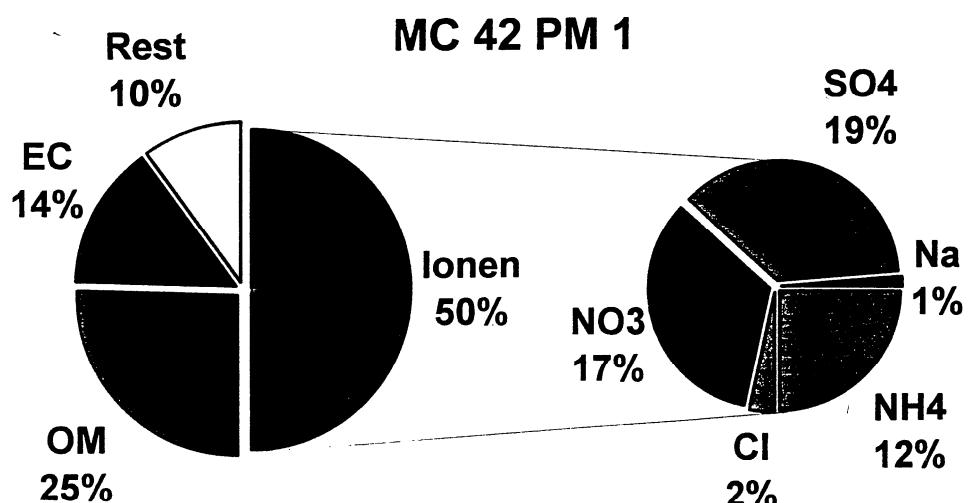
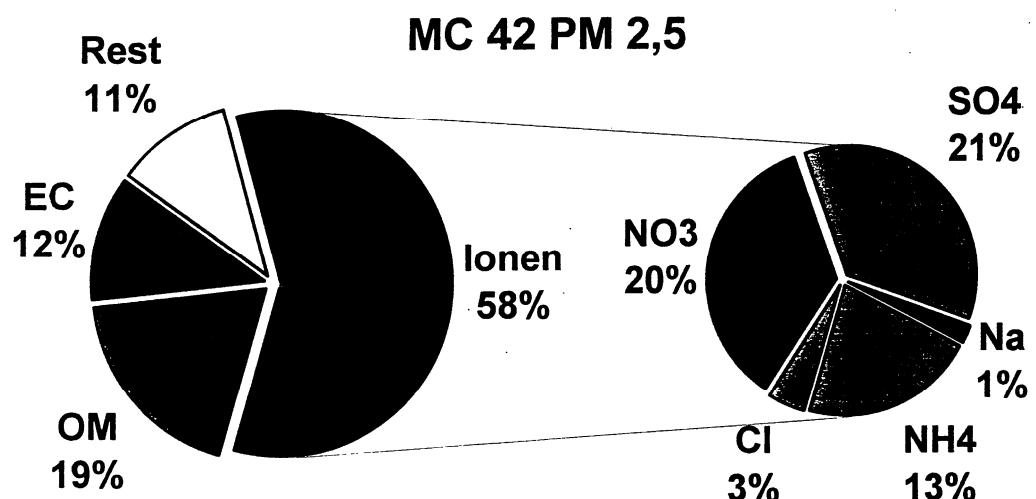
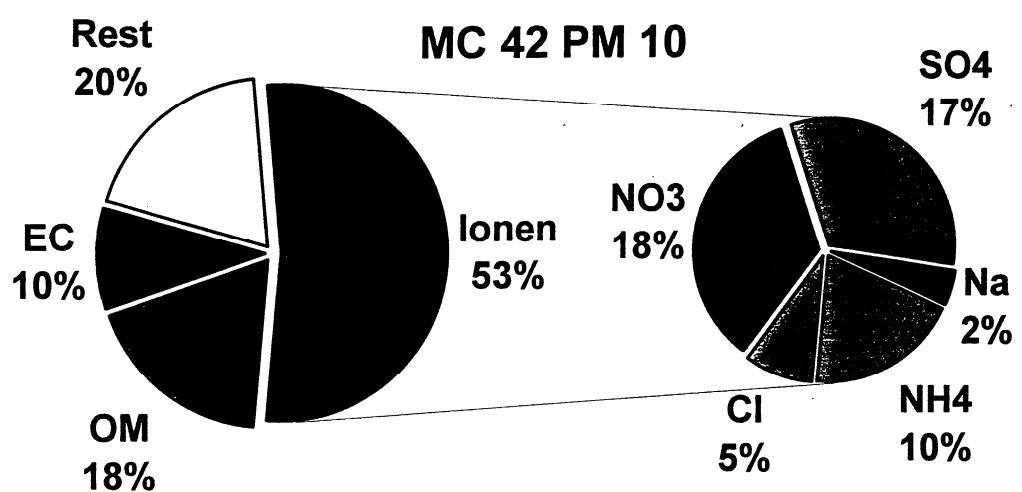
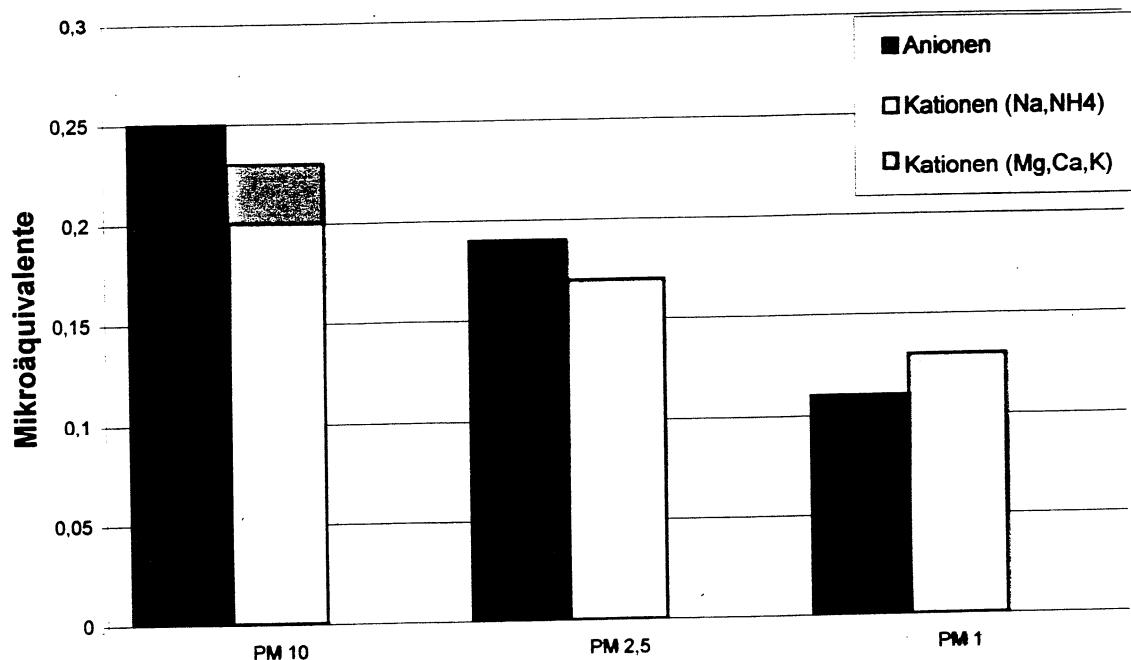
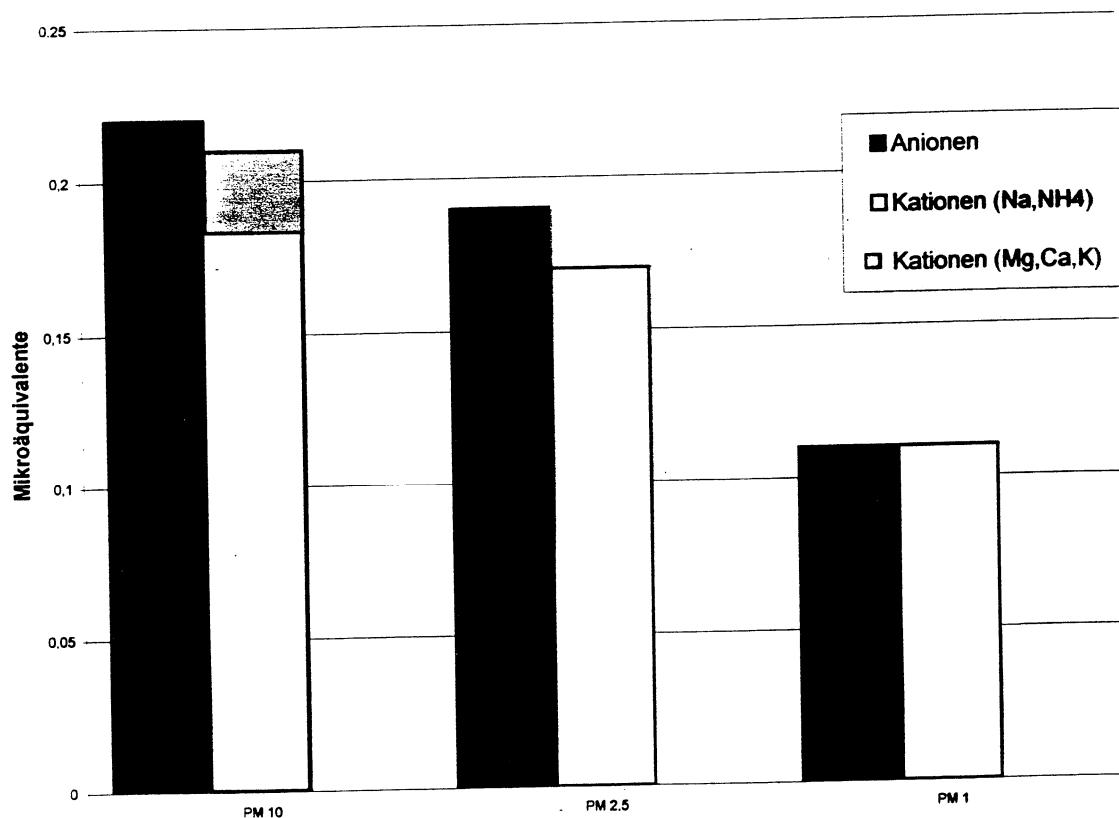


Bild 4 a bis c

### Vergleich der Mikroäquivalente am MC 174



### Vergleich der Mikroäquivalente am MC 42



### Vergleich der Staubinhaltsstoffe an zwei Meßstellen

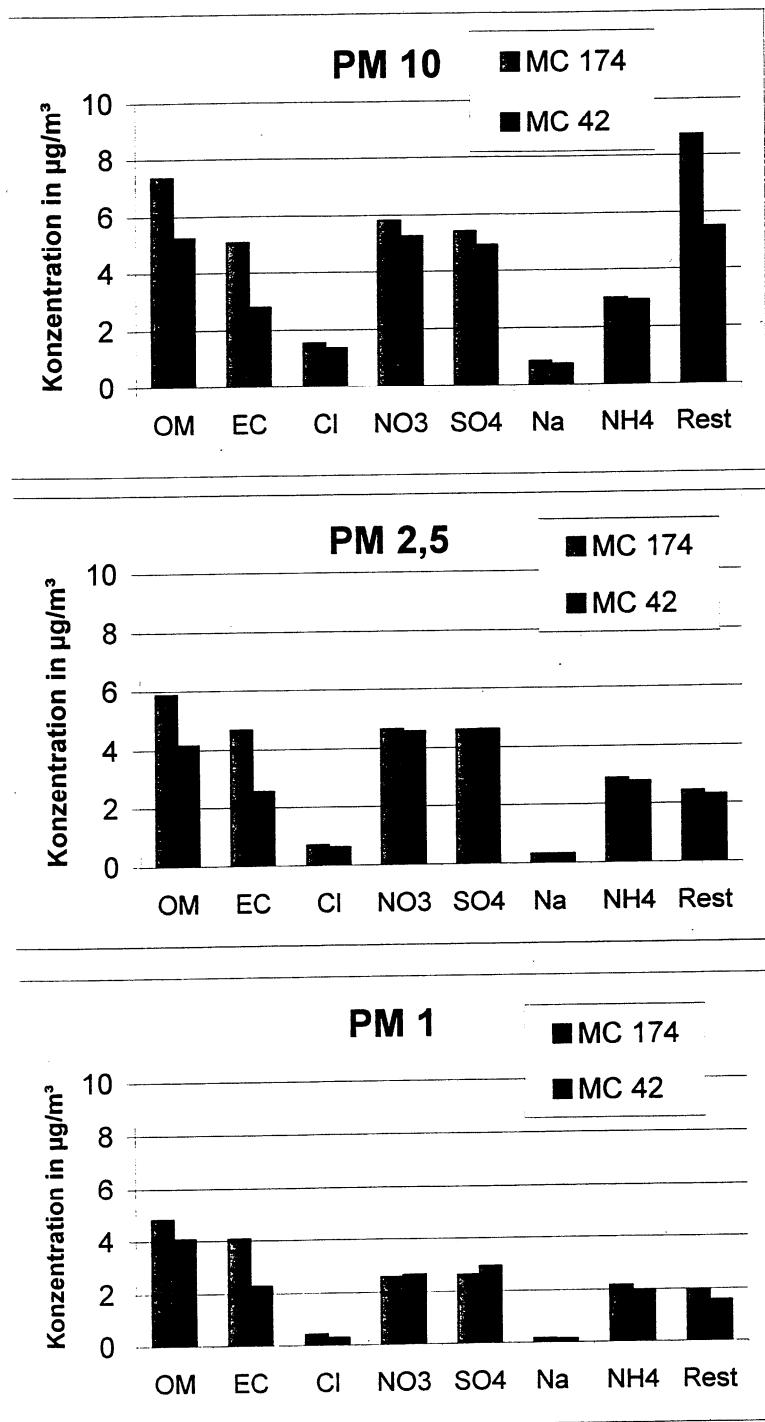
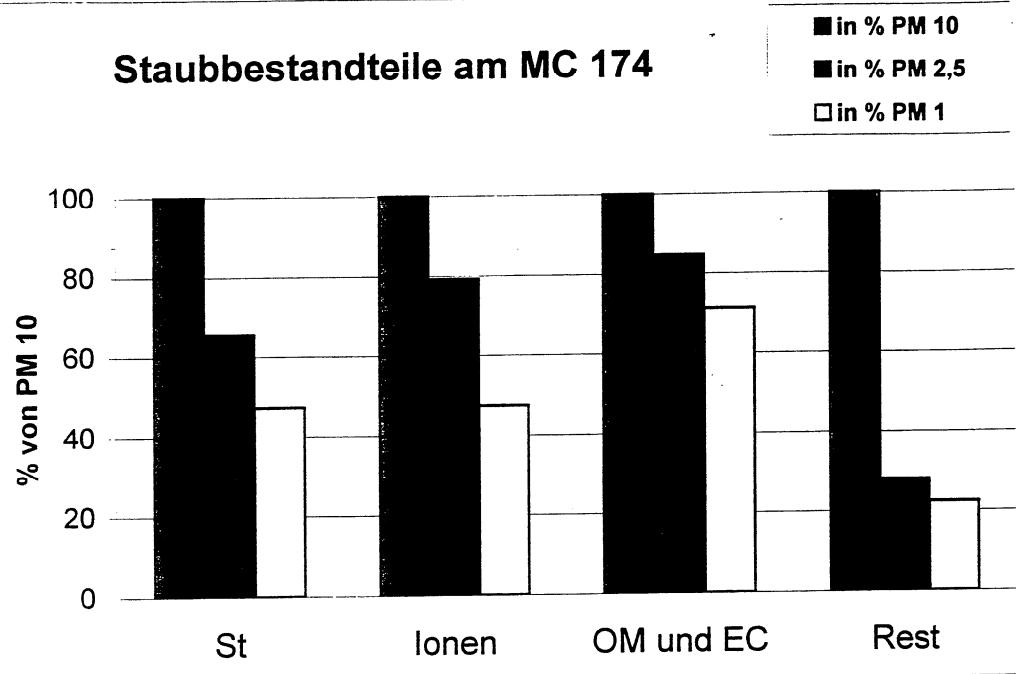


Bild 5 a bis c

### Staubbestandteile am MC 174



### Staubbestandteile am MC 42

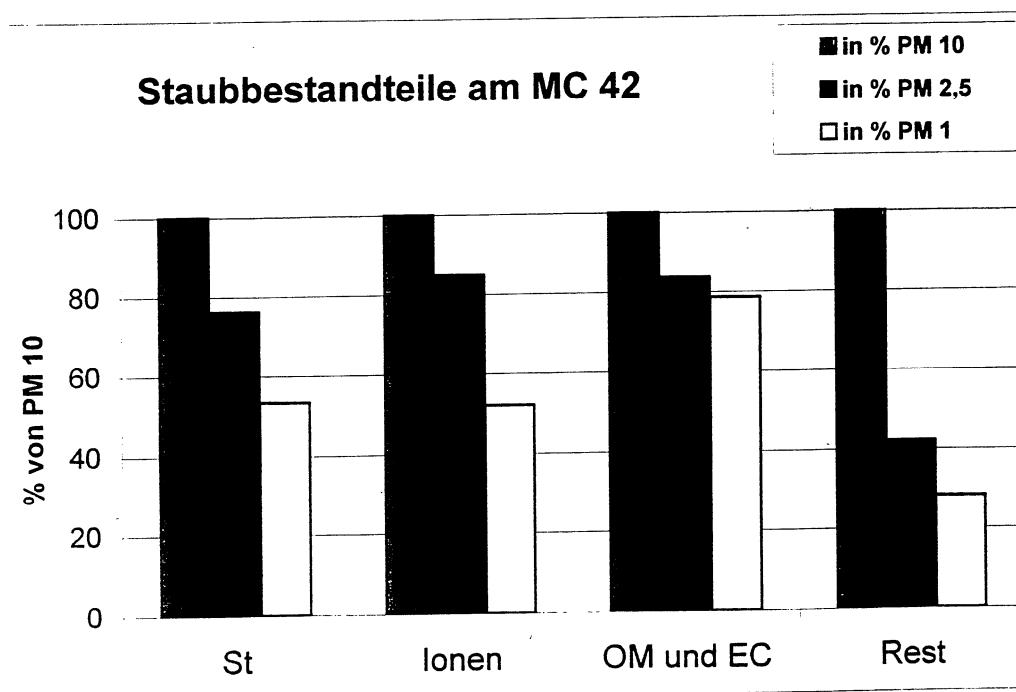


Bild 6a bis b



## 4.3 SITUATION IN HESSEN ALS MISCHGEBIET

### Beispiel für die Umsetzung der Anforderungen der neuen EU-Luftqualitätsrichtlinien (96/62/EG, 1999/30/EG)

**Stefan Jacobi**  
**Hessisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Wiesbaden**

#### Einleitung

Im Jahre 1996 wurde die EU-Richtlinie über die Beurteilung und die Kontrolle der Luftqualität (96/62/EG; kurz Rahmenrichtlinie (RRL) genannt [1]) verabschiedet. Ergänzt wird die RRL durch komponentenspezifische sogenannte „Tochterrichtlinien“ (TRLn). In den TRLn sollen die allgemeinen Vorgaben der RRL mit Leben erfüllt werden. Eine erste Tochterrichtlinie, die die Komponenten  $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$ , Partikel und Blei behandelt, wurde im Jahre 1999 auf EU-Ebene rechtskräftig [2]. Die 1. TRL legt neue, teilweise erheblich verschärfte Grenzwerte fest, sowie Zieldaten bis wann diese Grenzwerte erreicht und ab dann eingehalten werden sollen. Weiterhin werden Vorgaben gemacht bezüglich der Art (ortsfeste Messung, orientierende/indikative Messung, Modellrechnung, objektive Schätzung) und des Umfangs (Anzahl von Messstationen) der Erhebung der Luftqualität, in Abhängigkeit von Beurteilungsschwellen der Schadstoffkonzentration. Diese (oberen und unteren) Beurteilungsschwellen sind als prozentuale Anteile der Grenzwerte definiert. Festgelegt werden unter anderem auch die anzuwendenden Probenahme- und Messmethoden.

