



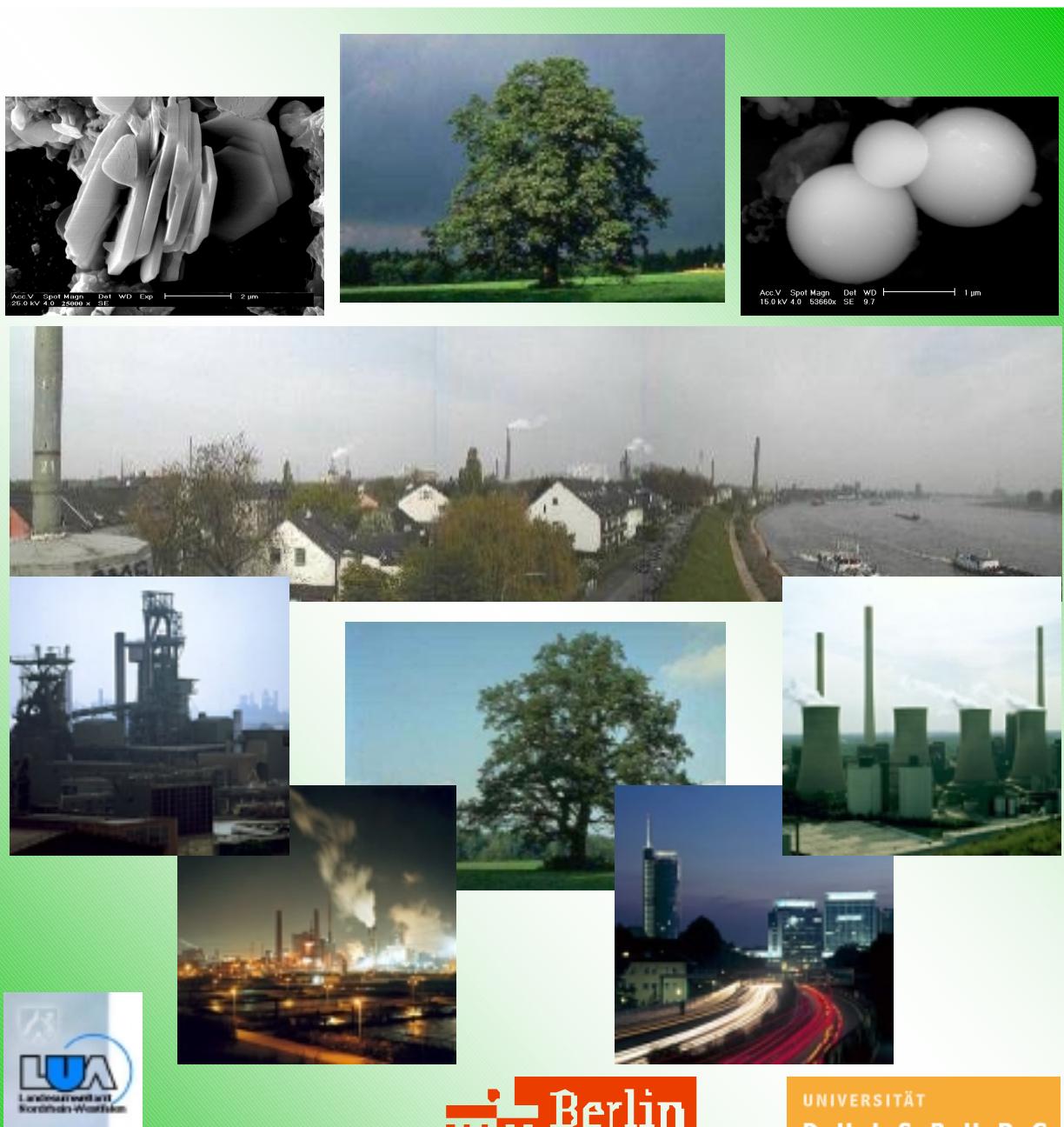
Bundesministerium
für Umwelt, Naturschutz
und Reaktorsicherheit



WORKSHOP

PMx-QUELLENIDENTIFIZIERUNG

Ergebnisse als Grundlage für Maßnahmenpläne



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

Senatsverwaltung für Stadtentwicklung



UNIVERSITÄT
D U I S B U R G
E S S E N

Institut für Energie- und Umwelttechnik e.V.
Duisburg 22-23/01/04

-Bericht zum Workshop-

PMx-Quellenidentifizierung:

Ergebnisse als Grundlage für Maßnahmenpläne

Veranstalter: IUTA e.V. (Duisburg) und UBA (Berlin)

**Tagungsort: Die Wolfsburg, Mülheim/Ruhr
22. und 23. Januar 2004**

**Finanziert vom Bundesministerium für
Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit**

Editoren:

Thomas Kuhlbusch, Astrid John, Sezgin Top (IUTA e.V. Duisburg)

Programmkomitee:

Prof. K. G. Schmidt, Dr. T. Kuhlbusch, Dr. A. John (IUTA e.V.)
Prof. H. Fissan (Universität Duisburg-Essen)
Prof. P. Bruckmann (LUA NRW)
Herr M. Lutz (SenStadt Berlin)

Herausgeber:

Umweltbundesamt, Berlin

Inhaltsverzeichnis

Begrüßung durch Herrn Prof. Dr.-Ing. K.G. Schmidt.....	i
Zusammenfassung.....	ii
A Hintergrund	1
A.1 Gesundheitseffekte durch Schwebstaub J. Schneider (WHO)	1
A.2 Rechtliche Grundlagen für nationale Maßnahmen H. Keiter (UBA)	11
A.3 CAFE-WG PM – Diskussionsstand P. Bruckmann (LUA NRW).....	24
B Messtechnische Untersuchungen zur Quellenidentifizierung	33
B.1 Aerosolpartikel in ländlichen und urbanen Gebieten: Quellenidentifizierung durch Einzelpartikelanalyse S. Weinbruch, M. Ebert, B. Vester (TU Darmstadt)	33
B.2 Automatische Einzelpartikelanalyse zur Identifizierung von Quellgruppen der Staubfraktion $> 2,5 \mu\text{m}$ E. Schultz (Deutscher Wetterdienst Freiburg)	38
B.3 Anteil einzelner Emittenten an der Belastung durch PM10 in Duisburg D. Gladtke (LUA NRW)	46
B.4 Quellenidentifizierung für Staub (PM ₁₀ , PM _{2,5}) im urbanen Ballungsraum des westlichen Ruhrgebietes T. Kuhlbusch, U. Quass, O. Romazanowa, S. Top, K. G. Schmidt, M. Koch, H. Fissan, P. Bruckmann, U. Pfeffer (IUTA e. V., ECOFYS, Universität Duisburg-Essen, LUA NRW)	55
B.5 LfUG – geförderte Messkampagnen zur Aufklärung der Quellzuordnung für größeraufgelöste Feinstaubkomponenten in Sachsen Th. Gnauk, E. Brüggemann, K. Müller, A. Plewka, U. Franck, H. Gerwig, H. Herrmann (Leibniz Institut für Troposphärenforschung, Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH, Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie Dresden).....	78
B.6 Feinstaubbelastung PM10 im ländlichen Raum Niedersachsens W. Bächlin, K.-P. Giesen, B. Heits, E. Klasmeier, W.J. Müller, T. Kuhlbusch, M. Memmesheimer (Ingenieurbüro Lohmeyer, NLÖ, IUTA e. V., RIU Uni Köln).....	86
B.7 Feinstaubbelastung PM10 in der Straßenschlucht der Göttinger Straße in Hannover W. Bächlin, K.-P. Giesen, B. Heits, W.J. Müller (Ingenieurbüro Lohmeyer, NLÖ).....	93

B.8	Submikrone Partikel und PMx an einem Hot Spot: Stadtautobahn Berlin D. Bake (UBA).....	104
B.9	Quellenzuordnung anhand aktueller Immissions- und Emissionsdaten in Berlin A. John, T. Kuhlbusch, M. Lutz (IUTA e. V., SenStadt Berlin).....	110
B.10	Feinstaubquellen in Rheinland-Pfalz T. Kuhlbusch, A. John, O. Romazanowa, S. Top, M. Weissenmayer (IUTA e. V., LfUG Mainz)	122
B.11	Korngrößen und Inhaltsstoffe von urbanen Stäuben – Einflüsse von Kfz-Emissionen F. Palme, P. Rabl (LfU Bayern)	133
B.12	Untersuchung der PM10-Zusammensetzung zur Identifizierung des Hauptverursachers – Zwischenbericht E. Danninger, W. Mayrhofer, G. Minniberger (Amt der Oberösterr. Landesregierung).....	140
B.13	Ostdeutschland 1990 bis heute: Veränderung der Schadstoffbelastung, ihrer Quellen und Wirkung auf die Gesundheit J. Cyrys, A. Peters, M. Stölzel, M. Pitz, J. Heinrich (GSF)	147
B.14	PM-Quellenidentifizierung mittels Impaktormessungen J. Müller (UBA)	157
B.15	Smogkammer-Untersuchungen der Bildung von sekundären Partikeln am Beispiel von Toluol in Abhängigkeit von der Oxidationsgeschwindigkeit C. Zetzsch, H.-U. Krüger (Forschungsstelle Atmosphärische Chemie Universität Bayreuth)	167

C Modellsimulationen zu Quellenidentifizierung und Maßnahmeszenarien 169

C.1	Einflüsse direkter und indirekter Quellen auf die Verteilung von Feinstäuben auf der regionalen Skala B. Vogel, H. Vogel (FZ/Uni Karlsruhe).....	169
C.2	Modellgestützte Bilanzierung von Eintrag und Export von Aerosolen im Berliner Raum A. Kerschbaumer (FU Berlin).....	178
C.3	Source/Receptor-Analyse für Aerosolmessreihen und Modelloutput auf der Basis von Trajektorien, HOVERT (Sep 2001 – Oct 2002) E. Reimer, A. Kerschbaumer, M. Beekmann (FU Berlin)	189
C.4	Ausbreitungsberechnungen mit dem EURAD-Modell als Hilfsmittel bei der PMx-Quellenidentifizierung M. Memmesheimer, E. Friese, H.J. Jakobs, H. Elbern, H. Feldmann, A. Ebel, G. Piekorz (RIU Uni Köln)	200
C.5	Modellanwendung als Teil der Grundsatzuntersuchungen für die Aufstellung von Luftreinhalte- und Aktionsplänen in Sachsen-Anhalt V. Diegmann, C. Ehrlich (IVU Umwelt, LAU Sachsen-Anhalt).....	211

D Erfahrungen und Probleme bei der Maßnahmenplanung.....	222
D.1 Minderung diffuser Staubemissionen in einem Edelstahlwerk – Auswirkungen auf die Luftbelastung K.-J. Geueke, D. Gladtke, W. Küchen, S. Termath (LUA NRW)	222
D.2 PMx-Quellenidentifizierung Ergebnisse als Grundlage für Maßnahmenpläne - Erfahrungen und Probleme bei der Maßnahmenplanung W. Volkhausen (ThyssenKrupp Stahl AG).....	232
D.3 Modellprojekt zur Erstellung von Maßnahmenplänen nach Art. 8 Luftqualitätsrahmenrichtlinie F. Weber (Stadt Hagen).....	238
D.4 PM10-Immissionsminderung durch die Ortsumfahrung einer Kleinstadt U. Friedrich, I. Düring (LUA Brandenburg, Ingenieurbüro Lohmeyer).....	256
D.5 Luftreinhalteplanung im Ballungsraum Rhein-Main L. Kacsóh, M. Büchen, M. Weiß (HMULV, HLUG)	265
D.6 Luftreinhalteplanung in einer Großstadt wie Berlin: Untersuchung der Wirkung und Umsetzbarkeit von konkreten Maßnahmen M. Lutz (SenStadt Berlin)	278
Appendix	287

Begrüßung durch Herrn Prof. Dr.-Ing. K.G. Schmidt

Sehr geehrte Damen und Herren,

im Namen unseres Instituts für Energie- und Umwelttechnik, kurz IUTA, einem An-Institut unserer in den letzten Jahren fusionsgeschädigten Universität Duisburg-Essen, und dem Programmkomitee, insbesondere den Herren Kollegen Fissan von der Universität Duisburg-Essen, Herrn Bruckmann vom Landesumweltamt NRW, Herrn Lutz von SenStadt Berlin sowie Herrn Kuhlbusch und Frau John, darf ich Sie sehr herzlich willkommen heißen.

Der Workshop PMx Quellenidentifizierung ist der zweite seiner Art, den unser Institut zusammen mit der Universität, dem Landesumweltamt NRW, dem MUNLV NRW, der Senatsverwaltung für Stadtentwicklung Berlin, dem Umweltbundesamt und dem Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit durchführt. Besonderen Dank dürfen wir als Organisatoren dem Umweltbundesamt aussprechen, weil es einen wesentlichen Beitrag zu den Kosten dieses Workshops leistet und es dadurch möglich wurde, auf eine Kostenerhebung zu verzichten. Ich gehe davon aus, dass ich diesen Dank auch in Ihrem Namen an das Umweltbundesamt weitergeben darf. Die Vorbereitung eines Kongresses macht immer Arbeit; die hatten in reichlichen Maße Frau Dr. John und Herr Dr. Kuhlbusch.

Es bereitete einiges Kopfzerbrechen, die Fülle von Beiträgen in den thematischen und zeitlichen Rahmen einzubinden und in Sektionen einzugliedern.

So ist der erste Tag der Darstellung der Ergebnisse aus messtechnischen Untersuchungen in Deutschland zur Quellenidentifizierung gewidmet.

Der zweite Tag leitet über zu den Modellsimulationen zur Quellenidentifizierung und für Maßnahmenszenarien und schließlich zu den Erfahrungen und Problemen bei der Maßnahmenplanung.

Es ist uns gelungen, Referenten zu gewinnen, die nicht nur in diesen Themen seit Jahren zu Hause und kompetent sind, sondern auch bereit waren, ihr immenses Wissen und ihre Erfahrung in den engen Zeitrahmen zu pressen. Wenn man das Glück hat, so viel Kompetenz an einem Ort zusammen zu bringen, hat man unweigerlich auch die Qual der Wahl. Wir bitten hier um Verständnis dafür, dass Manches vielleicht gerafft ist und manche Diskussion in Pausen getragen werden muss. Wegen der Fülle vorhandener Informationen haben wir am Ende der Veranstaltung noch einen Block vorgesehen, in dem 3minütige Kurzstatements und Beiträge ad hoc abgegeben werden können, um damit noch über weitere Aktivitäten zu informieren.

Ich wünsche der Tagung einen guten Ablauf und uns allen interessante Vorträge und Diskussionen, so dass wir am Ende sagen können: diese Veranstaltung zu besuchen, hat sich gelohnt.

Prof. Dr. K. G. Schmidt
(Institutsleiter IUTA e. V.)

Zusammenfassung

(Hinweis: die in Klammern eingefügten Buchstaben/Ziffernkombinationen indizieren einzelne Beiträge gemäß der Aufführung im Inhaltsverzeichnis)

Im Rahmen des Workshops „PM_X-Quellenidentifizierung: Ergebnisse als Grundlage für Maßnahmenpläne“ wurden vier Themenblöcke mit insgesamt 31 Referenten behandelt. Die Themenblöcke gliederten sich in

- Epidemiologischer und legislativer Hintergrund
- Messtechnische Untersuchungen zur Quellenidentifizierung
- Modellsimulationen zur Quellenidentifizierung und Maßnahmenplanung
- Erfahrungen und Probleme bei der Maßnahmenplanung

In den Vorträgen zum **epidemiologischen und legislativen Hintergrund** wurde die Notwendigkeit der Grenzwerte für Schwebstaub auf Grund der gesundheitlichen Effekte noch einmal deutlich herausgestellt. Betont wurde hier sowohl von der WHO (A1) als auch von der EU CAFE - Arbeitsgruppe (A3), dass die Diskussionen um die eine neue Generation von Luftreinhaltestandards (PM₁₀, PM_{2.5}, ultrafeine Partikel < 100 nm) und Grenzwerten noch geführt werden. Zur Zeit (1. Tochterrichtlinie des europäischen Rates und 22. BImschV) gibt es Grenzwerte für PM₁₀; für PM_{2.5} sollen orientierende Messungen durchgeführt werden. Bezogen auf die 1. Tochterrichtlinie wird es im Jahre 2004 voraussichtlich nur zu einer „technischen“ Anpassung kommen. Vorschläge für eine revidierte Fassung der Tochterrichtlinie zu PM werden von der Kommission 2006/07 vorgelegt werden.

Gründe für die Diskussion um die partikelbezogenen Luftreinhaltestandards –grenzwerte sind, dass (a) für PM₁₀ und PM_{2.5} kein unterer Schwellenwert (no-effect-level) festgestellt wurde und (b) Korrelationen zwischen Gesundheitseffekten und den Summenindikatoren in epidemiologischen Studien zumeist höhere Korrelationen mit PM_{2.5} und ultrafeinen Partikeln aufweisen als mit PM₁₀. In Hinblick auf mögliche Maßnahmen wurde klar herausgestellt, dass diese möglichst -unter Berücksichtigung toxikologischer Bewertungen- die kritischen Quellen im Blick haben sollten. Dabei stehen Partikel aus Verbrennungsprozessen – z. B. dem Straßenverkehr – und Metalloxide im Vordergrund. Außerdem sollten die Maßnahmen die Exposition der Gesamtbevölkerung reduzieren und nicht nur an den zeitlichen und räumlichen Spitzenwerten der sogenannten „Hot Spots“ ansetzen.

Vor diesem Hintergrund zeigte der Beitrag zu den rechtlichen Grundlagen für nationale Maßnahmen (A2) Handlungsrahmen sowohl für den lokalen/regionalen als auch für den überregionalen Kontext auf. Mehrere Untersuchungen und Berichte von Landesumweltämtern zeigten, dass im Jahr 2003 an einigen Punkten der PM₁₀-Tagesgrenzwert und teilweise auch der Jahressgrenzwert inklusive der Toleranzmargen überschritten wurden. An noch mehr Punkten wurden die ab 2005 einzuhaltenden Grenzwerte selbst überschritten.

Im zweiten Block zu **Messtechnischen Untersuchungen zur Quellenidentifizierung** wurden dann Messungen und Auswerteregebnisse zur Quellenidentifizierung und –quantifizierung dargestellt. Auf Grund der Vielfalt der Methoden kann hier nur eine kurze Übersicht gegeben werden:

- Speziation der PM-Inhaltsstoffe (B1, B14)
- Einzelpartikelanalysen (B1, B2)
- Windrichtungsanalysen (B3, B4, B9, B10)
- Tagesgang/Zeitanalysen (B8, B12, B4, B2, B5, B7)
- Stationsvergleiche (B6, B11, B9, B10, B7)
- Faktoren-Analysen (B4, B10,B13)
- Quellenzuordnung nach Lenschow et al. 2001 (B9, B10)

Die Bedeutung der Einzelpartikelanalyse und der morphologischen und chemischen Speziation von Inhaltsstoffen wurde anhand verschiedener Beispiele aufgezeigt (B1, B2, B14). So werden in einer Bulkanalyse häufig Silikate als Erdkrustenelemente identifiziert, obwohl ein großer Anteil davon Flugasche aus industriellen Quellen sein kann. Weiterhin können insbesondere zur Identifizierung der Quellen von Kohlenstoff morphologische Untersuchungen eine klarere Quellenzuordnung ermöglichen. Auch Einschlüsse von möglicherweise gesundheitlich relevanten Feinstaub-Partikeln in größeren PM₁₀-Teilchen (z.B. Dieselruß in Sulfat) lassen sich mittels Einzelpartikelanalyse nachweisen.

Die mit den aufgeführten Methoden bzw. Methodenkombinationen erhaltenen Ergebnisse zeigten für die Quellenzuordnung von **Hot-Spots** deutliche Anteile von Verkehr, Hausbrand, NMVOC - Emissionen und biogenen Quellen an der Kohlenstofffraktion von PM₁₀ (B2, B5, B15).

Die lokalen Beiträge von Verkehrsemissionen an **Verkehrs-Hot-Spots** ergaben sich zu 10%-60% der lokalen PM₁₀-Massenkonzentration (B7, B11, C5, B9, B10). Die Anteile von Verkehrsemissionen (inkl. sekundärer Partikel) aus allen Quellregionen zusammen an der gesamten PM₁₀-Massenkonzentration lagen bei 10%-55%. Die Anteile der Abgasemissionen an den Verkehrsemissionen reichten von 10%-80% (B7, B9, B11). Hierbei zeigt sich, dass diese Anteile sich mit zunehmender Distanz von der Quelle (Straße) eventuell recht schnell von großen Anteilen grober Partikeln (Aufwirbelung, Abrieb) zu großen Anteilen Feinstaub (Abgasemissionen) verschieben. Als weitere wichtige Einflussfaktoren wurden das Verkehrsaufkommen und die Zusammensetzung der Verkehrsflotte benannt. Für die nicht abgasbürtigen PM-Emissionen aus dem Straßenverkehr, zusammen mit dem Einfluss der Flottenzusammensetzung, besteht somit, insbesondere für den Rahmen der Maßnahmenplanung, dringender Forschungsbedarf.

Untersuchungen zu **industriellen Hot-Spots** zeigten lokale industrielle Beiträge von 10%-30% an PM₁₀ (B3, B10). Auch für diese Quellen ist eine deutliche Hot-Spot Situation gegeben, d. h. dass diese prozentualen Beiträge relativ schnell mit der Distanz zu den Quellen abnehmen. Industrie Beiträge summiert aus allen Regionstypen (lokale, regionale und überregionale Quellregionen) lagen bei etwa 45% der PM₁₀-Massenkonzentrationen für einen industriellen Hot-Spot (B10).

Zur Untersuchung und **Quantifizierung von Quellgruppenbeiträgen** mit Verknüpfung zu Regionstypen wurden Datenanalysen mittels Rezeptor-Modellen (z. B. Positiv-Matrix-Faktorisierung, UNMIX) sowie auf der Basis von Emissionskatasterdaten nach Lenschow et al. (2001) durchgeführt (B4, B9, B10, B13). Für städtische Hintergrundstationen im westlichen Ruhrgebiet ergab die Rezeptormodellierung Beiträge von 20%-35 % aus Verkehr, 15%-20% aus Industrie, 5%-10% aus Natur und weiteren 35%-50% aus sekundären Partikeln (gebildet aus gasförmigen Vorläufersubstanzen hauptsächlich aus Industrie, Verkehr und Landwirtschaft).

Bei zwei mittels des Lenschow-Ansatzes untersuchten Verkehrs-Hot-Spots in anderen Regionen lagen die Beiträge bei 35%-50% Verkehr, 20%-40% Industrie, 5%-10% Hausbrand, 3%-8% Landwirtschaft, 5%-10% Natur und 5%-20% sonstige Quellen. Beim Lenschow - Ansatz werden auch die sekundären Partikel über die Emissionskataster der Vorläufersubstanzen den Quellengruppen zugeordnet. Eine Untersuchung eines industriell geprägten Standortes ergab eine Quellenzuordnung von 20%-30% Verkehr, 40%-50% Industrie, 5%-10% Hausbrand und jeweils 4%-8% für Landwirtschaft, Natur und sonstige Quellen.

Spezifische Auswertungen in Hinblick auf **Tagesgrenzwertüberschreitungen** ergaben als sogenannte „Leitsubstanzen“ in der Reihenfolge Nitrat, Ammonium und Sulfat (B4, B6, B9, B10, B12). „Leitsubstanzen“ steht hier für chemische Inhaltsstoffe, die überproportional zum Massenkonzentrationsanstieg auf über 50 µg/m³ beitragen. Eine detailliertere Untersuchung mittels Ähnlichkeitsanalysen ergab für eine Station in Berlin, dass etwa ¾ der Tage mit Grenzwertüberschreitungen durch sekundäre Aerosole begründet ist. Davon waren 40% einem Ammoniumnitrat-Typ, 30% einem Ammoniumsulfat-Typ, und weitere 30% einem Ammoniumnitrat/sulfat-Typ zuzuordnen. Etwa ¼ der Tage mit Grenzwertüberschreitungen waren einem Mischtyp zuzuordnen, der sowohl durch sekundäre als auch primäre Partikel (z. B. EC, Ca) verursacht wurde. Jeweils ein Tag wurde dem Sylvester-Feuerwerk und ein weiterer einem unbekannten Typ zugeordnet (B9).

Ammoniumnitrat und –sulfat sind sekundäre Partikelbestandteile, die überwiegend dem Ferntransport zugeschrieben werden können. Detailliertere Untersuchungen über Rückwärtstrajektorien zeigten aber, dass der „Ferntransport“ an Tagen mit Grenzwertüberschreitungen sich im allgemeinen auf einen Umkreis von maximal 500-800 km (3-Tage-Distanz zwischen Start- und Endpunkt der Trajektorie) bezieht (B10). Auch zeigen Analysen des Wochengangs häufigere Überschreitungen des Tagesgrenzwertes von Dienstag bis Freitag als an den Wochenenden. Diese Ergebnisse deuten auf eine Kombination der lokalen und „überregionalen“ Quellen für die Tagesgrenzwertüberschreitungen - mit variierenden, standortabhängigen Verhältnissen – hin.

Feldmessungen ermöglichen immer nur räumlich und zeitlich begrenzte Aussagen. Im dritten Block „**Modellsimulationen zur Quellenidentifizierung und Maßnahmenplanung**“ wurden Methoden und Ergebnisse von Modellrechnungen und –simulationen vorgestellt, die es ermöglichen, eine größere räumliche Verteilung der Aerosolkomponenten bzw. PM_X-Belastung darzustellen und Effekte bestimmter Szenarien zu untersuchen. In den Vorträgen (C1-C5) wurden verschiedenste Ansätze vorgestellt und deren Ergebnisse diskutiert. So ergab

sich zum Beispiel als Effekt einer angenommenen Reduktion der Ammoniakemissionen in Baden-Württemberg um 50% eine modellierte Massenkonzentrationsreduktion im Mittel von 24%, die nicht allein durch einen Rückgang der Ammoniumkonzentration (ca. 24%), sondern auch durch Verringerung des Nitrats (ca. 28%) zustande kam (C1).

In einem weiteren Szenario (C4) wurde untersucht, welchen Effekt ein 100%iger Stop an anthropogenen Emissionen aus Nordrhein-Westfalen hätte. Die Untersuchungen für eine spezielle Episode mit Grenzwertüberschreitungen zeigten erhebliche Minderungen der PM₁₀-Massenkonzentrationen in der „NRW-Abluftfahne“. Dieses Szenario zeigt in Übereinstimmung mit den verschiedenen Betrachtungen für Tage mit Grenzwertüberschreitungen a) die Bedeutung der sekundären Aerosole und b) dass der „überregionale“ Transport an diesen Tagen nur wenige hundert Kilometer beträgt.

Ein weiteres Modellszenario (C2) untersuchte die Massenbilanz einer Großstadt (hier Berlin) für verschiedene Partikelgrößenfraktionen und Inhaltsstoffe. Die Bilanzierungen zeigten einen ausgeprägten Land-Stadt-Gradienten für PM_{2,5} und organische Verbindungen, aber einen keinen deutlichen Gradienten für z. B. Sulfat. Detailliertere Betrachtungen verdeutlichten eine klare Abhängigkeit dieser Gradienten und der ihnen zu Grunde liegenden Prozesse von der Meteorologie.

In einer anderen Untersuchung wurden Rückwärtstrajektorien mit gemessenen Massenkonzentrationen an Partikeln und Inhaltsstoffen gekoppelt (C3). Mittels eines speziellen Rechenverfahrens konnten für einzelne Inhaltsstoffe Quellregionen identifiziert werden (z. B. Sulfat im Südosten, Natrium im Westen und Nordwesten). Somit können über immissionsgewichtete Transportmatrizen Einflussgebiete von Schadstoffen aus dem Ferntransport identifiziert werden. Für Nordostdeutschland konnte beispielsweise aus den südpolnischen Industriegebiet ein spürbarer Beitrag zum Sulfat identifiziert werden, während erhöhte Nitratbeiträge bei Anströmung aus Südwest vermutlich auf die Sekundäraerosolbildung aus Verkehrsemissionen in Deutschland zurückgeführt werden können.

Ein weiteres Beispiel behandelte den Einsatz der Modellierung und der Modellvalidierung durch Immissionsmessungen im Rahmen kleinräumiger Maßnahmenplanung (C5). Ein Vergleich der modellierten und gemessenen Konzentrationen zeigte, dass die Modelle (IMMIS, LASAT) die reale Situation gut abbilden und zu vergleichbaren Ergebnissen kommen. Diese Ergebnisse im Zusammenspiel mit Verkehrsumlegungsmodellen erlauben Prognosen zur Abschätzung verschiedener Szenarien und somit zukünftiger Belastungen.

Unsicherheit besteht jedoch in der Parametrisierung der nicht abgasbürtigen PM-Emissionen aus dem Straßenverkehr. Hinzu kommt die inzwischen bekannte signifikante Unterschätzung der realen NO_x- und PM-Auspuffemissionen durch die momentan verwendeten Emissionsfaktoren für LKW. Während dafür in Kürze genauere Angaben zur Verfügung stehen, sollte der für die Berechnung der nicht-abgasbürtigen PM-Emissionen verwendete Ansatz überprüft und ggf. überarbeitet werden.

Im letzten Block des Workshops (D1-D6) wurden verschiedene **Erfahrungen und Probleme in der Maßnahmenplanung** vorgestellt und diskutiert .

Die Effektivität von Emissionsminderungsmaßnahmen diffuser Quellen wurde am Beispiel eines edelstahlproduzierenden Betriebes betrachtet (D1). Insgesamt konnte dadurch die

Emission aus Dachöffnungen um etwa **50% gemindert** werden. Probleme ergaben sich bei der Bilanzierung dieser Minderungsmaßnahme auf die Gesamtemissionen des Edelstahlwerkes, da andere Emissionsquellen des Werkes nur abgeschätzt werden konnten. Auch konnten an einem nahegelegenen Immissionsmesspunkt keine Reduktionen der Belastungen mit PM₁₀ nachgewiesen werden.

Die spezifische Problematik der Quellenidentifizierung vor dem Hintergrund bestehender Genehmigungen von Industrieanlagen und insbesondere der Tagesgrenzwertüberschreitung stand im Mittelpunkt eines anderen Beitrags (D2). Eine Kernfrage hierbei war: „Wie hoch sind die Beiträge von Industrieanlagen, die kausal dazu führen, dass der Tagesmittelwert mehr als 35 mal pro Jahr überschritten wird?“

In zwei weiteren Vorträgen wurden Beispiele der Verkehrslenkung zur Maßnahmenplanung diskutiert (D3, D4). Im Modellprojekt Hagen wurden u. a. verschiedene verkehrslenkende Maßnahmen entwickelt und mit Modellsimulationen verglichen. Hier zeigte sich ein steigendes Minderungspotential beim Übergang von statischer zu dynamischer Beschilderung mit maximalen Minderungspotential von etwa 20% bei zeitlich befristeter Sperrung (D3).

Den erfolgreichen Einsatz von Modellen zur Planung von verkehrslenkenden Maßnahmen (hier Umgehungsstraße) und die Validierung der Effekte mittels Messungen zeigte ein Beitrag am Beispiel einer typischen ostdeutschen Kleinstadt (D4). Insgesamt zeigte diese Studie den höchsten Minderungseffekt durch einen zunächst vorgenommenen Straßenbelagswechsel (38% von der PM₁₀-Gesamtbelastung) mit weiterer Minderung durch Reduktion des Verkehrsaufkommens durch den Bau und die Freigabe einer Umgehungsstraße (15% von der ursprünglichen PM₁₀-Gesamtbelastung).

Den Problemen in der Quellenzuordnung für ein Ballungsgebiet mit einem Mix als Emittenten widmete sich ein Beitrag mit Bezug zum Rhein-Main-Gebiet (D5). Eine erste orientierende Ursachenanalyse auf Basis von Emissionsfaktoren zeigte für den Ballungsraum einen Anteil von 50% für die Industrie und 34% aus dem Verkehr. Zusammen mit einer Neubewertung der Nicht-Abgas-Emissionen durch erhöhte Emissionsfaktoren für Aufwirbelung und Abrieb kommt dem Verkehr flächendeckend die größte Bedeutung zu. Für die politische Umsetzung von Maßnahmenplänen wurde eine Interministerielle Arbeitsgruppe aus Vertretern der für Umwelt und Verkehr zuständigen Ministerien sowie ihren nachgeordneten Behörden berufen. In Frage kommende Maßnahmen werden hier mit den betroffenen Kommunen sowie den Verbänden der Verursachergruppen diskutiert. Diese Maßnahmenvorschläge werden zunächst auf ihre Wirksamkeit hin überprüft und anschließend in den Abstimmungsprozess gegeben. Insgesamt wird in Hessen ein Politik-Mix aus Überzeugen, Anreizen, planerischen Maßnahmen und Ordnungsrecht als integrierte Stadt/Gebiets- und Verkehrsplanung angestrebt. Hierbei spielt die Motivierung der Kommunen eine wesentliche Rolle.

Dass im Zuge der Planentwicklung durchgeführte Ursachenanalysen für den urbanen Ballungsraum (hier: Berlin) nur einen begrenzten lokalen Handlungsrahmen zur Senkung der Partikelbelastung aufweisen, zeigte der letzte Workshop-Beitrag (D6). Daher sei an vorderster Stelle die Fortschreibung der europäischen Fahrzeugemissionsstandards zu fordern. Die von Berlin verfolgten Überlegungen zur Minderung des lokalen Beitrages, der vom Verkehr dominiert wird, konzentrieren sich auf die beschleunigte Verbesserung der

Dieselfahrzeugflotte (Fahrzeugtechnik), optimierte Verkehrslenkung und Ausweitung der Parkraumbewirtschaftung zur Dämpfung des Durchgangs- und Zielverkehrs in besonders belasteten Bereichen der Innenstadt und verkehrsplanerische Maßnahmen zur Verlagerung des Verkehrs auf den Umweltverbund. Um der umweltfreundlichen Fahrzeugtechnik schneller zum Durchbruch zu verhelfen, werden auch Benutzervorteile für schadstoffarme Dieselfahrzeuge im gesamten Innenstadtbereich untersucht.

Ziel der Luftreinhalteplanung muss es sein, die großräumige PM_{10} -Belastung soweit zu mindern und das Potential zur Reduktion des lokalen PM_{10} -Beitrag so zu erweitern, dass die Einhaltung der Immissionsgrenzwerte für PM_{10} auch in urbanen Ballungsräumen gewährleistet werden kann.

Ergebnisse und Problembereiche

In der breiten Spannweite der Themen, die im Rahmen des Workshops „ PM_X -Quellenidentifizierung: Ergebnisse als Grundlage für Maßnahmenpläne“ behandelt wurde, zeigte(n) sich

- ein differenzierteres und zum Teil klareres Bild zur Ist-Situation und zu den Quellen und Quellbeiträgen von PM_{10} ,
- dass Ergebnisse von Quellzuordnungen basierend auf Bulkanalysen zu einer Überschätzung des Erdkrustenbeitrages führen können,
- erste Ansätze der Quellzuordnung der partikelgebundenen Kohlenstoffverbindungen
- die Beiträge verschiedener Quellen und Quellgruppen zu PM_{10} für untersuchte Standorte verschiedener Standorttypen,
- dass insbesondere Nitrat und Ammonium „Leitsubstanzen“ für Tage mit Grenzwertüberschreitungen waren,
- dass der „Ferntransport“ an Tagen mit Grenzwertüberschreitungen sich im allgemeinen auf einen Umkreis von einigen hundert Kilometern bezieht,
- dass eine Kombination lokaler und „überregionaler“ Quellen - mit variierenden Verhältnissen – zu den Tagesgrenzwertüberschreitungen führt,
- die Möglichkeit der Kopplung von Rückwärtstrajektorien mit PM_{10} -Inhaltsstoffen zur Identifizierung von Quellregionen,
- in Modellsimulationen insbesondere die Folge-Effekte von Maßnahmen in Bezug auf Partikelbildung und –transport,
- die Potentiale von Modellen und Simulationen in der Abschätzung möglicher Maßnahmen, sowohl im klein- als auch großkaligen Bereich,
- dass die Diskussion um die zukünftige Generation von Luftreinhaltestandards (PM_{10} , $PM_{2,5}$, PM_1 , ultrafeine Partikel) und Grenzwerte nicht abgeschlossen ist,
- dass Maßnahmenplanungen eine Reduktion der Exposition größerer Bevölkerungsgruppen berücksichtigen und nicht nur auf „Hot-Spots“ fokussiert sein sollten,
- dass Maßnahmenplanungen möglichst – unter Berücksichtigung toxikologischer Bewertungen - die kritischen Quellen im Blick haben sollten,

- die große Effektivitätsspannweite einzelner lokaler Maßnahmen im Bereich der Verkehrslenkung und Emissionsminderung,
- dass Ansätze und Wege der Maßnahmenplanung und der politischen Umsetzung auf lokaler, nationaler und europäischer Ebene miteinander koordiniert werden müssen.

Trotz dieser in den letzten Jahren gewonnenen neuen Erkenntnisse, wurden wesentliche Bereiche und Themen identifiziert, die noch zu Unsicherheiten in der Planung und Umsetzung von Maßnahmen führen. Diese sind:

- Unsicherheiten in den Beiträgen durch sekundäre und Aufwirbelungspartikel aus dem Straßenverkehr,
- Unsicherheit in der Zuordnung des „Ferntransportes“ zu Quellregionen und somit im Handlungsrahmen in der Maßnahmenplanung,
- eine Unsicherheit in den Handlungsspielräumen auf lokaler/regionaler und überregionaler Ebene,
- eine große Bandbreite und Unsicherheit in der Differenzierung der Anteile aus lokalen und überregionalen Quellen an Tagen mit Tagesgrenzwertüberschreitungen,
- Probleme der Quellenzuordnung spezifisch für Tage mit Grenzwertüberschreitungen,
- Unsicherheiten im Bereich der Genauigkeit, in der Vergleichbarkeit und in den Anwendungsbereichen von verschiedenen Quellenzuordnungsmethoden,
- Fragen in Hinblick auf die räumliche und zeitliche Übertragbarkeit der Ergebnisse, da die meisten Ergebnisse sich auf wenige Standorte und zumeist auf $2003 \pm 0,5$ Jahre beziehen,
- Unsicherheiten in Emissionskatastern und deren Qualität, da einige Quellenzuordnungsmethoden und computergestützte Modelle auf diese Kataster zurückgreifen,
- Notwendigkeit der Modellvalidierung und die Verwendung von Modellen in der Maßnahmenplanung,
- Eine fehlende Übersicht möglicher Maßnahmen und deren Bewertung vor dem Hintergrund der verschiedenen Ebenen in der Entwicklung von Maßnahmenplänen.

Das Programmkomitee



A Hintergrund

A.1 Gesundheitseffekte durch Schwebstaub

J. Schneider (WHO)

Gesundheitseffekte durch Schwebestaub

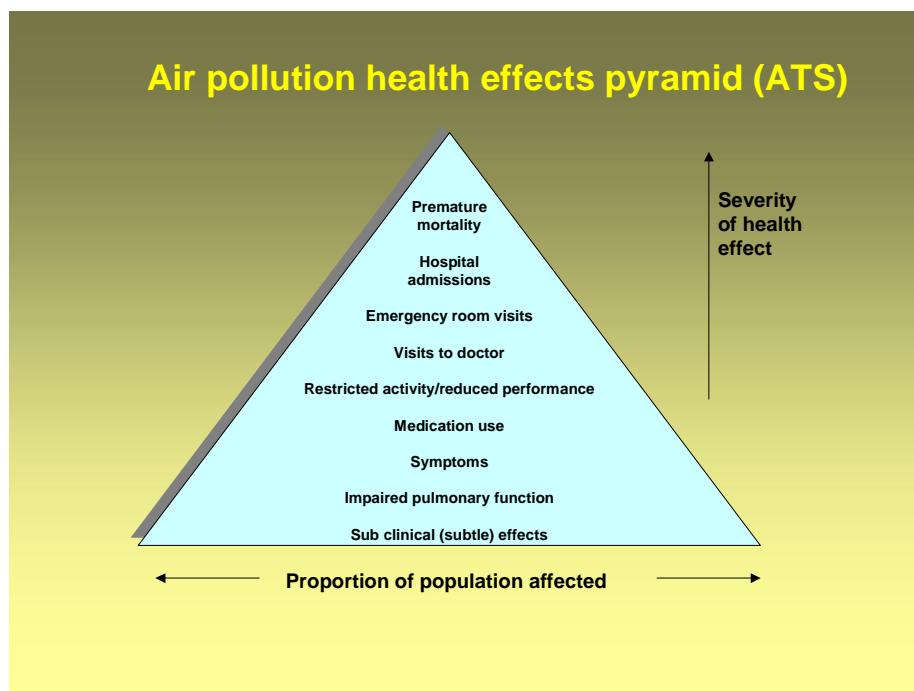
Dr. Jürgen Schneider
Weltgesundheitsorganisation (WHO)
Luftqualität und Gesundheit
Europäisches Zentrum für Umwelt und Gesundheit
Bonn, Deutschland
<http://www.euro.who.int/air>

1 Einleitung

In den letzten Jahrzehnten ist es in etlichen europäischen Ländern auf Grund von weitreichenden Emissionsreduktionsmaßnahmen zu einer signifikanten Abnahme der Luftbelastung gekommen. Nichtsdestotrotz legt eine große Anzahl von einschlägigen Studien nahe, dass durch die Exposition gegenüber Luftschadstoffen immer noch mit erheblichen Auswirkungen auf die menschliche Gesundheit zu rechnen ist.

Es gibt eine ganze Reihe von gesundheitlichen Auswirkungen, die von Luftschadstoffen verursacht werden können. Diese reichen von milden, subklinischen Effekten auf die Atemwege über eine Verstärkung von Symptomen und Spitalseinweisungen bis hin zu Todesfällen. Oft ist die Häufigkeit des Auftretens in einer bestimmten Population negativ mit der Schwere der Effekte korreliert. Dies ist schematisch in Abbildung 1 dargestellt.

Abbildung 1. Schematische Darstellung der Schwere und Häufigkeit der durch Luftschadstoffe verursachten Gesundheitseffekte



In den letzten Jahren sind insbesondere die Gesundheitsauswirkungen durch die Exposition gegenüber Schwebestaub und seinen Komponenten in den Mittelpunkt des Interesses gerückt.

2 Die Rolle der WHO in der Europäischen Luftreinhaltepolitik

Die Weltgesundheitsorganisation (WHO) hat in den letzten Jahren die Auswirkungen diverser Umwelteinflüsse auf die menschliche Gesundheit systematisch untersucht und bewertet. Vom Europäischen Zentrum für Umwelt und Gesundheit der WHO wurden die Zusammenhänge von Luftverunreinigungen und Gesundheit regelmäßig einer genauen Prüfung unterzogen und darauf aufbauend Luftqualitätsleitlinien (‘Air Quality Guidelines for Europe’) erstmals 1987 veröffentlicht (WHO, 1987). Eine zweite, in wesentlichen Punkten überarbeitete Ausgabe wurde 2000 publiziert (WHO, 2000). Das Ziel dieser ‘Leitlinien’ ist nicht nur eine kompakte Zusammenfassung des Wissens über die Effekte von Luftschadstoffen; sie erlauben auch eine objektive Bewertung der Luftqualität und dienen der Ableitung von regulatorischen Maßnahmen zur Verbesserung der Luftqualität.

So basieren – zum Teil rechtlich bindende - Immissionsgrenzwerte der Europäischen Gemeinschaft sowie Regelungen diverser nationaler Institutionen auf den von der WHO veröffentlichten Leitlinien. Die numerischen Werte der derzeitigen EU-Immissionsgrenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid, Blei (Richtlinie 1999/30/EG), Kohlenmonoxid (2000/69/EC) und Ozon (2002/3/EC) entsprechen jenen der aktuellen WHO Luftqualitätsleitlinien.

Allerdings sind seit der Herausgabe der zweiten Ausgabe der WHO Luftqualitätsleitlinien unzählige neue Studien zum Thema Luftqualität und Gesundheit veröffentlicht worden. Diese neuen Erkenntnisse machten eine erneute Bewertung des Themenbereichs notwendig.

Folglich hat sich das Europäische Zentrum für Umwelt und Gesundheit der WHO in einer Vereinbarung mit der Europäischen Kommission im Jahr 2001 verpflichtet, einen systematischen, unabhängigen und auf wissenschaftlichen Kriterien basierenden Review über ‘Gesundheitsaspekte der Außenluftqualität in Europa’ durchzuführen. Der Zeitpunkt und der Inhalt des Reviews sind keineswegs zufällig gewählt; das Europäische Parlament und der Rat haben im Jahr 2002 das sechste Umweltaktionsprogramm beschlossen (Entscheidung No 1600/2002/EC). Dieses Programm nennt Umwelt, Gesundheit und Lebensqualität als eine der wichtigsten Umweltprioritäten der Gemeinschaft. Zudem wird in Artikel 7, der Ziele und vorrangige Aktionsbereiche für Umwelt, Gesundheit und Lebensqualität enthält, folgendes angeführt:

,Zur Verwirklichung der Zielsetzungen ... sind folgende Ziele anzustreben, wobei die einschlägigen Normen, Leitlinien und Programme der Weltgesundheitsorganisation (WHO) zu berücksichtigen sind:

...

- *Erreichung einer Luftqualität, die keine erheblichen negativen Auswirkungen auf die menschliche Gesundheit und die Umwelt hat und keine entsprechenden Gefahren verursacht.*

Somit ist eines der wichtigsten Ziele des Reviews, (europäischen) Entscheidungsträgern aktuelle, wissenschaftlich fundierte, relevante und objektive Informationen über die Gesundheitsauswirkungen durch Luftschaadstoffe zur Verfügung zu stellen. Diese Informationen sind eine wesentliche Grundlage für die Entwicklung einer thematischen Gemeinschaftsstrategie für die Stärkung einer kohärenten und integrierten Politik zur Bekämpfung der Luftverschmutzung im Rahmen des CAFE-Programms (Clean Air for Europe). In dieser Strategie wird u.a. angegeben werden, welche Maßnahmen erforderlich sind, um die in dem 6. Umweltaktionsprogramm dargelegten Ziele zu erreichen. Die Strategie ist Mitte 2005 dem Europäischen Parlament und dem Rat zu unterbreiten.

3 Methoden zur Untersuchung der Gesundheitsauswirkung von Luftschaadstoffen

Die Bewertung der Auswirkungen von Luftschaadstoffen auf die Gesundheit stellt eine komplexe Herausforderung dar, da eine Unzahl von unterschiedlichen Studien aus verschiedenen Disziplinen berücksichtigt werden muss, einschließlich: Studien zur persönlichen Exposition; epidemiologische Studien; toxikologische Studien inklusive Tierversuche, kontrollierte Expositionsexperimente und *In-vitro*-Studien. Jeder dieser Ansätze hat seine eigenen Stärken und Schwächen.

In epidemiologischen Studien wird die Korrelation verschiedener medizinischer Parameter wie etwa die Häufung von Krankenhauseinweisungen oder Todesfällen mit Umgebungseinflussgrößen wie etwa der Schadstoffexposition bzw. der Schadstoffkonzentration untersucht. Derartige Studien sind deshalb von hoher Aussagekraft, da

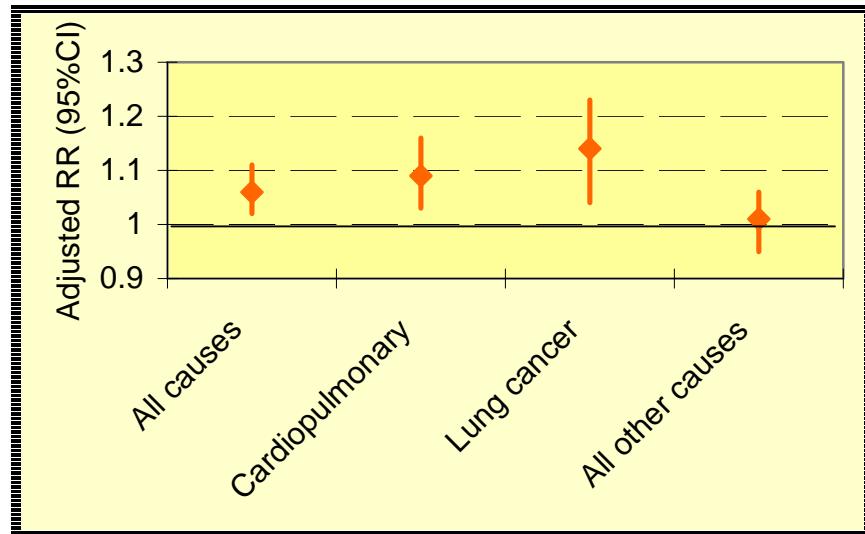
- die Exposition der Bevölkerung unter ‚realen‘ Bedingungen stattfindet;
- sehr große Kollektive erfasst werden können, inklusive jener Personen, die besonders empfindlich auf Luftschaadstoffe reagieren. Hierzu zählen – abhängig von Luftschaadstoff und konkreter Auswirkung – Kinder, ältere Personen sowie durch existierende Krankheiten geschwächte Individuen. Auswirkungen innerhalb dieser Gruppen können sogar die Gesamteffekte dominieren;
- eine Extrapolation über Speziesgrenzen hinweg sowie zu niedrigeren Expositionskonzentrationen nicht notwendig ist.

Auch können die in epidemiologischen Untersuchungen gefundenen Zusammenhänge zwischen der Schadstoffbelastung und den Auswirkungen unter bestimmten Bedingungen zur Quantifizierung der Gesundheitsauswirkungen herangezogen werden (WHO, 2001).

In den letzten Jahren sind die analytisch-statistischen Methoden zur Durchführung dieser Studien wesentlich verbessert worden und erlauben auch eine Detektion von kleinen Effekten, etwa einer Zunahme der Mortalität. Allerdings ist die Exposition einzelner Individuen gegenüber der vermuteten Einflussgröße im Detail meist nicht bekannt, und zudem ist zu berücksichtigen, dass die Personen einer ganzen Reihe verschiedener Umwelteinflüsse ausgesetzt sind. Je nach Studiendesign sind diese Faktoren genau zu kontrollieren. Zudem können epidemiologische Studien statistische Zusammenhänge aufzeigen, sind aber für sich alleine genommen i.A. kein ausreichender Beleg für einen kausalen Zusammenhang der untersuchten Umwelteinflüsse und der beobachteten Gesundheitseffekte.

Exemplarisch für die Ergebnisse von epidemiologischen Studien zeigt Abbildung 2 wichtige Ergebnisse einer großen Langzeituntersuchung der American Cancer Society (ACS). In dieser Kohortenstudie wurden über eine halbe Million erwachsene Amerikaner über einen Zeitraum von 8 Jahren (Pope et al., 1995)¹ und in einer Erweiterung dann über 16 Jahre beobachtet (Pope et al., 2002). Dabei wurde für jene Personen, die in Gebieten mit einer höheren Feinstaubbelastung leben, ein erhöhtes Mortalitätsrate gefunden, insbesondere auf Grund von Herz-Lungenkrankungen sowie Lungenkrebs. Um die Effekte durch Feinstaub von jenen anderer möglicher Einflussgrößen unterscheiden zu können, wurde in den angewandten statistischen Modellen eine Reihe weiterer Faktoren kontrolliert: Alter; Geschlecht; Rauchgewohnheiten; Bildungsniveau; BMI (*body mass index*); Exposition am Arbeitsplatz; Essgewohnheiten (wie etwa Aufnahme von Fett, Gemüse,...). Es ist erwähnenswert, dass in einer (wesentlich kleineren) europäischen Kohortenstudie (Hoek et al., 2002) dazu kompatible Ergebnisse gefunden werden konnten.

Abbildung 2: Zusätzliches relatives Mortalitätsrisiko (RR: relatives Risiko; CI: Konfidenzintervall) durch eine Zunahme der Exposition gegenüber PM_{2.5} um 10 µg/m³, nach Pope et al., 2002



¹ Diese Arbeit wurde einer extensiven Re-Analyse unterzogen, die die ursprünglichen Ergebnisse im Wesentlichen bestätigte (Krewski et al., 2000)

Epidemiologische Studien haben in den letzten Jahren auch deutliche Hinweise auf Effekte von Schwebestaub auf das Herz-Kreislaufsystem ergeben. Dabei konnte der Zusammenhang zwischen einer Reihe von relevanten physiologischen Größen und der Schwebestaubbelastung gezeigt werden, u.a. einer verringerten Herzfrequenzvariabilität, Erhöhung der Plasmaviskosität, Erhöhung des Spiegels C-reaktiven Proteins, Dysfunktion des Endothels und der Auslösung von Herzinfarkten.

Im Gegensatz dazu dienen toxikologische Untersuchungen, die biologische Plausibilität der Schadstoffauswirkungen (oft einzelner Komponenten) zu untermauern oder abzuschwächen. Daneben geben sie auch wertvolle Hinweise zur Identifikation der konkreten Wirkungspfade und Wirkungsmechanismen.

Kontrollierte Expositionsstudien gestatten eine genaue Überwachung der Exposition und der Auswirkungen. Allerdings sind die Studien dadurch limitiert, dass aus offensichtlichen Gründen nur milde, reversible Effekte verursacht werden, und dass meist gesunde oder nicht übermäßig kranke Individuen herangezogen werden (und nicht jene, bei denen die schwersten Effekte zu erwarten sind). Relativ neu sind Studien mit konzentriertem Schwebestaub aus der Umgebungsluft (CAP; *concentrated ambient particles*).

Tierversuche haben auch den Vorteil, dass eine genaue Überwachung der Exposition möglich ist. Zudem können höhere Konzentrationen als bei kontrollierten Expositionsstudien angewandt werden. Problematisch hingegen ist die Übertragbarkeit auf den Menschen und die Extrapolation zu niedrigeren Konzentrationen (da die Studien aus methodischen Gründen üblicherweise bei Konzentrationen durchgeführt werden, die weit über jenen liegen, die heutzutage in der Außenluft in Europa gemessen werden). Zudem spiegeln diese Versuche oft nicht die in einer Bevölkerung vorhandenen unterschiedlichen Empfindlichkeiten wider.

Erst in einer Zusammenschau und Synthese dieser verschiedenen Ergebnisse lassen sich fundierte Aussagen über Art und Umfang der Auswirkungen von Luftschadstoffen auf die Gesundheit gewinnen.

4 Ergebnisse des aktuellen WHO Reviews

Der gegenwärtige WHO-Review über „Gesundheitsaspekte der Außenluftqualität in Europa“ behandelt in erster Linie die Schadstoffe Schwebestaub (Particulate matter, PM), Ozon und Stickstoffdioxid. Um sicherzustellen, dass die Ergebnisse des Reviews von einem maximalen Nutzen für die nachfolgenden Anwendungen sind, wurden wesentliche Resultate in Form von kurzen Antworten auf spezifische, Politik-relevante Fragen formuliert. Zu jeder Antwort wurde eine umfangreichere Begründung verfasst. Diese Vorgangsweise unterscheidet sich von jener, die die US EPA gewählt hat².

Die Antworten wurden in einem aufwändigen, mehrstufigen Prozess unter Mitwirkung von etwa 50 international führenden Wissenschaftlern abgefasst und einem umfassenden

² Siehe dazu etwa EPA (2003).

externen Review unterzogen. Geleitet wurden diese Arbeiten von einem Wissenschaftlichen Beratungskomitee (‘Scientific Advisory Committee’). Details finden sich in WHO (2003) bzw. auf folgender Webseite: <http://www.euro.who.int/air>.

Einige der wichtigsten Ergebnisse (WHO, 2003) werden im Folgenden kurz zusammengefasst:

- Die Evidenz über einen Zusammenhang der Exposition gegenüber Schwebestaub und z.T. schwerwiegenden Gesundheitsauswirkungen ist weit stärker als vor wenigen Jahren.
- PM2.5 ist ein geeigneter Indikator zur Beschreibung der durch PM-Exposition verursachten Effekte, insbesondere in Bezug auf die Mortalität sowie Herz-Kreislauferkrankungen.
- Obwohl Feinstaub einen stärkeren Zusammenhang mit einigen schweren Gesundheitsauswirkungen zeigt als Grobstaub, gibt es Hinweise, dass auch die grobe Fraktion (PM10 minus PM2.5) in Beziehung mit bestimmten Gesundheitsauswirkungen steht.
- Bislang konnte keine Schwellenkonzentration abgeleitet werden, unter der keine Gefahr für die Gesundheit besteht.
- Bei den Auswirkungen auf die Mortalität handelt es sich nicht (nur) um vorgezogene Sterblichkeit (‘Harvesting’).
- Es ist davon auszugehen, dass Schwebestaub *per se* für die Effekte verantwortlich ist.
- Einige Studien zeigen einen Zusammenhang zwischen einer Reduktion der PM-Belastung und einer Abnahme von Gesundheitseffekten.
- Diverse Studien legen nahe, dass besonders folgende PM-Inhaltsstoffe toxikologisch wirksam sind:
 - Bestimmte Metalle,
 - Organische Verbindungen (wie etwa PAKs),
 - Ultrafeine Partikel und
 - Endotoxine.

- Kritische Quellen sind Abgasemissionen des Straßenverkehrs sowie Aerosole aus der Verbrennung von festen und flüssigen Brennstoffen.

Diese über weite Bereiche qualitativen Aussagen über die Auswirkungen von Luftschaadstoffen werden im Rahmen dieses Projekts durch folgende weitere Studien ergänzt:

- Eine Meta-Analyse von europäischen Zeitreihenstudien wurde durchgeführt, deren Ziel die Ableitung von Effektschätzern für etwaige quantitative Abschätzung von Gesundheitsauswirkungen war. Die Resultate werden Anfang 2004 veröffentlicht (WHO, 2004). In Tabelle 1 sind exemplarisch die Ergebnisse für den Zusammenhang einer Änderung der *täglichen* PM10-Konzentration und der akuten Sterblichkeit für verschiedene Todesursachen dargestellt.

Tabelle 1: Zusätzliches relatives Mortalitätsrisiko (und 95% Konfidenzintervalle) bei einer Zunahme der PM10-Konzentration um 10 µg/m³

Todesursache	PM ₁₀
Gesamt-Mortalität	0.6 % (0.4 % - 0.8 %)
Atemwegserkrankungen	1.3 % (0.5 % - 2.1 %)
Kardiovaskuläre Mortalität	0.9 % (0.5 % - 1.3 %)

- Von Seiten der Europäischen Kommission wurden im späten Frühjahr 2003 ergänzende Fragen an das Europäische Zentrum für Umwelt und Gesundheit der WHO übermittelt, die sich u.a. mit der Frage der Verlässlichkeit der im zuvor erwähnten Review gefunden Aussagen befassen. Antworten auf diese Fragen werden voraussichtlich im März 2004 unter dem Titel ‚Health aspects of air pollution - answers to follow up questions from CAFÉ‘ publiziert werden.

Darüber hinaus werden demnächst die Ergebnisse eines eigenen Reviews über die Auswirkungen von Luftschadstoffen auf die Gesundheit von Kindern vorliegen. Dieser Review wurde vom Europäischen Zentrum für Umwelt und Gesundheit der WHO als spezifischer Beitrag zur 4. Europäischen Ministerkonferenz über Umwelt und Gesundheit im Juni 2004 in Budapest initiiert. Das Motto dieser Konferenz ist 'The future for our children' (siehe dazu auch: <http://www.euro.who.int/budapest2004>).

5 Konsequenzen für die Luftreinhaltung

Schwebestaub (PM2.5 und PM 10) ist ein wesentlicher Risikofaktor und eine weiter gehende Reduktion der Exposition ist somit geboten. Die im 6. Umweltaktionsprogramm formulierten Ziele liegen noch in weiter Ferne (.. *Erreichung einer Luftqualität, die keine erheblichen negativen Auswirkungen auf die menschliche Gesundheit ... hat..*).

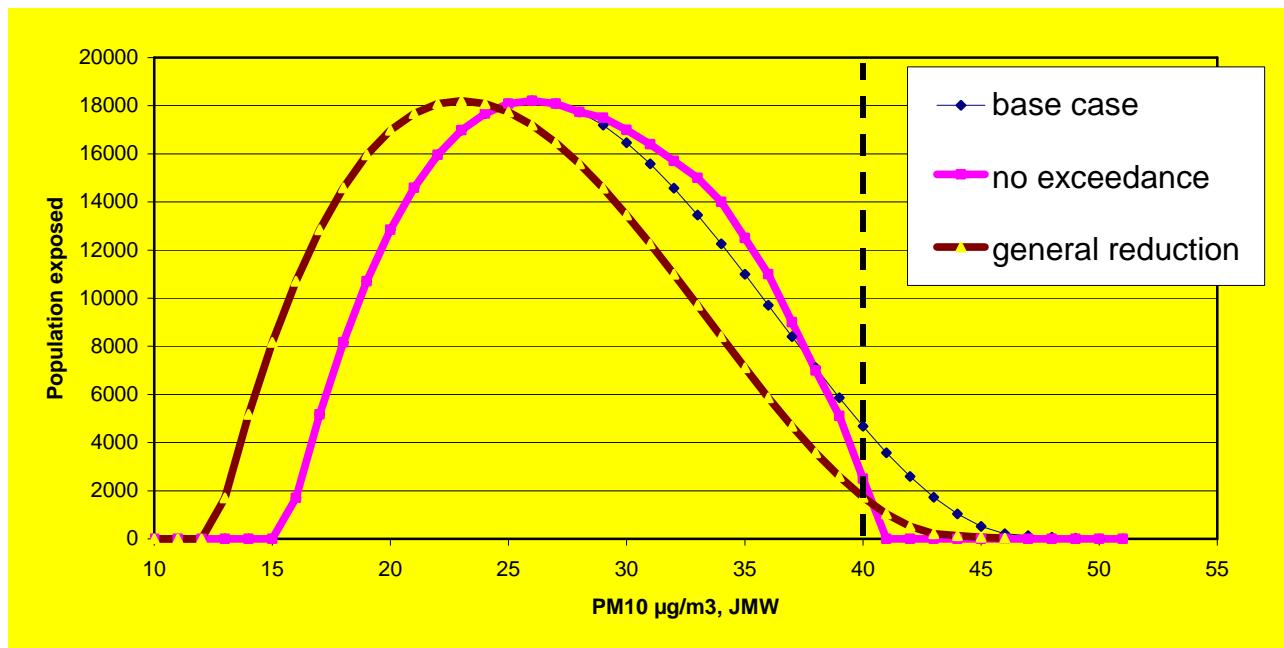
Bei der Ausarbeitung von Maßnahmenplänen zur Reduktion der PM-Belastung sollte jedenfalls darauf Bedacht genommen werden, dass jene Quellen, die in dem aktuellen WHO-Review als ‚kritisch‘ eingestuft wurden (Abgasemissionen des Straßenverkehrs; Aerosole aus der Verfeuerung von festen und flüssigen Brennstoffen), entsprechend berücksichtigt werden.

Es muss auch betont werden, dass die in der Richtlinie 1999/30/EG formulierten Grenzwerte (Stufe 1 und Stufe 2) KEINE ‚no-effect-levels‘ sind, und damit davon

auszugehen ist, dass auch eine Reduktion der PM-Belastung in Gebieten ohne Grenzwertüberschreitung zu einer Verminderung des Gesundheitsrisikos beiträgt. Eine Einschränkung von Maßnahmen alleine auf Gebiete mit den höchsten Belastungen ist somit nicht notwendigerweise die effektivste Luftreinhaltepolitik zur Verminderung von Gesundheitseffekten.

Effektiver aus humanhygienischer Sicht erscheinen somit Strategien, die eine signifikante Reduktion der Exposition der *Gesamt*bevölkerung zum Ziel haben³. Dies ist schematisch in Abbildung 3 dargestellt:

Abbildung 3: Die x-Achse zeigt die PM Konzentration als Jahresmittelwerte, die y-Achse die von der Exposition betroffene Bevölkerung. Im ‚base case‘ ist ein kleiner Teil der Bevölkerung einer Exposition über dem Grenzwert (strichlierte Linie bei $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$) ausgesetzt. Im No-exceedance-Fall treten keine Überschreitungen des Grenzwerts mehr auf; allerdings ist die Verminderungen der Auswirkungen - unter der Voraussetzung, dass die Beziehung zwischen der Konzentration des betrachteten Luftschadstoffs und der Wirkung linear ist - vergleichsweise gering. Deutlich höhere Verbesserungen würden sich beim ebenfalls dargestellten General-reduction-Szenario ergeben.



³ Siehe dazu auch: Williamson et al., 2003

6 Literaturverzeichnis

DOCKERY, D. W. ET AL Epidemiologic evidence of cardiovascular effects of particulate air pollution. *Environmental health perspectives*, **109**: 483 - 486 (2001).

EPA (2003). *Air Quality Criteria for Particulate Matter (Fourth External Review Draft)*
United States Environment Protection Agency.

HOEK, G. ET AL. The association between mortality and indicators of traffic-related air pollution in a Dutch cohort study. *Lancet*, **360**: 1203 – 1209 (2002).

KREWSKI, D. ET AL. Reanalysis of the Harvard Six Cities Study and the American Cancer Society Study of Particulate Air Pollution and Mortality. *Health Effects Institute Special Report*, July 2000.

POPE, C. A. ET AL. Lung cancer, cardiopulmonary mortality, and long-term exposure to fine particulate air pollution. *Journal of the American medical association*, **287**: 1132 - 1141 (2002).

POPE, C. A. ET AL. Particulate air pollution as predictor of mortality in a prospective study of U.S. adults. *American journal of respiratory and critical care medicine*, **151**: 669 - 674 (1995).

UNITED STATES EPA. *Air Quality Criteria for Particulate Matter (Fourth External Review Draft)*
Environment Protection Agency, (2003).

Williamson, T. et al. (2003). Air Quality Limit Values: Is there a Better Way; Clean Air and Environmental Protection (to be published); NSCA, Brighton, UK.

World Health Organisation (1987). Air Quality Guidelines for Europe. WHO Europe, Copenhagen.

World Health Organisation (2000). Air Quality Guidelines for Europe, 2nd edition. WHO Europe, Copenhagen.

World Health Organisation (2001). Quantification of health effects of exposure to air pollution. WHO Europe, EUR/01/5026342, Copenhagen.

World Health Organisation (2002). World health report 2002. World Health Organisation, Geneva.

World Health Organisation (2003). HWHO Europe, EUR/03/5042688, Copenhagen.
<http://www.euro.who.int/document/e79097.pdf>

World Health Organisation (2004). Meta-analysis of time-series studies and panel studies of particulate matter (PM) and ozone (O₃). WHO Europe, Copenhagen.

A.2 Rechtliche Grundlagen für nationale Maßnahmen

H. Keiter (UBA)

Rechtliche Grundlagen für nationale Maßnahmen

Harald Keiter (UBA)

Zusammenfassung

Der Beitrag beschreibt - ausgehend von der Rechtsetzung der Europäischen Gemeinschaft mit der Rahmenrichtlinie Luftqualität und ihren Tochterrichtlinien – die Umsetzung in bundesdeutsches Recht durch die 7. Novelle zum Bundes-Immissionsschutzgesetz und die Novellierung der 22. Verordnung zum BImSchG. Er erläutert anschließend das Wertekonzept und die Festlegungen für die Beurteilung der Luftqualität bezüglich des Schadstoffes PM₁₀. Danach geht er auf die Gebietseinteilung und die Belastungssituation des Jahres 2002 ein. Ferner erläutert er Luftreinhaltepläne und Aktionspläne gemäß BImSchG. Letztlich gibt er Hinweise auf Überschreitungs- und Maßnahmenplangebiete.

Rahmenrichtlinie Luftqualität:

**Richtlinie 96/62/EG des Rates vom
27.9.1996**

**über die Beurteilung und die Kontrolle der
Luftqualität**

(ABl EG L 296 S. 55)

Rahmenrichtlinie Luftqualität 96/62/EG:

Artikel 1

Ziele

Der allgemeine Zweck dieser Richtlinie ist die Festlegung der Grundsätze für eine **gemeinsame Strategie mit folgendem Ziel**

- **Definition und Festlegung von Luftqualitätszielen** für die Gemeinschaft im Hinblick auf die Vermeidung, Verhütung oder Verringerung schädlicher Auswirkungen auf **die menschliche Gesundheit und die Umwelt** insgesamt,
- **Beurteilung der Luftqualität** in den Mitgliedstaaten anhand **einheitlicher Methoden und Kriterien**,
- **Verfügbarkeit von sachdienlichen Informationen** über die Luftqualität und **Unterrichtung der Öffentlichkeit** hierüber, unter anderem durch Alarmschwellen,
- **Erhaltung** der Luftqualität, sofern sie gut ist, **und Verbesserung der Luftqualität**, wenn dies nicht der Fall ist.