Weitere Tochterrichtlinien für Benzol, CO,  $\text{O}_3$ , Schwermetalle (Ni, Cd, As), PAH und eventuell Hg werden kurz- bzw. mittelfristig folgen.

Ziel der neuen europäischen Luftqualitätsrichtlinien ist die europaweite Erfassung der Immissionssituation auf einer weitgehend harmonisierten Basis der Erhebung sowie die Initiative zur Einleitung von Maßnahmen in den Gebieten mit Grenzwertüberschreitung. Gleichermassen soll die Luftqualität dort, wo sie gut ist, erhalten werden. Die zu erhebenden Informationen sollen das notwendige Luftqualitätsmanagement unterstützen.

#### Anforderungen der neuen EU-Luftqualitätsrichtlinien

Gemäß RRL sollen die EU-Mitgliedsländer ihre Hoheitsterritorien in **Ballungsräume** und **Gebiete** einteilen, um nach dieser erfolgten Strukturierung die Luftqualität in den so definierten Landesteilen zu beurteilen. Ballungsräume sind dabei Gebiete, die besonderen Anforderungen an die Bevölkerungszahl ( $\geq 250.000$  Einwohner) oder die Bevölkerungsdichte genügen müssen. Abgesehen von der Definition des „Ballungsraums“ ( $\geq 250.000$  Einwohner) lässt die RRL den Mitgliedsländern freie Hand bei der Einteilung ihres Territoriums. Sinnvollerweise sollte sich eine Gebietseinteilung jedoch an der bestehenden Immissionssituation orientieren. Zur Vereinheitlichung der Vorgehensweise in Deutschland hat der Länderausschuss für Immissionsschutz (LAI) auf seiner 96. Sitzung (05. – 07.05.99) Kriterien für die Benennung von Gebieten verabschiedet. Diese besagen unter anderem, dass

in der Regel die Gemeinde die kleinste räumliche Einheit für die Zusammensetzung von Gebieten sein soll. Ausnahmen im Falle kleinräumiger, isoliert auftretender Probleme sollen jedoch nicht ausgeschlossen werden.

Prinzipiell kann die Gebietseinteilung komponentenspezifisch durchaus unterschiedlich ausfallen. Aus praktischen Erwägungen und auch zur Stärkung der Umweltmanagementstrukturen bietet sich jedoch auch eine weitgehend zusammenfassende Gebietseinteilung an, sofern fachlich nichts gravierendes dagegen spricht.

Neben der Gebietseinteilung ist die **Ausgangsbeurteilung** einer der ersten wesentlichen Schritte zur Umsetzung der RRL/1. TRL. Da sich die Gebietseinteilung an der Immissionssituation orientieren sollte, ist sinnvollerweise eine Ausgangsbeurteilung der erste Schritt. Die Ausgangsbeurteilung sollte ein möglichst flächendeckendes realistisches Bild der Immissionssituation mit einer Einstufung in drei entscheidende Belastungsstufen mit entsprechend unterschiedlichen Anforderungen an die Erhebung der Luftqualität widerspiegeln:

1. Konzentrationen oberhalb der oberen Beurteilungsschwelle (Messung obligatorisch)
2. Konzentrationen zwischen der oberen und unteren Beurteilungsschwelle (Kombination aus Messung und Modellrechnung möglich)
3. Konzentrationen unterhalb der unteren Beurteilungsschwelle (Modellrechnung und objektive Schätzung alleine ausreichend)

Die weitergehende Klassifizierung in Bereiche mit Überschreitung des Grenzwertes bzw. des Grenzwertes + Toleranzmarge ist für die Einstufung der Gebiete irrelevant. Sie ist jedoch von Interesse, um zu erkennen, wo die Belastungsschwerpunkte liegen und wo Maßnahmen zu ergreifen sind, um die Grenzwerte zum Zieldatum einhalten zu können.

Als Hilfestellung bei der weiteren Anwendung bzw. Umsetzung der RRL/1. TRL sei neben dem Abschlussbericht des LAI-ad-hoc-Arbeitskreises zur „Umsetzung der EU-Luftqualitäts-Rahmenrichtlinie“ an dieser Stelle auch auf den Abschlussbericht der EU-Arbeitsgruppe „Assessment and Implementation“ (*Guidance on Assessment under the EU Air Quality Directives*) verwiesen, der kurz vor der Veröffentlichung steht.

## **Immissionssituation in Hessen**

Das „Luftmessnetz Hessen“ umfasst zur Zeit 33 stationäre Messstationen zur kontinuierlichen Überwachung der Komponenten SO<sub>2</sub>, NO/NO<sub>2</sub>, CO, O<sub>3</sub>, BTX, C<sub>n</sub>H<sub>m</sub> und Staub sowie meteorologischer Parameter (Abb. 1). Die Bestückung der Stationen ist nicht identisch, insbesondere Kohlenwasserstoffmessungen (BTX und C<sub>n</sub>H<sub>m</sub>) werden nur an wenigen ausgesuchten Messstellen durchgeführt (jeweils 4). Für die kontinuierliche Staubmessung werden β-Staubmeter eingesetzt. Die Probenahme wurde ab Anfang 2000 auf PM<sub>10</sub> umgestellt. Der Bezug auf das Referenzmessverfahren (gravimetrische Auswertung von Filterproben) erfolgt zur Zeit mit einem einheitlichen Faktor (1,3), eine Überprüfung dieses „Faktors“ an verschiedenen Messstationen ist angelaufen. Zur Problematik beim Einsatz der Radiometer sei auf den Abschlußbericht zum Erfahrungsaustausch über „Messungen von PM<sub>10</sub>/PM<sub>2,5</sub>“ (LAI-Arbeitsgruppe) hingewiesen [3]. Die Staubinhaltsstoffe (11 Metalle, darunter auch die in der

RRL angesprochenen Komponenten Pb, Cd, Ni und As) werden hessenweit an den 21 vom Luftmessnetz unabhängigen Stationen des „Staubmessprogramms“ ermittelt.

Die Erfolge der Luftreinhaltung im Verlauf der vergangenen 20 Jahre können an Hand der deutlichen Abnahme der Konzentration klassischer Schadgase wie SO<sub>2</sub> oder CO, jedoch auch des Gesamtstaubes (TSP), dokumentiert werden.

Die Stickstoffoxidkonzentrationen halten sich nach dem rasanten verkehrsbedingten Anstieg in den 60er/70er Jahren noch immer auf vergleichsweise hohem Niveau obgleich sich in den 90er Jahren offenbar ein abwärts gerichteter Trend durchzusetzen beginnt (Abbn. 2 – 5).

Für die Benzolkonzentrationen im Straßenraum deutet sich ebenfalls eine klare Abnahme an, auch wenn das uns vorliegende Datenkollektiv zur Zeit erst maximal vier Jahren umfasst. Bei einem Anhalten des sich andeutenden Trends erscheint es realistisch, den sich abzeichnenden Grenzwert der „Benzol-Tochterrichtlinie“ von 5 µg/m<sup>3</sup> ab 2010 einhalten zu können. Interessant ist hier der Vergleich mit den Konzentrationen an der ländlichen Station „Linden“. Die bisherigen Messungen (ca. ½ Jahr) deuten auf Hintergrundkonzentrationen in der Größenordnung von <2 µg/m<sup>3</sup> hin (Abbn. 7 und 8).

Eine besonders deutliche Verbesserung der Luftqualität hat sich auch in Bezug auf Blei im Schwebstaub eingestellt. Von 1983 bis 1999 ist praktisch an allen Stationen eine Abnahme der Bleikonzentration um ca. eine Größenordnung festzustellen (Abb. 6).

## Ausgangsbeurteilung

Um einen ersten Überblick zu erhalten, wurden die Ergebnisse des Luftmessnetzes für das Jahr 1998 zugrunde gelegt [4]. Im Sinne einer stationsbezogenen Auswertung wurde die Einhaltung der in der 1.TRL festgelegten charakteristischen Werte (Grenzwerte, Grenzwerte plus Toleranzmargen, untere und obere Beurteilungsschwellen; siehe Tabn. 1 und 2) überprüft. Darüber hinaus wurde mit Hilfe des Modells FLADIS [5] eine flächenhafte Darstellung der Immissionssituation in Bezug auf die jeweilige Komponente ermittelt. FLADIS berücksichtigt neben den Immissionsmessdaten auch die Emissionsstruktur, die in Form von Emissionskatastern für verschiedene Bereiche (Hausbrand, Kleingewerbe, Industrie und Verkehr) vorliegen. Die Ergebnisse der FLADIS Berechnung wurden in einem abschließenden Schritt auf die Gemeindeebene bezogen, das heißt die Gemeinden wurden entsprechend der Immissionssituation klassifiziert.

Für die Komponente Blei reduziert sich die Aussage auf eine flächendeckende und sehr ausgeprägte Unterschreitung der unteren Beurteilungsschwelle (Jahresmittel 250 ng/m<sup>3</sup>). Der höchste Jahresmittelwert lag im Jahre 1999 noch unterhalb 30 ng/m<sup>3</sup>.

Ähnlich entspannt stellt sich in Hessen mittlerweile die frühere „Problemkomponente“ SO<sub>2</sub> dar. Beide zum Schutz der Gesundheit definierten Grenzwerte von 350 µg/m<sup>3</sup> im Stundenmittel (max. zulässige jährliche Überschreitungshäufigkeit: 24) und 125 µg/m<sup>3</sup> im Tagesmittel (max. zulässige jährl. Überschreitungshäufigkeit: 3) wurden 1998 an allen Stationen deutlich unterschritten (maximale Werte: 54 µg/m<sup>3</sup> als Stundenmittel und 39 µg/m<sup>3</sup> als Tagesmittel).

Der Grenzwert „zum Schutz von Ökosystemen“ von  $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (Jahres- und Winterhalbjahresmittel) wurde an allen Stationen eingehalten (auch im Winterhalbjahr). Im dichtbesiedelten und hochindustrialisierten Rhein-Main-Gebiet wird die obere Beurteilungsschwelle von  $12 \mu\text{g}/\text{m}^3$  zwar überschritten, jedoch findet dieser Grenzwert aufgrund der festgelegten Standortcharakteristika („...mehr als 20 km von Ballungsräumen oder 5 km von anderen bebauten Gebieten, Industrieanlagen oder Straßen entfernt“; 1. TRL, Anhang VI) streng genommen hier keine Anwendung.

Anders stellt sich die Situation bei  $\text{NO}_2$  dar. Für den Kurzzeitwert (1h-Mittelwert) treten im Rhein-Main-Gebiet Konzentrationen oberhalb der oberen Beurteilungsschwelle ( $140 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , max. zulässige jährl. Überschreitungshäufigkeit: 18) auf, im Raum Frankfurt wird der Grenzwert ( $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , max. zulässige jährl. Überschreitungshäufigkeit: 18) überschritten (Abb. 9). Auch in der weiteren Umgebung des Rhein-Main-Gebietes liegen die Konzentrationen zwischen der unteren und oberen Beurteilungsschwelle. Noch deutlicher zeichnet sich die Belastung bei Betrachtung des Jahresmittelwertes ( $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) ab, der an zahlreichen Stationen überschritten wird (Abb. 10). Insbesondere im südwestlichen und südlichen Teil Hessens wird die obere Beurteilungsschwelle häufig überschritten. Außer an den sechs Waldmessstationen ist nur an wenigen Stationen eine Unterschreitung der unteren Beurteilungsschwelle zu messen. Zu berücksichtigen ist, dass diese Belastungssituation eher unterschätzt ist, da der Verkehr nach wie vor als Hauptquelle für die Stickstoffoxide anzusehen ist und nur eine begrenzte Anzahl von Verkehrsmessstationen betrieben werden kann. Der Grenzwert „zum Schutz der Vegetation“ (Jahresmittel  $30 \mu\text{g NO}_x/\text{m}^3$ ) wird in Hessen an der weitaus überwiegenden Anzahl der Stationen überschritten. Lediglich an den Waldmessstationen liegen die Konzentrationen im Bereich der unteren Beurteilungsschwelle (teilweise Unter-, teilweise Überschreitung). Bezuglich der formalen Anwendbarkeit dieses Grenzwertes gilt die für den  $\text{SO}_2$ -Grenzwert „zum Schutz von Ökosystemen“ gemachte Aussage analog.

Da bis Ende 1999 die kontinuierliche Staubmessung auf „Gesamtstaub“ (TSP) ausgelegt war wurden unter Annahme des pauschalen Umrechnungsfaktors von 0,83 simulierte  $\text{PM}_{10}$ -Werte abgeschätzt. Die testweise Ausgangsbeurteilung auf dieser Grundlage ergibt sowohl für die langzeitliche als auch für die kurzzeitliche Belastung eine hessenweite Überschreitung der oberen Beurteilungsschwelle. Grund hierfür ist auch die Kopplung der Beurteilungsschwellen an die noch schärferen  $\text{PM}_{10}$ -Richtgrenzwerte der „2. Stufe“ (1. TRL, Anhänge III und V). Die obere Beurteilungsschwelle beträgt für den Jahresmittelwert  $14 \mu\text{g}/\text{m}^3$  und für den Tagesmittelwert  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (max. zulässige jährl. Überschreitungshäufigkeit: 7). In verschiedenen Gebieten treten auch Überschreitungen für den Grenzwert der kurzzeitigen Belastung (Tagesmittelwert  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , max. zulässige jährl. Überschreitungshäufigkeit: 35) auf.

Die Auswertung auf Grundlage der pauschal abgeschätzten  $\text{PM}_{10}$ -Daten beinhaltet zwangsläufig eine größere Unsicherheit, da der Anteil von Partikeln  $< 10 \mu\text{m}$  am Gesamtstaub (TSP) regional durchaus größeren Schwankungen unterworfen sein kann. Die Annahme eines  $\text{PM}_{10}$ -Anteils von 83% am Gesamtstaub kann daher nur eine grobe Abschätzung sein.

## Überlegungen zur Gebietseinteilung

Basierend auf den unter Punkt 2 erläuterten grundlegenden Kriterien für die Festlegungen von Ballungsräumen, der Beurteilung der Immissionssituation (vorläufige Ausgangsbeurteilung, 1998) und der Kenntnis der Emissionsstrukturen sowie der geographischen und meteorologischen Bedingungen wurde ein Vorschlag zur Gebietseinteilung in Hessen erarbeitet (Abb. 11) [6].

Aufgrund der Einwohnerzahl und der Bevölkerungsdichte bildet der Großraum Frankfurt/Wiesbaden/Darmstadt mit einer Vielzahl kleinerer Gemeinden im direkten Umfeld den ersten Ballungsraum „**Rhein-Main**“. Zur sinnvollen Abrundung dieses Gebiets wurden einige Gemeinden die lufthygienisch diesem Ballungsraum zuzuordnen sind, mit aufgenommen, auch wenn sie rein formal die Kriterien zur Bevölkerungsstruktur (Einwohneranzahl und – dichte) nicht erfüllen.

Als zweiter Siedlungsschwerpunkt bildet **Kassel** mit einigen Anrainergemeinden zwangsläufig den zweiten Ballungsraum. Ähnlich wie im Ballungsraum „Rhein-Main“ wird auch hier vorgeschlagen einige kleinere Gemeinden zu integrieren, die aus lufthygienischer Sicht dem Belastungsgebiet im Kasseler Becken zuzuordnen sind.