Tochterrichtlinien

- 1. TRL:** Richtlinie 1999/30/EG des Rates vom 22.4.1999 über
Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid und Stickstoffoxide, Partikel und Blei in der Luft
(ABl. EG L 163 S. 41 - geändert (2001/744/EG) am 17.10.2001, ABl. EG L 278 S. 35)
- 2. TRL:** Richtlinie 2000/69/EG des Europäischen Parlaments und des Rates vom 16.11.2000 über
Grenzwerte für Benzol und Kohlenmonoxid in der Luft
(ABl. EG 2000 L 313 S. 12, 2001 L 111 S. 31)
- 3. TRL:** Richtlinie 2002/3/EG des Europäischen Parlaments und des Rates vom 12.2.2002 über den
Ozongehalt der Luft
(ABl. EG L 67 S. 14)

Umsetzung der RRL sowie der 1. und 2. TRL in deutsches Recht durch

- **7. Gesetz zur Änderung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes
(vom 11.9.2002, BGBl. I S. 3622)**
- **Novelle der Verordnung über Immissionswerte für Schadstoffe in der Luft (22. BImSchV)
(vom 11.9.2002, BGBl. I S. 3626)**
 - darin Übergangsregeln zur Fortgeltung alter Richtlinien**
 - möglichst genaue Übertragung der 1. und 2. TRL**
 - keine materiellen nationalen Verschärfungen**
 - Prüfpflicht für Maßnahmen vor Geltung der Grenzwerte**

Luftqualitätswerte der Rahmenrichtlinie Luftqualität (96/62/EG)

Grenzwert

Zielwert

Alarmschwelle

Toleranzmarge

22. BImSchV

Immissionswerte für Partikel PM₁₀

Stufe 1	Wert	Toleranzmarge
Grenzwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit	50 µg/m³ PM₁₀ gemittelt über 24 Stunden, höchstens 35 Überschreitungen im Jahr ab 1.1.2005	15 µg/m³ 2002, in gleichen Jahresraten zu mindern auf 0 µg/m³ (2005)
Grenzwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit	40 µg/m³ PM₁₀ gemittelt über 1 Kalenderjahr ab 2005	4,8 µg/m³ 2002, zu mindern in gleichen Jahresraten auf 0 µg/m³ (2005)

RRL/TRL - Gebietsausweisung

§ 9 Abs. 2 und 3 der 22. BImSchV (Festlegung der Ballungsräume und Einstufung der Gebiete und Ballungsräume)

(2) Die zuständigen Behörden legen die Ballungsräume fest. Sie stufen jährlich Gebiete und Ballungsräume wie folgt ein:

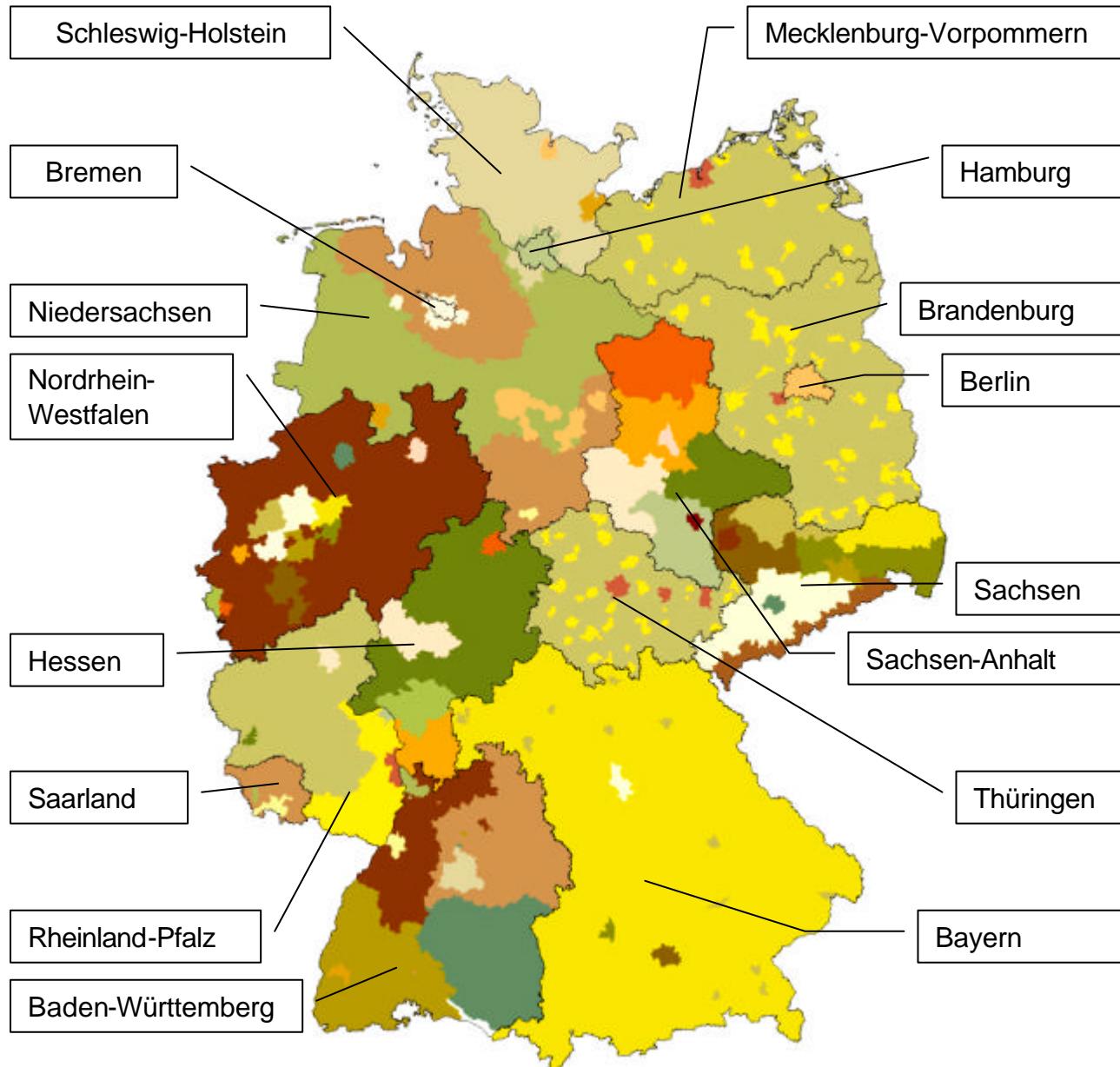
Gebiete und Ballungsräume

1. mit Werten oberhalb der Summe von Immissionsgrenzwert und Toleranzmarge;
2. mit Werten oberhalb des Immissionsgrenzwertes bis einschließlich dem Wert aus Summe von Immissionsgrenzwert und Toleranzmarge;
3. mit Werten gleich oder unterhalb des Immissionsgrenzwertes.

(3) Die Festlegung der Gebiete wird spätestens alle fünf Jahre nach dem Verfahren der Anlage 1 Abschnitt II überprüft. Sie wird bei signifikanten Änderungen der Konzentration der Schadstoffe früher überprüft.

Gebiete für PM₁₀

Stufe1



Brandenburg	3	Mecklenburg-Vorpommern	3
Berlin	1	Nordrhein-Westfalen	12
Baden-Württemberg	8	Rheinland-Pfalz	6
Bayern	5	Saarland	3
Bremen+Niedersachsen	8	Sachsen	9
Hessen	5	Sachsen-Anhalt	7
Hamburg+ Schleswig-Holstein	4	Thüringen	3

Text des § 47 Abs. 1 und 2 des Bundes-Immissionsschutzgesetzes ab 2002

(1) Werden die durch eine Rechtsverordnung nach § 48a Abs. 1 festgelegten Immissionsgrenzwerte einschließlich festgelegter Toleranzmargen überschritten, hat die zuständige Behörde einen Luftreinhalteplan aufzustellen, welcher die erforderlichen Maßnahmen zur dauerhaften Verminderung von Luftverunreinigungen festlegt und den Anforderungen der Rechtsverordnung entspricht.

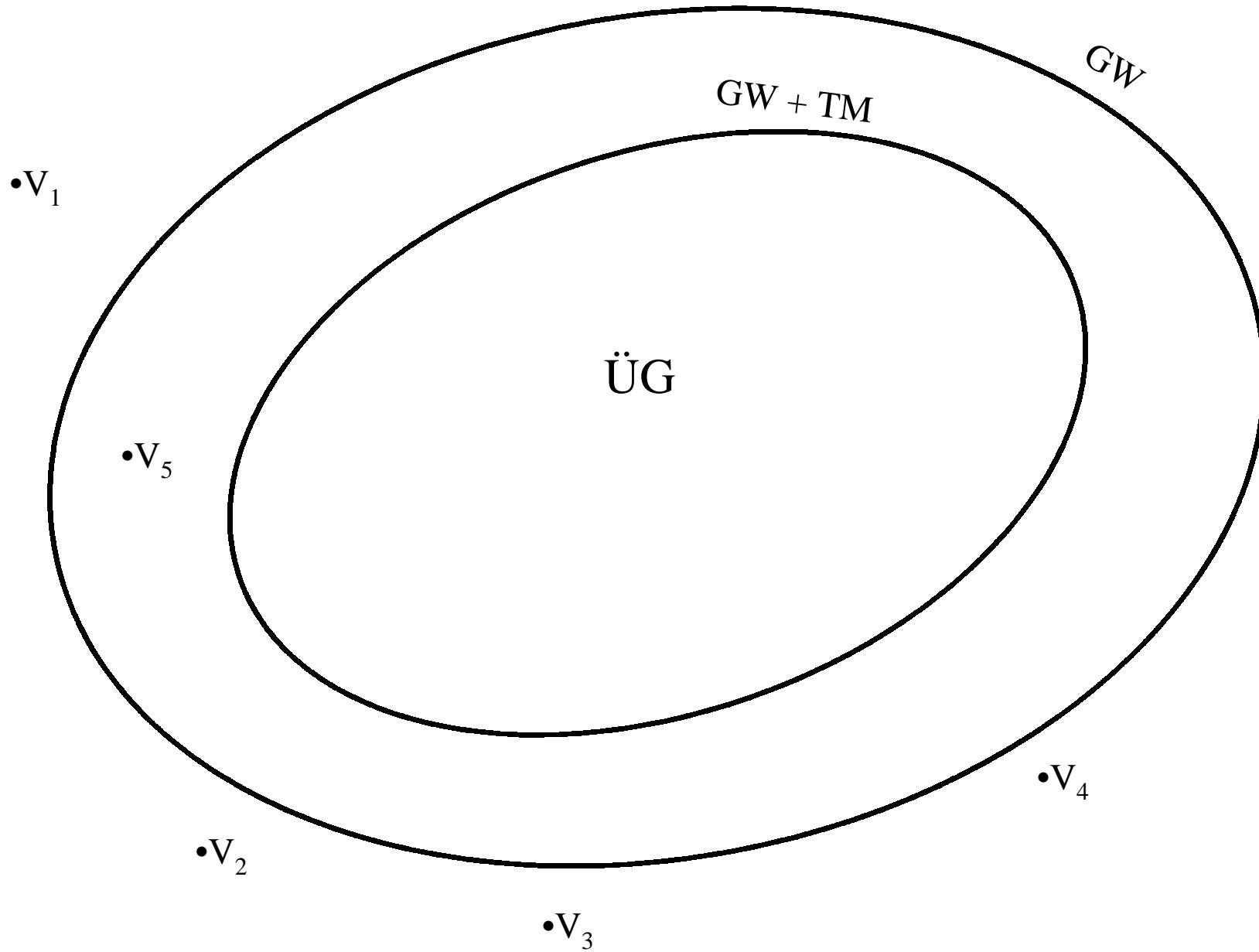
(2) Besteht die Gefahr, dass die durch eine Rechtsverordnung nach § 48a Abs. 1 festgelegten Immissionsgrenzwerte oder Alarmschwellen überschritten werden, hat die zuständige Behörde einen Aktionsplan aufzustellen, der festlegt, welche Maßnahmen kurzfristig zu ergreifen sind. Die im Aktionsplan festgelegten Maßnahmen müssen geeignet sein, die Gefahr der Überschreitung der Werte zu verringern oder den Zeitraum, während dessen die Werte überschritten werden, zu verkürzen. Aktionspläne können Teil eines Luftreinhalteplans nach Absatz 1 sein.

Bundes-Immissionsschutzgesetz – BImSchG

§ 47 Absatz 4:

(4) Die Maßnahmen sind entsprechend des Verursacheranteils unter Beachtung des Grundsatzes der Verhältnismäßigkeit gegen alle Emittenten zu richten, die zum Überschreiten der Immissionswerte oder in einem Untersuchungsgebiet im Sinne des § 44 Abs. 2 zu sonstigen schädlichen Umwelteinwirkungen beitragen. Werden in Plänen nach Absatz 1 oder 2 Maßnahmen im Straßenverkehr erforderlich, sind diese im Einvernehmen mit den zuständigen Straßenbau- und Straßenverkehrsbehörden festzulegen. Werden Immissionswerte hinsichtlich mehrerer Schadstoffe überschritten, ist ein alle Schadstoffe erfassender Plan aufzustellen. Werden Immissionswerte durch Emissionen überschritten, die außerhalb des Plangebiets verursacht werden, hat in den Fällen der Absätze 1 und 2 auch die dort zuständige Behörde einen Plan aufzustellen.

Maßnahmengebiet



A.3 CAFE-WG PM – Diskussionsstand

P. Bruckmann (LUA NRW)

CAFE-WG PM - Aktueller Diskussionsstand

Prof. Dr. Peter Bruckmann,
Landesumweltamt NRW

- Inhalte
- Empfehlungen
- Zeitplan



Landesumweltamt
Nordrhein-Westfalen



CAFE-WG PM

- Vorsitzende: UK (DEFRA) und D (UBA)
- Mitglieder:
 - Vertreter aus 10 Mitgliedstaaten + Schweiz
 - EU-Kommission, EEA, WHO, Berater
 - UNICE
 - EEB
- 6 Arbeitstreffen
- 1 Workshop (Stockholm)



CAFE-WG PM

Auftrag:

- Aktualisierung des 1. PM-Positionspapiers (1997)
- Entscheidungshilfe für CAFE (z.B. Zielgrößen IAM)
- Material zur Revision 1. Tochter-RL (z.B. Erreichbarkeit von Grenzwerten)

Neues Positionspapier im Frühjahr 2004



Zeitplan

- Positionspapier (FD) 4/2004
- Steering Group 5/2004
- Revision 1. Tochter-RL (Empfehlungen der Kommission) 2004? (nur „technische“ Anpassungen)
- CAFE, thematische Strategie 2005
- ggf. Richtlinievorschläge der EU 2006/7
- Ggf. Annahme durch Rat, EP 2008/9
- Umsetzung in Mitgliedstaaten ab 2010?



Positionspapier, Inhalte

- Empfehlungen der WHO
- Eigenschaften von PM (Chemie, Physik)
- Beurteilungsmethoden (Messung, Modellierung)
- Derzeitige Belastung (2001), Erreichbarkeit
- Emissionen
- Quellenidentifizierung (5 Beispiele)
- Trends, Projektionen
- Minderungsmaßnahmen
- Empfehlungen der PM WG

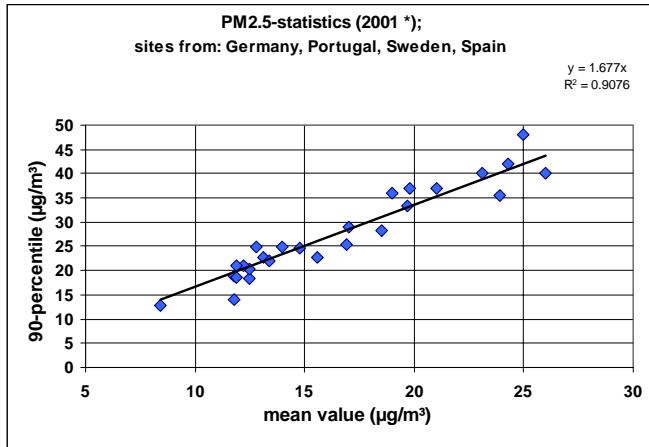


Empfehlungen der PM-WG

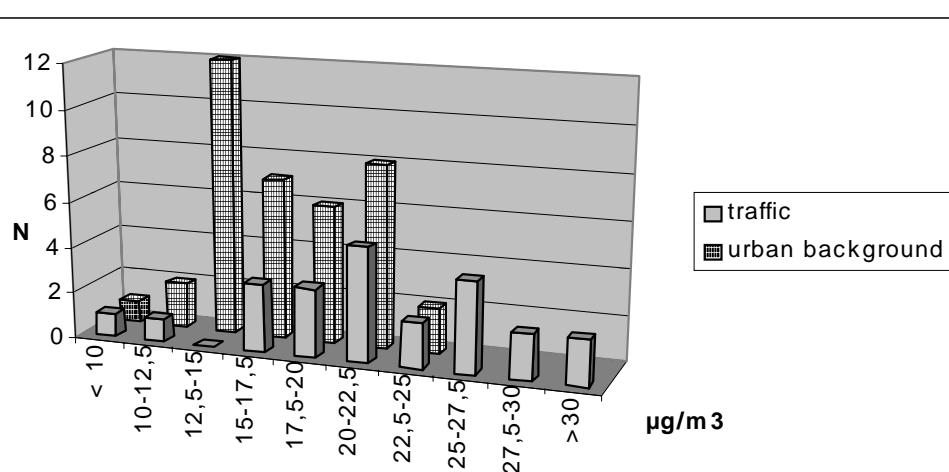
PM-Metrik und Zielgrößen (1)

- PM2.5 wichtigste Metrik
 - Grenzwertvorschläge (Startpunkte für IAM):
12-20 µg/m³ (Jahresmittel)
~ 35 µg/m³ (90 %, Kurzzeitwert)
 - einzuhalten dort, wo relevante Exposition wahrscheinlich ist
- Grobe Partikel ebenfalls gesundheitsrelevant
 - PM10-Monitoring an ca. 20 % der Messstationen beibehalten (parallel zu PM2.5)
 - PM10-Richtgrenzwerte (Stufe 2, 2. Tochter-RL) werden Zielwerte





PM2.5 statistics at 26 sites in Sweden, Germany, Portugal and Spain
(German, Spanish and Portuguese data are from 2001, the Swedish data are from Sep. 99 - Aug. 01)



Frequency distributions of $\text{PM}_{2.5}$ annual means (2001) at European urban background stations (dark columns behind) and at European traffic sites (grey columns in front)



Empfehlungen der PM-WG

PM-Metrik und Zielgrößen (2)

- Argumente gegen PM_{10-2.5}:
 - wenig Wirkungsuntersuchungen
 - Aufgabe der PM10-Trends
 - PM_{10-2.5} müsste derzeit in Europa als Differenz gemessen werden
- Black smoke (Ruß, EC):
WHO: PM aus Verbrennungsprozessen besonders wirkungsrelevant



Empfehlungen der PM-WG

PM-Metrik und Zielgrößen (3)

- (+) black smoke (EC, Ruß) guter Indikator
- (+) größere räumliche Unterschiede als PM2.5
- (-) kein standardisiertes aktuelles Messverfahren
- (-) EURO III-VI wird Emission aus Diesel-Kfz stark reduzieren; Überwachung einer geeigneten Metrik (black smoke, Ruß, EC ...) empfohlen



Empfehlungen der PM-WG

PM-Metrik und Zielgrößen (4)

- Derzeit Kenntnisstand (Belastungssituation, Wirkungsuntersuchungen) nicht ausreichend, PM1.0 oder UFP zu regulieren
- Ergänzung des Grenzwertkonzeptes durch andere Politikinstrumente (z.B. Emissionsobergrenzen, gap closure)



Weitere Empfehlungen und Schlussfolgerungen der PM-WG (1) - Auswahl

- Kontinuierliche Messmethoden vielfach nicht äquivalent zu (manuellen) Referenzverfahren. EU „Leitfaden zur Äquivalenz von Messverfahren“ in 2004. Dokumentation von Korrekturfaktoren notwendig. PM10-Referenzmethode (CEN) sollte überprüft werden. Verbesserte Qualitätssicherung (AQILA).
- Unterschiedlicher „Stationsmix“ in Mitgliedstaaten erschwert Vergleichbarkeit. Bessere Beschreibung der Stationsumgebung. Bessere „siting criteria“?



Weitere Empfehlungen und Schlussfolgerungen der PM-WG (2) - Auswahl

- Modellrechnungen unterschätzen vielfach PM_x
- Verbesserungen E-Kataster erforderlich
- Quantifizierung Resuspension
- In hot spots PM_{10} ($PM_{2.5}$)-Konzentration im Mittel ca. 40 % über städtischem Hintergrund
- $PM_{2.5}/PM_{10}$ ca. 0,66 (0.4 - 0.8)
- Wenig Daten für $PM_{1.0}$ und UFP. $PM_{1.0}/PM_{10} \sim 0.5$
- Verstärkte Messungen von $PM_{1.0}$, UFP, Inhaltsstoffen



Weitere Empfehlungen und Schlussfolgerungen der PM-WG (3) - Auswahl

- PM_{10} -Grenzwert (24 h) strenger als Jahresgrenzwert (= ~ 30 $\mu g/m^3$)
- Ohne zusätzliche (lokale, regionale) Maßnahmen Überschreitungen des PM_{10} -Grenzwertes (24 h, Stufe 1) an zahlreichen Stationen, vor allem hot spots, in 2005. Mitgliedstaaten sollten Schwierigkeit der Einhaltung dokumentieren (in Luftreinhalteplänen). Verschiebung des Datums zur Einhaltung? (2005).



Weitere Empfehlungen und Schlussfolgerungen der PM-WG (4) - Auswahl

- PM10-Grenzwert (Stufe 1, Jahresmittel) 2005 vielfach einhaltbar, Probleme in Süd- und Osteuropa.
- PM10-Richtgrenzwerte (Stufe 2) teilweise bereits im regionalen Hintergrund überschritten. Hoher Hintergrund vor allem in Benelux, Nordwest-deutschland, Norditalien, Osteuropa.
- PM10-Konzentrationen sind seit 1990 generell um ca. 15-20 % zurückgegangen. Seit 1998 kein erkennbarer Trend, erhebliche Schwankungen durch Meteorologie.



Weitere Empfehlungen und Schlussfolgerungen der PM-WG (5) - Auswahl

- Im kommenden Jahrzehnt Rückgang der PM10-Emissionen und Konzentrationen erwartet.
- Weitere Reduktionsmaßnahmen auch auf europäischer Ebene notwendig (z.B. Emissionsbegrenzungen mobiler Quellen)





B Messtechnische Untersuchungen zur Quellenidentifizierung

B.1 Aerosolpartikel in ländlichen und urbanen Gebieten: Quellenidentifizierung durch Einzelpartikelanalyse

S. Weinbruch, M. Ebert, B. Vester
(TU Darmstadt)



Aerosolpartikel in ländlichen und urbanen Gebieten: Quellenidentifizierung durch Einzelpartikelanalyse

Stephan Weinbruch, Martin Ebert und Barbara Vester

Technische Universität Darmstadt, Institut für Angewandte Geowissenschaften,
Schnittspahnstr.9, 64287 Darmstadt

Quellenidentifizierung wurde in der Vergangenheit praktisch ausschließlich auf der Basis von bulkanalytischen Methoden durchgeführt. Demgegenüber bietet die Einzelpartikelanalyse mit der Methodenkombination von hochauflösender Rasterelektronenmikroskopie (HRSEM), „Environmental Scanning Electron Microscopy“ (ESEM) und Transmisssionselektronenmikroskopie (TEM) eine Reihe von Vorteilen:

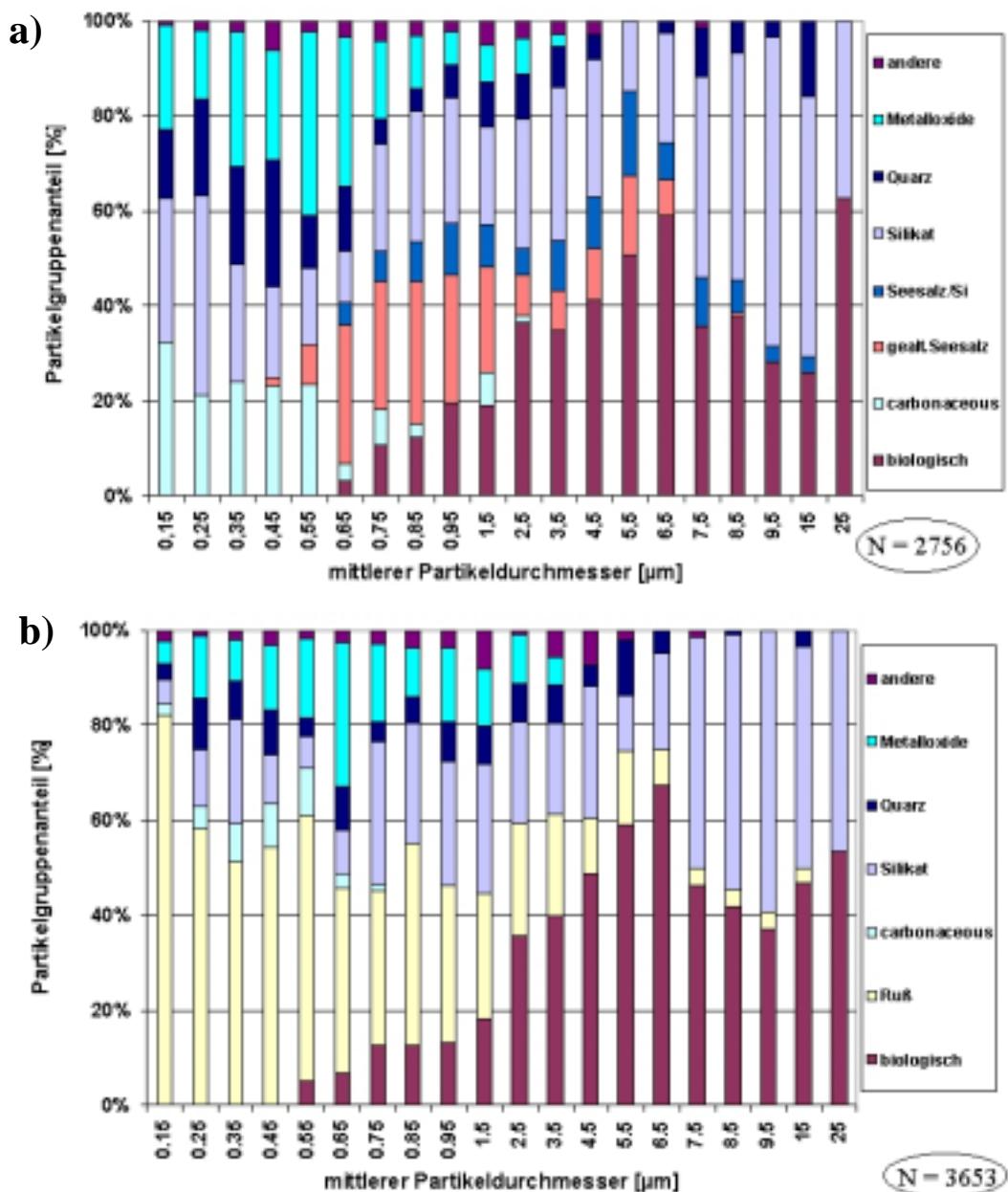


Abb.1: Partikelgruppenanzahlanteile auf dem Kleinen Feldberg für (a) eine schwach belastete Luftmasse (23.10.1997, Nordanströmung) und (b) eine stark belastete Luftmasse (13.08.1997, Nordostanströmung).

1. Es gibt zahlreiche Hinweise in der Literatur, daß die Anzahl von Partikeln eine wesentliche Größe bei der Abschätzung negativer gesundheitlicher Auswirkungen ist. Deshalb ist eine anzahlbezogene chemische Charakterisierung des Aerosols unumgänglich. Bulkmethoden hingegen liefern nur eine Durchschnittszusammensetzung, die von wenigen großen Partikeln dominiert ist.
2. Einzelpartikelanalyse durch Elektronenmikroskopie liefert Informationen, die zur exakten Quellenidentifizierung unverzichtbar sind. Primäre biologische Aerosolpartikel (Pollen, Sporen, Bakterien etc.) sind eine häufige Aerosolkomponente (siehe Abb.1a+b), die bei der Bulkanalyse praktisch immer übersehen wird. Silikatische und Metalloxidische Flugaschen sind eine wichtige anthropogene Komponente, die bei bulkanalytischen Verfahren häufig fälschlicherweise als natürliche Komponente (Bodenstaub) klassifiziert wird. In der Elektronenmikroskopie lassen sich hingegen Flugaschen durch ihre typische Morphologie (Schmelzkugel) einfach von Bodenkomponenten unterscheiden. Ruß aus Verbrennungsprozessen kann ebenfalls aufgrund seines charakteristischen Aussehens leicht erkannt werden. Er stellt eine wichtige Komponente verschmutzter Luftmassen dar (Abb. 1b).
3. Der Mischungszustand des atmosphärischen Aerosols, ein wesentlicher Parameter bei der Abschätzung gesundheitlicher Auswirkungen, kann nur mit Hilfe der Elektronenmikroskopie bestimmt werden. Mischpartikel aus Ammoniumsulfat und Ruß (Abb.2) sind in urban-beeinflussten Luftmassen eine häufig auftretende Komponente.

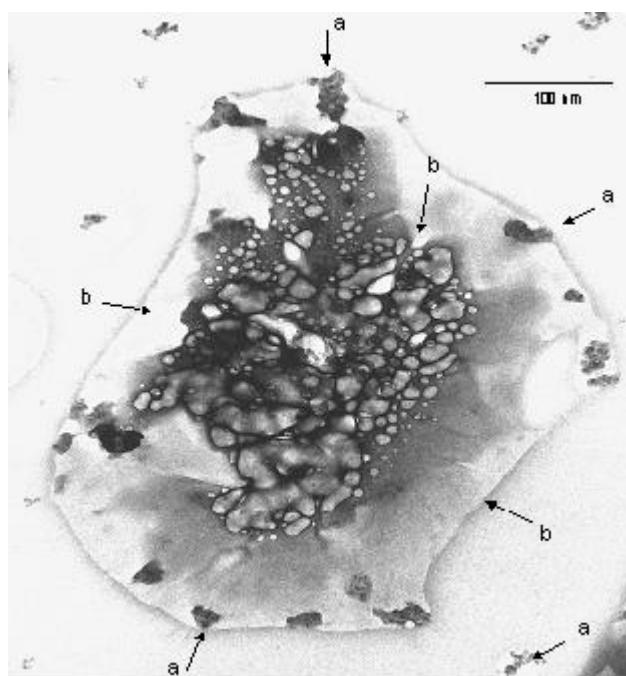


Abb.2: TEM-Hellfeldaufnahme eines Ruß/Ammoniumsulfat-Mischpartikels (a = Rußeinschlüsse; b = Ammoniumsulfat).

Während des LACE98 Feldexperimentes in Lindenbergs (südöstlich von Berlin) betrug der Anteil dieser Mischpartikel bis zu 60% der Partikelanzahl für Partikel mit einem Durchmesser $\geq 0,1 \mu\text{m}$ (siehe Abb. 3).

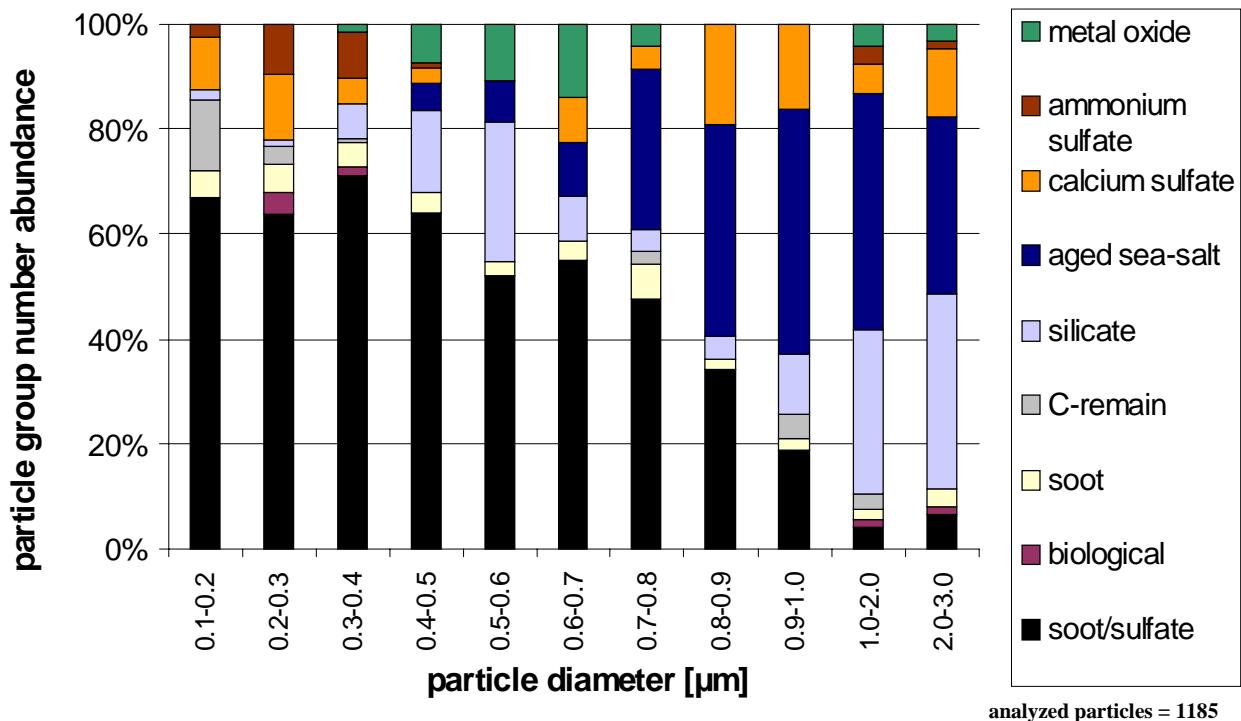


Abb.3: Partikelgruppenanzahlanteile in Lindenbergs am 10.08.1998.

Bei Inkooperation dieser Partikel im menschlichen Atemtrakt wird Ammoniumsulfat aufgelöst (Deliquescence) und die unlöslichen Rußeinschlüsse freigesetzt. Das Freisetzen dieser unlöslicher Partikel ist bei bulkanalytischen Verfahren nicht vorhersehbar. Pro Mischpartikel werden meist 1 bis 3 Rußaggglomerate freigesetzt (Abb.4).

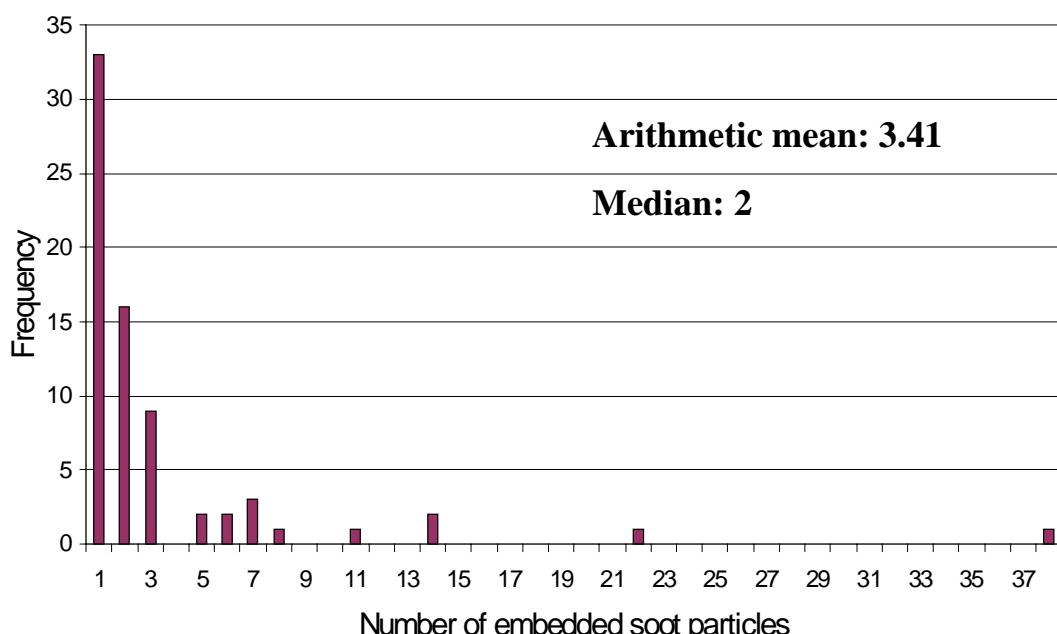


Abb.4: Histogramm der Anzahl von Rußaggglomeraten, die in einzelnen Mischpartikeln nachgewiesen wurden.

Die Größe der freigesetzten Rußagglomerate liegt hierbei meist im Bereich 50 – 200 nm (Abb. 5).

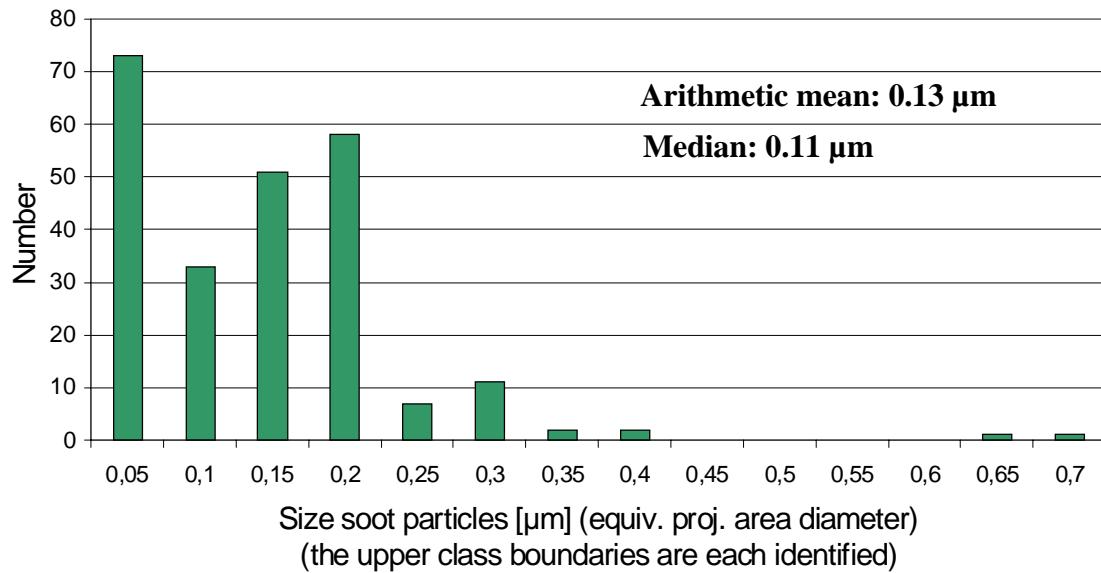


Abb.5: Durchmesser der in Mischpartikeln gefundenen Rußagglomerate.