Der Ballungsraum „Rhein-Main“ erstreckt sich auf dieser Höhe über die gesamte Ost-/West-Erstreckung des Bundeslandes und stellt damit eine räumliche Trennung des Südens vom restlichen Teil Hessens dar. Es bietet sich an, **Südhessen** als eigenes Gebiet auszuweisen. Eine weiter gehende Gliederung (z. B. in Gebiete „Rheinebene“ und „Odenwald“) erscheint zur Zeit nicht angemessen zu sein.

Ein Raum der aufgrund seiner Bevölkerungs- und Emissionsstruktur (größere Mittelstädte, Industrieaktivitäten, stark befahrene Hauptverkehrsstraßen) sowie wegen seiner eher ungünstigen lufthygienischen Lage (nur eingeschränkt durchlüftete Täler) als gesondertes Gebiet „**Lahn-Dill**“ ausgewiesen werden sollte, ist der Bereich Gießen, Wetzlar und das Dilltal bis Dillenburg.

Der restliche Teil Hessens könnte als einheitliches Gebiet „**Hessisches Bergland**“ definiert werden. Das überwiegend forst- und landwirtschaftlich genutzte Gebiet umfasst den größten Teil Mittel- und Nordhessens und weist in der Regel eine niedrige Immissionsbelastung auf. Zu beachten sind allerdings auch in Zukunft darin eingebettete kleinere Emissions- oder Siedlungsschwerpunkte und deren Entwicklung (beispielsweise der Raum Fulda).

## Literatur

- [1] Richtlinie 96/62/EG des Rates vom 27. 09.1996 über die Beurteilung und die Kontrolle der Luftqualität. Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften Nr. L 296, 55-63, 21.11.1996.
- [2] Richtlinie 1999/30/EG des Rates vom 22. 04.1999 über die Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid und Stickstoffoxide, Partikel und Blei in der Luft. Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften Nr. L 163, 41-60, 29.06.1999.
- [3] Bericht zum Erfahrungsaustausch über „Messungen von PM<sub>10</sub>/PM<sub>2,5</sub>“ Abschlußbericht im Auftrag des LAI; bearbeitet durch eine Arbeitsgruppe aller Ländermessstellen, zusammengefasst durch die Gesellschaft für Umweltmessungen und Umwelterhebungen mbH (UMEG), Karlsruhe, Februar 2000.
- [4] Lufthygienischer Jahresbericht 1998 Schriftenreihe der Hessischen Landesanstalt für Umwelt, Heft Nr. 262, Wiesbaden 1999.
- [5] Flächendeckende Darstellung der Immissionssituation Schriftenreihe der Hessischen Landesanstalt für Umwelt, Heft Nr. 201, Wiesbaden 1996.
- [6] Die Einteilung von Hessen in Gebiete gemäß Luftqualitätsrichtlinie (96/62/EG) und 1.Tochterrichtlinie (1999/30/EG) Schriftenreihe des Hessischen Landesamtes für Umwelt und Geologie; zu veröffentlichen 2000.

**Tab. 1: Immissionsgrenzwerte nach der 1. Tochterrichtlinie (Anhänge I bis IV)**  
**Der Beurteilungszeitraum für die Grenzwerte ist generell ein Kalenderjahr.**  
**(Ausnahme: SO<sub>2</sub>-Grenzwert für den Schutz von Ökosystemen (Kalender- und Winterhalbjahr))**

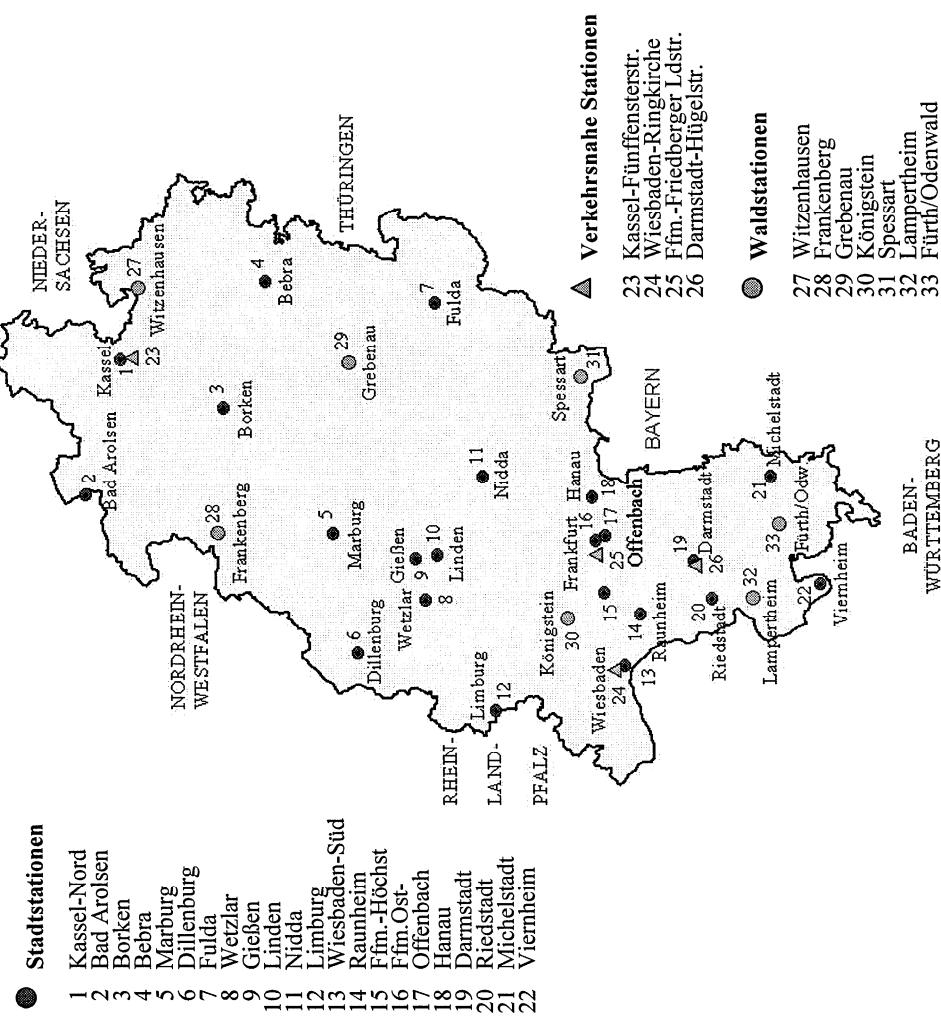
Komponente	Mittelungs-zeitraum	Prüfgröße	Grenzwert [µg/m <sup>3</sup> ]	Grenzwert plus Toleranz-marge <sup>1)</sup> [µg/m <sup>3</sup> ]
<b>Schwefeldioxid</b>				
1-Stunden-Grenzwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit	1 Stunde	max. 24mal pro Jahr überschritten	350 <sup>2)</sup>	500
1-Tages-Grenzwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit	24 Stunden	max. 3mal pro Jahr überschritten	125 <sup>2)</sup>	125
Grenzwert für den Schutz von Ökosystemen außerhalb der unmittelbaren Umgebung von Quellen	Kalenderjahr und Winter (01.10. - 31.03)	Jahres- und Wintermittelwert	20 <sup>3)</sup>	20
<b>Stickstoffdioxid, Stickstoffoxide</b>				
1-Stunden-Grenzwert (NO <sub>2</sub> ) für den Schutz der menschlichen Gesundheit	1 Stunde	max. 18mal pro Jahr überschritten	200 <sup>4)</sup>	300
Jahresgrenzwert (NO <sub>2</sub> ) für den Schutz der menschlichen Gesundheit	Kalenderjahr	Jahresmittelwert	40 <sup>4)</sup>	60
Jahresgrenzwert (NO <sub>x</sub> ) für den Schutz der Vegetation außerhalb der unmittelbaren Umgebung von Quellen <sup>5)</sup>	Kalenderjahr	Jahresmittelwert	30 <sup>3)</sup> (NO + NO <sub>2</sub> )	30 (NO + NO <sub>2</sub> )
<b>Partikel PM<sub>10</sub></b>				
<b>Stufe 1:</b>				
24-Stunden-Grenzwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit	24 Stunden	max. 35mal pro Jahr überschritten	50 <sup>2)</sup>	75
Jahresgrenzwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit	Kalenderjahr		40 <sup>2)</sup>	48
<b>Stufe 2:<sup>6)</sup></b>				
24-Stunden-Grenzwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit	24 Stunden	max. 7mal pro Jahr überschritten	50 <sup>4)</sup>	50 + x (aus Daten abzuleiten)
Jahresgrenzwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit	Kalenderjahr		20 <sup>4)</sup>	30 <sup>2)</sup>
<b>Blei</b>				
Jahresgrenzwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit	Kalenderjahr		0,5 <sup>2)</sup>	1,0

- 1) Toleranzmargen sind ab 01.01.01 in gleichmäßigen jährl. Stufen bis zum „Zieldatum“ (2005 / 2010) auf Null zu reduzieren. Sie sind gültig seit Inkrafttreten der 1. TRL (19.07.99)
- 2) gültig ab 01. Januar 2005
- 3) gültig 2 Jahre nach Inkrafttreten der 1. Tochterrichtlinie (19.07.01)
- 4) gültig ab 01. Januar 2010
- 5) Summe von Stickstoffdioxid und Stickstoffmonoxid, angegeben als Stickstoffdioxid
- 6) „Richtgrenzwerte“; zu überprüfen auf Grundlage weiterer Erfahrungen (im Rahmen der Revision der 1. TRL, 2003)

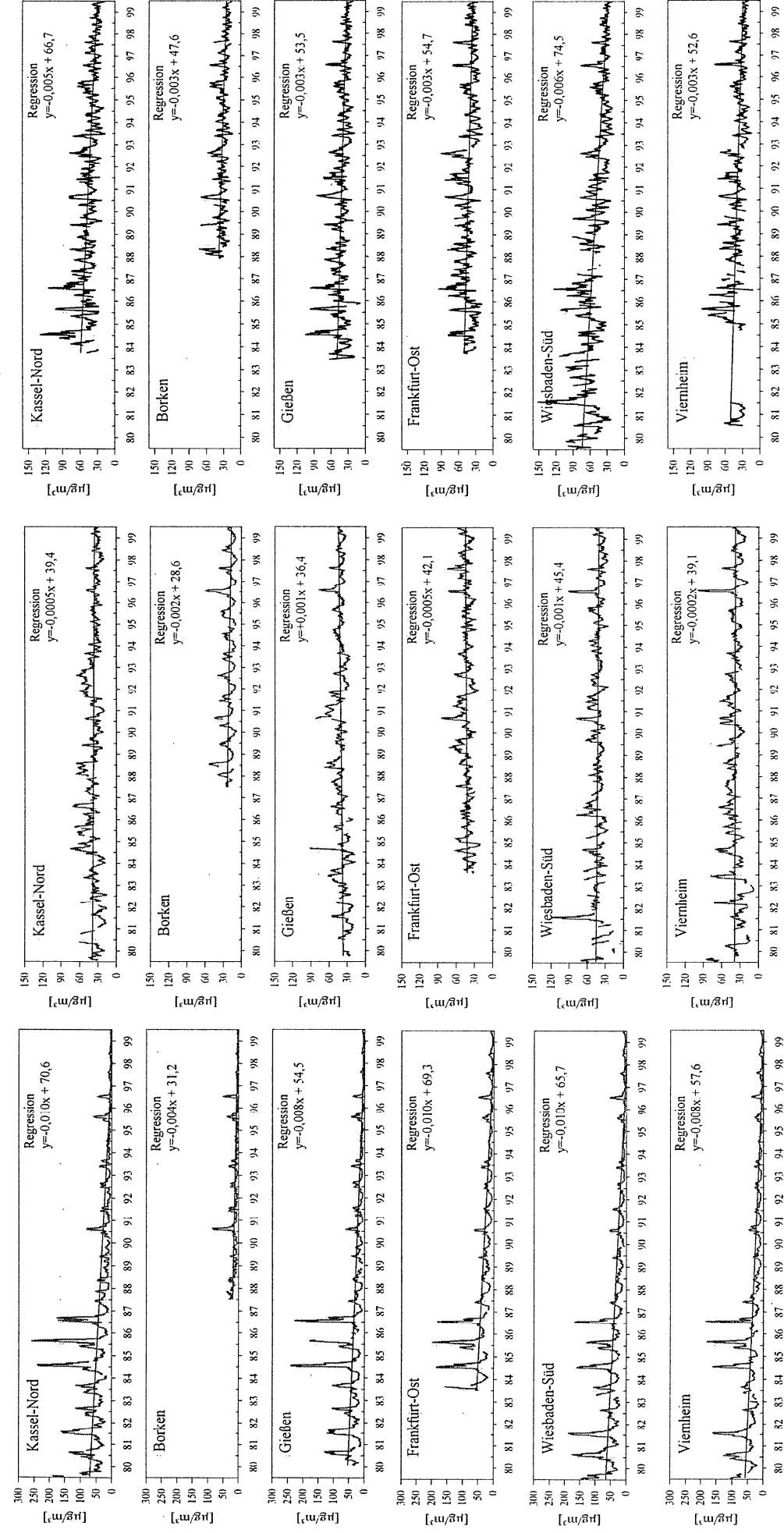
**Tab. 2: Beurteilungsschwellen nach der 1. Tochterrichtlinie (Anhang V)**

<b>Komponente</b>	<b>Mittelungs-zeitraum</b>	<b>Prüfgröße</b>	<b>unterer Schwellenwert [<math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math>]</b>	<b>oberer Schwellenwert [<math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math>]</b>
<b>Schwefeldioxid</b>				
1-Stunden-Grenzwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit	1 Stunde	max. 24mal pro Jahr überschritten	nicht definiert	nicht definiert
1-Tages-Grenzwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit	24 Stunden	max. 3mal pro Jahr überschritten	50	75
Grenzwert für den Schutz von Ökosystemen außerhalb der unmittelbaren Umgebung von Quellen	Winter (01.10. - 31.03)	Wintermittel	8	12
<b>Stickstoffdioxid</b>				
1-Stunden-Grenzwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit	1 Stunde	max. 18mal pro Jahr überschritten	100	140
Jahresgrenzwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit	Kalenderjahr	Jahresmittelwert	26	32
Jahresgrenzwert für den Schutz der Vegetation außerhalb der unmittelbaren Umgebung von Quellen <sup>1)</sup>	Kalenderjahr	Jahresmittelwert	20 (NO + NO <sub>2</sub> )	24 (NO + NO <sub>2</sub> )
<b>Partikel PM<sub>10</sub></b>				
24-Stunden-Grenzwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit	24 Stunden	max. 7mal pro Jahr überschritten	20	30
Jahresgrenzwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit	Kalenderjahr	Jahresmittelwert	10	14
<b>Blei</b>				
Jahresgrenzwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit	Kalenderjahr	Jahresmittelwert	0,25	0,35

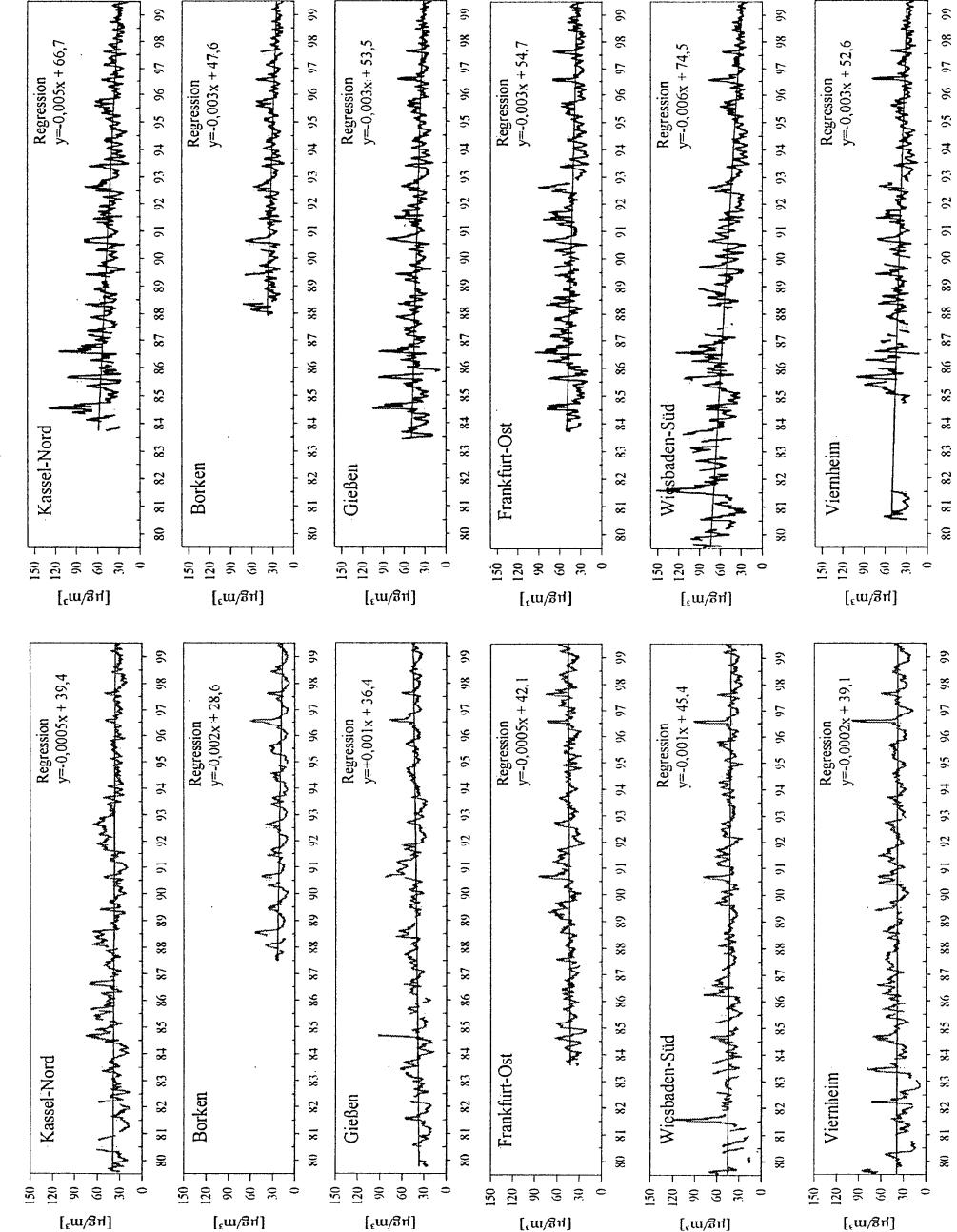
1) Summe von Stickstoffdioxid und Stickstoffmonoxid, angegeben als Stickstoffdioxid



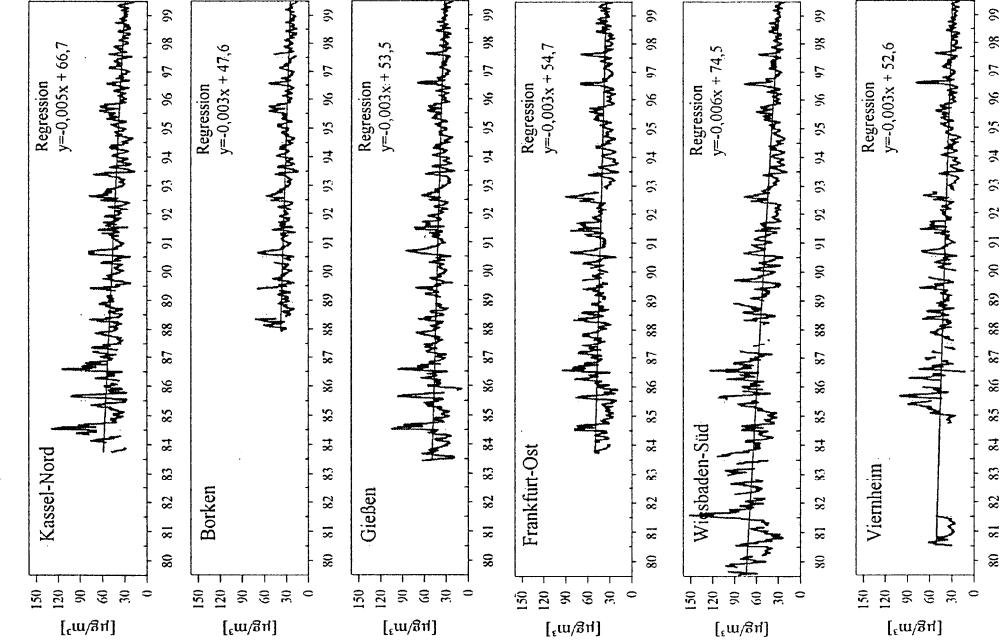
HLUG \* Gleitende Monatsmittel und Regressionen  
Schwefeldioxid \* 01.01.1980 - 31.12.1999



HLUG \* Gleitende Monatsmittel und Regressionen  
Stickstoffdioxid \* 01.01.1980 - 31.12.1999



HLUG \* Gleitende Monatsmittel und Regressionen  
Staub \* 01.01.1980 - 31.12.1999



Abbn. 3 - 5: Langfristige Entwicklung der SO<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub>, und Gesamtstaub-Immissionskonzentration an ausgewählten Standorten des Hessischen Luftmessnetzes

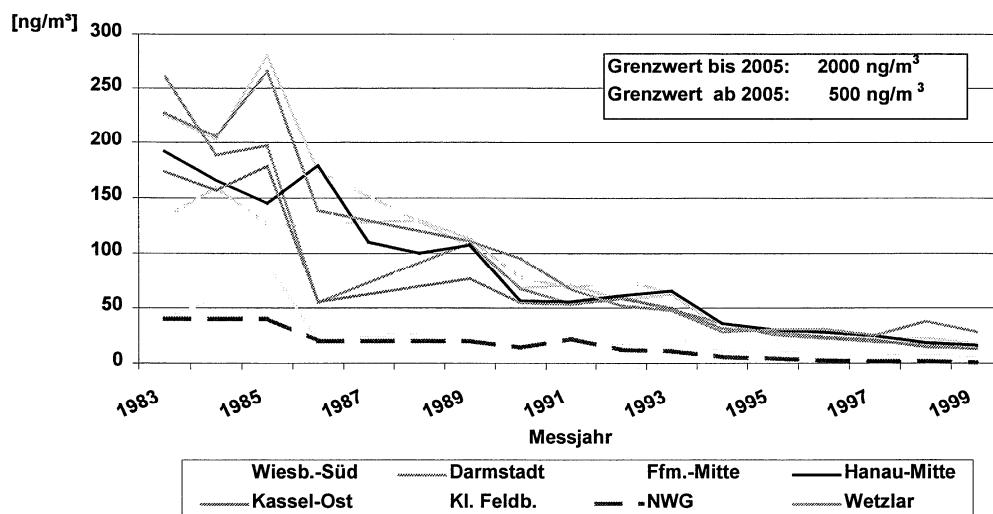


Abb. 6: Entwicklung der Schwebstaubbelastung durch Blei an ausgewählten hessischen Messstationen.

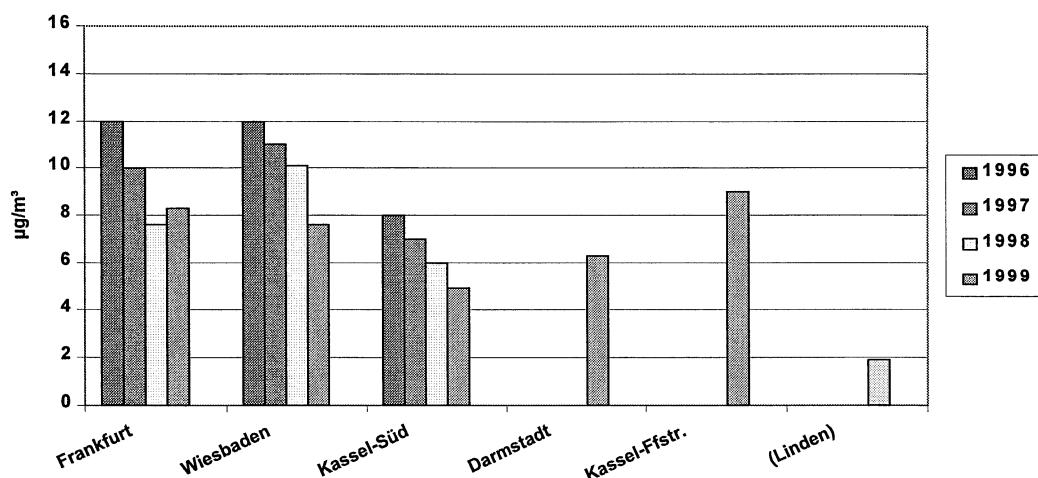


Abb. 7: Entwicklung der Luftbelastung durch Benzol an verkehrsnahen Messstationen. Jahresmittelwerte, Darmstadt und Kassel-Fünfensterstr.: nur 2. Halbjahr 1999. Linden: unbelasteter Vergleichsstandort (1. Halbjahr 2000)

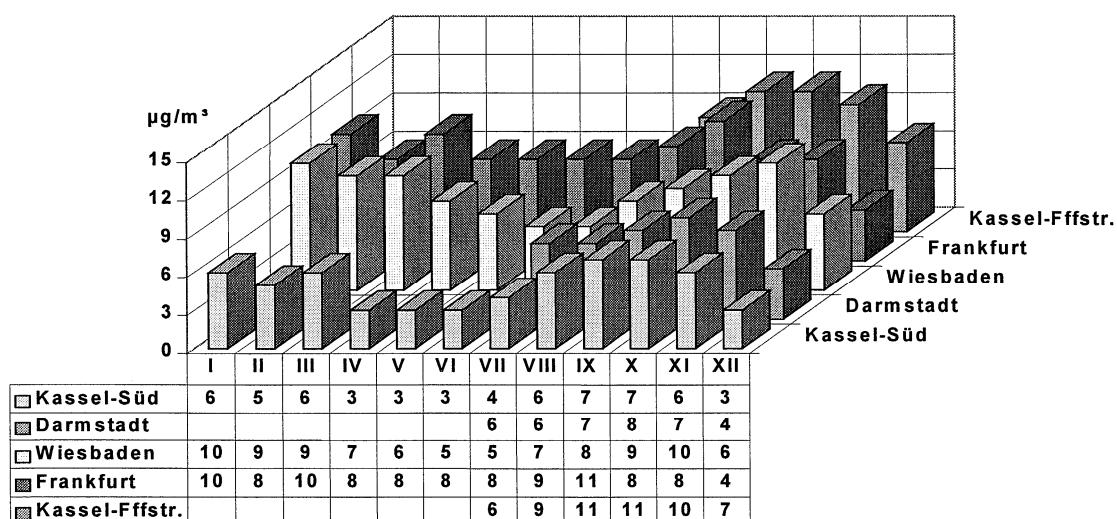
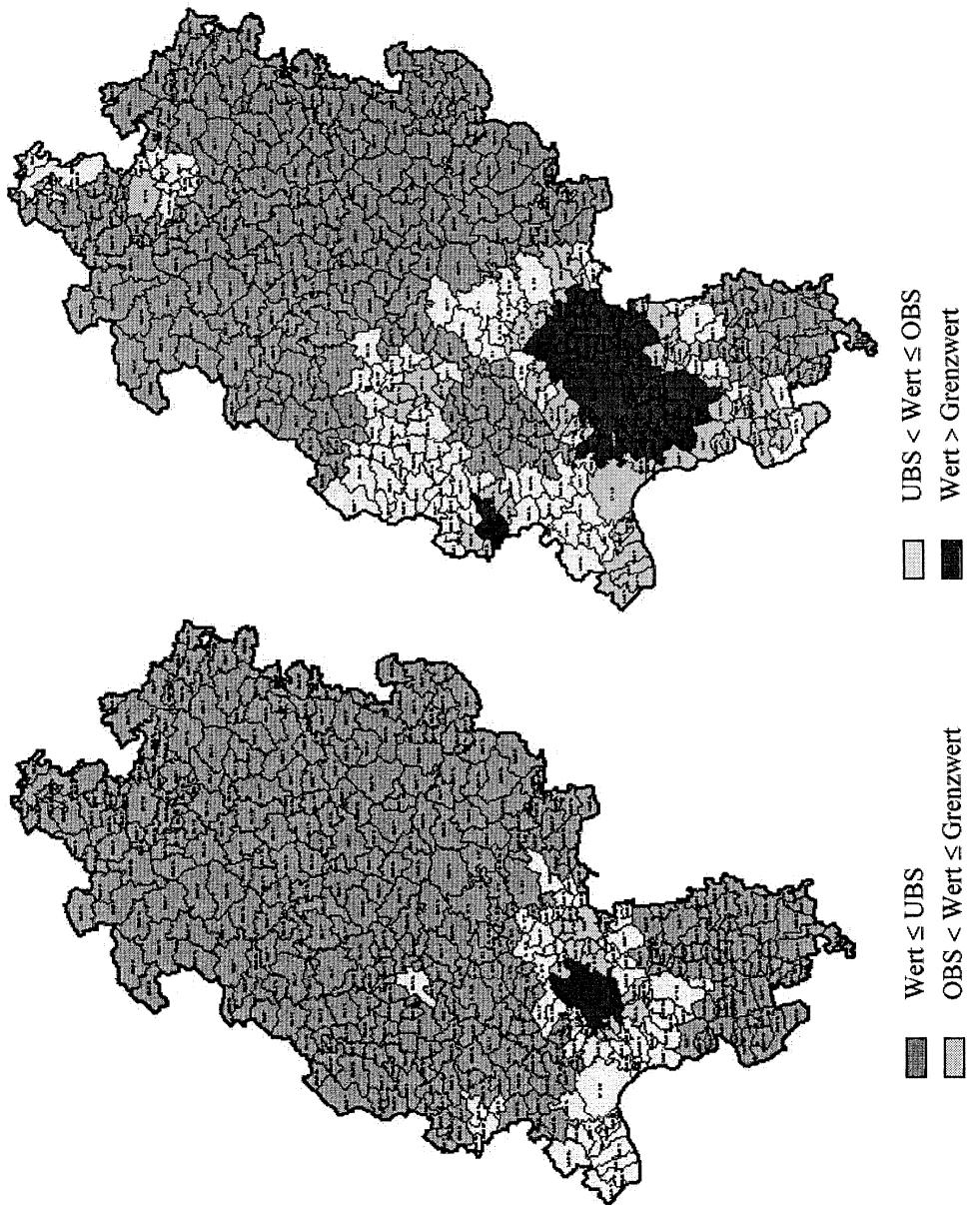


Abb. 8.: Jahresgang der Luftbelastung durch Benzol an verkehrsnahen Messstationen. Monatsmittelwerte des Jahres 1999

NO<sub>2</sub>-Stundenmittelwert 1998



OBS: obere Beurteilungsschwelle; UBS: untere Beurteilungsschwelle

Abbn. 9 – 10: Beispiele für eine Ausgangsbeurteilung (Testdatensatz 1998) Klassifizierung der Belastung auf Gemeindeebene gemäß Vorgaben der 1. TRL, Anhang II und V. Flächendeckende Berechnung unter Anwendung von FLADIS

NO<sub>2</sub>-Jahresmittelwert 1998

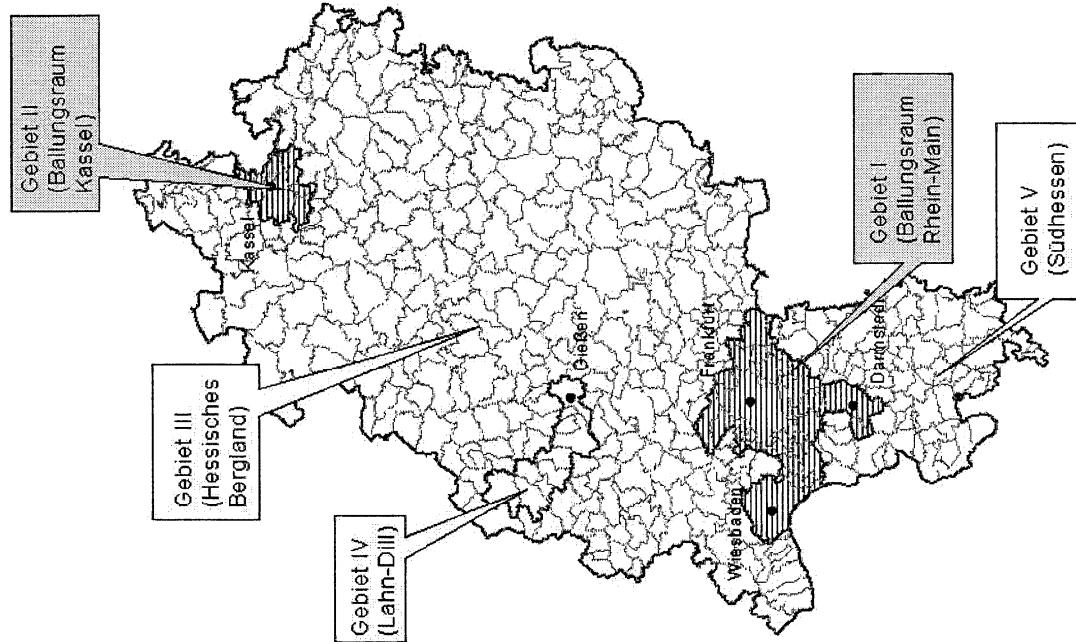


Abb. 11: Vorschlag einer Gebietseinteilung des Bundeslandes Hessen auf der Grundlage der vorläufigen Ausgangsbeurteilung (Testdatensatz 1998).

## 4.4 SITUATION IN SACHSEN ALS GRENZREGION

**Heinz Gräfe**

**Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Dresden**

### Zusammenfassung

Die Analyse der Luftqualität in Sachsen auf Grundlage der Beurteilungsmaßstäbe der EU-Richtlinie (1999/30/EG) zeigt Probleme im Bereich der Stickoxide und insbesondere des Feinstaubes. Die Belastungen konzentrieren sich dabei im wesentlichen auf die Ballungsräume Leipzig, Chemnitz und Dresden. Während gegenwärtig bei der chronischen Feinstaubbelastung erst die Grenzrichtwerte der Stufe II der Richtlinie überschritten werden, wird der Grenzwert für die Akutbelastung der Stufe I in den sächsischen Ballungsräumen deutlich überschritten. Eine orientierende Messkampagne im Winter 1998 zeigte, dass an einem städtischen, stark verkehrsbeeinflussten Standort, nahezu die gesamte Partikelanzahlkonzentration im Korngrößenbereich  $PM_1$  vorlag. Vergleichende Untersuchungen hinsichtlich der Korngrößenverteilung der Massenkonzentrationen von Partikeln, Schwermetallen und PAK in den Fraktionen TSP,  $PM_{10}$  und  $PM_{2,5}$  ergaben einen mittleren Anteil von  $PM_{10}$  an TSP von ca. 60 % sowie einen Anteil von 60 %-70 % der  $PM_{2,5}$ -Partikel an der  $PM_{10}$ -Partikelmasse. Dagegen lagen die Inhaltsstoffe Blei, Cadmium, Benzo[a]pyren und Benzo[ghi]perylene an allen untersuchten Standorten mehr oder weniger vollständig in der Fraktion  $PM_{2,5}$  vor. Eine Ausnahme bildeten die Schwermetalle Arsen und Nickel, die in geringerem Maße mit den Feinpartikeln assoziiert waren (80 % bzw. 40 %). Während die Jahresbelastung durch Ruß an allen Stadtstandorten über dem LAI-Beurteilungswert von  $1,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$  liegt, wird der Beurteilungswert für Benzo[a]pyren in Sachsen eingehalten.

Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie

Zur Wetterwarte 11, D-01109 Dresden  
eMail:

Heinz.Graefe@lfugwa.smu.sachsen.de

### Einleitung

In Sachsen wird die Luftqualität je nach Komponente durch bis zu 36 Multikomponentenstationen überwacht, wobei 3 Stationen zum Messnetz des Umweltbundesamtes gehören. An 34 Stationen wird die Komponente Staub gemessen. Um Sachsen entsprechend den Kriterien der EU-Rahmenrichtlinie 96/62/EG (Artikel 2 und 6) und den folgenden Tochterrichtlinien beurteilen zu können, wurde Sachsen in 3 Ballungsräume, 4 ökosystemare Räume und 3 Gebiete eingeteilt (Abb. 1).

### Bewertung

Nutzt man die im April 1999 verabschiedete erste Tochterrichtlinie (1999/30/EG) als Bewertungsgrundlage, ergibt sich für das Beurteilungsjahr 1999 die in Tab. 2 dargestellte Situation. Für Sachsen kristallisieren sich drei Problembereiche heraus: Die  $NO_2$ -Belastung in den Ballungsräumen, die  $NO_x$ -Belastung im Ökogebiet Oberes Vogtland sowie die akute Feinstaubbelastung (Stufe I und II) und die chronische Feinstaubbelastung hinsichtlich der Bewertungsstufe II (Grenzwertüberschreitungen und Grenzwertüberschreitungen einschließlich Toleranzmargen sind in Tab. 2 entsprechend markiert).

Tab. 2: Ausgangsbeurteilung der Gebiete in Sachsen für das Jahr 1999 entsprechend der 1. EU-Tochterrichtlinie

Schutzbereich	SO <sub>2</sub>		SO <sub>2</sub>		SO <sub>2</sub>		NO <sub>2</sub>		NO <sub>2</sub>		NO <sub>x</sub>		PM 10	PM 10	PM 10	PM 10	Pb
	GS	GS	GS	OS	OS	GS	GS	Veg.	GS	GS	GS	GS	GS	GS	GS	GS	
Bezugszeit	1 h	24 h	Jahr	Winter	1 h	Jahr	Jahr	24 h	Jahr	24 h	Jahr	Jahr	Jahr	Jahr	Jahr	Jahr	
<b>GW+Tol</b>	500	-	-	-	300	60	-	75	60	75	30	1,00					
<b>GW</b>	350	125	20	20	200	40	30	50	40	50	20	0,50					
<b>OBS</b>		75	12	12	140	32	24	30	14	30	14	0,35					
<b>UBS</b>		50	8	8	100	26	19,5	20	10	20	10	0,25					
<b>Messstelle</b>	zulässige Über- schreitungenanzahl	24mal	3mal			18mal			1. Stufe 35 mal	1. Stufe	2 Stufe 7 mal	2 Stufe					
Chemnitz-Mitte	Ballungraum	0 (0)	8	5	(62)	33	52	(11)	29 **	(44)	29 **	-					
Chemnitz-Nord		0 (0)	7	5	(64)	38	104	(141)	32 **	(33)	31	0,023					
Dresden-Mitte	Ballungraum	0 (2)	8	8	(17)	32	48	(103)	26 *	(21)	26	0,020					
Dresden-Nord		0 (2)	9	9	(149)	48	100	(49)	34 *	(10)	34	0,027					
Pirna		0 (5)	8	9	(5)	25	37	(119)	27 **	(20)	27	-					
Radebeul-Wahnsdorf		0 (2)	7	7	(1)	19	24	(73)	20 *	(73)	20 *	0,021					
Leipzig-Mitte	Ballungraum	0 (1)	6	5	(91)	13	135	(36)	32 *	(36)	32 *	0,026					
Leipzig-Süd		0 (0)	6		(6)	28	39	(125)	28 **	(25)	28 **	-					
Leipzig-West		0 (0)	5	3	(1)	22	30	(79)	22 **	(8)	22 **	0,017					
Annaberg-Buchholz	Gebiet	0 (0)	6	5	(17)	30	67	(143)	29 **	(27)	29 **	-					
Aue		0 (0)	5	5	(116)	35	74	(103)	25 *	(18)	25	0,022					
Auerbach		0 (0)	5	4	(21)	30	58	(131)	28 **	(24)	28	-					
Freiberg		0 (0)	7	6	(4)	31	63	(87)	24 *	(16)	24	0,036					
Glauchau		0 (0)	6	5	(10)	28	51	(84)	26 **	(41)	26 **	-					
Lehnsmühle (UBA)		0 (0)	7		(0)	11	13	(41)	17 **	(41)	17 **	-					
Meerane		0 (0)	5	-	-	-	-	-	-	-	-	-					
Olbernhau		0 (3)	9	8	(6)	28	56	(51)	34 **	(51)	34 **	-					
Plauen-Süd		0 (0)	5	4	(0)	34	100	(152)	29 **	(23)	29 **	-					
Zwickau		0 (0)	4	3	(36)	38	66	(121)	28 *	(31)	28 *	0,021					
Böhlen	Gebiet	0 (2)	8	7	(1)	22	33	(75)	22 *	(14)	22 *	0,017					
Borna		0 (1)	6	6	(28)	40	112	(102)	27 *	(28)	27 *	0,020					
Delitzsch		0 (0)	5	4	(0)	25	42	(64)	22 **	(64)	22 **	-					
Bautzen	Gebiet	0 (0)	7	8	(6)	25	47	(36)	27 **	(36)	27 **	-					
Görlitz		0 (4)	9	10	(0)	32	95	(47)	34 *	(46)	34 *	0,031					
Hoyerswerda		0 (0)	6	6	(5)	19	25	(65)	21 **	(65)	21 **	-					
Lückendorf (UBA)		0 (1)	10		(0)	10	12	(56)	17 **	(56)	17 **	-					
Zittau-Ost		0 (1)	7	8	(0)	17	22	(110)	27 **	(28)	27 **	-					
Bärenstein	Okosystem	0 (0)	7	6	-	-	-	-	-	-	-	-					
Carlsfeld		0 (0)	4	4	-	-	-	(52)	15 **	(14)	15 **	-					
Fichtelberg		1 (5)	7	6	-	-	-	(49)	12 **	(13)	12 **	-					
Schwartzenberg		0 (4)	10	8	(1)	12	14	(65)	14 *	(24)	14 *	-					
Zinnwald		0 (1)	7	8	(0)	13	16	(78)	14 *	(21)	14 *	0,012					
Collmberg	Okosystem	0 (0)	5	4	(0)	11	13	(36)	17 *	(8)	17 *	-					
Melpitz (UBA)		0 (0)	5		(0)	12	15	(51)	17 **	(51)	17 **	-					
Klingenthal	Okosystem	0 (0)	6	5	(1)	19	33	(105)	26 **	(21)	26 **	-					
Mitteindorf	Okosystem	0 (0)	3	9	(0)	14	17	(39)	18 **	(39)	18 **	-					

**Erklärungen:**

alle Werte in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  \* = PM 10-Messung \*\* = berechnet aus TSPx0,83  
(Zahl) = Anzahl der Überschreitungen (Tagesmittelwerte) in der jeweils zutreffenden Beurteilungsschwelle

—
Wert =< UBS
UBS < Wert =< OBS
OBS < Wert =< GW
Wert > GW
Wert > GW+Tol

Wert =< GW
grau hinterlegt: Grenzwerte für Ökosysteme/Vegetation, hier nicht anwendbar

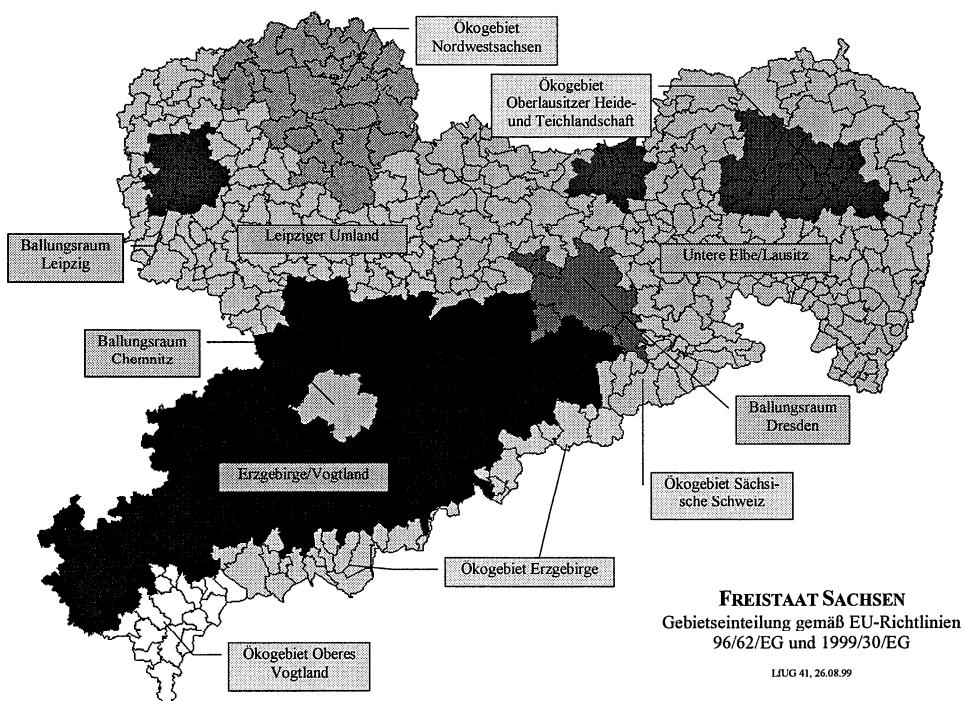


Abb. 1: Gebietseinteilung in Sachsen entsprechend der EU-Richtlinien

## Feinstaubbelastung

In Sachsen werden gegenwärtig zwei grundsätzlich unterschiedliche Verfahren zur Bestimmung der Staubbelastrung eingesetzt (Tab. 1).

Tab. 1: Eingesetzte Staubbmesstechnik in Sachsen

Analytik	Probenahme
<ul style="list-style-type: none"> <li>– <math>\beta</math>-Absorption</li> <li>– (FH-62-IN)</li> <li>– online-Messung</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>TSP</li> <li>(Luftdurchsatz: 1 m<sup>3</sup>/h)</li> </ul>
<ul style="list-style-type: none"> <li>Gravimetrie</li> <li>– High-Volume-Sampler (Digitel-DHA-80)</li> <li>– Laboranalyse</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li><math>PM_{10}</math></li> <li>(Luftdurchsatz: 30 m<sup>3</sup>/h)</li> </ul>

An allen Stationen des sächsischen Messnetzes werden mit  $\beta$ -Strahlen-Absorption zeitlich hochauflöste Daten zur Belas-

tung mit Gesamtstaub (TSP<sup>1</sup>) erhoben. Bei diesen Verfahren wird die Massenkonzentration der Partikel indirekt bestimmt: Die Partikel werden auf einem Filterband abgeschieden und ihre Masse radiometrisch (Änderung der  $\beta$ -Strahlenabsorption) ermittelt. Zusätzlich werden an ausgewählten Stationen jeden zweiten Tag Probenahmen mit High-Volume-Sammlern (HVS) durchgeführt.

Die Bestimmung der Partikelmasse erfolgt gravimetrisch durch Differenzwägung. Außer der Partikelmassenbestimmung ist eine Analyse des Materials auf organische und anorganische Inhaltsstoffe möglich, die im sächsischen Luftmessnetz routinemäßig für Blei, Cadmium, Nickel, Chrom, Arsen, Ruß sowie für eine Reihe von PAK durchgeführt wird. Bis Ende Januar 1999 wurden diese HV-Sammler auf  $PM_{10}$ -Probenahme umgestellt. Diese Umstellung wurde an mehreren Stationen mit Parallel-

<sup>1</sup> TSP= Total Suspended Particulate Matter (gesamtes luftgetragenes Partikelmateriel)

messungen begleitet, einerseits um Informationen über die Verteilung der unterschiedlichen Komponenten auf verschiedene Korngrößenfraktionen zu erhalten und andererseits zum Zwecke der Qualitätssicherung der HVS-Daten. Die Jahresbelastung für 1999 dieser Stationen wird in Abb. 2 dargestellt.

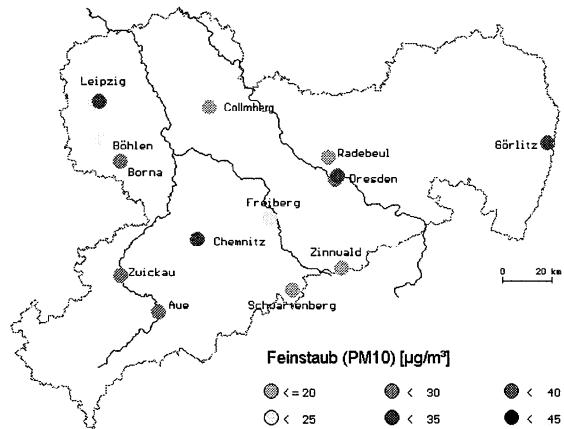


Abb. 2: Jahresmittelwerte der Feinstaubkonzentrationen in Sachsen 1999

Deutlich erkennbar ist, dass schon 1999 keine Überschreitung des Jahresschwergrenzwertes für die chronische Belastung vorliegt. Die größten Belastungen liegen erwartungsgemäß in den drei Ballungsräumen Leipzig, Chemnitz und Dresden an durch Verkehr beeinflussten Standorten sowie an weiteren Straßenstationen. Allerdings wird der Richtgrenzwert der Stufe II nur in den stadtfernen Stationen eingehalten.

Ein anderes Bild bietet die Analyse der Akutbelastung. Hier ist 1999 an drei Stationen an mehr als 35 Tagen der Tagesgrenzwert von  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  überschritten. Der Richtgrenzwert der Stufe II (7-malige Überschreitung) wird nur an 3 Stationen eingehalten.

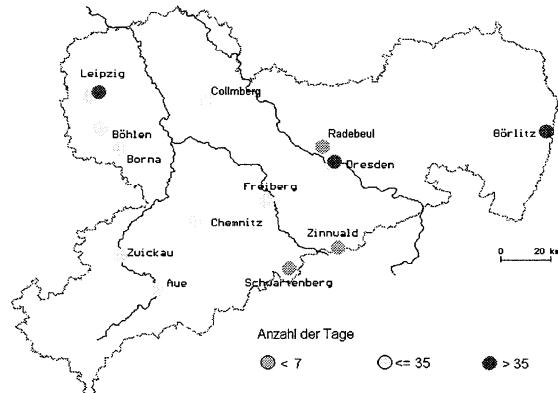


Abb. 3: Anzahl der Tage mit Tagesmittelwerten der Feinstaubkonzentration  $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  in Sachsen 1999

Generell ist eine lokale, grenzüberschreitende Belastung durch Feinstaub nicht zu erkennen.

#### Vergleich der eingesetzten Messtechniken

Hinsichtlich der Erhebung der Feinstaubbelastung lässt die EU-Richtlinie momentan eine Abschätzung über die TSP-Messung zu (Multiplikation mit Faktor 0,83). Da im sächsischen Messnetz auf Grund der bis Ende 1999 in Kraft befindlichen Wintersmogverordnung eine Online-Staubmessung notwendig war, wurde diese Möglichkeit für das sächsische Messnetz näher untersucht (OMKAS, 2000a). In einem ersten Schritt wurden die beiden Verfahren (Gravimetrie,  $\beta$ -Absorption) bei gleicher Probenahme (TSP) gegenübergestellt. Für diese Analyse stand ein Datensatz von 11 Stationen in der Zeit vom Januar 95 bis Dezember 98 zur Verfügung. In einem zweiten Schritt wurden die TSP-Messungen ( $\beta$ -Absorption) den  $\text{PM}_{10}$ -Messungen (HVS) gegenübergestellt. Hier betrug die zur Verfügung stehende Zeitspanne ein Jahr. Die Ergebnisse sind in Abb. 4 und 5 dargestellt.