Zusammenfassend ist festzustellen, dass die Einzelpartikelanalyse eine unverzichtbare Ergänzung zu den bulkanalytischen Verfahren darstellt. Maßnahmenpläne, die ausschließlich auf massenbezogenen Daten beruhen, laufen in Gefahr, der komplexen Natur des atmosphärischen Aerosols nicht gerecht zu werden. Es besteht daher noch ein erheblicher Forschungsbedarf um gutgemeinte Maßnahmen zur Verminderung der Aerosolbelastung nicht in eine falsche Richtung laufen zu lassen.

B.2 Automatische Einzelpartikelanalyse zur Identifizierung von Quellgruppen der Staubfraktion > 2,5 µm

E. Schultz (Deutscher Wetterdienst Freiburg)

Automatische Einzelpartikelanalyse zur Identifizierung von Quellgruppen der Staubfraktion > 2,5 µm

E. Schultz, Deutscher Wetterdienst, Freiburg
eckart.schultz@dwd.de

1. Einleitung

Als Grobstaub wird die Aerosolfraktion größer 2,5 µm Partikeldurchmesser bezeichnet. Das Verteilungsmaximum der Grobstaubmassenkonzentration tritt standortabhängig zwischen 10 und 30 µm auf. Eine idealisierte Darstellung gibt Abb. 1 (Peters et al., 1998). Als natürliche Quelle ist in diesem Bereich vor allem die windbedingte Staubaufwirbelung wirksam. Weitere Quellen über Land sind die Emissionen der Pflanzendecke, z.B. Pollen, Sporen und Pflanzenreste, und anthropogene Grobstaubemissionen. In Küstennähe kommen Seesalzpartikel hinzu, die je nach Wetterbedingungen bis weit ins Landesinnere getragen werden können.

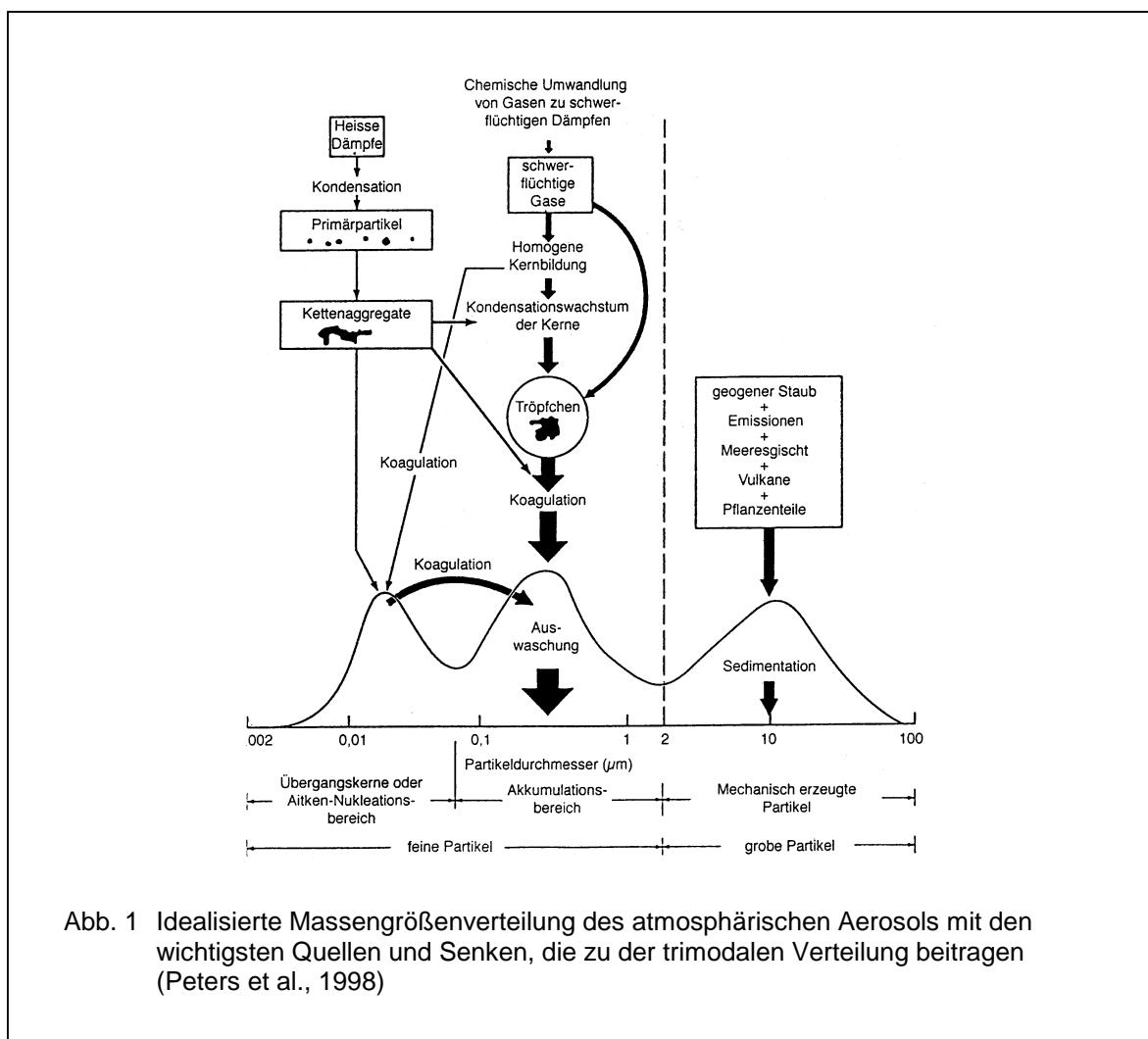


Abb. 1 Idealisierte Massengrößenverteilung des atmosphärischen Aerosols mit den wichtigsten Quellen und Senken, die zu der trimodalen Verteilung beitragen (Peters et al., 1998)

Der Grobstaub wird auch von der Gesamtstaubmessung nur teilweise erfasst. Die PM10-Messung berücksichtigt schließlich nur noch einen geringen Anteil der tatsächlich auftretenden Grobstaubbelastung. Dadurch wird insbesondere die verkehrsbedingte Staubaufwirbelung deutlich unterschätzt. Im vorliegenden Beitrag wird ein Verfahren zur Erfassung des gesamten Grobstaubbereichs von $2,5 \mu\text{m}$ bis $100 \mu\text{m}$ Partikeldurchmesser beschrieben und die Ergebnisse einjähriger Messungen in einem Referenz-Messnetz des Deutschen Wetterdienstes vorgestellt.

2. Methodik

Für die Grobstaubprobenahme wurde das Sigma-2-Verfahren nach VDI 2119, Blatt 4 (Verein Deutscher Ingenieure, 1997) eingesetzt. Die Abscheidung der Partikelfraktion erfolgt passiv durch Sedimentation auf einer kleberbeschichteten Plexiglasfolie im windberuhigten Inneren des Sigma-2-Gerätes (Abb. 2). Die abgeschiedenen Partikel können einzeln lichtmikroskopisch untersucht und vermessen werden. Die Einzelpartikelanalyse wird durch Einsatz eines Bildanalysesystems automatisiert und liefert bei bekannter Abscheidefläche und einem festen Probenahmezeitraum eine großenfraktionierte Partikel-Anzahldepositionsrate. Unter Annahme einer Einheitsdichte und der Kugelform für die vermessenen Partikel kann daraus eine großenfraktionierte Massendepositionsrate berechnet werden.

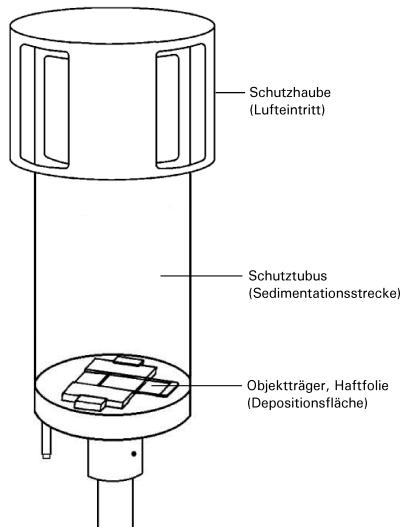


Abb. 2 Schematische Darstellung des Sedimentationssammlers Sigma-2 mit transparenter Staubhaftfolie (Plexiglas) zur lichtmikroskopischen Einzelpartikelanalyse

Durch Approximation der Depositionsgeschwindigkeit in dem windberuhigten Sigma-2-Gerät durch die partikelgrößenabhängige Endsinkgeschwindigkeit nach Stokes kann schließlich die großenfraktionierte Partikelmassenkonzentration berechnet werden. Vergleichsmessungen mit Schwebstaubsammlern im Größenbereich von 2,5 bis 10 µm Partikeldurchmesser zeigten eine gute Übereinstimmung (Scharring et al., 2002).

3. Messungen

Zu Beginn des Jahres 2003 wurde mit Unterstützung des Umweltbundesamtes, der zuständigen Landesämter und –behörden sowie unter Mithilfe örtlicher Universitätsinstitute ein Referenz-Messnetz mit Sigma-2-Sammlern an insgesamt 14 Standorten in Deutschland eingerichtet und eine wöchentliche Probenahme jeweils von Freitag bis Freitag durchgeführt.

Folgende Standorte wurden ausgewählt:

- (a) Ländliche Hintergrundstationen: Westerland, Zingst, Neuglobsow, Schmücke, Deuselbach, Schauinsland, Hohenpeißenberg.
- (b) Städtische Hintergrundstationen: Hamburg, Berlin, Duisburg, Erfurt, München.
- (c) Verkehrsstandorte: Mainz, Freiburg.

An diesen Standorten wurden im Zeitraum vom 03.01. bis 20.12.2003 fortlaufend wöchentliche Proben auf transparenten Staubhaftfolien gesammelt und anschließend per Post zur mikroskopischen Auswertung an die Abteilung Medizin-Meteorologie des Deutschen Wetterdienst Freiburg geschickt.

An den Partikelproben wurde jeweils in einem Ausschnitt von 18 x 18 mm² unter Durchlicht-Hellfeld-Bedingungen bei 20-facher Objektivvergrößerung eine automatische Einzelpartikelanalyse vorgenommen (Abb. 3).

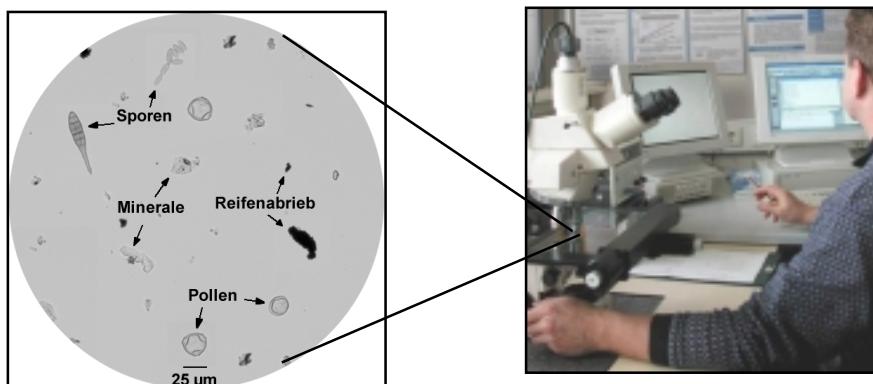
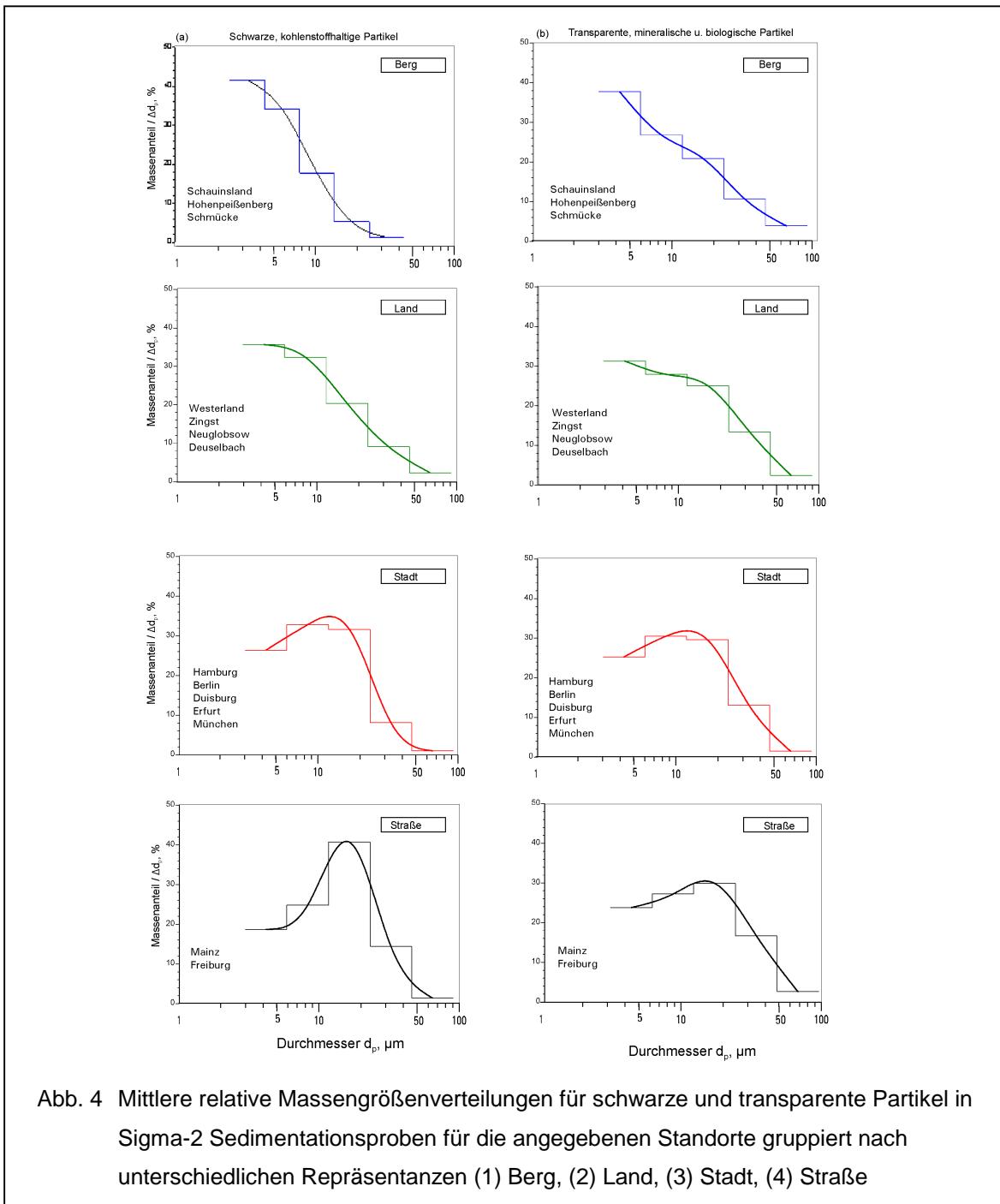


Abb. 3 Atmosphärische Staubprobe einer verkehrsbezogenen Messung mit dem Sedimentationssammler Sigma-2 und Bildanalysesystem zur automatischen mikroskopischen Einzelpartikelanalyse

Neben der Größenbestimmung wurde an jedem Partikel eine Grauwertmessung durchgeführt und die großenfraktionierte Massenkonzentration für eine transparente und eine schwarze Partikelkomponente berechnet. Auf dieser Grundlage konnte die Größenverteilung dieser Komponenten bestimmt werden.

4. Ergebnisse

In Abbildung 4 sind die mittleren relativen Größenverteilungen der Grobstaubkonzentration im Größenbereich (2,5 – 100 µm) für eine transparente, mineralische und biologische Komponente sowie einen schwarzen kohlenstoffhaltigen Anteil dargestellt. Anhand des Verlaufs der Größenverteilung lassen sich vier Gruppen von Standorten zusammenfassen:



(a) Bergstationen

Diese Standorte sind charakterisiert durch das Fehlen eines Grobstaub-Verteilungsmaximums. Beginnend mit dem kleinsten Partikelgrößenintervall zeigt die Verteilung sowohl für den schwarzen wie den transparenten Partikelanteil einen weitgehend monotonen Abfall im gesamten Größenbereich. Zu den Stationen mit dieser Charakteristik zählen die Standorte Schmücke, Schauinsland und Hohenpeißenberg.

(b) Ländliche Hintergrundstationen, einschl. Küstenstationen

Bei diesen Stationen deutet sich bei den transparenten Partikeln ein Grobstaubmaximum durch eine Verteilungsschulter bei 20 µm an. Als Ursache kann verstärkter mineralischer Partikeleintrag durch die Winderosion des Erdbodens und durch pflanzliche Emissionen, vor allem in Form von Baumpollen angesehen werden. Diese Pollenarten haben einen typischen Durchmesser von etwa 20 µm. Ein Salzeintrag bleibt bei dieser Verteilung unberücksichtigt, da die Salzpartikel bei der Mikroskopie durch eine wässrige Einbettung der Proben verloren gingen. Die Größenverteilung der schwarzen Partikel ähnelt weitgehend den Verhältnissen an den Bergstationen und bestätigt den Hintergrundcharakter der Messstellen Westerland, Zingst, Neuglobsow und Deuselbach.

(c) Städtische Hintergrundstationen

Bei der transparenten Partikelkomponente und nochmals verstärkt bei dem schwarzen Grobstaubanteil wird ein breites Verteilungsmaximum zwischen 5 und 20 µm Partikeldurchmesser sichtbar. Das Auftreten eines isolierten, eigenständigen Verteilungsmaximums kann mit der verstärkten Staubentwicklung durch die Erosionsanfälligkeit versiegelter Flächen im Stadtbereich erklärt werden. Hinzu kommt die Staubaufwirbelung durch den Verkehr. Beide Effekte überlagern sich. Die Einwirkung einer windbedingten Staubaufwirbelung wird in Analogie zu den Verhältnissen an den ländlichen Stationen durch ein sekundäres Verteilungsmaximum bei 20 µm sichtbar. Ein erstes Maximum zwischen 5 und 15 µm kann auf die Staubresuspension durch den Straßenverkehr zurückgeführt werden. Das quellnahe Resuspensionsmaximum wie es in Straßennähe zu finden ist, hat sich durch Verschwinden (Sedimentation) der größeren Bestandteile zu kleineren Partikeldurchmessern verschoben. In guter Übereinstimmung zeigen die Standorte der Referenzmessstellen in Hamburg - Bundesstraße, Berlin – Nansenstraße, Duisburg – Westender Straße , Erfurt – Krämpferstraße und München – Lothstraße diese typische Größenverteilung des städtischen Hintergrundes.

(d) Verkehrsstationen

Auffällig bei den unmittelbar vom Straßenverkehr beeinflussten Stationen ist das ausgeprägte Grobstaubmaximum der schwarzen Partikel oberhalb 20 µm. Weniger ausgeprägt, aber an der gleichen Position, befindet sich das Maximum einer transparenten Partikelkomponente. Sowohl für das Maximum der transparenten als auch der schwarzen Partikel kann als Verursacher der Straßenverkehr angenommen werden. Während der transparente Anteil mit der Resuspension von vorwiegend mineralischen Staubpartikeln von der Straßendecke erklärt werden kann, ist die schwarze Komponente vorwiegend auf den primären mechanischen Abrieb der Fahrzeugreifen zurückzuführen. Ein geringerer Teil geht auf eine sekundäre Umlagerung und Wiederaufwirbelung zurück. Die mikroskopische Untersuchung zeigt für den rußhaltigen Reifenabrieb eine typische Gestalt in Form kompakter Röllchen, die sich morphologisch deutlich von kohlenstoffhaltigen Verbrennungsprodukten (Ruß, Aschen) unterscheidet und zur Partikelerkennung dienen kann. Der Reifenabrieb und die Lage des Verteilungsmaximums bestätigen die Klassifikation der Referenzmessstellen in Mainz und Freiburg als unmittelbar vom Verkehr beeinflusste Stationen.

5. Schlussfolgerungen

Die mikroskopische Einzelpartikelanalyse an Grobstaubproben aus einjährigen Messungen mit dem Sigma-2-Sammler an Standorten sehr unterschiedlicher Repräsentanz ergab typische Größenverteilungen in Abhängigkeit von der Wirksamkeit verschiedener Quellgruppen. Die auftretenden Verteilungsmaxima konnten (a) natürlichen Quellen, wie der windbedingten Aufwirbelung von Bodenpartikeln und pflanzlichen Emissionen, z.B. Pollen, (b) gemischt anthropogen/natürlichen Quellen, wie der Resuspension von Mineralstaub von Straßen und anderen versiegelten Flächen in den Städten sowie (c) dem Reifenabrieb des Kraftfahrzeugverkehrs zugeordnet werden.

Die Lage und Höhe der Verteilungsmaxima erlauben eine Abschätzung der Entfernung und Intensität der beteiligten Quellen. Anhand dieser Information können die Repräsentanz von Messstellen überprüft und Störungen bzw. Änderungen erkannt werden. Die beteiligten Quellgruppen können durch die Identifizierung von Tracer-Komponenten direkt nachgewiesen werden. Besonders markante Beispiele sind der Reifenabrieb als eindeutiger Indikator des Kraftfahrzeugverkehrs oder pflanzliche Bestandteile, wie Pollen, Sporen, Zellulosefasern für einen biologischen Eintrag.

Danksagung

Der Autor dankt den beteiligten Mitarbeitern folgender Institutionen für die zuverlässige Durchführung der wöchentlichen Staubprobenahme mit dem Sigma-2-Sammler:

- Umweltbundesamt mit den Messstellen Westerland, Zingst, Neuglobsow, Schmücke, Deuselbach und Schauinsland.
- Institut für Anorg. und Angew. Chemie, Universität Hamburg.
- Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Berlin.
- Institut für Energie und Umwelttechnik, Duisburg.
- Thür. Landesamt für Lebensmittel und Verbraucherschutz, Erfurt.
- Landesamt für Umwelt- und Gewerbeaufsicht Rheinland-Pfanz, Mainz.
- Zentrum für Allergie und Umwelt, TU München.
- Meteorologisches Observatorium, Hohenpeißenberg, Deutscher Wetterdienst.

Ohne die Mithilfe und Unterstützung dieser Institutionen wäre die vorliegende Untersuchung nicht möglich gewesen.

Literatur

A. Peters, H. Schulz, W.G. Kreyling, H.-E. Wichmann, 1998: Staub und Staubinhaltsstoffe / Feine und ultrafeine Partikel. In: Handbuch Umweltmedizin – 14. Erg. Lfg. 10/98 1- 19

Verein Deutscher Ingenieure, 1997: VDI 2119, Blatt 4 – Mikroskopische Unterscheidung und größtenfraktionierte Bestimmung der Partikeldeposition auf Haftfolien. Probenahmegerät Sigma-2 (Ausgabe Aug. 1997)

S. Scharring, V. Dietze, E. Schultz, 2002: An alternative approach to the measurement and identification of airborne particles in the 2,5 – 10 µm range. In:
<http://www.trumf.de./~deutsch/Veranstaltungen/Particles> ... Abstracts.

B.3 Anteil einzelner Emittenten an der Belastung durch PM10 in Duisburg

D. Gladtke (LUA NRW)

Anteil einzelner Emittenten an der Belastung durch PM10 in Duisburg

Dieter Gladtke

Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen Wallneyer Str. 6, 45133 Essen

Der Duisburger Norden ist mit 5 Hochöfen, 3 Stahlwerken, einer Kokerei und einer Sinteranlage das größte Zentrum der Eisen- und Stahlindustrie in Deutschland. In Tabelle 1 sind die PM10-Konzentrationen in der Umgebung von Anlagen zur Eisen- und Stahlherstellung in Duisburg zusammengefasst. Es zeigt sich, dass an allen Messstellen zumindest ein Grenzwert der 1 Tochterrichtlinie der EU [1] überschritten ist.

Tabelle 1: PM10-Konzentrationen in der Umgebung der Eisen- und Stahlindustrie in Duisburg

Station	Lage	Jahresmittel PM10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Anzahl Tage mit PM10 $>50 \mu\text{g}/\text{m}^3$
Duisburg Bruckhausen	Neben Kokerei, Hochöfen und Stahlwerk der Fa. Thyssen in Duisburg-Bruckhausen	46	128
Duisburg Marxloh (2003)	Östlich der Sinteranlage und der Hochöfen in Duisburg-Schwelgern, nordöstlich des Stahlwerks in Duisburg- Bruckhausen der Fa. Thyssen	42	
Duisburg Hüttenheim	Westlich der Kokerei und des Stahlwerks, südlich der Hochöfen und der Sinteranlage der Fa. HKM	40	82
Duisburg Ehingen	Östlich der Kokerei, des Stahlwerks, der Hochöfen und der Sinteranlage der Fa. HMK	32	53

In Duisburg-Bruckhausen wurden 2002 alle Grenzwerte der EU für PM10, auch unter Einbeziehung der Toleranzmargen, deutlich überschritten:

- Jahresmittelwert PM10: $46 \mu\text{g}/\text{m}^3$ EU: $40 \mu\text{g}/\text{m}^3 + \text{Toleranzmarge } 2002: 44,8 \mu\text{g}/\text{m}^3$
- Tageswerte über $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pro Jahr: 128 EU: $35 + \text{Toleranzmarge } 2002: \text{Tageswerte über } 65 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pro Jahr: 58

Der EU-Richtlinie entsprechend muss ein Maßnahmenplan zur Verbesserung der Luftqualität in der Region aufgestellt werden. Hierfür sind aber zumindest halbquantitative Aussagen über den Anteil einzelner Emittenten an der Belastung notwendig.

Die Emissionen dieser Anlagen sind schwer direkt zu messen, denn nur ein Bruchteil von ihnen wird über gefasste Quellen abgeführt. Die vorherrschenden diffusen Emissionen sind aber nur schwer zu messen.

Mit emittentennahen Immissionsmessungen hingegen lässt sich der Beitrag dieser Anlagen zur PM10-Belastung in der Umgebung zumindest abschätzen, wie hier gezeigt werden soll.

Abschätzung eines Hintergrundwerts für PM10

Die Zusammenstellung der Jahresmittelwerte von 2002 der PM10 Belastung an Messstellen für die städtische Hintergrundbelastung zeigt, wie homogen die städtischen Hintergrundwerte für PM10 im Rhein-Ruhr-Gebiet sind (siehe Abb. 1).

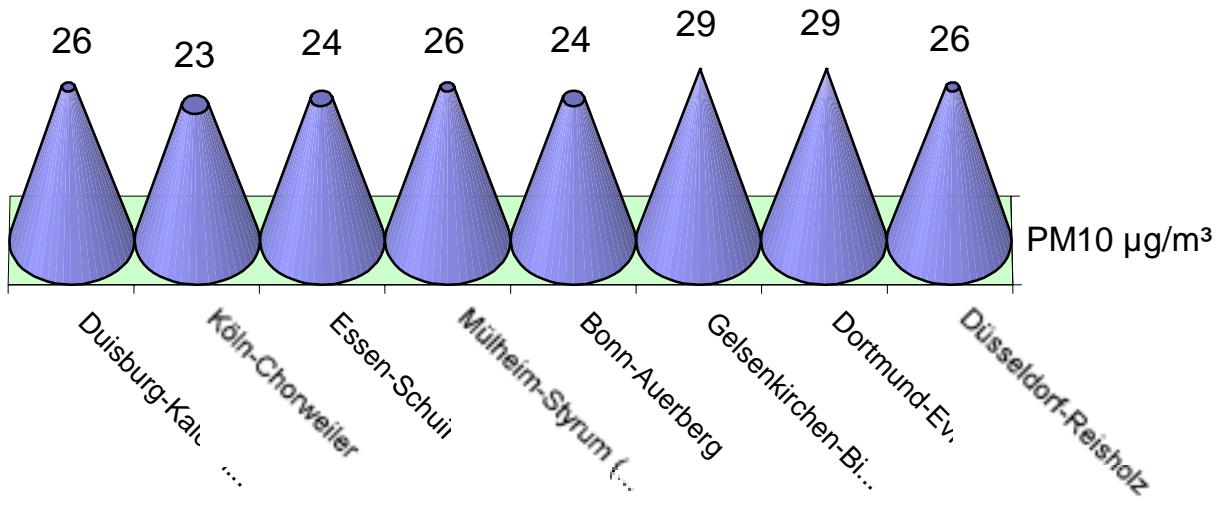


Abb. 1: Hintergrundbelastung in Ballungsgebieten in NRW (2002)

Demnach kann die Hintergrundbelastung für PM10 in Duisburg-Nord mit $26 \mu\text{g}/\text{m}^3$ geschätzt werden. Auch in hochgradig durch Staub belasteten Regionen ist demnach mehr als die Hälfte der Staubbelastung auf den urbanen Hintergrund zurückzuführen.

In verschiedenen Untersuchungen [2], [3] wurde versucht, die Herkunft der Hintergrundbelastung durch PM10 in größeren Städten zu ermitteln. Der Hauptteil der PM10–Belastung stammt demnach von weit entfernten Quellen, wie Tabelle 2 zeigt:

Tabelle 2: Herkunft der Hintergrundbelastung durch PM10 in städtischen Ballungsgebieten

Quelle	PM10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	% der Hintergrundbelastung
Natürliche Quellen, z. B. sekundäre Aerosole	ca. 10	40
Aufwirbelung von Erdkrustenmaterial	2 – 3	10
Meersalz	2 – 3	10
Straßenverkehr (Ferntransport)	1 – 2	7
Straßenverkehr (lokal)	1 – 2	7
Hausbrand	ca. 1	5
Unbekannt, z. B. Wasser, Ferntransport von industriellen Quellen	ca. 7	21

Abhängigkeit der PM10 Belastung in Duisburg-Bruckhausen von der Windrichtung

Ist bekannt, in welcher Richtung von einer Messstation aus wichtige Staubquellen liegen, kann deren Anteil an der Staubbelastung mit Hilfe der Abhängigkeit der Staubkonzentration von der Windrichtung ermittelt werden. In Abb. 2 sind für die Messstelle Duisburg-Bruckhausen die Windrichtungssektoren wichtiger Anlagen mit Einfluss auf die Luftqualität der Region dargestellt:

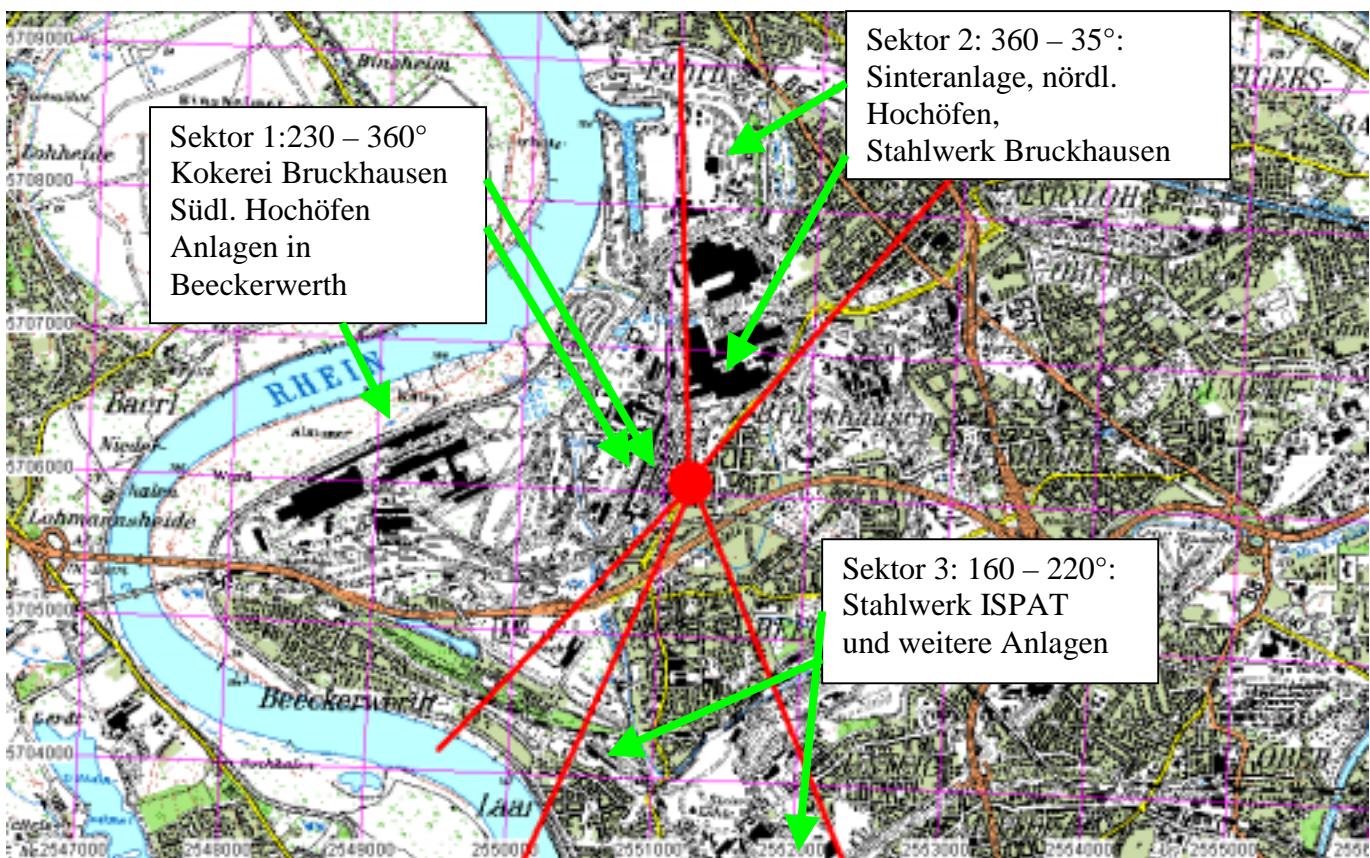


Abb. 1: Windrichtung wichtiger Anlagen bezogen auf Duisburg-Bruckhausen

Die Abhängigkeit der PM10-Konzentration von der Windrichtung (Konzentrationswindrose) weist auf die Kokerei Bruckhausen im Westen der Messstelle und das Stahlwerk Bruckhausen im Norden als wichtige Staubquellen hin (vgl. Abb. 3). Außerdem werden hohe Staubwerte bei Wind aus nordöstlichen Richtungen ebenfalls auf der Konzentrationswindrose angezeigt.

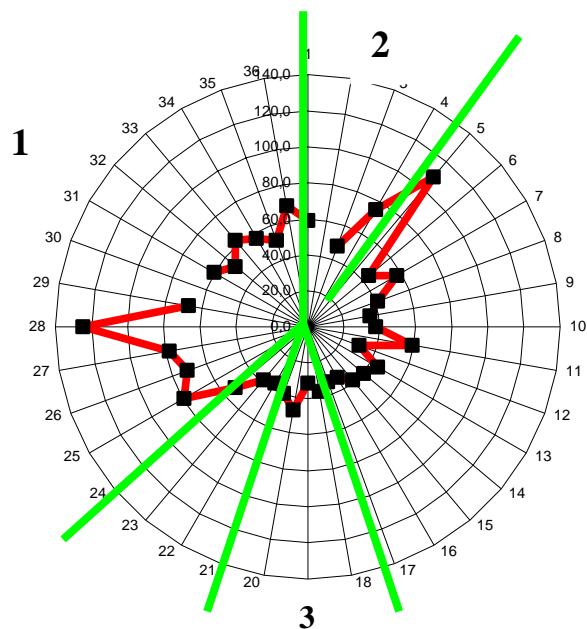


Abb. 3: Konzentrationswindrose für PM10 in Duisburg-Bruckhausen 2002; Bezeichnungen der Windrichtungssektoren wie in Abb. 2

Diese Ereignisse sind aber für das Jahresmittel nur wenig bedeutend, da dieses Phänomen nur an wenigen Tagen auftrat.

Um den Beitrag von Emittenten zur Gesamtbelastung darzustellen, muss also auch berücksichtigt werden, wie oft der Wind aus der Richtung einer Anlage weht. Außerdem muss die Hintergrundbelastung berücksichtigt werden.