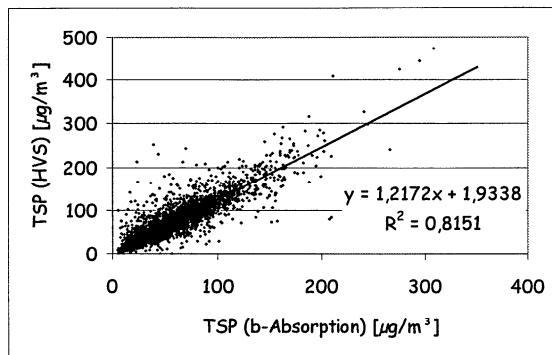


Abb. 4: Vergleich der Tagesmittelwerte der Partikelkonzentrationen TSP ( $\beta$ -Absorption) und TSP (HVS) (Stationen Aue, Böhlen, Borna, Chemnitz-Nord, Dresden-Mitte, Dresden-Nord, Freiberg, Görlitz, Leipzig-West, Radebeul-Wahnsdorf, Zinnwald; Zeitraum 1/95-12/98)

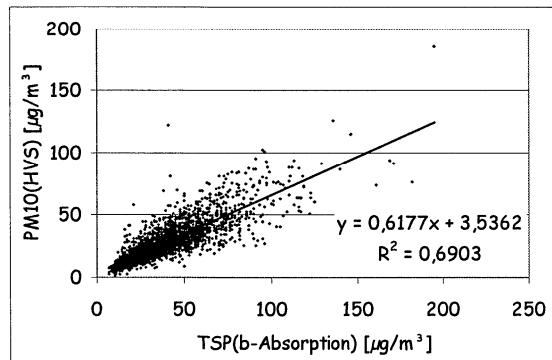


Abb. 5: Vergleich der Tagesmittelwerte der Partikelkonzentrationen TSP ( $\beta$ -Absorption) und PM<sub>10</sub> (HVS) (Stationen Aue, Borna, Chemnitz-Nord, Dresden-Mitte, Dresden-Nord, Freiberg, Görlitz; Zeitraum 2/98-12/99)

Im Ergebnis ergab sich eine mehr oder weniger befriedigende Korrelation bei der TSP-Probenahme zwischen den beiden Verfahren (Bestimmungsmaß  $R^2 = 0,82$ ), während bei der Messung der TSP-Gehalte ( $\beta$ -Absorption) und den PM<sub>10</sub>-Messungen (HVS) ein sehr viel schlechterer Zusammenhang bestimmt wurde (Bestimmungsmaß  $R^2 = 0,69$ ). Aufgeschlüsselt auf die einzelnen Stationen lagen die Bestimmungsmaße zwischen 0,61 und 0,78, so dass eine Abschätzung von PM<sub>10</sub> (HVS) – aus den TSP-Messungen als relativ unsicher eingeschätzt werden muss. Was diese Unsicherheiten hinsichtlich einer Auswer-

tung nach der neuen EU-Richtlinie bedeutet, zeigt Tabelle 3.

Tab. 3: Staubbelaustung in Sachsen 1999 (PM<sub>10</sub>, TSP und Verhältnisse)

Station	PM <sub>10</sub> (HVS) [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]	TSP (FAG) [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]	Abweichung zur Messung [%]	Verhältnis (PM <sub>10</sub> /TSP)
Görlitz	34	38	-5,9	0,89
D-Nord	34	45	8,8	0,75
C-Nord	32	50	31	0,64
L-Mitte	32	42	9,4	0,76
Zwickau	28	44	32	0,64
Borna	27	40	22	0,66
D-Post	26	39	23	0,66

In der Tabelle sind die sieben am höchsten belasteten Stationen des sächsischen Messnetzes mit ihrer Gesamtstaubbelaustung sowie der Feinstaubbelastung dargestellt, ebenso das Verhältnis PM<sub>10</sub>/TSP und die prozentuale Abweichung der Schätzungen von den gemessenen PM<sub>10</sub>-Konzentrationen. Die Abweichungen schwanken zwischen -5,9 % und 32 %, die Verhältnisse zwischen 0,66 und 0,89. Dies zeigt, dass bei diesem Vorgehen die Feinstaubbelastung in der Regel überschätzt wird, für sächsische Stationen bis zu 32 %.

### Anzahlgrößenverteilung von Partikeln

In verschiedenen Untersuchungen wurde ein deutlicher Zusammenhang zwischen der Partikelanzahlkonzentration und negativen gesundheitlichen Effekten beobachtet. Die Partikelmassenkonzentration als Maß für die potentielle Gefährdung des Menschen wurde dadurch in Frage gestellt. Da für Sachsen bislang kaum Daten für Partikelanzahlkonzentrationen und Anzahlgrößenverteilungen vorlagen, wurden im November/Dezember 1998 an einer Straßenstation in Chemnitz vier Wochen lang orientierende Messungen durchgeführt (Lenzen et al., 1999). Im Ergebnis dieser Messkampagne lässt sich folgendes festhalten:

Die Partikelfraktion  $PM_1$  enthielt nahezu die gesamte Partikelzahl (Tab. 4).

Tab. 4: Anzahlgrößenverteilung der Straßen-Messkampagne Nov./Dez. 1998 in Chemnitz

Partikelfraktion	Anzahlkonzentrationen der Partikel
$PM_1$	92000/cm <sup>3</sup>
$PM_{1-2,5}$	2,2/cm <sup>3</sup>
$PM_{2,5-10}$	0,4 cm <sup>3</sup>

Eine Analyse der Windrichtungsverteilung ergab, dass bei Windrichtung aus Richtung der Hauptverkehrsstraße hauptsächlich Partikel kleiner 0,6  $\mu\text{m}$   $d_{\text{ae}}$  (aerodynamischer Durchmesser) gemessen wurden. Die Analyse zeigte außerdem, dass die  $PM_1$  Partikelanzahlkonzentrationen in direkter Nähe zum Straßenverkehr gegenüber dem städtischen Hintergrund nochmals um etwa einen Faktor 1,7 höher war. Der mittlere Tagesgang der  $PM_1$  Anzahlkonzentration zeigte deshalb auch einen deutlichen Unterschied zwischen wochentags und sonntags (Abb. 6)

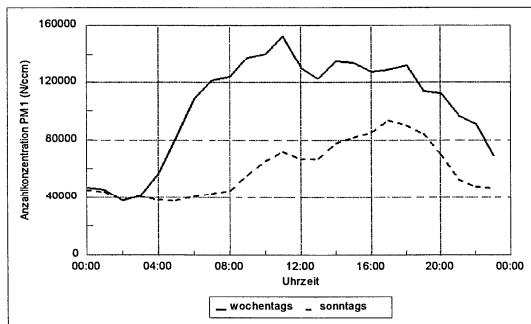


Abb. 6: Mittlerer Tagesgang der  $PM_1$ -Anzahlkonzentration (aus Lenzen et al., 1999)

Um zumindest einen ungefährten Bezug zum massenbezogenen Grenzwert herzustellen, wurde mit einer Reihe von Annahmen bezüglich der Partikeleigenschaften die Massenverteilung für die einzelnen Partikelfraktionen abgeschätzt. Hieraus ergab sich ein Massenanteil der  $PM_1$ -Fraktion von über 80 %. Diese Ergebnisse

unterstreichen die erhebliche Bedeutung des Straßenverkehrs für die Belastung der Luft mit Partikeln dieser Korngrößen.

### Korngrößenverteilung der Massenkonzentration von Partikeln, Schwermetallen und PAK

Um einen Überblick über die Korngrößenverteilung der Massenkonzentrationen und Inhaltsstoffe zu bekommen, wurden an zwei städtischen Standorten (Chemnitz-Nord, Dresden-Mitte) von Februar 98 bis Januar 99 parallel die beiden Partikelfraktionen TSP und  $PM_{10}$  gemessen (OMKAS, 2000b).

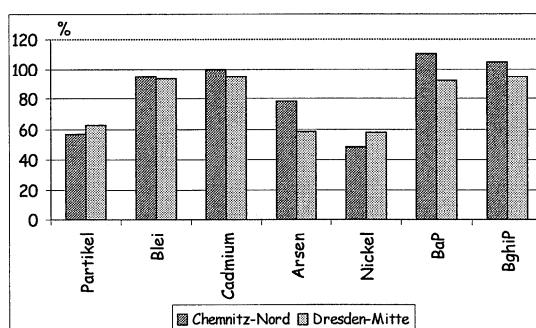


Abb.7: Anteil % der  $PM_{10}$ -Fraktion an den Massenkonzentrationen von Partikeln, Schwermetallen und PAK im TSP

Abb. 7 zeigt, dass der mittlere Anteil der Partikelmasse von  $PM_{10}$  an TSP zwischen 59 und 63 % lag. Während also ein wesentlicher Teil der Partikelmasse im Bereich der größeren Partikel zu finden war, war dies nur für die Schwermetalle Arsen und Nickel in ähnlicher Größenordnung der Fall. Für Blei, Cadmium und die PAK mit 5 oder mehr kondensierten Ringen betrug der mittlere Anteil der  $PM_{10}$  Fraktion an TSP mindestens 90 %. Einen weiteren Eindruck der Korngrößenverteilung vermitteln Parallelmessungen der Partikelfraktion  $PM_{10}$  und  $PM_{2,5}$ . Diese wurden vom Januar 1998 in Chemnitz-Nord und seit Februar 99 auch in den beiden anderen sächsischen Ballungsräumen an den Stationen Dresden-Mitte und Leipzig durchgeführt. Zusätzlich wurden Daten vom länd-

lichen Standort Schwartenberg (im Einflussbereich des Böhmischen Beckens) mit einbezogen. Hier wurden die Messungen im Oktober 1998 begonnen. Für die Massenkonzentration von Partikeln und ausgewählten Inhaltsstoffen ist der Median des Anteils von  $PM_{2,5}$  an  $PM_{10}$  in Abbildung 8 dargestellt. Datengrundlage war für die städtischen Standorte und die Partikelmassenkonzentrationen vom Schwartenberg das gesamte Jahr 1999, für die Messung der Inhaltsstoffe am ländlichen Standort dagegen nur die ersten 5 Monate 1999 (Abb. 8).

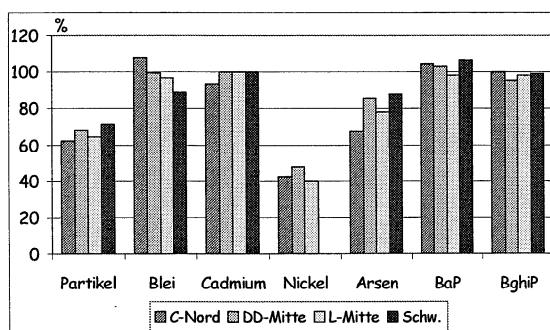


Abb. 8: Median der Anteile der  $PM_{2,5}$ -Fraktion an den Massenkonzentrationen von Partikeln, Blei, Cadmium und zwei PAK in der Fraktion  $PM_{10}$

An allen vier Standorten lagen etwa 60 bis 70 % der Partikelmasse im Größenbereich  $PM_{2,5}$  vor, wobei der ländliche Standort Schwartenberg den höchsten Wert aufwies. Nickel lag im Mittel zu etwa 40 %, Arsen zu 80 %, die Komponenten Blei und Cadmium sowie alle PAK mit 5 oder mehr kondensierten Ringen dagegen an allen Standorten mehr oder weniger vollständig in der Fraktion  $PM_{2,5}$  vor. Zusammenfassend kann festgehalten werden, dass an allen Standorten der Hauptteil der Inhaltsstoffe an den Feinpartikeln  $PM_{2,5}$  vorlag, wobei der Anteil der Schwermetalle etwas niedriger war als für die beiden PAK.

Die Spannbreite der Jahresmittelwerte an 13 Stationen für Massenkonzentration von Partikeln, Schwermetallen und partikelgebundenen PAK vermittelt Tab. 5. Die Pro-

benahme erfolgte im Januar 99 teilweise noch mit Ringspaltvorabschalter als TSP, ab 02/99 an allen Standorten als  $PM_{10}$ .

Tab. 5: Spannbreite der Jahresmittelwerte 1999 an sächsischen Messstationen für die Massenkonzentrationen von Partikeln, Schwermetallen, partikelgebundenen PAK und Ruß

Jahresmittelwerte	1999
$PM_{10}$	14-34
Partikel ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	14-34
Metalle ( $\text{ng}/\text{m}^3$ )	
Blei	9,6-36
Cadmium	0,17-0,91
Arsen	1,55-4,0
Nickel	0,90-6,1
Chrom	1,2-3,9
PAK ( $\text{ng}/\text{m}^3$ )	
Fluoranthen	0,26-0,84
Benz[a]anthracen	0,13-0,73
Chrysene	0,21-1,2
Benzo[b]fluoranthen	0,29-1,4
Benzo[k]fluoranthen	0,11-0,54
Benzo[a]pyren	0,16-0,79
Benzo[ghi]perlylen	0,22-1,1
Indeno[1,2,3,c,d]pyren	0,21-1,1
Dibenz[a,h]anthracen	0,030-0,090
Ruß ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	3,1-5,3

## Weitere Komponenten

Um einen Eindruck über die Rußbelastung in den Ballungsgebieten und Straßenstandorten des sächsischen Messnetzes zu bekommen, wurde die Komponente Ruß für das stationäre sächsische Messnetz untersucht. Die Stationen erfüllen nicht die Kriterien für einen 23. BImSchV-Messpunkt, bieten aber ein gutes Maß für die Schwankungsbereiche städtischer Verhältnisse (Abb. 9).

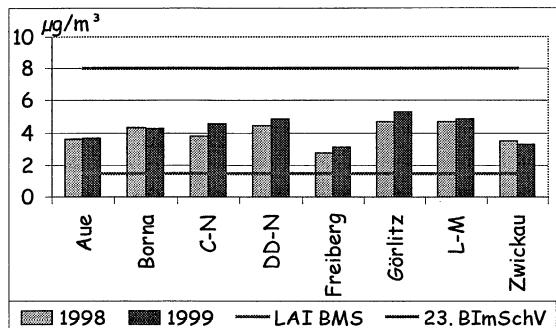


Abb. 9: Jahresmittelwert Werte für Ruß 1998 und 1999 im Vergleich zu Grenzwerten nach 23. BImSchV und LAI-Beurteilungswert

Erwartungsgemäß lagen die Konzentrationen unterhalb des Grenzwertes der 23. BImSchV von  $8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , aber um das zweibis dreieinhalfache über dem LAI-Beurteilungswert. PAK sind wie Ruß Produkte unvollständiger Verbrennungsprozesse. Als Kenngröße für die PAK Belastung wird häufig die bekanntermaßen krebserregende Einzelsubstanz Benzo[a]pyren herangezogen. Da die Substanz überwiegend im Bereich feiner Partikel liegt, sind auch Messungen in der Gesamtstaubfraktion aussagekräftig, d. h. TSP Messungen mit  $\text{PM}_{10}$  Messungen vergleichbar. Der LAI-Beurteilungswert für Benzo[a]pyren von  $1,3 \text{ ng}/\text{m}^3$  wurde den Jahresmittelwerten an Tschechischen und Sächsischen Stationen gegenübergestellt (Abb. 10).

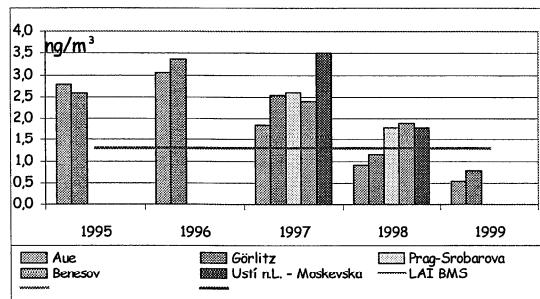


Abb. 10: Jahresmittelwert für Benzo[a]pyren im Vergleich mit dem LAI-Beurteilungswert

Während die tschechischen Stationen auch 1998 noch über der Beurteilungsschwelle lagen, ist seit 1996 ein kontinuierlicher Rückgang für die beiden höchstbelasteten

sächsischen Messpunkte zu verzeichnen. Der höchste für eine sächsische Station berechnete Mittelwert lag 1999 bei  $0,7 \text{ ng}/\text{m}^3$ , also deutlich unterhalb des LAI-Beurteilungswertes. Allerdings sind für Benzo[a]pyren Grenzwerte in der Diskussion, die sehr deutlich unterhalb dieses LAI-Wertes liegen.

## Literatur

CHMI (1998): Air Pollution and Atmospheric Deposition in Data.

EU-96/62/EG: Richtlinie 96/62/EG des Rates vom 27.09.1996 über die Beurteilung und die Kontrolle der Luftqualität.

EU-1999/30/EG: Richtlinie des Rates vom 22.04.1999 über Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffoxide, Partikel und Blei.

LAI (1992): Länderausschuss für Immissionsschutz: Beurteilungsmaßstäbe für krebserzeugende Luftverunreinigungen. Ministerium für Umwelt, Raumordnung und Landwirtschaft des Landes NRW.

LENZEN T., KUHLBUSCH T., JOHN A. UND FISSAN H. (1999): Anzahlgrößenverteilungen von Partikeln in einem Sächsischen Ballungsraum. Endbericht des Fachgebietes Prozess- und Aerosolmesstechnik der Universität Duisburg zum Forschungsprojekt im Auftrag des Sächsischen Landesamtes für Umwelt und Geologie.

OMKAS (2000a): Interreg II-Projekt des Sächsischen Landesamtes. Abschlussbericht Teilprojekt 3: Die Luftbelastung in Sachsen mit feinen Partikeln, Schwermetallen und polzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen. Dresden, März 2000.

OMKAS (2000b): Interreg II-Projekt des Sächsischen Landesamtes. Tagungsband zur Abschlussveranstaltung am 16.03.2000 in Dresden.

## **DISKUSSION UND AUSBLICK**



## 5 DISKUSSION UND AUSBLICK

**Bernd Seifert**  
**Umweltbundesamt, Berlin**

Meine Damen und Herren,

wir kommen nun an das Ende der Veranstaltung. Ich habe aus dem Verlauf der Vorträge und Diskussionen eine Reihe von offenen Fragen zusammengestellt und möchte mit Ihnen diese Liste noch einmal durchgehen. Gestern habe ich von dem Einen oder Anderen gehört: Jetzt haben wir mehr Unsicherheit als vorher. Nun, das ist das Wesen einer solchen Veranstaltung: überall, wo man einen tieferen Einblick in irgendetwas bekommt, entstehen gleichzeitig Zweifel an der Richtigkeit und der Gültigkeit dessen, was man bisher wusste.

Ich habe die offenen Fragen geordnet nach den Themenbereichen „Quellen“, „Wirkung“ und „Erfassung“ (Anmerkung: *Hier wurde die in Abbildung 1 wiedergegebene Folie aufgelegt*). Mit „offene Fragen“ ist dabei gemeint: An welchen Stellen bleibt uns was zu tun? Wir werden diese offenen Fragen zusammen durchgehen, um zu sehen, ob wir in der Einschätzung übereinstimmen, und bei Bedarf Änderungen oder Ergänzungen anbringen.

### Themenbereich „Quellen“

Wir haben noch nicht genügend sichere Informationen über die Emissionssituation. Um Informationen über PM<sub>10</sub> zu bekommen, behelfen wir uns noch mit dem Faktor 0,8, mit dem wir aus dem Gesamtstaub näherungsweise PM<sub>10</sub> berechnen („genauer“ gesagt, wird 0,83 benutzt). Zum Teil werden aber auch andere Faktoren verwendet, wie Herr Gräfe gezeigt hat. Bei der Erstellung von Zeitreihen über mehrere Jahre für dieselbe Meßstelle ist es sicher nicht von so ausschlaggebender Bedeutung, welcher Faktor gewählt wird. Beim Vergleich der Situation an verschiedenen Messstellen muss man aber bedenken, dass dieser Umrechnungsfaktor von Ort zu Ort schwankt.

Also: für PM<sub>10</sub> wissen wir wenigstens einiges, für PM<sub>2,5</sub> wissen wir schon viel weniger. Herr Wichmann hat am ersten Tag ein Tortendiagramm aus England gezeigt, in dem sogar die Emissionssituation für PM<sub>0,1</sub> dargestellt wurde. Auch diese Daten sind nur mehr oder weniger gut abgeschätzt.

Ganz wichtig ist die Frage nach den anteiligen Beiträgen der verschiedenen Quellen. Die – allerdings noch ausstehende – Antwort auf diese Frage ist von größter Bedeutung, da die Antwort uns sagen sollte, an welcher Schraube gedreht werden muss, um die niedrigen neuen Grenzwerte überhaupt zu erreichen.

Weiter: Was machen wir mit den diffusen Quellen? Es sieht so aus, als wären die Möglichkeiten zur Herabsetzung der über Schornsteine oder andere Abgaskanäle emittierten Stoffmengen aus stationären Quellen schon sehr weit ausgeschöpft und als blieben uns nur

noch begrenzte Möglichkeiten, hier weiter zu mindern. Welche Wege können eingeschlagen werden, um derartige diffuse Quellen in den Griff zu bekommen? Herr Bruckmann hat in diesem Zusammenhang über die Einrichtung eines Gesprächskreises mit der Industrie in Nordrhein-Westfalen berichtet, wo nach Lösungen gesucht werden soll. Auch der Verkehr leistet einen wichtigen Beitrag zu den diffusen Quellen.

Schließlich: Wie sollen wir mit dem sekundären Aerosol umgehen? Wir wissen, dass das sekundäre Aerosol nur durch ganz andere Maßnahmen reduziert werden kann als das primäre Aerosol, dass es aber beim Feinstaub immerhin großenordnungsmäßig etwa die Hälfte der Gesamtkonzentration ausmacht.

Dieses waren die Fragen, die sich als die bedeutenderen unter dem Stichwort „Quellen“ ergeben haben. Ich bitte um Ihre Bemerkungen hierzu.

*Aus der Diskussion:*

*(Lenschow, Berlin): Wir geben bislang die Emissionen als Gesamtmasse an. Ich denke aber, es wäre sehr gut, wenn nicht nur bei den Verkehrsemissionen auch der Kohlenstoffgehalt der Emissionen mit angegeben würde. Wir haben durch die 23. Verordnung zum Bundes-Immissionsschutzgesetz ein gut eingeführtes Kohlenstoffmessprogramm und sollten, wenn es möglich ist, auf der Emissionsseite ähnliche Angaben haben wie auf der Immissionsseite, weil das sehr helfen würde, die Beziehung zwischen Emission und Immission besser zu verstehen. Ich weiß nicht, ob dieser Wunsch erfüllbar ist. Ich möchte doch aber wenigstens die Anregung gegeben haben.*

*(Müller, Hannover): Sie haben die Emissionssituation für  $PM_x$  angesprochen. Ich denke, man sollte das ergänzen durch Daten zur Emissionssituation für die Vorläuferstoffe des sekundären Aerosols, d.h. also z.B. für Niedersachsen die Emission von Ammoniak im landwirtschaftlichen Bereich, um herauszufinden, welche Emissionen gegebenenfalls begrenzt werden können, auch dies unter dem Gesichtspunkt der Minderungspotentiale.*

*(Lange, Bonn): Beziüglich der Maßnahmen ist es eine wichtige Frage, wie man bestimmte Emissionen bestimmten Quellen konkret zuordnen kann. Dieses Problem besteht ja weniger, wenn wir eine definierte Quelle haben, als dann, wenn wir Mischemissionen haben, also aus mehreren Quellen etwas kommt.*

*(Kutzner, Berlin, an Müller, Hannover): Kann man oder wie kann man die standardisierte Ausbreitungsrechnung als Instrument der Quellenzuordnung einsetzen?*

*(Müller, Hannover): Ohne die Kenntnis der Vorläufersubstanzen auf der Emissionsseite ist dies kaum möglich.*

## Themenbereich „Wirkungen“

Uns fehlt noch eine ganze Menge an Informationen über Wirkmechanismen. Herr Heinrich hat diesen Komplex sehr schön vorgestellt, aber mit Sicherheit ist da noch einiges offen.

Welche PM-Parameter sind wirkungsseitig so bedeutend, dass sie in der Luft erfasst werden sollen? Mit Sicherheit soll zunächst  $PM_{10}$  gemessen werden, dies verlangt ja auch die EU-Richtlinie. Über die Bedeutung und künftige Verpflichtung zur Messung von  $PM_{2,5}$  (vielleicht sogar auch von noch kleineren Fraktionen wie  $PM_1$ ) besteht noch keine Klarheit. Und dann stellt sich noch die Frage nach der Bedeutung des Parameters „Teilchenzahl“. Wir brauchen sicher weitere Daten von anderen Stationen in Deutschland als nur Erfurt, und zwar gleichzeitig für die verschiedenen genannten Parameter einschließlich der Partikelzahl, und dies über eine längere Zeit hinweg. Dieses Thema ist hier unter „Wirkungen“ angesprochen, aber natürlich gehört es nicht nur hierher, sondern auch in den Themenbereich „Erfassung“.

Wir beschäftigen uns bei dieser Veranstaltung zwar mit Feinstaub, also dem in der Luft schwebenden Anteil des Staubes, aber überlegen müssen wir auch noch einmal, ob wir die etwas größeren Partikel, speziell die sedimentierenden, einfach außer Acht lassen können. Es ist Ihnen vielleicht bekannt, dass die deutschen Vertreter bei den Beratungen über die 1. Tochterrichtlinie in Brüssel versucht haben, einen Grenzwert für Blei-Niederschlag einzubringen. Dies ist misslungen. Ein erneuter Versuch läuft derzeit in der EU-Arbeitsgruppe für Arsen, Cadmium und Nickel am Beispiel von Cadmium.

Eng gekoppelt mit der Bedeutung der größeren Partikel und der Frage des Staubbiederschlags ist die wirkungsseitige Bedeutung von Staubinhaltsstoffen, also z.B. von Schwermetallen, ionischen Bestandteilen, Ammonium, Nitrat und Sulfat. Auch darauf ist Herr Heinrich in seinem Vortrag eingegangen.

### *Aus der Diskussion:*

*Die Diskussion ergab keine neuen Gesichtspunkte über die in Abbildung 1 formulierten Fragen hinaus. Es wurde lediglich eine (unbeantwortet gebliebene) Frage nach der wirkungsseitigen Bedeutung des Unterschieds zwischen wasserlöslicher und nicht löslicher Fraktion gestellt.*

## Themenbereich „Erfassung“:

Wie Sie sehen, ist als Titel hier – und mit Bedacht – „Erfassung“ gewählt worden und nicht „Messtechnik“.

Wir brauchen sicher einen Konsens über messtechnische Fragen, also über die Art der zu messenden Parameter (u.a. Masse pro Volumen oder Teilchenzahl pro Volumen) und die einzusetzenden Messgeräte. Eines der Themen aus der Messtechnik ist z.B. auch die

verlustfreie Messung von Schwebstaub bei erhöhter Außentemperatur oder höherer Temperatur am Messgerät.

Über die reine Messtechnik hinaus ist aber nach Inkrafttreten der 1. Tochterrichtlinie auch eine etwas andere Art der Erfassung von großer praktischer Bedeutung, nämlich die gegenseitige Ergänzung von Messung und Modellierung. Bei der Vorbereitung dieser Veranstaltung fiel es allerdings schwer, in unserem Lande mehr als nur einige wenige Personen zu finden, die einen Überblick über beides, also Messung und Modellierung, haben. Wir brauchen eine bessere Kooperation zwischen Modellierern und Messtechnikern in der Praxis. Ich selbst komme aus der Messtechnik und habe lange Jahre die Modellierer kritisiert wegen mancher Angaben, die mit einem Fehlerbereich in einer Größenordnung von  $\pm 100\%$  behaftet sind. Aber ebenso werfen die Modellierer den Messtechnikern vor, dass sie Ressourcen einsetzen, um die letzten kleinen Prozentchen noch „herauskitzeln“ zu wollen.

Aus meiner Sicht gibt es hier noch keine ausreichend gute Zusammenarbeit. Wir haben, wie gesagt, nur wenige in unserem Land, die mit beiden Aspekten gut vertraut sind. Wenn wir die Vorgaben der Tochter-Richtlinien sinnvoll und mit einem nicht zu großen Aufwand erfüllen wollen – und ich sage es noch einmal –, dann müssen Modellierer und Messtechniker viel enger zusammenarbeiten, als dies bei uns bisher geschieht. In manchen Nachbarländern ist man da wohl schon etwas weiter.

*Aus der Diskussion:*

*(Müller, Hannover): Die Betonung muß auf dem Team liegen, dem Team aus Modellierern und Messtechnikern. Es gibt derzeit praktisch für die Validierung der Modelle keine Daten, die so aufbereitet sind mit allen Randinformationen, dass man sie dann für die Validierung nutzen kann. In den USA gibt es die Supersites, dies vielleicht als Anregung, auch für die UBA-Stationen oder die Länder.*

*(Baumbach, Stuttgart): Ein anderes Problem liegt im Aufbau der Modelle. Es sind im allgemeinen prognostische Modelle, sie berechnen aus Randbedingungen Strömungsfelder, und dann werden die Emissionsdaten eingegeben, und es wird die Verteilung berechnet. Bei der Validierung schaut man dann, ob es so hinkommt. Eigentlich sind diagnostische Modelle nötig, in die jeder einzelne Messwert eingeht, in die viele Messdaten eingefüllt werden, also statistische Modelle, die auch Jahreswerte rechnen usw. Dazu gibt es derzeit nur Ansätze.*

*(NN) Wir bekommen aus den Modellen nur 24-Stunden-Werte, aber keinen Tagesgang. Wäre es einfacher für die Quellenfindung und -zuordnung, wenn der Tagesgang bekannt wäre? Besonders zur Quellenfindung bei Überschreitungen der Grenzwerte?*

*(Bruckmann, Essen): Zur Frage von Teilchenmasse oder -zahl. Nichts gegen die Messung der Teilchenzahl an einigen Stationen. Aber wenn Grenzwerte über Partikelzahlen definiert würden, müßte das ganze Regelungssystem umgestellt werden, dies würde auch einen erheblichen Einfluß haben auf die Emissionsdaten, die Kataster und alles, was man für das*

*Management braucht, auch auf Wirkungsuntersuchungen und Modellrechnungen. Dies wäre ein vollständiger Paradigmenwechsel.*

*(Seifert, Berlin): Ja, deshalb wurde dies auch in allen drei Themenfeldern angesprochen. Ein solcher Paradigmenwechsel kann natürlich nicht morgen kommen und auch sicher nicht im Jahr 2005. Wir können hier keine Lösung anbieten, sollten dies aber in der Debatte halten. Wir würden sonst immer vorgehalten bekommen, ihr kümmert euch nicht um das, was gesundheitlich relevant ist. Wir brauchen mehr Information, um besser beantworten zu können, was von Bedeutung ist. Wir müssen auch sorgfältig abwägen, ob wir von  $PM_{10}$  auf  $PM_{2,5}$  gehen. Die EU-Arbeitsgruppe hat sehr gut daran getan, nicht gleich wie die USA auf  $PM_{2,5}$  zu gehen.*

*(Müller, Hannover): Ein Parameter, der in den USA miterfasst wird, ist die Sichtweite, da gibt es Regelungen für Nationalparks etc. Auch für die Landwirtschaft und unter dem Stichwort "Global Change" ist die Sichtweite eine wichtige Einflussgröße.*

*(Seifert, Berlin): Viele Konzentrationswerte in den USA, die als "PM<sub>2,5</sub>-Werte" bezeichnet werden, wurden allerdings nicht gemessen, sondern aus der Sichtweite berechnet.*

*(Gräfe, Radebeul): Wenn der Trend aus den Messungen in Erfurt (d.h. bei Abnahme der massenbezogenen Konzentration eher eine Zunahme der Teilchenzahl) richtig ist, dann müssen wir auch emissionsseitig die Teilchenzahl überwachen. Sonst fehlt uns die Basis für Aussagen, wenn sich die Wirkungsleute irgendwann einmal geeinigt haben werden.*

*(Seifert, Berlin): Es gibt Stimmen, die sagen, wir machen einen grundsätzlichen Fehler, indem wir zu viele Teilchen eliminieren und damit das Spektrum zu kleineren Teilchen hin verschieben, und wir würden uns noch wundern, was damit anrichten. Solche Argumente spielen z.B. bei der Diskussion um den Katalysator eine Rolle.*

#### Weiteres Thema:

Die EU-Tochterrichtlinie handelt auch den Parameter Feinstaub nur unter dem Gesichtspunkt der Außenluftbelastung ab und berücksichtigt dadurch nicht die gesamte Exposition über den Luftpfad. Die inhalative Exposition des Menschen erfolgt bekanntlich sowohl über die Außen- als auch über die Innenluft. Sie ist definiert als Konzentration x Zeit, so dass bei Annahme von linearen Modellen ein einstündiger Aufenthalt bei  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$  einem zehnständigen Aufenthalt bei  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  entspricht. Die Ergebnisse von Raumluftmessungen zeigen, dass die Konzentrationen in Innenräumen sich von denen an der Außenluft, also dort, wo ein stationäres Messgerät steht, unterscheiden. Wir haben ein großes Regulierungsinstrumentarium für die Außenluft, aber für die Innenraumluft haben wir keine solchen Regelungen. Mit der Verwendung des Stichwortes „Exposition“ wollte ich die Aufmerksamkeit auf Folgendes lenken: wir dürfen über der Beschäftigung mit der Außenluft die Innenraumluft nicht vergessen, und in dieser Hinsicht vermitteln die Messwerte außen vielleicht nicht das richtige Bild.

In den 70er Jahren gab es in Nordenham Schwierigkeiten mit Blei. In der Bleihütte waren zwar auch Filter kaputt, was kurzfristig zu erhöhten Emissionen führte, aber der Hauptgrund für die erhöhten Blutbleispiegel war (in Nordenham und ebenso an anderen Orten) nicht die Luftkonzentration, sondern der Eintrag über andere Pfade: Väter, die in der Bleihütte arbeiteten, brachten mit der Kleidung Bleistaub in die Wohnung, im Hausstaub war viel Blei, es gab Abraumhalden vor der Tür. Dies war alles kein Feinstaub, sondern es waren gröbere, sichtbare Teilchen. Auch daraus also die Lehre: Neben dem Feinstaub dürfen wir die größeren Teilchenfraktionen nicht vergessen.

Zur Überarbeitung der Tochter-Richtlinie bis Ende 2003. Die Frage ist: wie erarbeiten wir die deutsche Position dazu?

*(Lange, Bonn): Diese Veranstaltung war ein wichtiger Baustein dazu. Wir wollen die Daten und Informationen zusammenstellen mit Unterstützung der Bundesländer, das, was gestern und heute hier besprochen wurde, in die entsprechenden Gremien einbringen. Wie das im Detail geschehen kann, wird sich zeigen.*

Ich möchte die Diskussion beenden mit einem herzlichen Dank für Ihre Teilnahme und einem Dank an die Referenten. Wir haben diese Veranstaltung gerne fachlich organisiert; wenn ich „wir“ sage, dann meine ich vor allem die Herren Mücke, Englert und Laskus aus dem Hause. Mein Dank geht auch an den Verein für Wasser-, Boden- und Lufthygiene, vor allem an Herrn Nobis-Wicherding, für die organisatorische Abwicklung.

Wir werden die Entwicklung aufmerksam verfolgen und, wenn möglich, eine Anschlussveranstaltung zu gegebener Zeit folgen lassen. Zur Aufarbeitung haben wir die Vortragenden um ihre Folien gebeten und möglichst auch um eine kurze Zusammenfassung. Es ist vorgesehen, daraus einen Tagungsband zusammenzustellen.

Ich möchte schließen mit meinem ganz besondern Dank an Herrn Lahmann, den ich gestern schon ausgesprochen habe. Es ist mir ein Bedürfnis, dies heute noch einmal zu wiederholen: das Gebäude des Wissens, in dem wir hier leben, allen voran die Mitarbeiterinnen und Mitarbeiter Ihrer ehemaligen Abteilung, ruht auf den Säulen, die Sie, Herr Lahmann, in den vergangenen Jahrzehnten errichtet haben. Dafür bedanken wir uns herzlich bei Ihnen und wünschen Ihnen weiter alles Gute.

Ihnen allen wünsche ich eine gute Heimreise.