Deshalb muss zunächst von den wie oben dargestellten Konzentrationen die Hintergrundbelastung abgezogen werden. Werden dann die Werte mit der relativen Windrichtungshäufigkeit (diese entspricht bei repräsentativen Messungen der Anzahl der Messwerte aus einer Windrichtung, geteilt durch die Gesamtzahl der Messwerte) multipliziert, wird die Abhängigkeit der Zusatzbelastung von der Windrichtung (siehe Abb. 4) dargestellt, auf der die Bedeutung einiger Emittenten für die Luftbelastung zu erkennen ist.

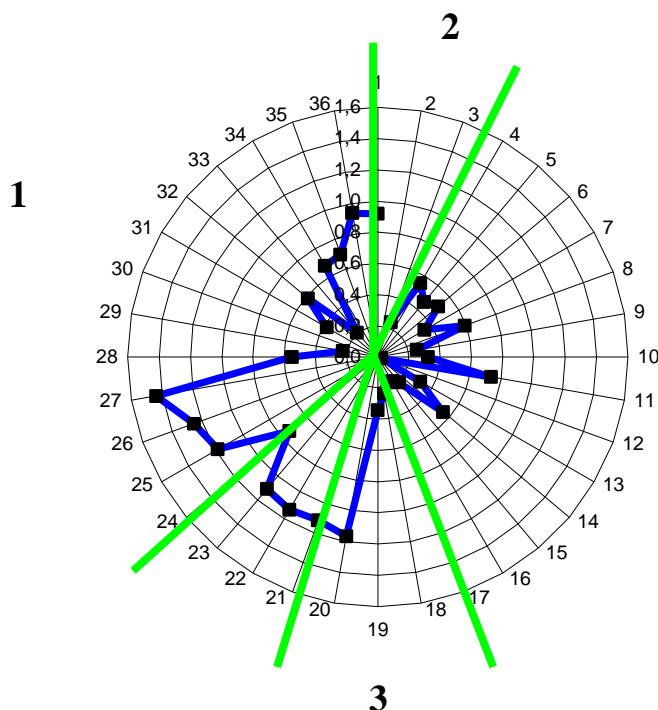


Abb. 4: Abhängigkeit der Zusatzbelastung von der Windrichtung in Duisburg-Bruckhausen 2002. Bezeichnungen der Windrichtungssektoren wie in Abb. 2

Sie zeigt deutlich die Kokerei und das Stahlwerk der Firma Thyssen-Krupp sowie Anlagen in Duisburg-Untermeiderich (das Stahlwerk der Firma ISPAT und weitere metallverarbeitende Betriebe) als Hauptquellen der Staubbelaustung auf:

Die Ergebnisse sind in Abb. 5 graphisch dargestellt. :

Beitrag lokaler Industrie
zur PM10-Belastung:
ca. 30%

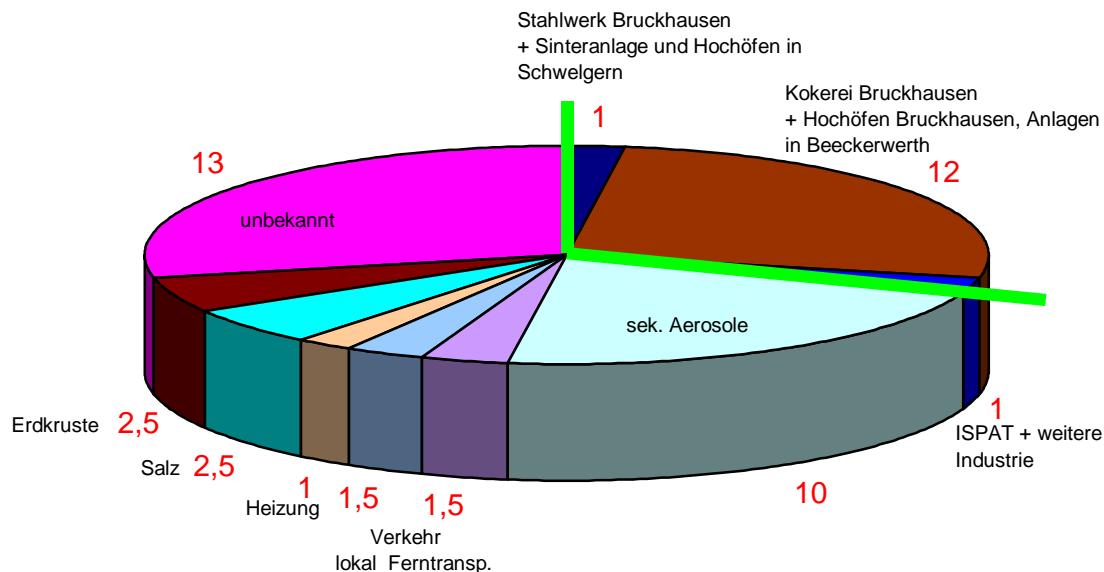


Abb. 5: Ursache der Belastung durch PM10 in Duisburg-Bruckhausen (schematisch). Die rot gekennzeichneten Zahlen stellen die Zusatzbelastung einzelner Emittentengruppen in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ dar.

Notwendige Maßnahmen zur Senkung der Staubbelaustung in Duisburg-Nord

Der Hauptanteil der städtischen Hintergrundbelastung ist auf weit entfernte Quellen, die durch örtliche Maßnahmen nicht zu beeinflussen sind, zurückzuführen. Lediglich der lokale Straßenverkehr und Hausbrand sind nichtindustrielle ortsnahe Quellen, sie machen zusammen weniger als 10 % der PM10-Belastung in Duisburg-Bruckhausen (3 bis 5 %) aus. Um die Staubbelaustung im Duisburger Norden zu senken, müssen vor allem bei den industriellen Quellen wirksame Maßnahmen zu Emissionsminderung getroffen werden.

Hauptquelle der Staubbelaustung in Duisburg-Bruckhausen war 2002 die Kokerei, die im April 2003 geschlossen wurde und durch eine weitaus moderne Anlage in Duisburg-Schwelgern ersetzt wurde. Dies wirkt sich deutlich auf die Luftqualität in Duisburg-Bruckhausen aus, wie Abb 6 zeigt.

Seit Mai 2003 ist die PM10-Konzentration um $8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zurückgegangen; der Anteil der PM10-Belastung aus der Richtung der ehemaligen Kokerei und der südlichen Hochöfen ging um $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zurück. Dass auch die Belastung bei Ost und vor allem Nordostwind um $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zurückging deutet darauf hin, dass auch bei dieser Windrichtung von der Kokerei beeinflusste Luft zur Messstelle geweht wurde. Da die Abgase der Kokerei heiß sind und der Messpunkt unmittelbar vor der Anlage steht, ist dies aufgrund thermischer Bewegungen durchaus wahrscheinlich. Auch aufgrund der Staubzusammensetzung mit extrem hohen Gehalten an Benzo[a]pyren und relativ hohem Arsengehalt erscheint dies wahrscheinlich.

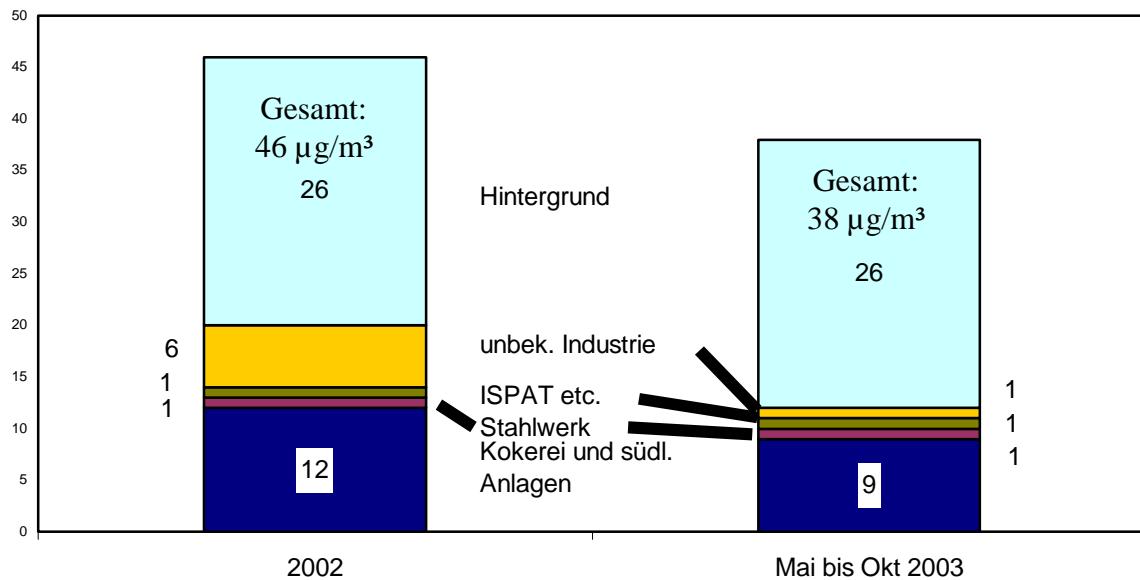


Abb. 6: Vergleich der Belastung durch PM10 in Duisburg-Bruckhausen vor- und nach dem Ersatz der alten Kokerei Bruckhausen durch die neue Anlage in Duisburg-Schwelgern

Weitere Gebiete mit hohen PM10-Belastungen in Duisburg-Nord

Die Messergebnisse von weiter nördlich gelegenen Stationen in Duisburg zeigen, dass außer der ehemaligen Kokerei auch die anderen Anlagen zur Eisen- und Stahlproduktion große Staubmengen freisetzen. Auf Duisburg-Bruckhausen wirken sich diese Emissionen nur verhältnismäßig gering aus, da der Wind den Staub nur selten von den nördlich gelegenen Anlagen in die dortigen Wohngebiete transportiert. Duisburg-Marxloh hingegen liegt nordöstlich des Stahlwerks, der Sinteranlage und zweier großer Hochöfen der Firma Thyssen und somit im direkten Einflussbereich dieser Anlagen. In Abb. 7 ist die Lage weiterer Messstellen in Duisburg-Nord dargestellt

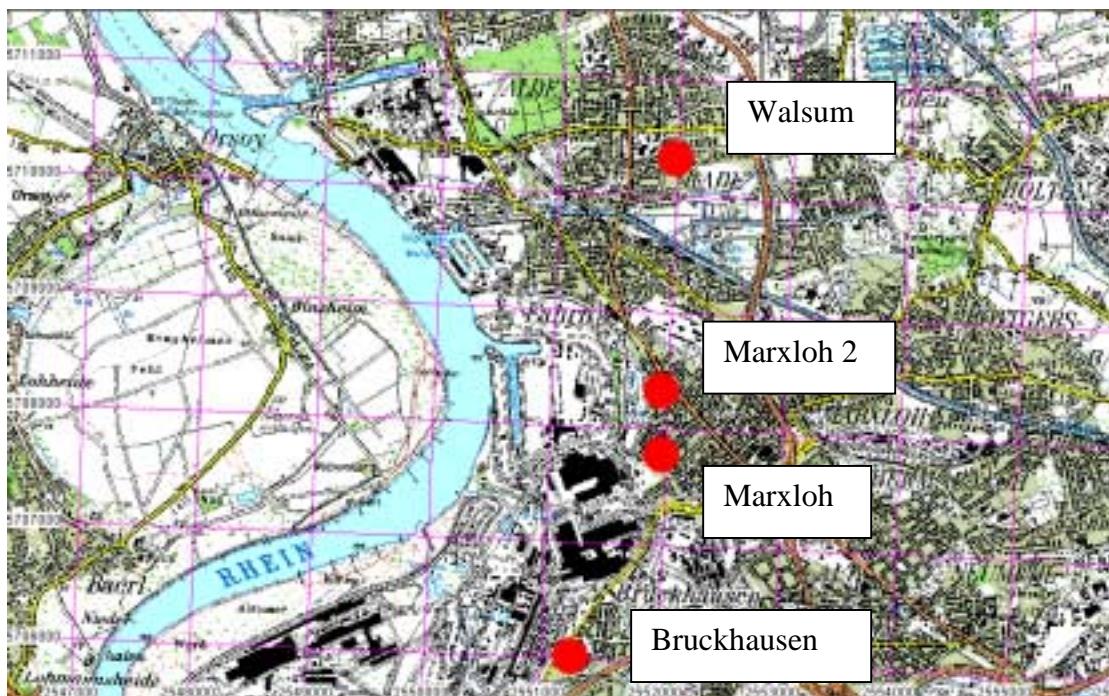


Abb. 7: Lage der Messstellen in Duisburg-Nord

Eine Auswertung der Messergebnisse von September 2002 bis September 2003 an der Messstelle Duisburg-Marxloh 2 analog dem oben dargestellten Verfahren zeigt, dass dort vor allem das Stahlwerk Bruckhausen und die Sinteranlage sowie die nördlichen Hochöfen den größten Anteil an der PM10-Belastung haben (siehe Abb. 8).

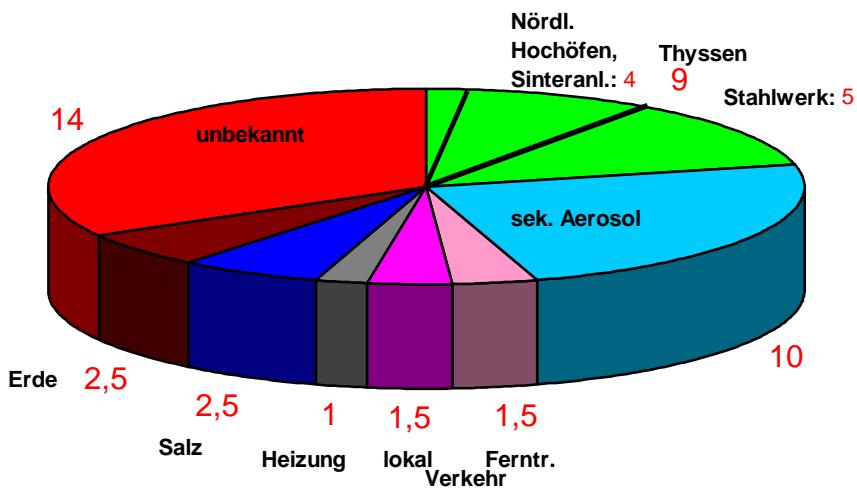


Abb. 8: Beiträge zur PM10-Belastung in Duisburg-Marxloh (Sept. 02 bis Sept. 03), Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

Im gesamten Bereich bis etwa 1 km östlich und nordöstlich der Anlagen ist von einer ähnlichen Belastungssituation auszugehen. Selbst in Duisburg-Walsum, ca. 2 km weiter nördlich beträgt der Anteil der Emissionen der Fa. Thyssen mit 2 bis 3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ immer noch 5 bis 10% der PM10-Konzentration an der Messstelle. Die Emissionen der Anlagen im Duisburger Norden wirken sich also weiträumig aus.

Die Auswertungen der PM10-Konzentration in Abhängigkeit von der Windrichtung in der Umgebung industrieller Anlagen zeigen:

- Die Abschätzung der Zusatzbelastung einzelner Anlagen gelingt mit akzeptabler Genauigkeit (ca. 30%)
- Industrielle Quellen verursachen an exponierten Standorten bis zu einem Drittel der PM10-Belastung
- Überlagerungen der Emissionen verschiedener Anlagen sind nicht immer aufzulösen
- Hohe Quellen und Quellen mit Abgasen hoher Temperatur werden unvollkommen erfasst, wenn die Messstelle ihnen direkt benachbart ist.

Hier kann die Analyse von Staubinhaltsstoffen und die Identifikation von Quellen anhand von Fingerprints helfen. Folgendermaßen kann vorgegangen werden.

- Zusatzbelastung aus dem Sektor ein Anlage ermitteln
- Normieren auf PM10 (bedingt auch Gesamtschwebstaub, TSP)

- So ermittelte Fingerprints für eine Anlage von verschiedenen Messpunkten aus vergleichen

Zur Zeit ist die Datengrundlage für PM10-Inhaltsstoffe noch gering, so dass hier nur einige Ansätze für Duisburg-Nord auf der Basis von TSP-Daten vorgestellt werden können

- So bestehen die von der Hochöfen und der Sinteranlage emittierten Stäube zu 30 bis 40 % aus Eisen, der Nickelgehalt dieser Emissionen ist um den Faktor 1000 geringer.
- Auch die Staubemissionen aus dem Stahlwerk Bruckhausen sind ähnlich
- Die Emissionen der Kokerei Bruckhausen enthielten 0,6 bis 2 ng/µg Benzo[a]pyren
- Die Emissionen der Firma ISPAT, in der Bleihaltige Automatenstähle hergestellt werden, enthalten ca. 1,5 % Blei

Eine sorgfältige Auswertung der Daten der Inhaltsstoffe des PM10 kann vermutlich bessere Ergebnisse liefern

Literatur

[1] Richtlinie 1999/30/EG des Rates vom 22. April 1999 über Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid, Stickstoffoxide, Partikel und Blei in der Luft; Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaft Nr. L 163/41 vom 29. 06. 1999

[2] P. H. Lenschow, K. Abraham, M. Lutz, J. D. Preuß, W. Reichenbäcker: Some ideas about the sources of PM10, *Atm. Environment* 35, 22 – 33 (2001)

[3] J. G. Watson, J. C. Chow and J. E. Houch: Chemical source profiles for vehicle exhaust, vegetative burning, geological material and coal burning in northwestern Colorado during 1995; *Chemosphere* 43, 1141 – 1151 (2001)

B.4 Quellenidentifizierung für Staub (PM_{10} , $\text{PM}_{2.5}$) im urbanen Ballungsraum des westlichen Ruhrgebietes

**T. Kuhlbusch, U. Quass, O. Romazanowa,
S. Top, K. G. Schmidt, M. Koch, H. Fissan,
P. Bruckmann, U. Pfeffer
(IUTA e. V., ECOFYS,
Universität Duisburg-Essen, LUA NRW)**

Quellenidentifizierung für Staub (PM₁₀, PM_{2.5}) im urbanen Ballungsraum des westlichen Ruhrgebiets

T. Kuhlbusch, U. Quass, O. Romazanova, S. Top, K. G. Schmidt (IUTA e.V.)

M. Koch (ECOFYS)

H. Fissan (Universität Duisburg-Essen)

P. Bruckmann, U. Pfeffer (LUA NRW)

1. Einleitung

Das Projekt „Quellenidentifizierung für die Feinstaubfraktion“ wurde im Auftrag des nordrhein-westfälischen Umweltministeriums (MUNLV) vom Duisburger Institut für Energie und Umwelttechnik (IUTA e.V.) in Kooperation mit dem Landesumweltamt NRW (LUA), der Universität Duisburg-Essen (Prozess- und Aerosolmesstechnik) sowie der Fa. ECOFYS, Köln durchgeführt. Es fanden umfangreiche Immissionsmessungen an drei im Duisburger Raum liegenden Stationen statt. Abbildung 1 zeigt die regionale Lage der Stationen im Rhein-Ruhrgebiet. Die Stationen liegen alle am westlichen Rand des Kerngebietes mit der höchsten Besiedlungs- und Verkehrsdichte.

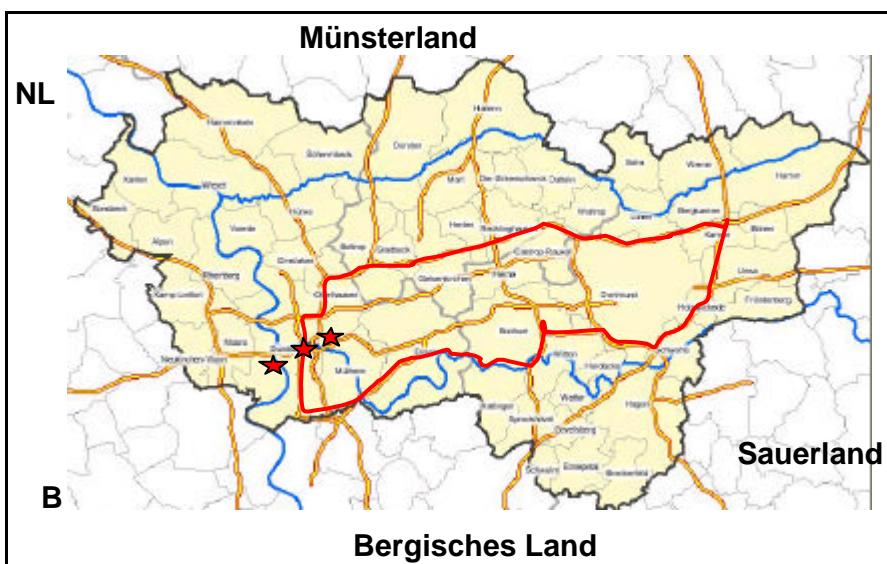


Abbildung 1: Lage der Stationen

Die ausgesuchten Stationen befanden sich (a) nahe des Stadtzentrums von Duisburg auf dem Gelände der Universität Duisburg-Essen, Campus Duisburg (UNI), sowie an den Messstationen des Landesumweltamtes in (b) Kaldenhausen (KALD, südwestlich von Duisburg) und (c) Mülheim-Styrum (STYR, nordöstlich der Station UNI) (Abbildung 2). Alle Stationen können aufgrund ihrer Lage als urbane Hintergrundstationen bezeichnet werden. Insgesamt ist die Region Duisburg jedoch auch deutlich industriell geprägt (insbesondere durch Stahl- und

Chemiewerke, nicht repräsentative Auswahl der Industriegebiete in Abbildung 2 blau gekennzeichnet).

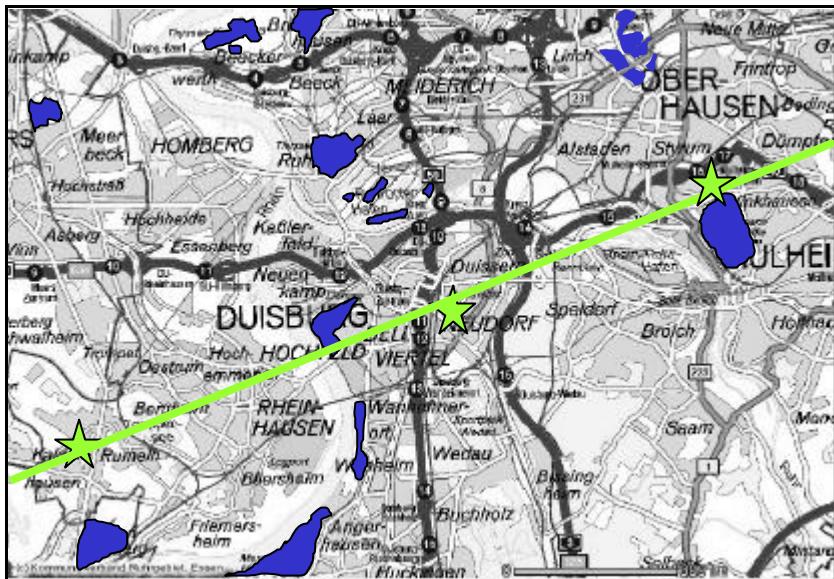


Abbildung 2: Lage der Stationen und Industriegebiete

Die Messungen erfolgten an der Station UNI über ein Jahr von März 2002 bis April 2003. Innerhalb dieser Zeitspanne wurden zwei Intensiv-Messphasen unter Einbeziehung der Satellitenstationen im April/Mai sowie Oktober bis Dezember 2002 durchgeführt. Während dieser Intensivphasen erfolgten alle diskontinuierlichen Messungen jeweils täglich; im übrigen Zeitraum wurden diskontinuierliche Probenahmen an jedem dritten Tag durchgeführt.

Tabelle 1: Bestimmte Messgrößen

Parameter	Frequenz	KALD	UNI	STYR
PM₁₀	Diskont., Digitel	X	X	X
PM_{2,5}	Diskont., Digitel	X (Kleinfilter)	X	X
PM₁	Diskont., Digitel		X	
Impaktor	Diskont.	X	X	X
PM₁₀	Kont	X (TEOM)	X (TEOM)	X (β -Staubmeter)
PM_{2,5}	Kont.	-	X (TEOM)	-
Partikel-Anzahl	Kont. (SMPS)	X	X	X
P.-Größenvert.	Kont.	X (SMPS)	X(SMPS/APS)	X (SMPS)
Ruß	Kont. (Aethalometer)	-	X	-
Aerosol-Nitrat	R&P Analysator	-	X	-
Meteo-Daten	Kont.	-	X	-

Die Messparameter und Angaben zu den verwendeten Messmethoden sind in Tabelle 1 wiedergegeben. Von den Filterproben wurden chemische Analysen durchgeführt, die sowohl die ionischen Haupt- und Nebenbestandteile als auch elementaren und organischen Kohlenstoff umfassten. Wegen der Probenahme auf Quarzfaserfiltern war allerdings eine Bestimmung von silikatischen Bestandteilen nicht möglich. Weitere Spurenelement-Konzentrationen wurden durch die Probenahme mit einem speziell konstruierten 3-Stufen-Kaskadenimpaktor (~0,2 – 1 μm , 1-2,5 μm , 2,5-10 μm) und anschließender Analyse mit der Totalreflektierenden Röntgenfluoreszenzspektrometrie (TXRF) erhalten.

2. Erste statistische Auswertungen

Im Rahmen dieses Beitrags zum Workshop „PMx-Quellenidentifizierung: Ergebnisse als Grundlage für Maßnahmenpläne“ ist es nicht möglich, auf alle Aspekte und Ergebnisse des Messprogramms einzugehen. Im folgenden werden daher nur wesentliche Resultate bezogen auf die PM₁₀-Partikelfraktion vorgestellt.

2.1. Mittlere Massenkonzentrationen, Grenzwertüberschreitungen

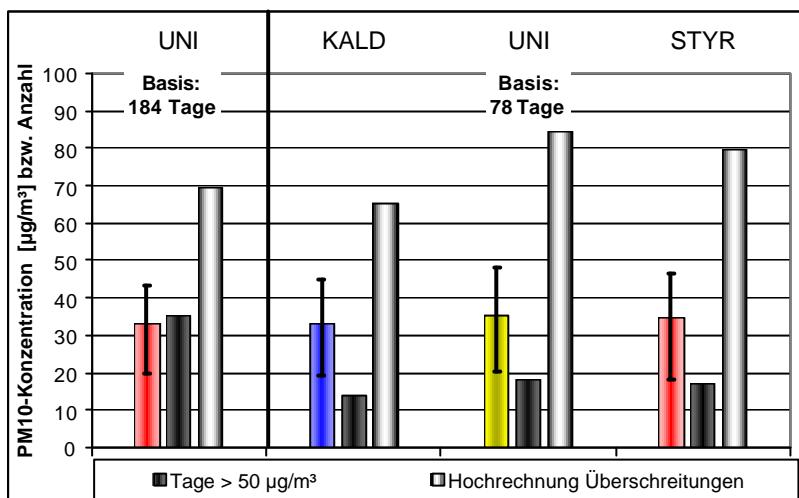


Abbildung 3: PM₁₀-Kenndaten der Stationen

Abbildung 3 zeigt für die 3 Stationen die aus den jeweiligen Messdaten ermittelten mittleren PM₁₀-Massenkonzentrationen sowie deren 25% und 75%-Quantile, die Anzahl der dabei aufgetretenen Überschreitungen des Tagesgrenzwertes von 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ sowie eine darauf basierende Hochrechnung der Überschreitungshäufigkeit pro Jahr. Die PM₁₀-Massenkonzentrationen sind an allen Stationen sowohl hinsichtlich Mittelwert als auch Varianz sehr ähnlich. An allen Stationen wurden Grenzwertüberschreitungen deutlich oberhalb der ab 2005 gültigen Anzahl von 35 Tagen erhalten. Anhand des Unterschiedes in der Hochrechnung für die Station UNI auf der Basis der gesamten verfügbaren 184 Messwerte bzw. der in den Intensivphasen erhobenen 78 Tagesmittelwerte ist zu erkennen, dass die Hochrechnungen für STYR und KALD vermutlich eine Überschätzung darstellen. Dennoch ist unter Berücksichtigung dieser Überschätzung eine Überschreitung der zulässigen Anzahl an Tagen mit Grenzwertüberschreitungen zu erwarten.

2.2. Mittlere chemische Zusammensetzung

2.2.1. Haupt- und Nebenkomponenten

Für die Vergleiche der mittleren chemischen Zusammensetzung wurden jeweils nur die Tage der an allen Stationen simultan erfassten Probenahmen herangezogen.

Der Vergleich in Abbildung 4 zeigt, dass bezüglich der Haupt- und Nebenkomponenten im Mittel kein wesentlicher Unterschied zwischen den drei Stationen besteht. Nur für Eisenoxid ist ein Trend mit steigenden Werten von KALD über UNI nach STYR zu erkennen.

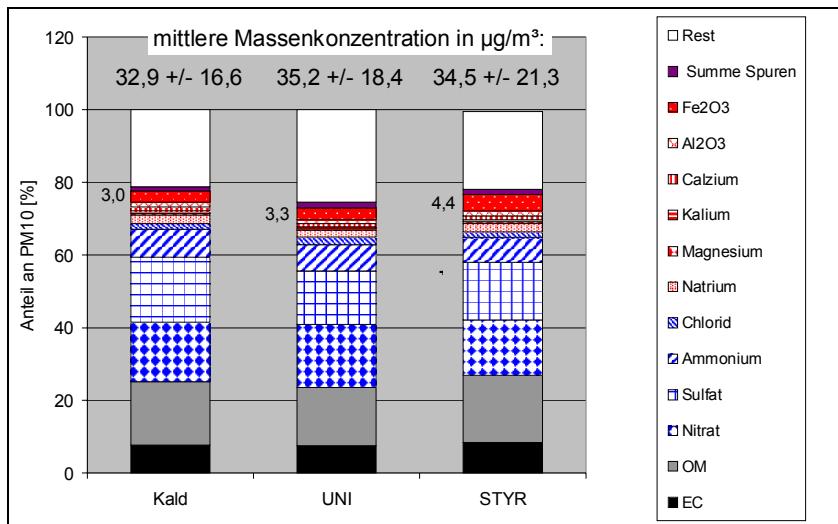


Abbildung 4: Mittlere chemische Zusammensetzung von PM₁₀ (Haupt- und Nebenkomponenten)

2.2.2. Spurenkomponenten

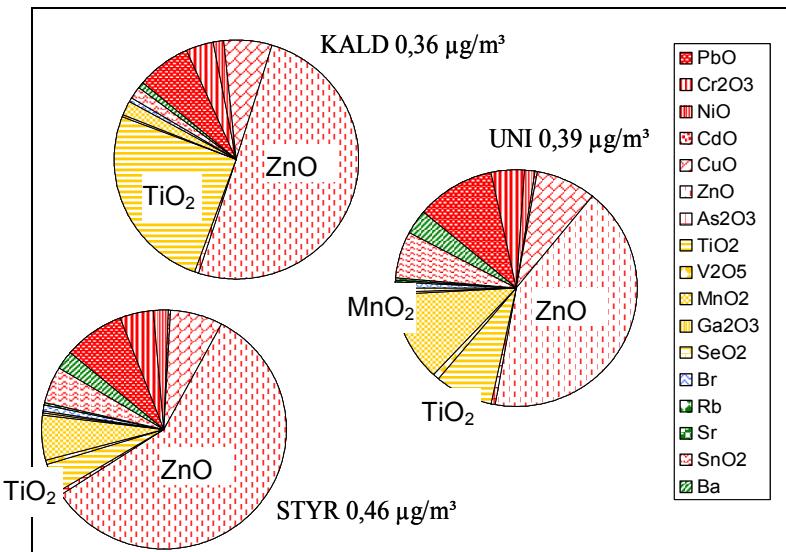


Abbildung 5: Mittlere chemische Zusammensetzung der Spurenelemente

Deutlichere Unterschiede zeichnen sich für einige der Spurenkomponenten ab (Abbildung 5). So sind an der Station STYR höhere ZnO-Konzentrationen, in KALD erheblich höhere TiO₂-Werte gefunden worden. An der Station UNI wiederum hatte MnO₂ einen höheren Anteil als an den Satellitenstationen. Diese Befunde sind als erste Indizien für den Einfluss lokaler, zumindest teilweise industriell geprägter Aerosolquellen zu sehen. Die entsprechenden Spurenkomponenten können daher im Verlauf der weiteren Auswertungen als „Tracer“-Komponenten hinsichtlich der Zuordnung möglicher Quellen verwendet werden.

2.3. Leitkomponenten bei PM_{10} -Massenzunahme

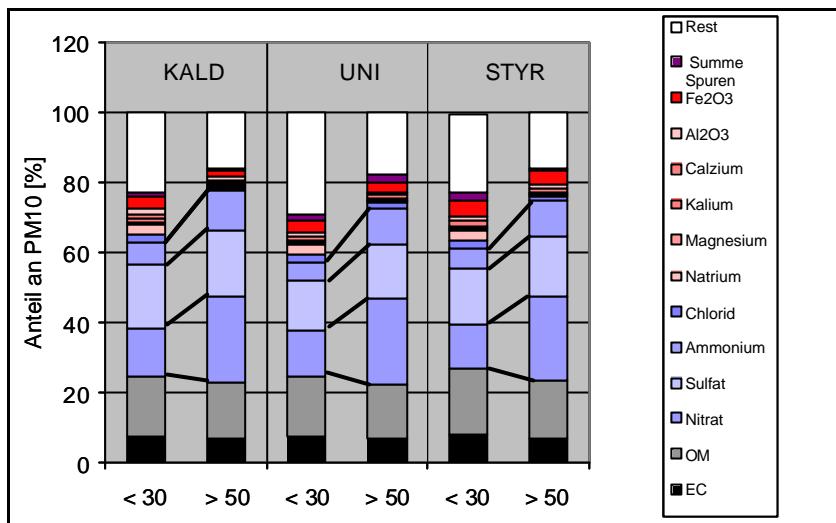


Abbildung 6: Massenkonzentrationsabhängige chemische Zusammensetzung ($< 30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$)

Zur Identifizierung der Substanzen, die zu den Tagesgrenzwertüberschreitungen beitragen, wurden die chemischen Zusammensetzungen für die Tage mit PM_{10} -Massenkonzentrationen $< 30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und für Tage oberhalb $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ separat berechnet (Abbildung 6). Hierbei sind sehr ähnliche Entwicklungen an allen drei Stationen zu erkennen, die durch eine deutliche Zunahme von Ammonium und Nitrat, Abnahme von Natrium und Chlorid sowie annähernde Konstanz des Massenanteils der übrigen Komponenten gekennzeichnet sind.

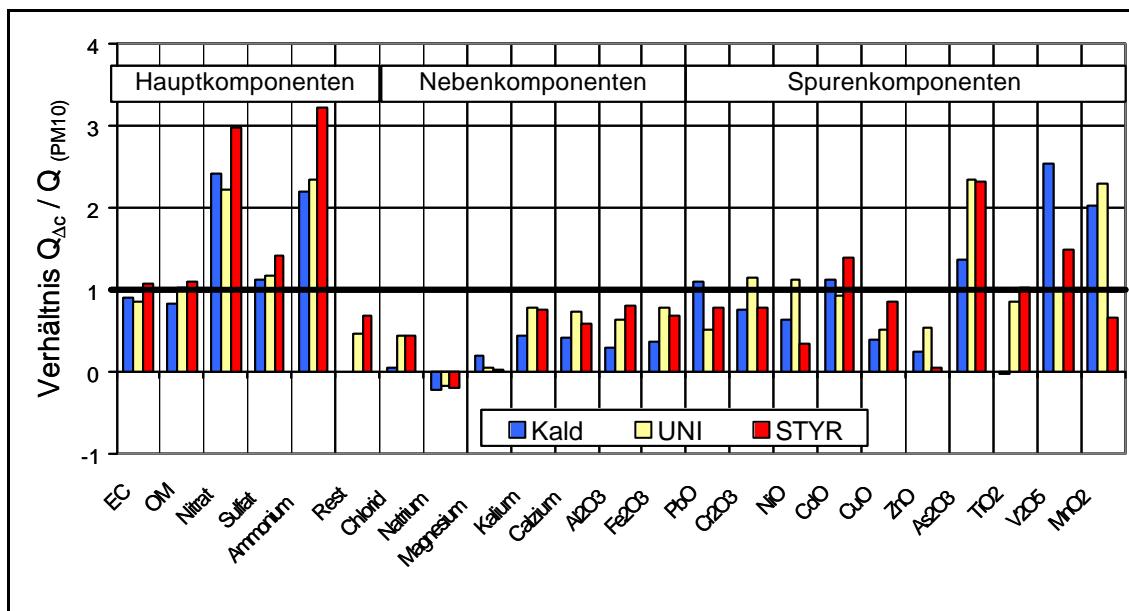


Abbildung 7: Normierte PM_{10} -massenkonzentrationsabhängige Beiträge der verschiedenen Inhaltsstoffe für den Konzentrationsbereich von $< 30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zu $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für die drei Standorte

Aufschluss über die relative Zunahme aller Komponenten im Vergleich zu der relativen Zunahme der PM_{10} -Massenkonzentration liefert die in Abbildung 7 gezeigte Darstellung. Auch hier ist das deutlich überproportionale Wachstum der Sekundäräerosol-Bestandteile Ammoni-

um und Nitrat zu erkennen. Dagegen wachsen andere massenbestimmende Komponenten wie Sulfat und EC,OC in etwa proportional mit. Überproportionales Wachstum ist auch für einige Spurenkomponenten (As, V, Mn) zu finden, während die meisten anderen Bestandteile lediglich unterproportional ansteigen. Dies ist besonders ausgeprägt für die Seesalzbestandteile Na, Mg, Chlorid, wobei Natrium als fast ausschließlich aus dem Seesalzaerosol stammende Komponente sogar mit zunehmender PM₁₀-Massenkonzentration abnimmt. Gleiches ist auch für die Station KALD bei der Komponente TiO₂ zu finden, was sich mit der besonderen lokalen Immissionssituation dieser Station erklären lässt, die im folgenden näher betrachtet wird.

2.4. Windrichtungsabhängigkeit der Substanzen

Nachdem mit den vorangegangenen Betrachtungen nunmehr einige spezifische Unterschiede in der Zusammensetzung von PM₁₀ an den Stationen bzw. an Tagen mit unterschiedlich höher PM₁₀-Massenkonzentration herausgearbeitet wurden, wird hier überprüft, inwieweit die Unterschiede mit Vorzugswindrichtungen korrelieren und somit ggf. Aufschlüsse über die räumliche Lage der Staubquellen bezogen auf die jeweiligen Stationen erhalten werden können.

Hierzu wurden die Mittelwerte für alle Komponenten jeweils für alle Tage mit Wind aus Nordost bzw. Wind aus Südwest ermittelt, wobei als Auswahlkriterium für die Windrichtungszuordnung jeweils ein 45° Sektor um die Verbindungsline der Stationen (vgl. Abbildung 8) verwendet wurde. Ebenso wurden separat alle Tage gemittelt, die durch Nord oder Nordwestwind bzw. Süd- oder Südostwind gekennzeichnet waren.

Durch Differenzbildung der Mittelwerte (Ost –West bzw. Nord –Süd) für jede Komponente wurden zwei Konzentrations-Vektoren in West-Ost- bzw. Süd-Nord-Richtung erhalten, aus deren Kombination sich der Winkel errechnen lässt, unter dem die bezogen auf den Inhaltsstoff höher belasteten Luftmassen die jeweilige Station anströmen.

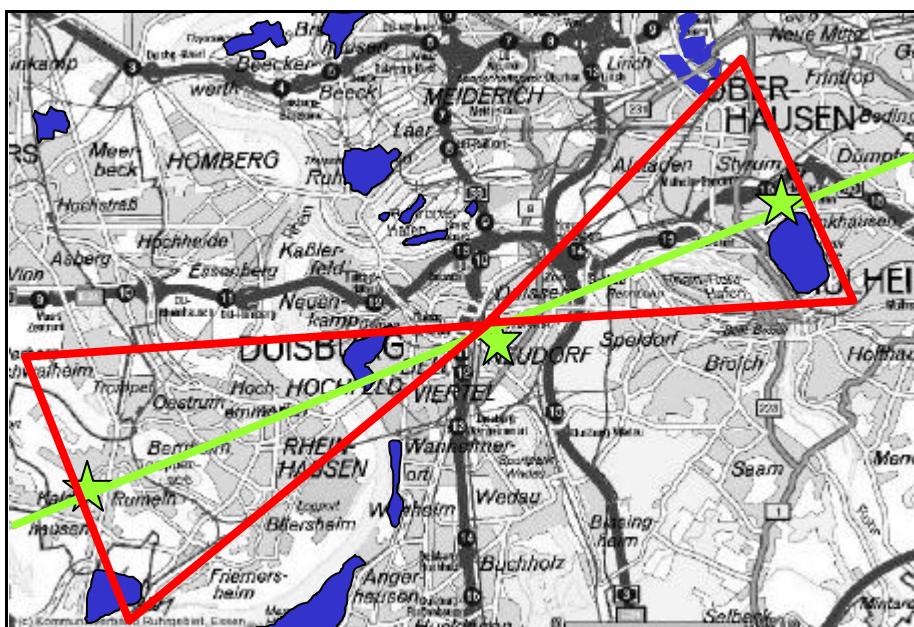


Abbildung 8: Sektoren für die Windrichtungsanalysen

Die so errechneten Winkel (die unter Berücksichtigung der Winkelverschiebung der Stations-Verbindungsline zur exakten Ost-West-Richtung errechnet wurden) sind in Tabelle 2 wiedergegeben und durch entsprechende Pfeile visualisiert. Für den größten Teil der PM₁₀-Inhaltsstoffe wird eine östliche und nordöstliche Vorzugswindrichtung erhalten. Allerdings gibt es einige auffällige Abweichungen. So zeigen die Seesalzbestandteile ein uneinheitliches

Bild mit deutlich südwestlichen Anteilen (vor allem bei Na, aber auch z.T. bei Mg und Chlorid). Für Fe, Mn, Cr, Pb, Ni sind die Vorzugsrichtungen an den 3 Stationen zwar östlich geprägt, aber mit unterschiedlichen Nord-Süd-Schwerpunkten (STYR eher südöstlich, UNI deutlich nordöstlich, KALD klar östlich). Hier scheinen zumindest für STYR und UNI unterschiedliche Quellen relevant zu sein. Besonders auffällig sind dann noch die Elemente Zink und Titan. Im Falle des Zn weist jede Station eine verschiedene Vorzugsrichtung auf, die beim Vergleich zwischen KALD und STYR auf eine Quelle zwischen diesen beiden Stationen schließen lässt. Die Station UNI hingegen wird offensichtlich von einer nordöstlich gelegenen weiteren Quelle beeinflusst.

Tabelle 2: Hauptwindrichtungen der chemischen Inhaltsstoffe

	KALD	UNI	STYR	
Ammonium	60	43	49	✓
Nitrat	49	45	45	✓
Sulfat	64	58	56	✓
EC	82	69	77	←
OM	87	71	81	←
Rest	57	44	55	↙
Chlorid	194	274	141	↘
Natrium	225	239	221	↗
Magnesium	144	242	169	↑
Kalium	105	68	83	↖
Calzium	86	47	108	↖
Al ₂ O ₃	95	57	66	↖
Fe ₂ O ₃	103	41	110	↖
MnO ₂	89	26	130	↖
Cr ₂ O ₃	88	18	101	↖
PbO	70	360	110	↖
CuO	88	69	78	↖
NiO	117	63	141	↗
ZnO	127	339	214	↗
CdO	84	57	93	↖
As ₂ O ₃	78	61	68	↖
TiO ₂	146	65	116	↖
V ₂ O ₅	134	71	34	↖

Hinsichtlich Titandioxid wiederum war die Station KALD bereits bei mehreren Auswertungen aufgefallen. Die Windrichtungsanalyse zeigt nun eine eindeutig südöstliche Vorzugsrich-

tung für KALD im Gegensatz zu der „normalen“ ost- bis nordöstlichen an den anderen Stationen. Dieser Befund lässt unmittelbar auf eine deutliche Beeinflussung der Station durch das im Südosten von KALD befindliche Chemiewerk schließen.

Abbildung 9 zeigt das Ergebnis hinsichtlich der möglichen Lage der Zinkoxid bzw. Titandioxid-Quellen nochmals anhand der Karte.

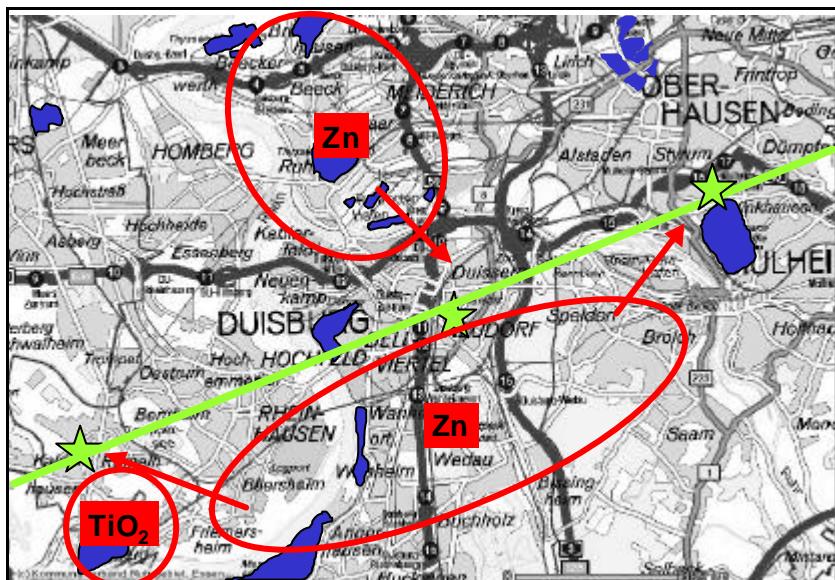


Abbildung 9: Quellregionen von Zink und Titan aus der Windrichtungsanalyse

2.5. Tagesgänge und lokale/regionale Beiträge aus Quellen mit regelmäßigen Aktivitäten

Weitere qualitative bzw. zumindest sogar halbquantitative Aufschlüsse über mögliche Quellen für erhöhte PM₁₀-Immissionswerte liefert die Betrachtung der Zeitabhängigkeit der PM₁₀-Massenkonzentrationen, insbesondere der ggf. zu beobachtende Tages- bzw. Wochengang. Dieser wird ausgeprägt durch regelmäßig auf- und abschwellende Quellprozesse, die mit unterschiedlichen Aktivitäten an den unterschiedlichen Wochentagen zusammenhängen. In einem Ballungsgebiet wie dem Ruhrgebiet ist dabei in erster Linie an den Verkehr zu denken, der im Laufe der Woche unterschiedlich ausgeprägt ist; aber auch die Aktivität einer Vielzahl von kleineren Industriebetrieben, die ihre Prozesse beispielsweise an den Wochenenden und Feiertagen nicht durchlaufen lassen, können zu einem Wochengang der PM₁₀-Massenkonzentrationen beitragen.

In Abbildung 10 ist der aus den an der UNI-Station aufgezeichneten TEOM-Daten ermittelte Tagesgang für die Wochentage Montag bis Freitag und das Wochenende Samstag/Sonntag wiedergegeben. Es ist eine über den ganzen Tag hindurch deutliche geringere PM₁₀-Konzentration an den Wochenendtagen im Vergleich zu den Wochentagen zu sehen, und insbesondere der vormittägliche Anstieg fällt am Wochenende erheblich geringer aus. Auffällig ist allerdings, dass in den frühen Morgenstunden (0-6 Uhr) am Wochenende im Durchschnitt höhere PM₁₀-Werte gemessen werden als wochentags. Eine naheliegende Erklärung ist der erhöhte Freizeitverkehr in den Nächten von Freitag auf Samstag und Samstag auf Sonntag.

Zur Ermittlung der Zusatzbelastung durch die an Werktagen ausgeprägten Quellprozesse wird daher ein „idealisierte Sonntag“ mit den Werten der frühen Morgenstunden der Nacht vom Sonntag auf Montag verwendet. Die Werte für den „idealisierten Sonntag“ liegen geringfügig unter den Mittelwerten für das Wochenende (Samstag und Sonntag).

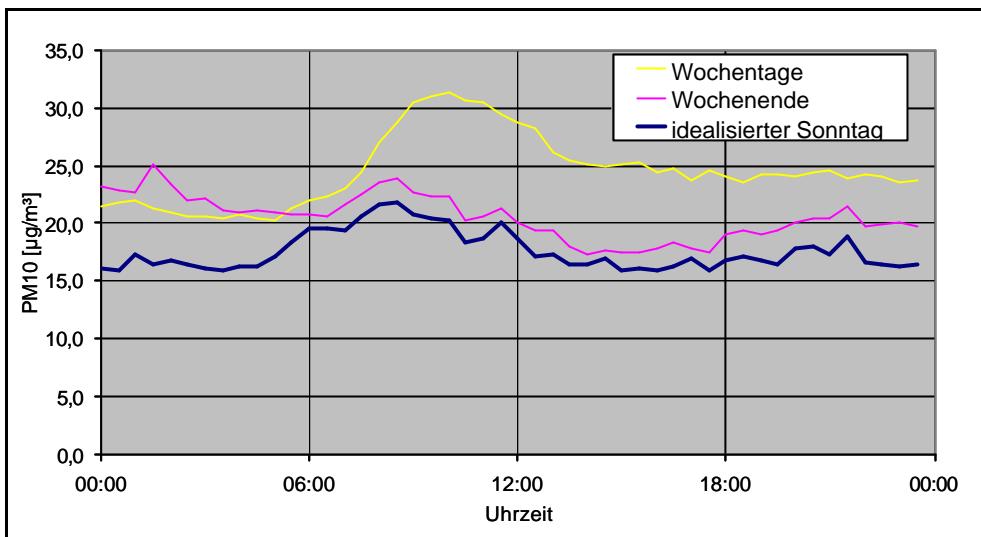


Abbildung 10: Mittlerer Tagesgang (TEOM®, Universität)

Mit Hilfe dieses „idealisierten Sonntags“ wurde die Zusatzbelastung für jeden Wochentag ermittelt; das Ergebnis ist in Abbildung 11 dargestellt. Es ergibt sich ein klarer Wochengang der Zusatzbelastung mit niedrigen Werten am Sonntag (bedingt durch den zuvor erwähnten Freizeitverkehr), einem Anstieg zur Wochenmitte und erneutem Rückgang am Samstag. Es ergibt sich allerdings eine im Vergleich zum Sonntag doch recht hohe Zusatzbelastung für die Samstage. Eine nähere Betrachtung zeigt, dass sich insbesondere in den Zeiten der Schulferien (vor allem im Sommer) sowie im vierten Quartal Samstage mit deutlich erhöhten PM₁₀-Massenkonzentrationen finden. Diese dürften durch den Ferien-Reiseverkehr sowie den verstärkten Einkaufsverkehr vor den Weihnachtsfeiertagen mitverursacht sein.

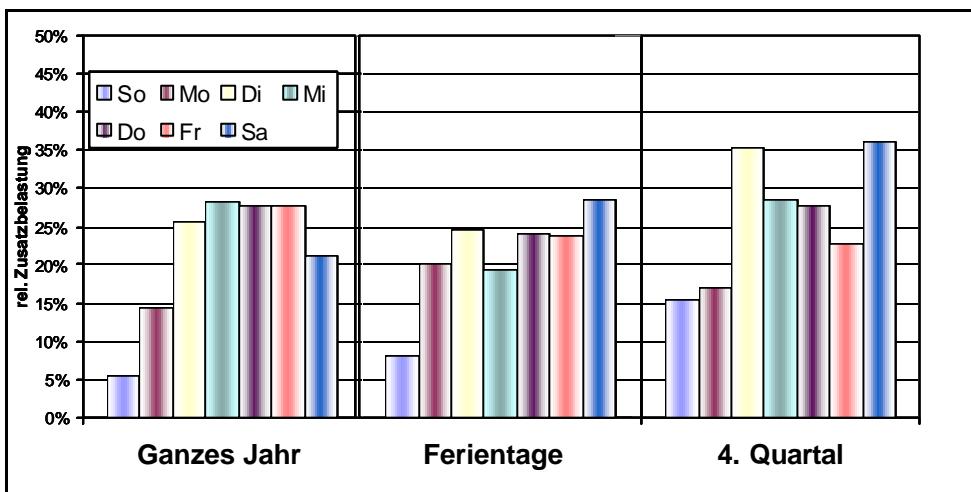


Abbildung 11: Zusatzbelastung relativ zu „idealisiertem Sonntag“

Ein ebenfalls sehr deutlicher Wochengang ergibt sich auch bei der Analyse der Häufigkeiten von Tagen mit grenzwertüberschreitenden PM₁₀-Massenkonzentrationen (Abbildung 12). Hierzu wurden die diskontinuierlichen Filterprobenahmen aus dem Messprojekt mit den an der Station STYR vom Landesumweltamt erhobenen Daten ergänzt. Da nicht für alle Tage des Jahres 2002 Werte vorliegen und auch nicht immer an den gleichen Tagen gemessen wurden, ergeben sich zwangsläufig Unterschiede zwischen den beiden Stationen (vgl. insbes. Donnerstag). Insgesamt gesehen zeigt sich aber doch eine Übereinstimmung im zeitlichen Trend, der auf eine substantielle Beteiligung der regelmäßig variierenden Quellprozesse auch

am Auftreten von Überschreitungen des PM₁₀-Tagesgrenzwertes schließen lässt.

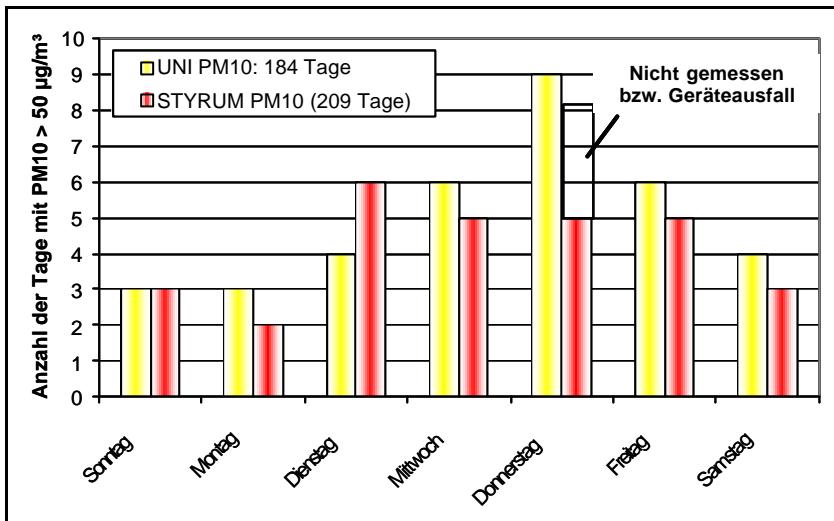


Abbildung 12: Anzahl der Überschreitungen pro Wochentag

Diese qualitative Analyse möglicher Quellen für die PM₁₀-Belastung bildet die Grundlage für die im folgenden dargestellte quantitative Zuordnung von Quellgruppen mit Hilfe der Methoden der multivariaten Statistik, insbesondere der sog. Positiv-Matrix-Faktorisierung (PMF).

3. Faktorenanalysen zur Quellenidentifizierung

3.1. Grundlagen der Positiv-Matrix-Faktorisierung (PMF) und UNMIX

Das Grundprinzip der Faktorenanalyse ist es, basierend auf einer Datenmatrix mit Proben und deren Inhaltsstoffen die Zusammensetzung und die Bedeutung zugrundeliegender Quellen zu charakterisieren. Dabei werden Quellmuster mit charakteristischen Inhaltsstoffen abgeleitet und der Anteil der Gesamtvarianz bestimmt, der durch die jeweiligen Faktoren erklärt wird. Letztlich entsprechen die Faktoren dabei den für diese Proben relevanten Quellen. Es gibt eine Vielzahl von Varianten der Faktorenanalyse mit unterschiedlichen Algorithmen.

Positiv-Matrix-Faktorisierung (PMF) und UNMIX sind zwei Verfahren, die im Bereich der Quellenidentifizierung von Luftschadstoffen in einer Reihe von Zusammenhängen bereits erfolgreich eingesetzt wurden.

3.1.1. Positiv-Matrix-Faktorisierung

PMF ist eine besondere Form der Faktorenanalyse, die über folgende Charakteristika verfügt:

- Nicht-Negativität

In der PMF sichergestellt, dass in den Ergebnismatrizen keine negative Werte auftauchen. Dies ist für die Quellenidentifizierung ein entscheidendes Kriterium, da negative Gehalte von Inhaltsstoffen und negative Quellanteile physikalisch unsinnig sind. Bei anderen Faktorenanalysen ist dies üblicherweise nicht ausgeschlossen. Daher ist die Anwendung anderer Arten von Faktorenanalysen für die Quellenidentifizierung nur von begrenztem Nutzen.

- Berücksichtigung von Unsicherheiten

Für die Durchführung der PMF ist es erforderlich, dass für jeden Wert der Datenmatrix seine Unsicherheit in Form einer geschätzten „Standardabweichung“ hinterlegt wird. Dies hat den Vorteil, dass damit jeder Wert in seiner Genauigkeit bewertet und so für die Faktorenbildung

der relative Einfluss gewichtet werden kann. Dadurch können Werte nahe der Nachweisgrenze bzw. im Bereich der Blindwerte anders als Messwerte mit hohen Gehalten bewertet werden.

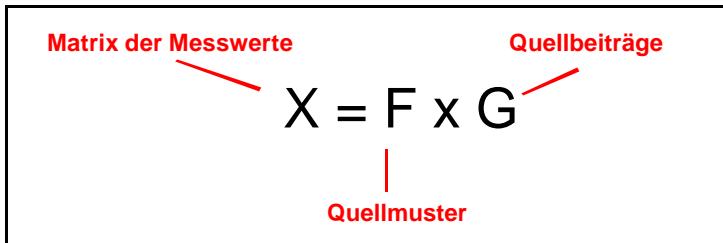


Abbildung 13: Ursprungs- und Ergebnismatrizen von PMF

Abbildung 14: Struktur der Ursprungsmatrix und der Ergebnismatrizen G und F

Abbildung 13 und Abbildung 14 stellen den Zusammenhang zwischen Ursprungsmatrix und den Ergebnismatrizen F (Quellmuster) und G (Quellbeiträge) schematisch dar:

PMF verfügt damit über Charakteristika, die für die Anwendung im Bereich der Luftreinhaltung positiv zu bewerten sind. Für eine Reihe von anderen Untersuchungen in den USA und in Europa wurde PMF bereits erfolgreich zur Quellenidentifizierung von Feinstaub eingesetzt.

3.1.2. UNMIX

UNMIX ist ein anderes Verfahren der Faktorenanalyse, dass grundsätzlich zu ähnlichen Zwecken eingesetzt wird. Bei UNMIX ist ebenfalls sichergestellt, dass weitgehend keine negativen Werte in den Ergebnismatrizen auftreten. Bei UNMIX ist es nicht möglich, jeden Datenpunkt mit einer Unsicherheit zu belegen. Stattdessen erfordert UNMIX, diejenigen Daten, die als Information einen großen Anteil Rauschen und wenig Signal beinhalten, aus der UNMIX-Auswertung auszuschließen. Dadurch wird sichergestellt, dass die Auswertung nicht von Artefakten überlagert wird.

3.2. Robustheit der Faktorenextraktion und -zuordnung

Für die Faktorenanalyse mittels PMF sind eine Reihe von Kriterien zu erfüllen, um diese für die geforderte Problemstellung sinnvoll anwenden zu können:

- Abschätzung der Unsicherheit

Als ergebnisentscheidend erwies sich die adäquate Wahl der Unsicherheiten. Mit genügend hohen Unsicherheiten erwiesen sich die Ergebnisse als robust. Bei anfangs niedrig gewählten Unsicherheiten wurde das PMF-Modell zu sehr eingeengt und es zeigten sich Artefakte.

- Modus der Normierung

Innerhalb von PMF wird zwischen verschiedenen Normierungsmodi unterschieden. Hier ist es möglich, aber nicht erforderlich, die PM-Masse als Parameter einzubeziehen. Auch kann in Richtung der Quellbeiträge (G-Matrix) normiert werden. Im Rahmen dieses Vorhabens erfolgte die Auswertung sowohl mit als auch ohne Masse. Dabei wurde sichergestellt, dass unabhängig vom gewählten Modus ähnliche Ergebnisse erzielt wurden.

- Wahl der Anzahl der Faktoren

Bei PMF wird die Anzahl der zu extrahierenden Faktoren nicht vorgegeben, sondern kann frei gewählt werden. Dabei ist ein Kompromiss zwischen erzielbarer Auflösung der Quellen und Robustheit zu erzielen. In der folgenden Abbildung ist beispielhaft die Ähnlichkeit der Faktoren für die Auswertung mit unterschiedlicher Faktorenanzahl dargestellt.

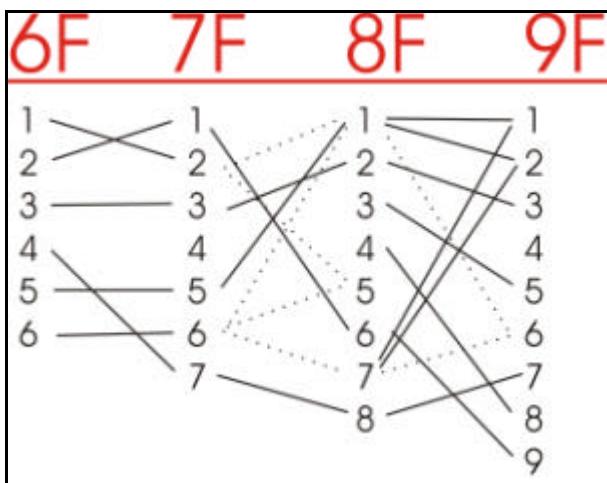


Abbildung 15: Vergleich der Ähnlichkeit von Faktoren für unterschiedliche Faktorenanzahl

Hier ist zu erkennen, dass zwischen den Varianten mit 6 und 7 Faktoren kaum Unterschiede bestanden. Hier konnten die Faktoren der einen Auswertung direkt einem Faktor der anderen Analyse zugeordnet werden. Auch waren die Quellbeiträge der einzelnen Faktoren weitgehend identisch. In der Variante mit 7 Faktoren erschien zusätzlich der Faktor 4, der in der Variante mit 6 Faktoren nicht aufgelöst werden konnte. Alle hier abgeleiteten Faktoren konnten plausibel bekannten Quellen zugeordnet werden.

Beim Vergleich der Varianten mit 7 und 8 Faktoren fällt auf, dass 4 Faktoren weitgehend direkt zugeordnet werden konnten, während sich andere Faktoren aufteilten bzw. neu vereinigten. Auch die Variante mit 8 Faktoren ergab Faktoren, die weitgehend bekannten Quellen zugeordnet werden konnten.

Beim Übergang von 8 auf 9 Faktoren konnten ebenfalls einige Faktoren direkt zugeordnet werden, während sich andere aufsplitten oder vereinigten. Im Unterschied zu den übrigen Varianten fanden sich hier aber auch unplausible Faktoren, die Quellen nicht zugeordnet werden konnten.

Um eine möglichst weitgehende, aber auch plausible Faktorenauflösung zu erzielen, wird im folgenden die Variante mit 8 Faktoren als Hauptvariante vorgestellt. Für die allgemeinen Schlussfolgerungen werden allerdings auch die übrigen plausiblen Varianten berücksichtigt.

3.3. Faktorenuordnung für 8 Faktoren

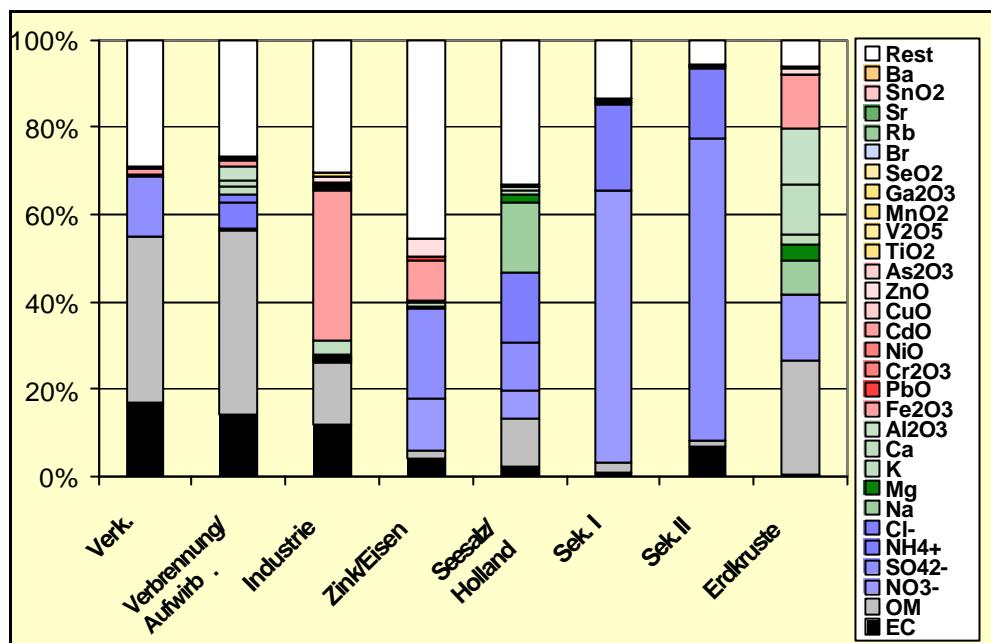


Abbildung 16: Zusammensetzung der mit PMF erhaltenen Faktoren

Abbildung 16 zeigt eine Übersicht der chemischen Zusammensetzung der mit PMF erhaltenen 8 Faktoren. Eine erste Zuordnung dieser Faktoren zu Quellgruppen erfolgte auf Grund dieser Zusammensetzung. Hierbei war EC Leitsubstanz für Verbrennungsprozesse, Ca, K, Al, Fe Leitsubstanzen für die Erdkruste (aus Winderosion oder Aufwirbelung durch Verkehr), As Leitsubstanz für Kohlenverbrennung (in Verbindung mit EC) und Na, Mg und Cl Leitsubstanzen für Seesalz.

3.4. Kurzvergleich UNMIX zu PMF

Im Rahmen dieses Vorhabens konnten ebenfalls beispielhaft einzelne UNMIX-Modellierung durchgeführt werden, um die Anwendbarkeit von UNMIX für diese Art von Fragestellungen zu testen.

Bei den UNMIX-Modellierungen erwiesen sich eine Reihe von Inhaltsstoffen als erheblich mit Rauschen überlagerte Messwerte. Die TXRF-Messwerte (Spurenelemente im unteren ng/m³-Konzentrationsbereich) konnten daher für die UNMIX-Modellierung nicht berücksichtigt werden. Diese Modellierung ergab 4 auflösbare Faktoren, die in der folgenden Abbildung 17 dargestellt sind.

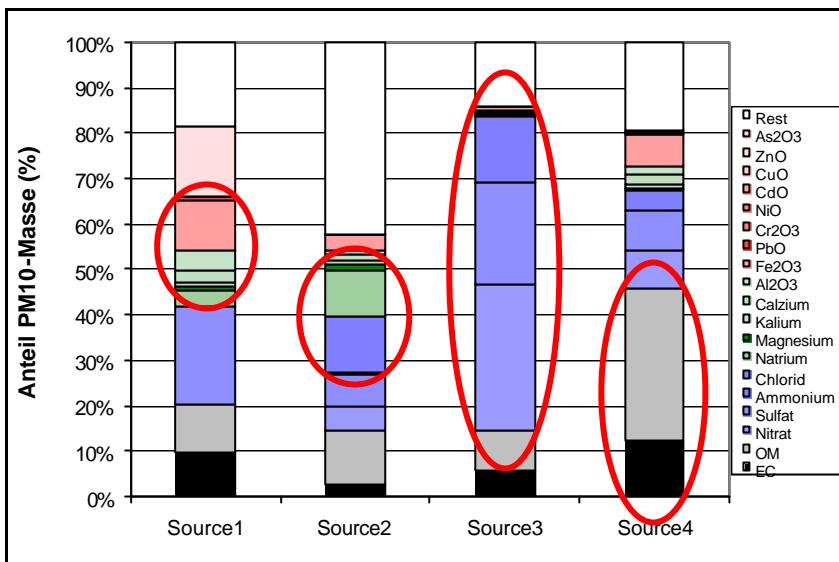


Abbildung 17: Quellmuster der UNMIX-Modellierung mit 4 Faktoren

Die Faktoren zeigten folgende Charakteristika und konnten folgenden Quellen zugeordnet werden:

- Faktor 1: Industrie, Erdkruste (überdurchschnittliche Mengen Kalium, Calcium, Aluminium, Eisen, Blei, Nickel, Cadmium, Kupfer, Zink)
- Faktor 2: Meersalz bzw. Holland-Faktor (überdurchschnittliche Anteile Natrium, Magnesium und Chlorid)
- Faktor 3: Sekundär (überdurchschnittliche Anteile Ammonium, Nitrat und Sulfat)
- Faktor 4: Verbrennung, Verkehr, Kohle (überdurchschnittliche Anteile organischer und elementarer Kohlenstoff, aber auch Arsen)

Die Anteile der 4 Quellen an der PM₁₀-Masse sind in Tabelle 3 zusammengefasst.

Tabelle 3: Quellenanteile nach UNMIX

Source 1	Source 2	Source 3	Source 4
3,0%	14,0%	48,9%	34,2%

Dabei zeigte sich, dass UNMIX zwar nicht eine so große Zahl von Faktoren wie PMF auflösen konnte, die Ergebnisse aber grundsätzlich ähnlich waren. Die Quellbeiträge zeigten ähnliche Größenordnungen. Sekundärbildung und Verbrennung (Verkehr, Kohle) erwiesen sich als Hauptquellen. Meersalz/Holland sowie Industrie/Erdkruste trugen bis zu 17% zur PM₁₀-Masse bei.

4. Detailuntersuchungen zu den PMF-Faktoren

Tabelle 4 fasst die Ergebnisse der Quellenzuordnung mittels Positiv-Matrix-Faktorisierung und weitere Analysen der Faktoren zusammen. Die Zuordnung der Faktoren zu Quellgruppen erfolgte über die Haupt- und Nebenkomponenten der chemischen Zusammensetzung. In der dritten Spalte der Tabelle sind die Hauptquellen bzw. Prozesse dieser Quellgruppen aufgeführt.