**Abbildung 1: Stand vor der Diskussion**  
(für den Stand nach der Diskussion siehe Abbildung 2)

## **Abschlussdiskussion: Offene Fragen**

### Quellen

- Emissionssituation für (PM-10), PM-2,5 und kleiner
- Beiträge der verschiedenen Quellen (Quellzuordnung; wichtig für emissionsmindernde **Maßnahmen** !)
- Erfassung und Minderung von diffusen Quellen
- Abgrenzung primäres vs. sekundäres Aerosol

### Wirkung

- Mechanismen der Wirkung von Feinstaub
- Was ist für die Wirkung bedeutsamer: Teilchenmasse (PM-10, PM-2,5, PM-1) oder (oder "und"?) Teilchenzahl?
- Bedeutung von groben Partikeln/Staubniederschlag
- Bedeutung von Staubinhaltsstoffen

### Erfassung

- Konsens über messtechnische Fragen steht noch aus (Teilchenmasse, Teilchenzahl)
- Verlustfreie Messung von PM
- Gegenseitige Ergänzung von Messung und Modellierung
- Modellrechnungen in der Praxis  
(Kooperation Modellierer/Messtechniker verbesserungsfähig)

### Weiteres

- Wie verhält sich Außenluftmessung zur tatsächlichen Exposition ?

## Abbildung 2: Stand nach der Diskussion

### Abschlussdiskussion: Offene Fragen

#### Quellen

- Emissionssituation für (PM<sub>10</sub>, PM<sub>2,5</sub> und kleiner)
- Beiträge der verschiedenen Quellen (Quellzuordnung; wichtig für emissionsmindernde Maßnahmen !)
- Erfassung und Minderung von diffusen Quellen
- Abgrenzung primäres vs. sekundäres Aerosol

Weiter Punkte aus der Diskussion:

- C-Gehalt von Emissionen angeben
- Information über Emissionen von Vorläufer-Stoffen für PM bereitstellen (z.B. NH<sub>3</sub>-Emissionen)

#### Wirkung

- Mechanismen der Wirkung von Feinstaub
- Teilchenmasse (PM<sub>10</sub>, PM<sub>2,5</sub>, PM<sub>1</sub>) oder (oder "und"?) Teilchenzahl?
- Bedeutung von groben Partikeln/Staubniederschlag
- Bedeutung von Staubinhaltsstoffen

Aus der Diskussion: - wasserlöslichen Anteil erfassen?

#### Erfassung

- Konsens über messtechnische Fragen (Teilchenmasse, Teilchenzahl)
- Verlustfreie Messung von PM
- Gegenseitige Ergänzung von Messung und Modellierung
- Modellrechnungen in der Praxis (Kooperation Modellierer/Messtechniker)

Aus der Diskussion: - Messung der Sichtweite

#### Weiteres Thema

- Außenluftmessung und tatsächliche Exposition

## **ANNEX 1**

### **TAGUNGS-PROGRAMM**



## Tagungs-Programm

**Montag, 26. Juni 2000**

11.00 Uhr **Eröffnung und Begrüßung**

Nobis-Wicherding

**Einführung**

Seifert

**Sektion: Wirkungen und Bewertung von Feinstaub, Teil 1**

Leitung: Wichmann

11.30 Uhr **Gesundheitsbezogene Grundlagen der Ableitung**

**der neuen EU-Grenzwerte**

Englert

11.50 Uhr **Die Ergebnisse der Schweizer Monetarisierungsstudie**

Künzli

12.10 Uhr **Diskussion**

**Mittagspause**

**Sektion: Wirkungen und Bewertung von Feinstaub, Teil 2**

Leitung: Englert

14.00 Uhr **Neue Erkenntnisse der Epidemiologie,**

**Bedeutung von Nanopartikeln**

Wichmann

14.20 Uhr **Mögliche Wirkungsmechanismen von Dieselruß**

**und anderen Partikeln**

Heinrich

14.40 Uhr **Diskussion**

15.10 Uhr **Kaffeepause**

**Sektion: Ansätze zur Minderung von Feinstaub-Emissionen**

Leitung: Kutzner

15.40 Uhr **Entstehung und Quellen der Feinstaub-Emissionen**

Remus

16.00 Uhr **Partikelemissionen des Straßenverkehrs – Was ist noch zu tun?**

Rodt

16.20 Uhr **Diskussion**

17.00 Uhr **Empfang**

**Dienstag, 27. Juni 2000**

**Sektion: Möglichkeiten der Erfassung  
von Feinstaubkonzentrationen**  
Leitung: Bruckmann

09.00 Uhr	<b>CEN-Felduntersuchungen zur Standardisierung von PM<sub>10</sub> und PM<sub>2,5</sub> Messverfahren</b> Laskus
09.20 Uhr	<b>Zuordnung von Immissionen zu Quellen</b> Lenschow
09.40 Uhr	<b>Kombination Messung und Modellierung</b> Müller
10.00 Uhr	<b>Diskussion</b>
10.20 Uhr	<b>Kaffeepause</b>
	<b>Sektion: Beispiele für die Umsetzung der Anforderungen der EU-Tochter-Richtlinie (Immissionslage, Messaktivitäten, Überlegungen zu Minderungsstrategien)</b> Leitung: Seifert
10.50 Uhr	<b>Allgemeine Einführung, Situation in Nordrhein-Westfalen als überregionaler Ballungsraum</b> Bruckmann
11.20 Uhr	<b>Situation in Berlin als regionaler Ballungsraum</b> Kutzner/Abraham
11.50 Uhr	<b>Diskussion</b>
	<b>Mittagspause</b>
13.30 Uhr	<b>Situation in Hessen als Mischgebiet</b> Jacobi
14.00 Uhr	<b>Situation in Sachsen als Grenzregion</b> Gräfe
14.30 Uhr	<b>Diskussion und Ausblick</b>
15.00 Uhr	<b>Ende der Veranstaltung</b>

## **ANNEX 2**

### **TEILNEHMER-VERZEICHNIS**



## TEILNEHMER-VERZEICHNIS

**Prof. Karl Aurand**

Marinesteig 8  
14129 Berlin

**Dr. Hans-Jürgen Abraham**

Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Bauen, Wohnen, Verkehr und Umweltschutz  
Brückenstr. 6  
10179 Berlin

**Prof. Dr.-Ing. Günter Baumbach**

Institut für Verfahrenstechnik und Dampfkesselwesen der Universität Stuttgart  
Pfaffenwaldring 23  
70569 Stuttgart

**Dipl.-Ing. (FH) Klaus Beckert**

Meßtechnik für Luft und Umwelt GmbH  
Belfortstr. 4  
45138 Essen

**Dr. Horst Borchert**

Westring 159  
55120 Mainz

**Dr. Paul J.A. Borm**

Auf m Hennekamp 50  
40225 Düsseldorf

**Gerd Börner**

Thüringer Landesanstalt für Umwelt  
Prüssingstr. 25  
07745 Jena

**Prof. Dr. Peter Bruckmann**

Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen, Abt. Umweltüberwachung  
Wallneyer Str. 6  
45133 Essen

**Dr. Manfred Buck**

Gyrenkampstr. 5  
45239 Essen

**Dr. Dr. Eltjo Buringh**

RIVM  
Antonie van Leuvenhoeklaan 9  
P.O. Box 1  
NL-3720 BA Bilthoven

**Dr. Stefan Carli**  
VW-Konzernforschung  
K-EFUT / 1774 / 2  
38436 Wolfsburg

**Uwe Dombrowsky**  
Staatliches Amt für Umwelt und Natur  
Blücherstr. 8  
19366 Lübz

**Horst Diekmann**  
Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Bauen, Wohnen, Verkehr und Umweltschutz  
Brückenstr. 6  
10179 Berlin

**Anja Dreiseidler**  
Institut für Verfahrenstechnologie und Dampfkesselwesen der Universität Stuttgart  
Pfaffenwaldring 23  
79569 Stuttgart

**Georg Eberwein**  
Medizinisches Institut für Umwelthygiene der HH-Universität Düsseldorf  
Universitätsstr. 1  
40225 Düsseldorf

**Dieter Eickelpasch**  
UMT  
Derner Str. 223  
44339 Dortmund

**Dr. Gabriele Ellsäßer**  
Landesamt für Soziales und Versorgung  
Postfach 10 07 63  
03007 Cottbus

**Dr. Norbert Englert**  
Umweltbundesamt, FG Umwelthygiene und Umweltmedizin, gesundheitliche Bewertung  
Corrensplatz 1  
14195 Berlin

**Dr. Hermann Fromme**  
BBGes / Institut für Umweltanalytik und Humantoxikologie  
Invalidenstr. 60  
10557 Berlin

**Gotthard Gietl**  
Bayerisches Landesamt für Umweltschutz  
Bürgermeister-Ulrich-Str. 160  
86179 Augsburg

**Dr. Alfred Glocker**

Bayerisches Staatsministerium für Landesentwicklung und Umweltfragen  
Rosenkavalierplatz 2  
81925 München

**Dr. Kurt Gräfe**

Nordmarkstr. 7  
22047 Hamburg

**Dipl.-Ökol. Heinz Gräfe**

Sächsisches Landesamt für Umwelt und Ökologie, Abt. Luft, Lärm, Strahlen  
Altwahnsdorf 12  
01445 Radebeul

**Prof. Dr. Klaus Grefen**

Kommission Reinhaltung der Luft im VDI und DIN  
Robert-Stolz-Str. 12  
40070 Düsseldorf

**Dipl.-Ing. Andreas Hainsch**

Technische Universität Berlin  
Straße des 17. Juni 135  
10623 Berlin

**Dr. Siegfried Häntzsch**

Berkaer Str. 16  
14193 Berlin

**Prof. Dr. Uwe Heinrich**

Fraunhofer-Institut für Toxikologie und Aerosolforschung  
Nikolai-Fuchs-Str. 2  
30625 Hannover

**Caroline Herr**

Institut für Hygiene und Umweltmedizin der Universität Giessen  
Frierichstr. 16  
35385 Giessen

**Jochen Herr**

Institut für Hygiene und Umweltmedizin der Universität Giessen  
Friedrichstr. 16  
35385 Giessen

**Dr. Martina Herrmann**

Landesamt für Umwelt, Naturschutz und Geologie  
Goldberger Str. 12  
18273 Güstrow

**Joachim Hipp**  
Gesundheitsamt Landkreis Potsdam-Mittelmark  
Niemöllerstr. 1  
14806 Belzig

**Ulrich Hirsch**  
Staatliches Umweltfachamt Chemnitz  
Postfach 10 23  
09010 Chemnitz

**Mario Hopf**  
Sächsische Landesuntersuchungsanstalt für Gesundheits- und Veterinärwesen  
Zschopauer Str. 87  
09111 Chemnitz

**Dr. Claudia Hornberg**  
Institut für Hygiene der Universität Münster  
Robert-Koch-Str. 41  
48149 Münster

**Dr. Stefan Jacobi**  
Hessische Landesanstalt für Umwelt und Geologie  
Postfach 32 09  
65022 Wiesbaden

**Helmut Jänicke**  
Gesundheitsamt Merseburg  
Christiansenstr. 23  
06217 Merseburg

**Dr. Dirk Jürgens**  
Ministerium für Umwelt, Natur und Forsten  
Mercatorstr. 3  
24106 Kiel

**Dr. Klaus Kamm**  
Landesanstalt für Umweltschutz  
Griesbachstr. 1  
76185 Karlsruhe

**Rainer Kapp**  
Amt für Umweltschutz Stuttgart  
Gaisburgstr. 4  
70185 Stuttgart

**Eva Kaspar**  
Arndtstr. 19  
10965 Berlin

**Sabine Kirschner**  
Staatliches Umweltfachamt Chemnitz  
Postfach 10 23  
09010 Chemnitz

**Frank Klose**  
TÜV Hannover / Sachsen-Anhalt e.V., Bereich Umweltschutz  
Am TÜV 1  
30519 Hannover

**Dr. Eckehard Koch**  
Ministerium für Umwelt, Raumordnung, Landwirtschaft und Verbraucherschutz NRW  
Schwannstr. 3  
40476 Düsseldorf

**Ingrid Köth-Jahr**  
Ministerium für Umwelt, Raumordnung, Landwirtschaft und Verbraucherschutz NRW  
Schwannstr. 3  
40476 Düsseldorf

**Dr. Martin Kühne**  
Landesumweltamt Brandenburg  
Am Nordrand 45  
03044 Cottbus

**Dr. Dr. Nino Künzli**  
Abt. für Sozial- und Präventivmedizin der Universität Basel  
Steingraben 49  
CH-4051 Basel

**Dr. Klaus Kutzner**  
Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Bauen, Wohnen, Verkehr und Umweltschutz  
Brückenstr. 6  
10179 Berlin

**Prof. Dr. Erdwin Lahmann**  
Schützallee 136  
14169 Berlin

**Thomas Lahrz**  
Berliner Betrieb für zentrale gesundheitliche Aufgaben BBGes  
Invalidenstr. 60d  
10557 Berlin

**Udo Lambrecht**  
IFEU Institut Heidelberg  
Wilckenstr. 3  
69120 Heidelberg

**Karlheinz Lange**  
Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit  
Bernkasteler Str. 8  
53048 Bonn

**Dr. Michael Lange**  
Umweltbundesamt  
Bismarckplatz 1  
14195 Berlin

**Prof. Dr. Henning Lange-Asschenfeldt**  
Bundesministerium für Gesundheit  
Mauerstr. 66  
10117 Berlin

**Dr. Lothar Laskus**  
Umweltbundesamt, FG Messverfahren für die Luftreinhaltung  
Corrensplatz 1  
14195 Berlin

**Herbert Lenk**  
Regierungspräsidium Freiburg  
Bertoldstr. 43  
79083 Freiburg

**Dipl.-Met. Peter-Michael Lenschow**  
Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Bauen, Wohnen, Verkehr und Umweltschutz  
Brückenstr. 6  
10172 Berlin

**Dr. Gunter Löschau**  
Sächsisches Landesamt für Umwelt und Gesundheit  
Zur Wetterwarte 11  
01101 Dresden

**Christian Matzner**  
OPSIS AB  
Box 244  
S-24402 Furulund

**Dr. Günter Mezger**  
Ministerium für Umwelt und Verkehr Baden-Württemberg  
Kernerplatz 9  
70182 Stuttgart

**Dr. Heinz-Jörn Moriske**  
Umweltbundesamt, FG Gesundheitsbezogene Exposition, Innenraumhygiene  
Corrensplatz 1  
14195 Berlin

**Dr. Hans-Guido Mücke**  
Umweltbundesamt, WHO-Zentrum (Luft)  
Corrensplatz 1  
14195 Berlin

**Dipl.-Met. Wolfgang J. Müller**  
Niedersächsisches Landesamt für Ökologie  
Göttinger Str. 14  
30449 Hannover

**Dr. Friederike Neisel**  
Niedersächsisches Landesgesundheitsamt  
Roeßebeckstr. 4-6  
30449 Hannover

**Wilfried Neumann**  
Hygieneinstitut Cottbus GmbH  
Thiemstr. 104  
03050 Cottbus

**Dr. Günther Noll**  
Landesamt für Umweltschutz  
Reideburger Str. 47  
06116 Halle

**Manfred Ogris**  
BM für Umwelt  
Stubenbastei 5  
A-1010 Wien

**Dr. Antoon Opperhuizen**  
RIVM  
Antonie van Leuvenhoeklaan 9  
P.O. Box 1  
NL-3720 BA Bilthoven

**J. Osmers**  
Senator für Bauen und Umwelt Bremen  
Birkenstr. 34  
28195 Bremen

**Klaus Pabel**  
OPSIS GmbH (Umweltmesssysteme)  
Hauptstr. 169  
50226 Frechen

**Paul Pernak**  
Ing.-Büro Dr. Fechter GmbH  
Seestr. 64-67  
13347 Berlin

**Dr. Markus Pesch**

Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Bauen, Wohnen, Verkehr und Umweltschutz  
Brückenstr. 6  
10179 Berlin

**Dr. Markus Piloty**

Berliner Betrieb für zentrale gesundheitliche Aufgaben  
Invalidenstr. 60d  
10557 Berlin

**Prof. Dr. Friedrich Pott**

Zauberkuhle 14  
51381 Leverkusen

**Andrea Quenzer**

Akademie für öffentliches Gesundheitswesen  
Auf m Hennekamp 70  
40225 Düsseldorf

**Knut Rauchfuss**

Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen  
Wallneyer Str. 6  
45133 Essen

**Wolfgang Reichenbächer**

Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Bauen, Wohnen, Verkehr und Umweltschutz  
Brückenstr. 6  
10179 Berlin

**Dipl.-Ing. Rainer Remus**

Umweltbundesamt, FG Metall-Industrie, Bergbau, Steine/Erden-Industrie, Feuerungsanlagen  
Bismarckplatz 1  
14191 Berlin

**Dipl.-Ing. Stefan Rodt**

Umweltbundesamt, FG Schadstoffminderung und Energieeinsparung im Verkehr  
Bismarckplatz 1  
14191 Berlin

**Dr. Robert Säverin**

Bundesanstalt für Arbeitsschutz und Arbeitsmedizin  
Nöldner Str. 40-42  
10317 Berlin

**Dr. Eckhart Schultz**

Deutscher Wetterdienst  
Stefan-Meyer-Str. 4  
79104 Freiburg

**Dr. Bernd Seifert**  
Umweltbundesamt, Abt. Umwelthygiene  
Corrensplatz 1  
14195 Berlin

**Jürgen Speh**  
Kreisverwaltung Mainz-Bingen  
Maria-Hilf-Str. 14  
55411 Bingen

**Dr. Irene Tesseraux**  
Behörde für Arbeit, Gesundheit und Soziales  
Tesdorpfstr. 8  
20148 Hamburg

**Prof. Dr. Dr. Heinz-Erich Wichmann**  
GSF – Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, Institut für Epidemiologie  
Ingolstädter Landstr. 1  
85764 Oberschleißheim