Tabelle 4: Zusammenstellung der Informationen zu den einzelnen Quellgruppen

Faktor	Haupt-komponenten des Faktors	Quell-Gruppen	Korrelation zur Basis Station Universität (R^2)		Eigen-schaft der Quelle	Kommentar
			Styrum	Kald.		
Sekundär 1	$\text{NO}_3^- + \text{NH}_4^+$ ($\Sigma 82\%$)	Sekundär	0,88	0,93	Überregional	Kontinentale Luftmassen
Sekundär 2	$\text{SO}_4^{2-} + \text{NH}_4^+$ ($\Sigma 85\%$)	Sekundär	0,90	0,85	Überregional	Kontinentale Luftmassen
Seesalz/ Holland	$\text{Na}+\text{Cl}^-$ ($\Sigma 35\%$) OM ($\Sigma 11\%$), $\text{SO}_4^{2-}+\text{NO}_3^-$ ($\Sigma 16\%$)	Seesalz/ Holland	0,81	0,72	Überregional	westliche Windrichtung
Verkehr	$\text{EC}+\text{OM}+\text{Fe}_2\text{O}_3$ ($\Sigma 56\%$) SO_4^{2-} ($\Sigma 14\%$)	Verkehr (Abgas)	0,60	0,70	Lokal bis Überregional	
Verbrennung/ Aufwirbelung	$\text{EC}+\text{OM}+\text{NH}_4^+$ ($\Sigma 62\%$), $\text{As}(0,05\%)$ $\text{K}+\text{Ca}+\text{Al}_2\text{O}_3 + \text{Fe}_2\text{O}_3$ ($\Sigma 8\%$)	Kohle/Verkehr Erosion	0,79	0,72	Lokal bis Überregional	
Erdkruste	OM ($\Sigma 26\%$) $\text{Na}+\text{Mg}+\text{K}+\text{Ca}+\text{Al}_2\text{O}_3 + \text{Fe}_2\text{O}_3$ ($\Sigma 50\%$)	Erosion	0,34	0,38	Lokal bis Überregional	
Industrie	$\text{Fe}_2\text{O}_3+\text{Cr}+\text{CuO}+\text{ZnO}+$ $\text{TiO}_2+\text{MnO}_2$ ($\Sigma 36\%$) $\text{EC}+\text{OM}$ ($\Sigma 26\%$)	Industrie	0,30	0,18	Lokal	Uni (NW-NO) Sty (O-SW) Kald. (O, SWS)
Zink/Eisen	$\text{SO}_4^{2-}+\text{NO}_3^-$ ($\Sigma 33\%$) $\text{ZnO}+\text{Fe}_2\text{O}_3 + \text{PbO}+\text{Ca}$ ($\Sigma 15\%$)	Industrie	0,56	0,10	Lokal	Uni (SW-NW) Sty. (WSW) Kald. (NO)

4.1. Korrelationsanalysen der Faktoren zwischen den Stationen

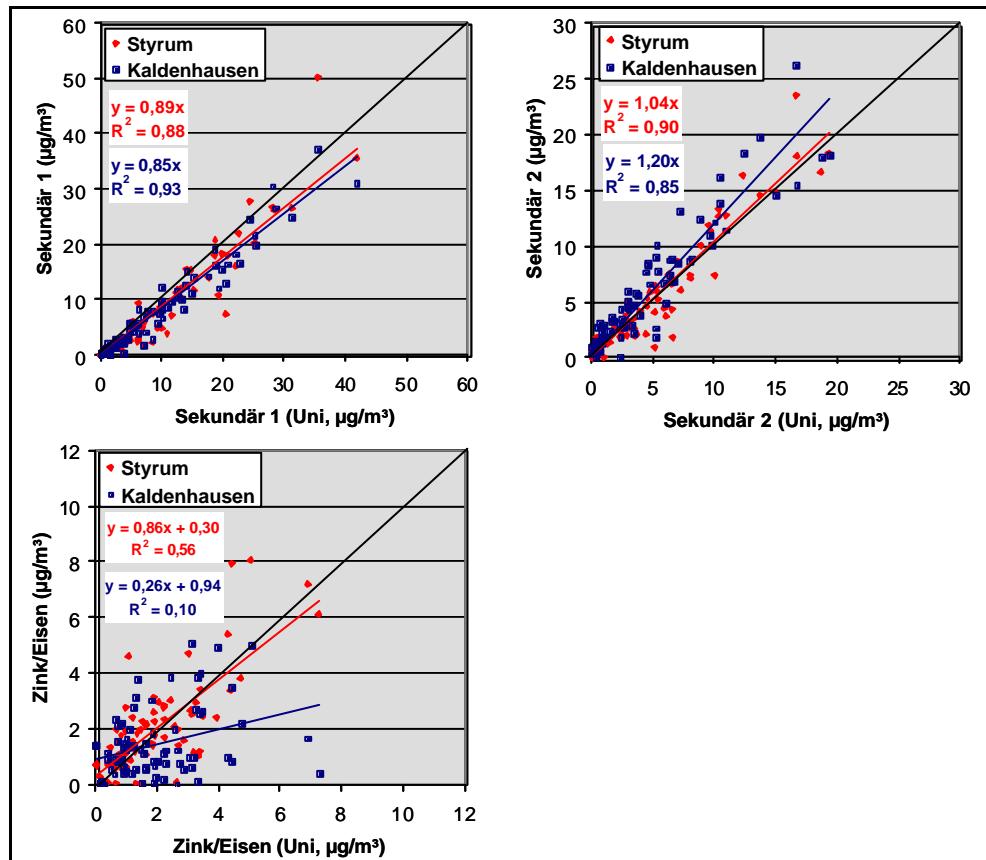


Abbildung 18: Korrelationen der Massenkonzentrationen der Faktoren zwischen den Stationen

Abbildung 18 stellt graphisch die Korrelationen der Massenkonzentrationen der Faktoren zwischen den Sattelitenstandorten STYR und KALD zum Standort UNI dar. Diese Art der Korrelationsanalyse kann als ein Indikator für die Quellregionen betrachtet werden. Korrelationskoeffizienten nahe 1 und Steigungen um 1 sind ein Indikator für eine überregionale Quellregion und somit „Ferntransport“. Beispiele hierfür sind die Faktoren Sekundär 1 (Ammoniumnitrat), Sekundär 2 (Ammoniumsulfat) und Seesalz/Holland. Für die Faktoren Verkehr, Verbrennung/Aufwirbelung und Erdkruste zeigten sich uneinheitliche Tendenzen mit zumeist signifikanten Korrelationen. Eindeutig lokalen Charakter zeigten die Faktoren Industrie und Zink/Eisen.

4.2. Windrichtungsabhängigkeit der Faktoren

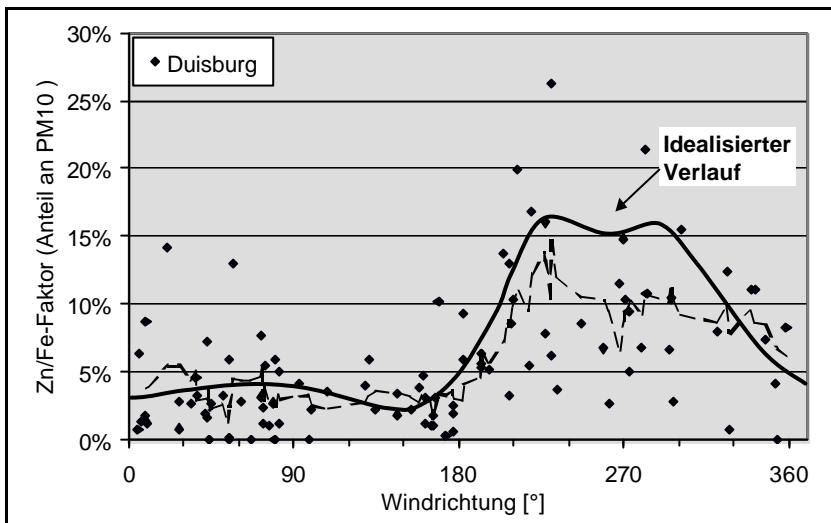


Abbildung 19: Windrichtungabhängigkeit des Zn/Fe-Faktors in Duisburg (Tage ohne Niederschlag)

Alle Faktoren wurden auf ihre Windrichtungsabhängigkeit untersucht. Hierbei zeigten sich Vorzugswindrichtungen für die Faktoren Seesalz/Holland, Industrie sowie Zink/Eisen. Der Seesalz/Holland-Faktor zeigt deutlich höhere PM₁₀-Massenkonzentrationen bei westlichen Winden, was auf die Quellregion Atlantik schließen lässt.

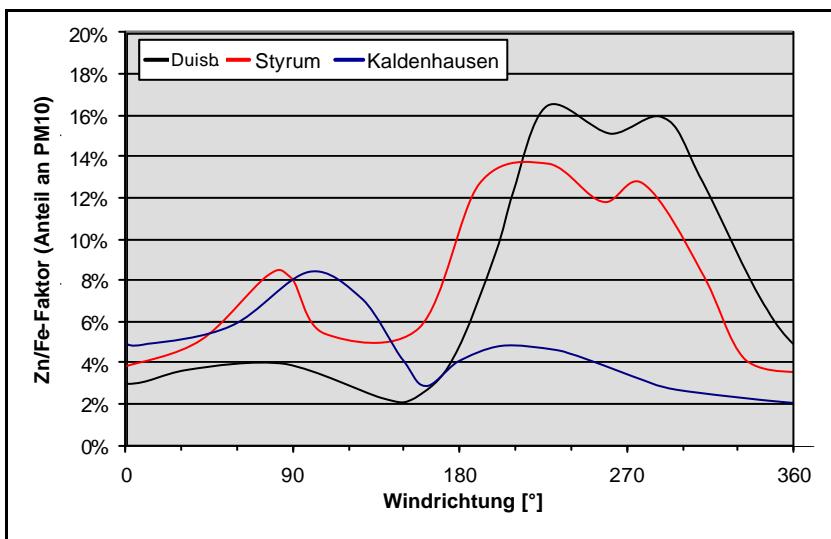


Abbildung 20: Idealisierter Verlauf der Windrichtungsabhängigkeit des Zn/Fe-Faktors

Abbildung 19 zeigt als Beispiel die Anteile des Zink/Eisen-Faktors an PM₁₀ in Abhängigkeit von der Windrichtung für alle niederschlagsfreien Messtage sowie den daraus gebildeten idealisierten Verlauf der Windrichtungsabhängigkeit. Abbildung 20 zeigt die idealisierten Verläufe der Windrichtungsabhängigkeit des Zink/Eisen-Faktors für alle Stationen. Die aus der letzten Abbildung hergeleiteten Vorzugswindrichtungen sind in Abbildung 21 eingetragen und daraus die Quellregionen abgeleitet worden. Als Quellregionen ergeben sich der Duisburger Süden, der Duisburger Norden und ein Quellgebiet im Osten der Station in Mülheim-Styrum.

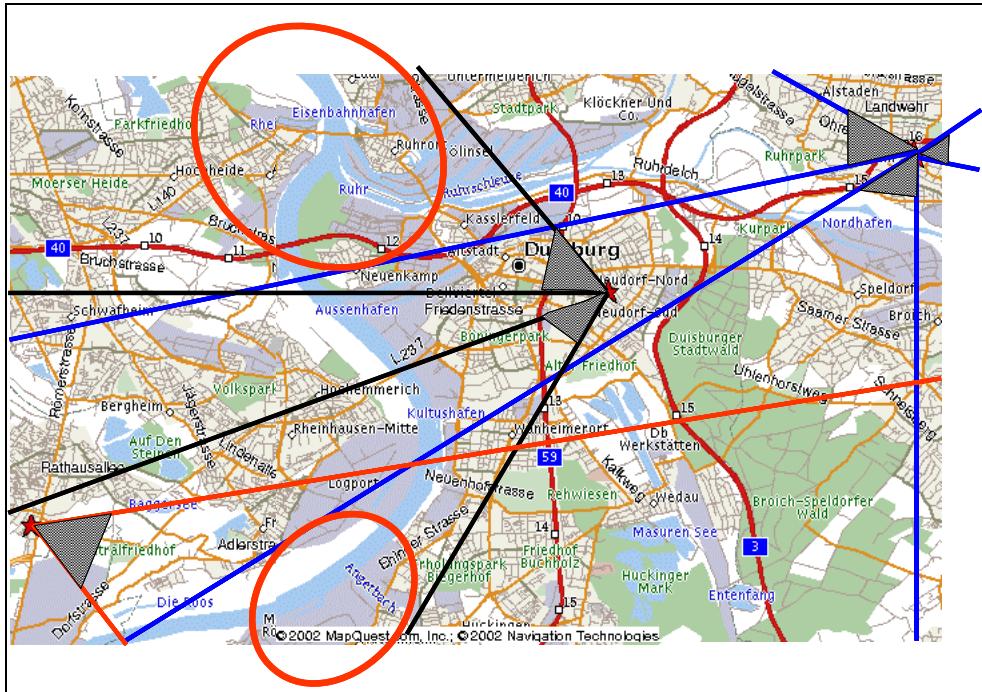


Abbildung 21: Quellregionen des Zn/Fe-Faktors

Ähnliche Zuordnungen der Quellgebiete wurden auch für den Industriefaktor erstellt. Die ausgeprägtesten Quellregionen für diesen Faktor liegen danach im Osten und Süden der Station STYR und südlich der Station KALD.

4.3. Quantitative Beiträge der Quellgruppen

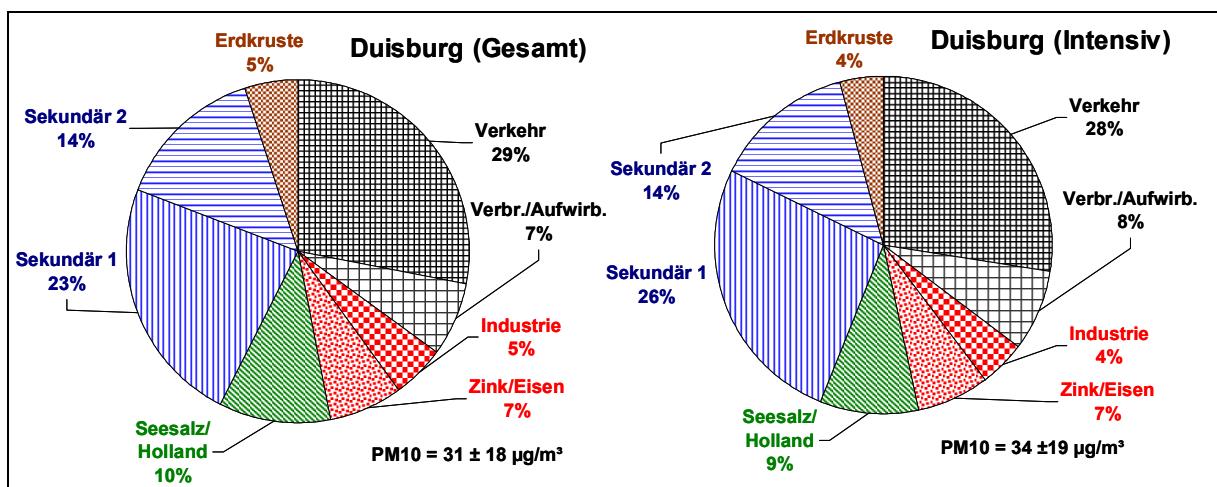


Abbildung 22: Quantitative Beiträge der Quellgruppen an PM₁₀ in Duisburg

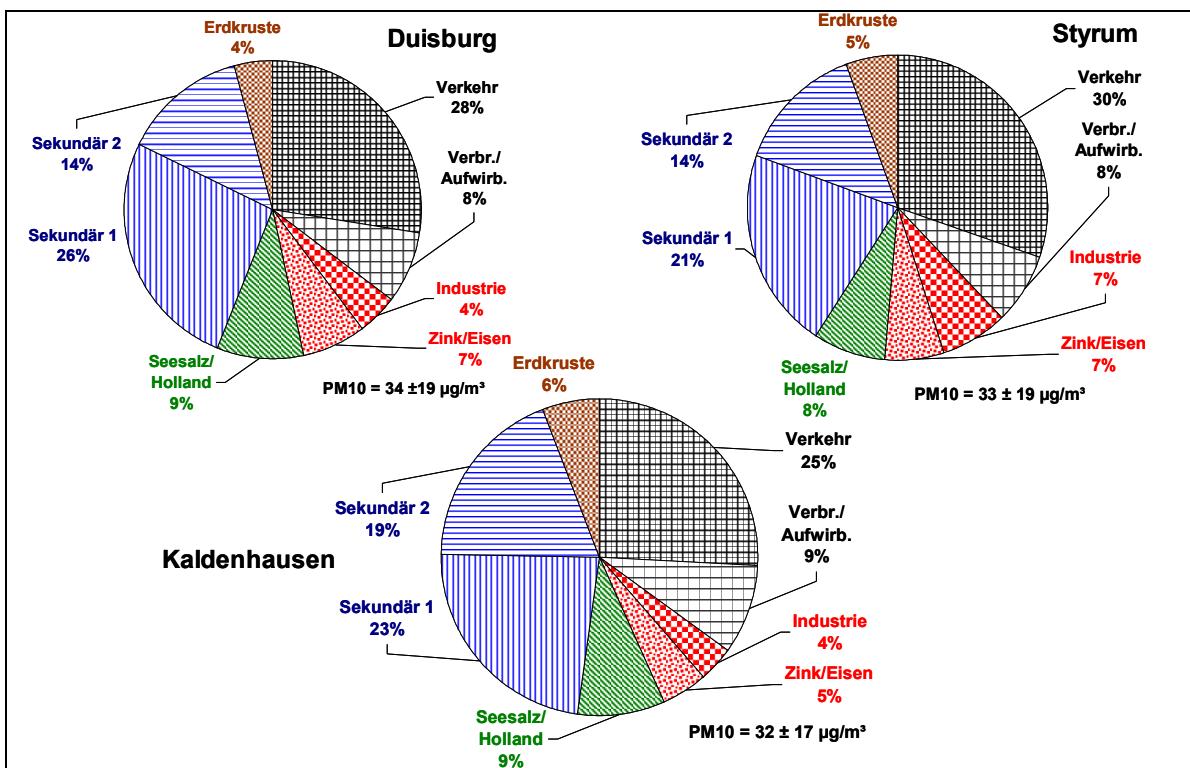


Abbildung 23: Quantitative Beiträge der Quellgruppen an PM₁₀ an den drei Standorten

Abbildung 22 zeigt die quantitativen Beiträge der Quellgruppen an PM₁₀ für die Station UNI für den gesamten Messzeitraum (163 Tage mit kompletten Datensätzen) und den Vergleichszeitraum für die drei Messstationen (74 Tage mit kompletten Datensätzen). Insgesamt zeigten sich ein Verkehrsbeitrag von 29%, ein Beitrag der sekundären Bestandteile aus dem Ferntransport (NH_4^+ , SO_4^{2-} , NO_3^-) von 37%, ein Seesalz/Holland-Beitrag von 10%, ein industrieller Beitrag von 12%, ein Beitrag aus Aufwirbelungsprozessen vom Verkehr bzw. Emissionen bei der Kohleverbrennung von 7% und ein natürlicher Beitrag von Erdkrustenbestandteilen durch Winderosion von 5%. Hierbei ist aber zu beachten, dass die Faktoren die Quellen nicht zu 100% auflösen, sondern dass ein Teil der genannten Quellgruppen aus anderen Quellen stammen können.

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

Abbildung 23 zeigt die quantitative Beiträge der Quellgruppen für alle drei Stationen. Insgesamt zeigt sich ein hoher Grad an Übereinstimmung zwischen den drei Stationen. Der steigende Anteil des Verkehrs von KALD über UNI zu STYR kann auf die entsprechenden Verkehrsdichten und Nähe zu befahrenen Straßen erklärt werden. Die höheren industriellen Beiträge in UNI (11%) und STYR (14%) gegenüber KALD (9%) sind vermutlich auf deren Lage zu den wichtigsten Quellregionen (sowohl Entfernung als auch Richtung) zurückzuführen.

4.4. PM_{2,5}/PM₁₀-Verhältnis der Massenkonzentrationen und Faktoren

Abbildung 24 zeigt die Korrelation zwischen den PM_{2,5}- und den PM₁₀-Massenkonzentrationen am Standort UNI. Die Korrelation ist deutlich ausgeprägt und zeigt eine mittlere Steigung von 0,75. Der Median der rechnerischen Verhältnisse beträgt 0,68.

Zur Berechnung der PM_{2,5}/PM₁₀-Verhältnisse für die verschiedenen Faktoren und zur Überprüfung der Robustheit der Faktoren wurde für den separaten PM_{2,5}-Datensatz ebenfalls eine Quellenzuordnung mit PMF durchgeführt.

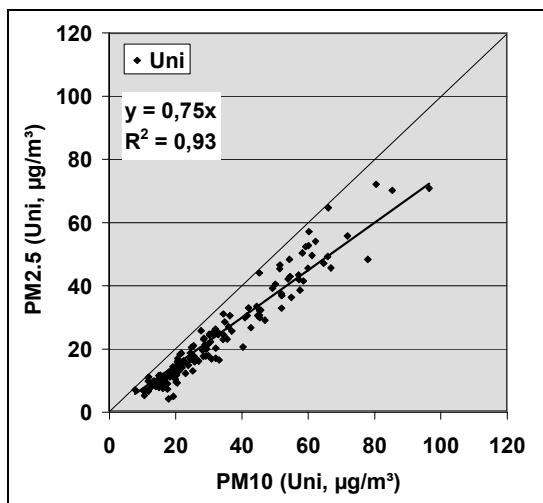


Abbildung 24: Korrelationen der PM_{2,5}- und PM₁₀-Massenkonzentrationen

Die Quellenzuordnung für PM_{2,5} mit PMF konnte 6 Faktoren auflösen, die wiederum den mit den PM₁₀-Werten erhaltenen Faktoren zum großen Teil zugeordnet werden konnten. Abbildung 25 zeigt die Ergebnisse der Zuordnung und der Berechnung der entsprechenden PM_{2,5}/PM₁₀-Verhältnisse.

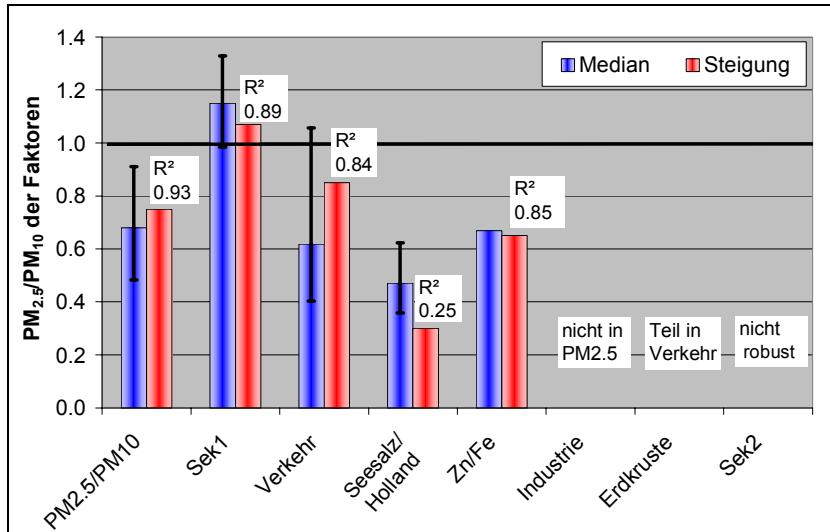


Abbildung 25: PM_{2,5}/PM₁₀-Massenkonzentrationsverhältnisse der Faktoren

Die Faktoren Sekundär 1, Verkehr, Seesalz/Holland und Zn/Fe konnten in der PM_{2,5}-Fraktion mittels PMF wieder aufgelöst werden, wobei der Faktor Verkehr aber in 2 Faktoren, die miteinander sehr gut korrelierten, aufgeteilt war (in Abbildung 25 als ein Faktor zusammengeführt). Die Faktoren Industrie und Erdkruste wurden in der PM_{2,5}-Fraktion nicht wiedergefunden und der Sekundär 2 Faktor nicht robust aufgelöst.

Für die Faktoren wurden die in Abbildung 25 gezeigten PM_{2,5}/PM₁₀-Verhältnisse arithmetisch und über Korrelationsanalysen berechnet. Für den Sekundär 1 Faktor ergab sich ein Verhältnis von 1,15 (Median) und 1,07 (Steigung). Somit ist dieser Faktor vollständig der PM_{2,5}-Fraktion zuzuordnen, was für den Sekundärfaktor aus Ferntransport auch zu erwarten war.

Für den Faktor Verkehr ist das Verhältnis variabel und liegt zwischen 0,62 und 0,85. Das niedrigste Verhältnis zwischen 0,30 und 0,47 ergibt sich für den Seesalzfaktor. Für den industriellen Zn/Fe-Faktor ergeben sich Verhältnisse von 0,67 und 0,65. Insgesamt ergeben die berechneten PM_{2,5}/PM₁₀-Verhältnisse ein plausibles Bild. Es zeigt sich, dass der Zn/Fe-Faktor einen deutlichen Emissionsanteil < 2,5 µm d_{ae} haben muss. Demgegenüber wurde der Industrie-Faktor in der PM_{2,5}-Fraktion nicht aufgelöst, was vermutlich auf vorwiegende Emissionen Grobstaub zurückzuführen ist.

4.5. PM₁₀-massenkonzentrationsabhängige Quellgruppenbeiträge

Abbildung 26 zeigt die PM₁₀-massenkonzentrationsabhängigen Beiträge der Quellgruppen für die Konzentrationsbereiche < 30 µg/m³ und > 50 µg/m³ für die Station UNI. Für diesen Vergleich zeigt sich eine deutliche Zunahme des Sekundär 1 Faktors (Ammoniumnitrat) und Verbrennung/Aufwirbelung-Faktors. Der Sekundär 2 Faktor (Ammoniumsulfat) zeigt eine leichte Zunahme. Deutliche Abnahmen zeigen sich für die Quellgruppen Verkehr und Seesalz/Holland.

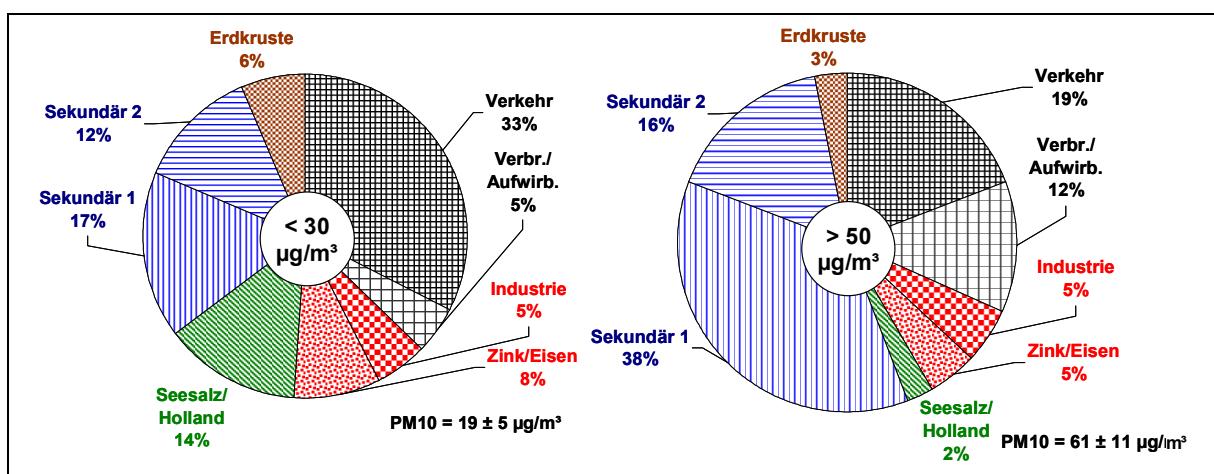


Abbildung 26: PM₁₀-massenkonzentrationsabhängige Beiträge der verschiedenen Quellgruppen, Beispiel Duisburg

In Abbildung 27 ist die Veränderung der Beiträge der Quellgruppen zur PM₁₀-Massenkonzentration für die drei untersuchten Stationen normiert aufgetragen. Hierbei bedeutet ein Verhältnis > 1 einen überproportionalen Beitrag zur PM₁₀-Massenkonzentration, ein Verhältnis von 1 einen proportionalen Beitrag, Verhältnisse < 1 unterproportionale Beiträge sowie negative Verhältnisse eine Abnahme der absoluten Konzentrationen trotz ansteigender PM₁₀-Massenkonzentrationen.

Für alle drei Stationen zeigen sich deutlich überproportionale Beiträge für die Quellgruppen Verbrennung/Aufwirbelung, Sekundär 1 und Sekundär 2. Die anderen Faktoren tragen unterproportional zu erhöhten PM₁₀-Massenkonzentrationen bei und der Seesalz/Holland-Faktor ist sogar negativ. Dies steht in Übereinstimmung mit dem Resultat, dass eine Erhöhung der PM₁₀-Massenkonzentration auf Werte oberhalb des Tagesgrenzwertes mit Vorzugswindrichtungen aus Ost/Nordosten verbunden ist.

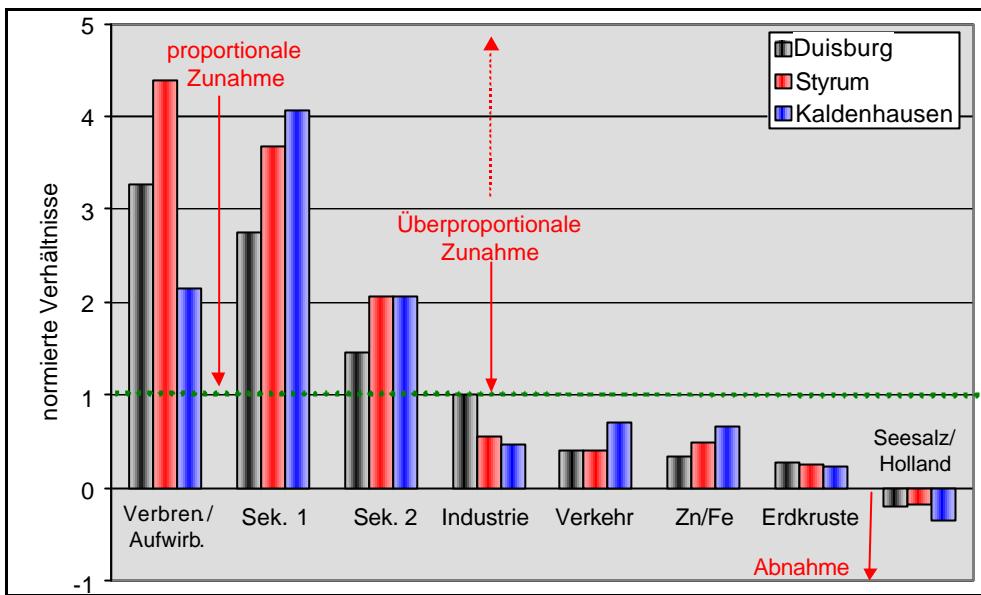


Abbildung 27: Normierte PM₁₀-massenkonzentrationsabhängige Beiträge der verschiedenen Quellgruppen für den Konzentrationsbereich von < 30 µg/m³ zu > 50 µg/m³ für die drei Standorte

5. Zusammenfassung

Die hier vorgestellten Ergebnisse der Analysen der PM₁₀-Massenkonzentrationen zeigen:

- Der Schwebstaub im urbanen Hintergrund ist in Bezug auf die PM₁₀-Massenkonzentrationen und die massenrelevanten Inhaltsstoffe sehr homogen (hier 3 Stationen über eine Distanz von etwa 16 km).
- Im urbanen Hintergrund von Duisburg lag die Häufigkeit der Tagesgrenzwertüberschreitung im untersuchten Zeitraum über dem ab 2005 gültigen Grenzwert (22. BImSchV).
- Leitsubstanz für Tage mit Grenzwertüberschreitungen der PM₁₀-Massenkonzentration waren die sekundär gebildeten Aerosolbestandteile, insbesondere Ammoniumnitrat.
- Eine Erhöhung der PM₁₀-Massenkonzentration im westlichen Ruhrgebiet insbesondere bei Ost/Nordost Wetterlagen.
- Über die Woche zeigen regelmäßig varierende Quellprozesse einen deutlichen Anteil an der PM₁₀-Massenkonzentration. Deren Einfluss ist auch für die Überschreitungshäufigkeit der Tagesgrenzwerte gegeben.
- An den verschiedenen Messorten kann ein Einfluss lokaler Quellen (hier Industrie) anhand der Neben- und Spurenelemente nachgewiesen und z.T. die relative Lage der Quellen anhand von Windrichtungsanalysen festgestellt werden.
- Mittels PMF konnten 8 Faktoren aufgelöst und Quellgruppen zugeordnet werden.
- Detailanalysen und Koppelungen der Faktoren bzw. Quellgruppen mit externen Größen (z. B. Windrichtung, Rückwärtstrajektorien) zeigten konsistente Ergebnisse.
- Für den Seesalz/Holland-Faktor und die „lokalen“ Quellgruppen (Industrie- und Zink/Eisen-Faktor) wurden Vorzugswindrichtungen identifiziert.
- Diese stimmten weitgehend mit denen aus der Windrichtungsanalyse einzelner Elemente überein und somit konnten Quellgebiete identifiziert werden.

- Ein Vergleich der PMF-Analysen für PM_{10} mit einer Analyse für $\text{PM}_{2.5}$ (separater Datensatz) zeigte für 4-5 Faktoren robuste Ergebnisse und sinnvolle $\text{PM}_{2.5/10}$ -Verhältnisse.

- Konzentrationsabhängige Untersuchungen der Quellbeiträge zeigten Leitfaktoren in folgender Reihenfolge: Sekundär 1 ~ Verbrennung/Aufwirbelung > Sekundär 2.

- Als Beiträge für die Quellgruppen im urbanen Hintergrund ergaben sich:

Verkehr	25-30%	Verbrennung/Aufwirbelung	6-10%
Sekundär 1	20-30%	Sekundär 2	10-20%
Industrie	3-8%	Zn/Fe-Industrie	5-10%
Erdkruste	3-7%	Seesalz/Holland	5-10%

Danksagung

Dieses Projekt wurde vom Ministerium für Umwelt und Naturschutz, Landwirtschaft und Verbraucherschutz Nordrhein-Westfalen gefördert. Wir danken auch allen Mitarbeiter/inne/n, die an der Projektdurchführung beteiligt waren.



B.5 LfUG – geförderte Messkampagnen zur Aufklärung der Quellzuordnung für größenaufgelöste Feinstaubkomponenten in Sachsen

**Th. Gnauk, E. Brüggemann, K. Müller,
A. Plewka, U. Franck, H. Gerwig, H. Herrmann**
**(Leibniz Institut für Troposphärenforschung,
Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH, Sächsisches
Landesamt für Umwelt und Geologie Dresden)**



LfUG - geförderte Messkampagnen zur Aufklärung der Quellenzuordnung für größenaufgelöste Feinstaubkomponenten in Sachsen

1) Forschungs- und Entwicklungsvorhaben:

Korngrößendifferenzierte Identifikation der Anteile
verschiedener Quellgruppen an der Feinstaubbelastung
(1999 / 2000)

2) Eigenforschungsprojekt:

Korngrößendifferenzierte Feintaubbelastung in
Straßennähe in Ballungsgebieten Sachsens
(2003 / 2004)

Th. Gnauk¹⁾, E. Brüggemann¹⁾, K. Müller¹⁾, A. Plewka¹⁾,
U. Franck²⁾, H. Gerwig³⁾ und H. Herrmann¹⁾

¹⁾ Leibniz - Institut für Troposphärenforschung e. V., Leipzig

²⁾ Umweltforschungszentrum Leipzig - Halle GmbH

³⁾ Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Dresden

Einleitung

Aerosole sind allgemein stabile Suspensionen von festen oder, je nach den thermodynamischen Bedingungen und der chemischen Zusammensetzung der Partikel auch flüssigen Partikeln in der Gasphase. Der Begriff des Aerosols umfasst dabei grundsätzlich sowohl die Partikel wie auch die sie umgebende Gasphase. Atmosphärische Partikel werden oft mit der englischen Abkürzung PM_X (PM für „particulate matter“) bezeichnet, wobei X die obere Abscheidungsgrenze als aerodynamischen Partikeldurchmesser in Mikrometern bei der Probenahme angibt (z.B. PM₁₀).

Atmosphärische Partikel beeinflussen direkt (Absorption und/oder Streuung des Sonnenlichts) oder indirekt (Einfluss auf die Wolkenbildung und Wolkenmikrophysik als Wolkenkondensationskerne) die Strahlungsbilanz der Erde und damit das globale Klimasystem. Das atmosphärische Aerosol kann auch signifikante chemische Wirkungen auf die Zusammensetzung der Gasphase haben und damit auf Eigenschaften wie Oxidations-, Versauerungs- oder Eutrophierungskapazität.

Es konnte gezeigt werden, dass der Anstieg der PM₁₀-Konzentration mit einem Anstieg der Sterblichkeit in der Bevölkerung korreliert ist. Festgestellt wurde auch die Korrelation der PM_{2,5}-Konzentration mit der täglichen Sterblichkeit und Erkrankungshäufigkeit in urbanen Zentren. Diese Erkenntnisse veranlassten die Europäische Union zur Festlegung von Luftqualitätsstandards für Partikel (European Council Directive 1999/30/EC, 1999). Nach diesem Standard darf ab 01.01.2005 der PM₁₀-Grenzwert von 40 µg/m³ nicht öfter als 35 mal im Jahr an einer Messstelle überschritten werden.

Kleine Partikel können bis tief in die Lunge eindringen. Sie können deshalb im Vergleich mit größeren Teilchen (PM₁₀-PM_{2,5}) höhere Sterblichkeitsraten verursachen. Die Aufklärung der chemischen Zusammensetzung der Partikelfraktion < 2,5 µm ist deshalb besonders wichtig. Weiterhin ist für die verantwortlichen Behörden eine möglichst weitgehende Quellenzuordnung von Interesse, um bei festgestellten Grenzwertüberschreitungen sinnvolle emissionsmindernde Maßnahmen durchführen zu können.

In dieser Situation beauftragte das Sächsische Landesamt für Umwelt und Geologie Dresden (LfUG) im Jahre 1999 das Institut für Troposphärenforschung in Leipzig (IfT) mit der Durchführung des unter 1) genannten Forschungs- und Entwicklungsvorhabens. Der Abschlussbericht wurde im November 2000 verteidigt. Er liefert für NW-Sachsen Quellenzuordnungen auf der Grundlage großenfraktionierter chemischer Partikelanalysen an verschiedenen belasteten Orten zu verschiedenen Jahreszeiten unter Einbeziehung von REM-Bildern, Trajektorienanalysen und Clusteranalysen. Ein Überblick über die Ergebnisse dieses Projekts wurde schon von H. Herrmann beim 1. PM_x-Workshop gegeben, hier soll noch einmal genauer auf die Ableitung der Quellenzuordnung für die Bestandteile der partikulären Kohlenstoff - Fraktion eingegangen werden.

Am Ende wird das unter 2) genannte im Jahre 2003 begonnene und bis Ende 2004 laufende Eigenforschungsprojekt des LfUG vorgestellt, das in Zusammenarbeit mit dem IfT durchgeführt wird und aufbauend auf den Ergebnissen aus dem ersten Vorhaben durch erweiterte Probenahme- und Auswertungstechniken zu neuen Erkenntnissen über die Partikelquellen in Sachsen führen soll.

Quellenzuordnung von Kohlenstoff-Summenparametern durch die Analyse größenaufgelöster Partikelproben von unterschiedlichen Sammelorten zu verschiedenen Jahreszeiten

Es wird mit diesem Ansatz versucht, aus den OC- und EC-Konzentrationen, die größenaufgelöst auf jeder Impaktorstufe, zu verschiedenen Jahreszeiten und an verschiedenen belasteten Standorten bestimmt wurden, die Anteile verschiedener Quellen an der Kohlenstoff - Fraktion der Partikelmasse zu berechnen. Dieser einfache Weg benötigt keine Unterstützung von Modellrechnungen, Emissionsbestandsaufnahmen oder multivariaten statistischen Methoden, er bringt lediglich die analytisch erhaltenen OC/EC - Konzentrationen unter Beachtung einiger plausibler Annahmen miteinander in Verbindung. Die Ergebnisse dürfen dabei natürlich nur als erste Näherung zur groben Orientierung betrachtet werden und können keineswegs eine detaillierte Analyse unter Einbeziehung aller verfügbaren Informationen und mathematischen Methoden ersetzen. Trotzdem ist erstaunlich, wie auf Grund der folgenden einfachen Operationen vernünftige Resultate erhalten werden.

Die Probenahme wurde nach folgender Strategie durchgeführt:

Verschieden belastete Standorte

Urban	Stadtrand	Hintergrund
Leipzig - City	IfT - Dach	Station Melpitz
verkehrsreiche Kreuzung	Mischgebiet	Wiesenfläche
Station L	Station I	Station M

Saisonale differenzierte Probenahme

Sommer- und Winter - Messkampagnen
Auswahl typischer Sommer- (warm und trocken) und Wintertage (kalt und trocken) ohne große Luftdruckgegensätze (windstill) zur Minimierung von Transportprozessen

Größenaufgelöste Probenahme

24-Stunden - Probenahme mit BERNER - Niederdruck - Impaktoren LPI 80
Cut - Durchmesser 0,05 / 0,14 / 0,42 / 1,2 / 3,5 / 10,0 μm

Folgende Annahmen wurden als zutreffend betrachtet:

Verkehrsemisionen unterliegen kaum saisonalen Veränderungen und bleiben im Jahresverlauf annähernd konstant.

Partikulärer Kohlenstoff auf Stufe 1 ($D_p = 0,05\text{-}0,14 \mu\text{m}$) des BERNER - Impaktors an Station L wird vollständig der Verkehrsemision zugeschrieben, das OC/EC -Verhältnis für reine Verkehrsemision ergibt sich dann an dieser Stelle zu 0,34.

Emissionen aus Industrieanlagen sind im Raum Leipzig und ganz Westsachsen vernachlässigbar. Die Schließung und Demontage ganzer veralteter und emissionsstarker Industriezweige (Gießereien, Maschinenbau, Braunkohlen-Kraftwerke) nach der Wiedervereinigung hat dazu geführt, dass in Leipzig nur etwa 10000 Industriearbeitsplätze von ehemals 120000 übrig geblieben sind. Vorhandene Anlagen sind rekonstruiert, neu gebaute entsprechen den modernsten Emissionsschutzstandards.

Biogene Emissionen kommen nur im Sommer vor, Emissionen aus dem privaten Hausbrand nur im Winter. Private Heizungen bestanden meist aus Öfen, die mit Braunkohlenbriketts gefeuert wurden. Trotz weitgehender Umstellung auf moderne Heizsysteme ist noch ein gewisser Anteil an Brikettverbrennung übrig geblieben, dessen direkte Partikelemission besonders auf Impaktorstufe 3 sichtbar wird.

Demzufolge setzten sich die Kohlenstoffanteile auf den höheren Impaktor-Stufen (Stufe 2-4) zusammen aus:

Winter:	OC = gealterte Verkehrsemision und Hausbrand
	EC = gealterte Verkehrsemision und Hausbrand
Sommer:	OC = gealterte Verkehrsemision und biogene Emission
	EC = gealterte Verkehrsemision
	→ EC (Sommer) = EC (Verkehr)

Bei Rückschlüssen von gemessenen Konzentrationen auf Quellstärken muss die unterschiedliche Mischungsschichthöhe (MSH) im Sommer und im Winter berücksichtigt werden. Als grobe Näherung kann angenommen werden, dass die MSH im Sommer etwa doppelt so hoch ist wie im Winter. Eine Emission bestimmter Stärke hat deshalb ein doppelt so großes Ausbreitungsvolumen wie im Winter und wird sich also nur mit der halben Konzentration manifestieren. Bei einem Sommer/Winter - Vergleich muss deshalb auf eine gleiche MSH normiert werden, um zu sinnvollen Ergebnissen zu gelangen. Auf einfache Weise wird das durch die Verdoppelung der gefundenen Sommerkonzentrationen erreicht. Die MSH ist natürlich hoch variabel, so dass hier leicht größere Fehler gemacht werden können. Am besten wäre eine simultan zur Impaktormessung stattfindende Messung der MSH, so dass ein verlässliches Sommer/Winter - Verhältnis an den ausgewählten Messtagen verfügbar ist.

Für jede Saison wurde eine Auswahl typischer Messtage getroffen, um die saisonalen Unterschiede deutlicher zu erkennen. Bevorzugt wurden warme und trockene Sommertage sowie kalte und trockene Wintertage mit jeweils möglichst geringer Luftströmung, um die Einflüsse durch Ferntransport als vernachlässigbar ansehen und die gefundenen Konzentrationen hauptsächlich lokalen und regionalen Quellen zuschreiben zu können.

Die rechnerische Quellenabschätzung wurde danach folgendermaßen durchgeführt:

$$EC(\text{Verkehr}) = EC(\text{Sommer})$$

Sächsisches Emissionskataster: 90 % der verkehrsbedingten Partikelemissionen stammen aus Dieselfahrzeugen

$$\Rightarrow EC(\text{Diesel}) = EC(\text{Verkehr}) \times 0,9 \quad \text{bzw.}$$

$$\Rightarrow EC(\text{Benzin}) = EC(\text{Verkehr}) \times 0,1$$

$$OC(\text{Verkehr}) = EC(\text{Verkehr}) \times OC / EC$$

$$\Rightarrow OC/EC \text{ für reine Verkehrsemision} = 0,34$$

$$EC(\text{Hausbrand}) = EC(\text{Winter}) - EC(\text{Sommer})$$

$$OC(\text{Hausbrand}) = OC(\text{Winter}) - OC(\text{Verkehr})$$

$$OC(\text{Biogene Emission}) = OC(\text{Sommer}) - OC(\text{Verkehr})$$

Damit sind im Prinzip alle Anteile der Summenparameter OC und EC im Sommer und im Winter an allen drei Messstandorten größeraufgelöst bestimmbar. Am besten arbeitet das Verfahren auf der massereichsten Stufe 3, die meist allein die Hälfte der Gesamtpartikelmasse auf sich vereinigt. Auf den anderen Stufen werden die Fehler größer. Das Auftreten negativer Werte bei der Subtraktion (vorher verdoppelter) EC-Sommerwerte von EC-Winterwerten zeigt an, dass das angenommene MSH - Verhältnis von 2 zwischen Sommer und Winter in manchen Fällen offenbar nicht erreicht wird und tatsächlich besser gemessen werden sollte.

Berechnungsbeispiel für Stufe 3 an realen Messwerten:

Vorhandene Messgrößen: OC/EC - Konzentrationen als Mittelwerte über alle ausgewählten Messtage der Sommer- bzw. Winterkampagne

Station L	Winter	Sommer
OC	1,74 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	0,75 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
EC	2,95 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	1,17 $\mu\text{g}/\text{m}^3$

Zusätzliche Angaben:

$$OC/EC \text{ für reine Verkehrsemision} = 0,34$$

Normierungsfaktor für MSH = 2

$$\Rightarrow OC(\text{Sommer}) = 1,50 \mu\text{g}/\text{m}^3$$

$$\Rightarrow EC(\text{Sommer}) = 2,34 \mu\text{g}/\text{m}^3$$

Daraus ergeben sich durch Einsetzen in die o.g. Beziehungen die aufgeführten Anteile.

Ergebnisse als Konzentration [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] und als TC - Anteil [%]:

Komponente	Winter		Sommer	
	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	%	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	%
EC (Verkehr)	2.34	50	2,34	61
EC (Hausbrand)	0,61	13		
OC (Verkehr)	0,80	17	0,80	21
OC (Hausbrand)	0,94	20		
OC (Biogen)			0,70	18
TC	4,69	100	3,84	100

Diese Berechnung ist für jede der drei Stationen möglich. Die Ergebnisse sind als prozentuale Anteile an der jeweiligen Stufenmasse in der folgenden Tabelle dargestellt.

Stufe 3	Station L: Leipzig (City)		Station I: IfT (Stadtrand)		Station M: Melpitz (Hintergrund)	
	Sommer	Winter	Sommer	Winter	Sommer	Winter
TC [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	3.84	4.69	2.02	4.34	1.64	3.80
% von TC:						
OC (Verkehr)	21	17	16	7	14	6
EC (Verkehr)	61	50	46	22	43	19
OC (Biogen)	18		38		43	
OC (Hausbrand)		20		28		28
EC (Hausbrand)		13		43		47
Summen:						
TC (Verkehr)	82	67	62	29	57	25
TC(Hausbrand)		33		71		75
OC (Bio)	18		38		43	
Total	100	100	100	100	100	100

Diskussion:

Allgemein hebt sich Station L von den beiden anderen Stationen ab, I und M sind einander ähnlicher. Dies ist auf den überragenden Verkehrseinfluss an Station L zurückzuführen. An allen Stationen ist die TC - Konzentration im Winter höher als im Sommer, die Abstufung ist immer L > I > M.

An Station L beträgt der Verkehrsanteil am TC im Sommer 82% und geht auch im Winter unter dem Einfluss des Hausbrands nur auf 67% zurück. Dagegen ist der Hausbrandeinfluss an den beiden anderen Stationen viel stärker. An Station I verringert sich der TC - Verkehrsanteil von 62% im Sommer auf 29% im Winter und an Station M von 57% auf 25%. Dafür steigt der Hausbrandanteil, der an Station L nur 33% ausmacht, an Station I im Winter auf 71% und an Station M sogar bis auf 75% des TC - Anteils an der Partikelmasse. Der OC - Anteil aus biogener Emission steigt im Sommer von 18% an Station L über 38% an Station I bis auf 43% an Station M an.

Daraus geht hervor, dass im Sommer an allen drei Stationen der Verkehrseinfluss überwiegt und mehr als die Hälfte der gesamten TC - Konzentration verursacht, während im Winter an den Stationen I und M der Hausbrandeinfluss überwiegt und nur an Station L noch mehr als

die Hälfte der TC - Konzentration auf den Verkehr zurückgeführt werden kann. Strategien zur Emissionsminderung müssten diese Unterschiede zwischen urbanen und ländlichen Gebieten berücksichtigen, wobei Überschreitungen der Grenzwerte zuallererst in verkehrsreichen städtischen Gebieten im Winter zu befürchten sind. Biogene Emissionen können einen beträchtlichen Anteil an ländlichen Stationen im Sommer ausmachen, doch ist hier weniger mit der Gefahr der Grenzwertüberschreitung zu rechnen.

Eigenforschungsprojekt: Korngrößendifferenzierte Feinstaubbelastung in Straßennähe in Ballungsgebieten Sachsens (2003/2004)

Dieses Eigenforschungsprojekt des LfUG stellt, aufbauend auf den Ergebnissen des ersten Forschungs- und Entwicklungsvorhabens zur Quellenidentifizierung in Sachsen, eine Fortführung der Suche nach relevanten Partikelemissionsquellen in Ballungsräumen des Freistaates mit weiter entwickelter Probenahmetechnik unter Einbeziehung möglichst umfangreicher Daten aus den laufenden Routinemessungen für Spurenstoffe in der Luft und meteorologische Daten dar.

Vorgesehen sind folgende Stationen:

- A) Dresden-Neustadt (ca. 45000 Kfz/Tag)
- B) Urbane Grundbelastung ca. 300m nordöstlich von Station A innerhalb eines Gewerbe-/Wohngebiets
- C) Radebeul-Wahnsdorf ca. 10km nordwestlich von Station A am Stadtrand

Erhoben werden folgende Messparameter:

Massekonzentration der luftgetragenen Partikel im Größenbereich von 10nm bis 18 μm mittels High-Vol-Sampling (DIGITEL): PM₁₀; PM_{2,5}
BERNER-Impaktor: 5 Stufen (0,05-10 μm)
MOUDI/Nano-MOUDI: 13 Stufen (0,01-0,056 μm /0,056-18 μm)

Partikelkomponenten:

OC/EC, Schwermetalle, anorganische Ionen, organische Verbindungen (PAK, Alkane)
REM-Analyse ausgewählter Proben
Routineparameter: BTX, NO_x, CO, SO₂, Ruß
Meteorologie: Windparameter, Temperatur, Luftfeuchte, Niederschlag, MSH

Die Probenahmen erfolgen über ein Jahr (08/2003-08/2004) verteilt mit eingeschobenen Intensivmesskampagnen.

Geplante Verfahren zur Quellenzuordnung umfassen:

Rezeptormodelle:

- Multivariate Statistik (Clusteranalysen, Hauptkomponentenanalysen)
- CEB (Chemische Elementbilanz)
- CMB (Chemische Massenbilanz)

Ausbreitungsbetrachtungen:

- Gewichtete Konzentrationen nach Windrichtungsverteilungen
- Rückwärtstrajektorien

Die experimentellen Daten werden erhoben durch IfT, TÜV, UBG und DWD. Auswertung und Interpretation der Ergebnisse soll hauptsächlich beim LfUG liegen. Das Projekt soll Ende des Jahres 2004 abgeschlossen werden.

B.6 Feinstaubbelastung PM10 im ländlichen Raum Niedersachsens

**W. Bächlin, K.-P. Giesen, B. Heits, E. Klasmeier, W.J. Müller,
T. Kuhlbusch, M. Memmesheimer
(Ingenieurbüro Lohmeyer, NLÖ, IUTA e. V., RIU Uni Köln)**

FEINSTAUBBELASTUNG PM₁₀ IM LÄNDLICHEN RAUM NIEDERSACHSENS

**W. Bächlin¹, K.-P. Giesen², B. Heits², E. Klasmeier², W.J. Müller², T. Kuhlbusch³,
M. Memmesheimer⁴**

¹ Ingenieurbüro Lohmeyer GmbH & Co. KG, Karlsruhe

² Niedersächsisches Landesamt für Ökologie (NLÖ), Hannover

³ IUTA Institut für Energie- und Umwelttechnik e.V., Duisburg

⁴ Förderverein des Rheinischen Instituts für Umweltforschung an der Universität zu Köln, Köln

1. Einleitung

Der Grenzwert für die Anzahl der Überschreitungen des PM₁₀-Tagesmittelwertes (Tagesmittelwerte > 50 µg/m³) wird in Niedersachsen an mehreren Messstellen des Lufthygienischen Überwachungssystems Niedersachsen, LÜN überschritten. Es bedarf daher für PM₁₀ einer detaillierteren Betrachtung der möglichen Quellen und Ursachen. Da sich diese Überschreitungen nicht nur auf städtische, verkehrsgeprägte Messstellen beziehen sondern auch im ländlichen Bereich registriert werden, wurde während des Zeitraumes April 2002 bis März 2003 eine Untersuchung des Feinstaubes initiiert. Sie hatte zum Ziel, das Aerosolbudget in einem landwirtschaftlich geprägten Gebiet näher zu beschreiben und mit dem eines städtisch geprägten Gebietes zu vergleichen. Dabei sollten die qualitativen und quantitativen Unterschiede von Feinstaub (PM₁₀) herausgearbeitet werden für

- einen Standort, der durch landwirtschaftliche Aktivitäten, insbesondere Tierhaltung geprägt wird und
- einen Standort in einem Ballungsgebiet, der hinsichtlich seiner PM₁₀-Belastung städtisch geprägt und somit durch den Kraftfahrzeugverkehr dominiert wird.

Ausgewählt wurden als repräsentative Standorte die beiden LÜN-Messstationen in Bösel (BLWW) und Hannover (HRSW). Untersucht und verglichen wurden die Massenkonzentrationen PM₁₀, die Inhaltsstoffe und die Partikelgrößenverteilungen für beide Stationen. Der Abschlussbericht des Vorhabens liegt vor und kann über das NLÖ, Hannover bezogen werden.

2. Vorgehensweise

Die Feinstaubproben wurden an jedem der beiden Standorte mit jeweils zwei Digital DHA-80-Sammeln mit PM₁₀-Probenahmesystem erfasst. Über einen Zeitraum von einem Jahr wurden Tagesproben gezogen. Es wurde somit eine Vegetationsperiode repräsentativ abgedeckt. Die beiden Sammler an einem Standort wurden mit zwei unterschiedlichen Filtermaterialien betrieben, um die Erfordernisse der Stoffanalyse bezüglich des Filtermaterials zu erfüllen. Zum Einsatz kamen Quarzfaser- und Cellulose-Nitrat-Filter. Die Massenkonzentrationen wurden für alle Proben gravimetrisch ermittelt, ergänzend wurden diese verglichen mit den Tageswerten aus an beiden Stationen betriebenen Beta-Staubmetern FH62-IN. Von jedem der vier Sammler wurde eine ausgewählte Probenanzahl von 100 Filtern hinsichtlich der chemischen Inhaltsstoffe analysiert. Ergänzend zu diesen Arbeiten wurden während zweier Intensivmessphasen von jeweils ca. 14 Tagen Parallelmessungen mit zwei optischen Partikelzählern durchgeführt.

3. Ergebnisse

Massenkonzentrationen: Bei der Gegenüberstellung der Massenkonzentrationen mit den beiden Filtermaterialien ergaben sich keine signifikanten Unterschiede. Die Verläufe der Konzentrationszeitreihen an beiden Stationen waren während des Betrachtungszeitraumes sehr ähnlich. Die Korrelationen für die beiden Stationen sind in Abb. 1 dargestellt. Die gemessenen Jahresmittelwerte während des Messzeitraumes April 2002 bis März 2003 unterscheiden sich um weniger als 5 %. Die Anzahl der Überschreitungen eines Tagesmittelwertes PM_{10} von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Grenzwert ab 2005) lag mit 45 in Hannover (HRSW) und 44 in Bösel (BLWW) deutlich über der zulässigen Anzahl von 35 Überschreitungen im Jahr.

Der Vergleich mit anderen Stationen in Niedersachsen und in den Niederlanden zeigte ebenfalls ähnliche Verläufe der Zeitreihen, wenn sich auch die durchschnittlichen PM_{10} -Konzentrationen regional geringfügig unterscheiden. Diese Aussage wird auch unterstützt durch die gemessenen Partikelanzahlverteilungen an den beiden Stationen. Dies führt zu dem Schluss, dass ein wesentlicher Anteil der PM_{10} -Massenkonzentrationen durch großräumige meteorologische Verhältnisse bedingt ist. Untermauert wird diese Aussage durch Vergleich mit der als Hintergrundmessstation angenommenen LÜN-Station Jadebusen in Wilhelmshaven. Der Jahresmittelwert an der Hintergrundmessstation lag bei $26 \mu\text{g}/\text{m}^3$, während an den beiden betrachteten Stationen in Bösel (BLWW) und Hannover (HRSW) Werte von $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bzw. $32 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gemessen wurden. Zu ähnlichen Aussagen führt auch das MODMESS-Vorhaben (Nachhaltiges Niedersachsen, Heft 27 (2004), bei dem modellgestützte Analysen der PM-Messungen durchgeführt wurden. Mit diesen Werten ergibt sich ein Anteil von ca. 20 % für die lokalen Quellen in Bösel. Auf diesen Anteil an der allgemeinen PM_{10} -Belastung kann durch Minderungsmaßnahmen in der näheren Umgebung Einfluss genommen werden. Ungefähr 80 % sind nach diesen Abschätzungen im westlichen Niedersachsen auf überregionale Einflüsse zurückzuführen.

Vergleich Gravimetrie und Radiometrie: Ein weiterer Themenkreis sind die PM_{10} -Äquivalenzmessverfahren mittels kontinuierlich registrierenden Monitoren. Es ergaben sich aus den Vergleichsmessungen zwischen der Gravimetrie und der Radiometrie unterschiedliche Bewertungsansätze. Abb. 2 zeigt die Ergebnisse für die Station Hannover. Daraus folgt, dass für PM_{10} -Messungen zur Analyse der Ursachen von Grenzwertüberschreitungen Äquivalenzmessverfahren mit der Referenzmethode (Filtermessverfahren) zu kalibrieren sind. Trotz der relativ homogenen Partikelverteilungen in den Untersuchungsgebieten sind die Kalibrierungen auf den jeweiligen Einsatzort bezogen durchzuführen. Bei der Berichtserstattung über die Ergebnisse von PM_{10} -Messungen müssen das eingesetzte Messverfahren und die gegebenenfalls verwendeten Korrekturfaktoren angegeben werden.

Inhaltsstoffe: Die Konzentrationsverläufe für einige Inhaltsstoffe zeigen ebenfalls zeitlich und räumlich ähnliche Verläufe wie die PM_{10} -Massenkonzentrationen (z.B. EC und NO_3^-); andere wie z.B. Eisen zeigen deutliche Unterschiede. Mit steigenden PM_{10} -Massenkonzentrationen steigt der prozentuale Anteil der Ionen und von EC an, wohingegen die prozentualen Anteile von OM, den Erdkrustenelementen Ca+Al, den Seesalzkomponenten Na+Mg sowie der Metalle abnehmen. Abb. 3 zeigt den Vergleich der chemischen Zusammensetzung zwischen den beiden Stationen für Tage mit PM_{10} Massenkonzentrationen $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Ein Vergleich der Summe der Inhaltsstoffkonzentrationen an beiden Stationen belegt, dass die Unterschiede der analytisch bestimmmbaren Komponenten an der PM_{10} -Massenkonzentration ca. 15 % ausmachen. Dieser Unterschied kann nur durch Beiträge aus Quellen der näheren Umgebung erklärt werden. Somit ist der nach dieser Methode abgeschätzte Beitrag der lokalen Quellen an der mittleren PM_{10} -Massenkonzentration etwa 15 %. Insgesamt sind die Unterschiede zwischen den Stationen geringer als erwartet. Dies

wird erklärt durch den relativ hohen Anteil der Hintergrundkonzentration und der herrschenden meteorologischen Randbedingungen.

Die Vergleiche der Massenkonzentrationen und der Inhaltsstoffkonzentrationen der betrachteten Stationen liefern somit als Anteile für die Quellen der näheren Umgebung Werte zwischen 15 bis 20 %. Mit beiden Verfahren ergeben sich vergleichbare Aussagen zu den Quellenanteilen und damit zu den möglichen Minderungspotentialen in dem näheren Umfeld.

4. Fazit

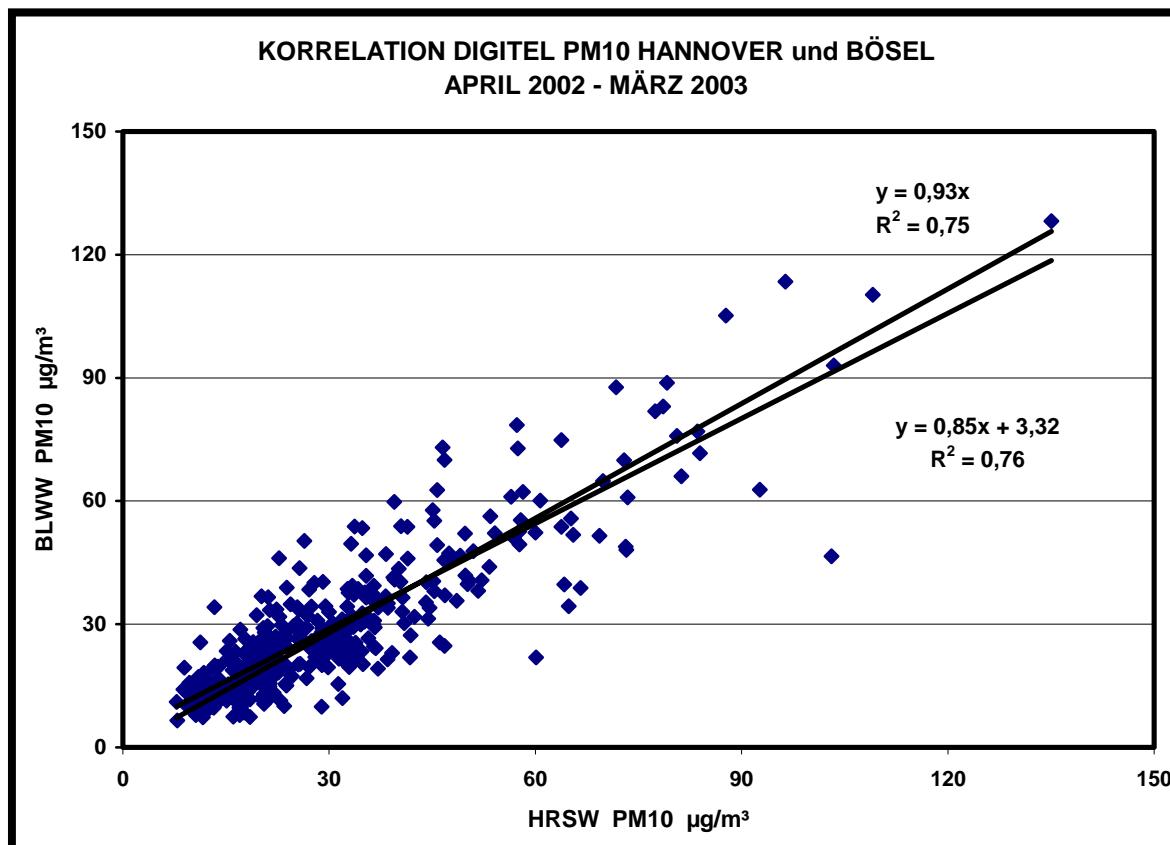
Ein detaillierter Vergleich der chemischen Zusammensetzung von PM₁₀ an den beiden Standorten zeigte erhöhte NO₃⁻, NH₄⁺ und Cl⁻ Konzentrationen für den Standort Bösel, sowie erhöhte Werte für EC, Erdkrustenelemente und Metalle für den Standort Hannover auf dem Dach des NLÖ-Gebäudes. Die Differenzen zwischen den Stationen können auf die lokalen Emittenten zurückgeführt werden. Im Jahresmittel liegen die Konzentrationen an Nitrat und Ammonium in Bösel etwa 3 µg/m³ höher als in Hannover und die Konzentrationen von EC, OC und Metallen etwa 4,5 µg/m³ in Hannover höher als in Bösel.

Die Unterschiede zwischen den beiden betrachteten Stationen sowohl bei den PM₁₀-Massenkonzentrationen als auch bei den Inhaltsstoffen sind geringer als erwartet. Ein Grund dafür ist der große Anteil der großräumigen Hintergrundkonzentrationen, welche die PM₁₀-Belastungen prägen. Basierend auf Vergleichen der PM₁₀ Massenkonzentrationen und der chemischen Zusammensetzungen beträgt der Anteil der Hintergrundbelastung im Jahresmittel etwa 80-85 % in Hannover und Bösel.

Leitsubstanzen, die deutlich zu erhöhten PM₁₀-Massenkonzentrationen (> 50 µg/m³) beitrugen waren insbesondere NO₃⁻, NH₄⁺ und EC. An Tagen mit erhöhten PM₁₀-Massenkonzentrationen liegen die Massenanteile der Ionen (NO₃⁻, SO₄²⁻, NH₄⁺) bei 54% (Bösel) und 42% (Hannover). Auch hier zeigt sich der lokale Einfluss der Emissionen an NH₄⁺ für Bösel recht deutlich.

Mit Blick auf zukünftige Maßnahmenplanungen zur Reduktion der PM₁₀-Belastung sollte der Beitrag der großräumigen Belastung stärker in die Überlegungen mit einbezogen werden. Der Einfluss allein durch lokale Maßnahmen wird - außer an den Hot Spots des Straßenverkehrs - nur bedingt zu signifikanten Minderungen führen. Da insbesondere die Konzentrationen der sekundären Partikelbestandteile (SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺) an den Tagen mit erhöhten PM₁₀-Massenkonzentrationen ansteigen, ist zu prüfen, in wie weit überregionale Minderungen der Emissionen von Vorläufersubstanzen wie z.B. Ammoniak möglich sind. Das westliche Niedersachsen wird nicht durch einzelne, stark emittierende industrielle Quellen sondern durch eine Vielzahl relativ kleiner Quellen, den Anlagen zur Haltung und Aufzucht von Tieren, geprägt. Damit sind auch flächendeckende lokale Maßnahmen zur Minderung der Emissionen von Vorläuferstoffen des Feinstaubes notwendig.

FEINSTAUBBELASTUNG IN DER GÖTTINGER STRASSE UND IM LÄNDLICHEN RAUM



Vergleich DIGITEL von BLWW und HRSW

Klasse	Anzahl	Mittel BLWW	Mittel HRSW
		$\mu\text{g}/\text{m}^3$	$\mu\text{g}/\text{m}^3$
0 - 29	221/203	19,3	19,5
30 - 50	98/112	37,5	37,5
51 - 140	45/47	70,0	71,4
0 - 140	364/362	30,4	31,8

Abb. 1: Vergleich der Digitel-Messungen in Bösel und Hannover

Abb. 2a: HRSW: Vergleich DIGITEL/CNF zu FH62-IN

Klasse µg/m³	Anzahl	Mittel DIG	Mittel FH	Faktor
		µg/m³	µg/m³	
0 - 20	103	16	11	1,41
21 - 30	95	25	18	1,35
31 - 40	67	35	28	1,28
41 - 60	44	49	41	1,21
61 - 140	28	82	69	1,19
0 - 140	337	32	25	1,28

Abb. 2b: HRSW: Vergleich DIGITEL/CNF zu FH62-IN (FH mit Faktor 1,3)

Klasse µg/m³	Anzahl	Mittel DIG	Mittel FH	U _a µg/m³	U _{rel} %
		µg/m³	µg/m³		%
0 - 20	103	16	14	3,2	20,8
21 - 30	95	25	24	3,9	15,6
31 - 40	67	35	36	4,1	11,7
41 - 60	44	49	53	5,1	10,4
61 - 140	28	82	90	7,1	8,6
0 - 140	337	32	33	4,3	13,4
40 - 140	78	60	65	5,7	9,5

Klasse: Konzentrationsklasse Feinstaub

Anzahl: Anzahl zeitgleicher Tagesmittelwerte Digitel und FH62-IN

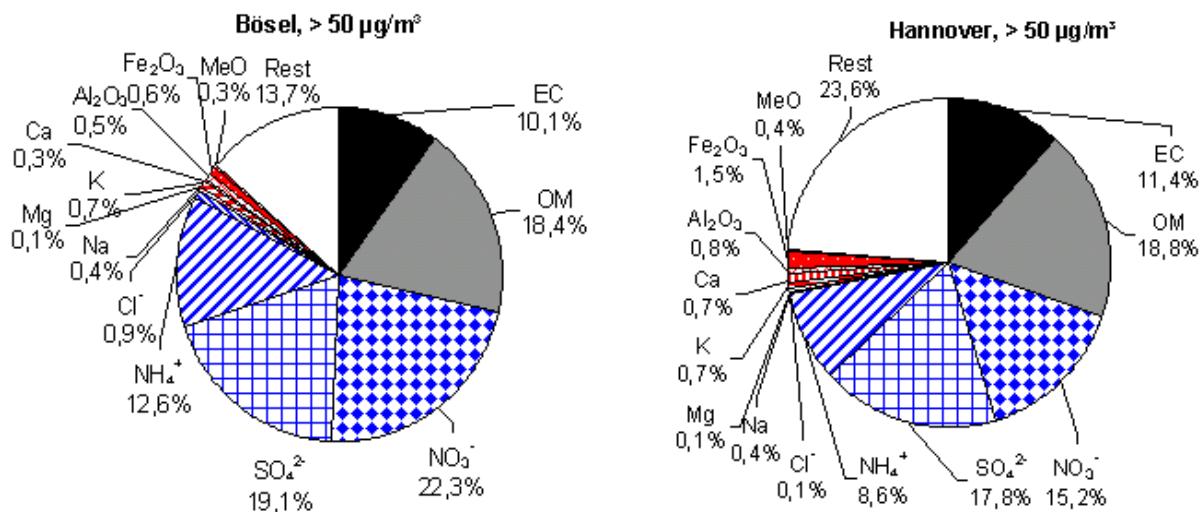
Mittel DIG: Mittelwert der Tagesmittelwerte Digitel in der Konzentrationsklasse

Mittel FH: Mittelwert der Tagesmittelwerte FH62 in der Konzentrationsklasse

Faktor: Mittel DIG / Mittel FH

U_a: absolute Messunsicherheit

U_{rel}: relative Messunsicherheit



FILTER Mittlere PM10- Belastung	BLWW			HRSW		
	Überregio. Belastung	Regionale Belastung	JMW	Überregio. Belastung	Regionale Belastung	JMW
	µg/m³	µg/m³	µg/m³	µg/m³	µg/m³	µg/m³
PM10	35,1 89,6 %	4,1 10,4 %	39 100 %	35,1 85,7 %	5,9 14,4 %	41 100 %
NO ₃	3,7	2,3		3,7		
NH ₄	2,4	1,0		2,4		
SO ₄	7,1	0,0		7,1		
Cl	0,2	0,8		0,2		
EC	3,1			3,1	0,7	
OM	8,6			8,6	1,2	
Fe	0,4			0,4	0,6	
Al,Na,K,Mg,Ca	1,8			1,8	0,3	
Rest	8,0			8,0	3,1	

Abb. 3: Chemische Zusammensetzung des Feinstaubes in Bösel und Hannover

B.7 Feinstaubbelastung PM10 in der Straßenschlucht der Göttinger Straße in Hannover

W. Bächlin, K.-P. Giesen, B. Heits, W.J. Müller
(Ingenieurbüro Lohmeyer, NLÖ)

Feinstaubbelastung PM10 in der Straßenschlucht der Göttinger Straße in Hannover

W. Bächlin¹; K.-P. Giesen²; B. Heits²; W.J. Müller²

¹Ingenieurbüro Lohmeyer GmbH & Co. KG

²Niedersächsisches Landesamt für Ökologie NLÖ

1 EINLEITUNG

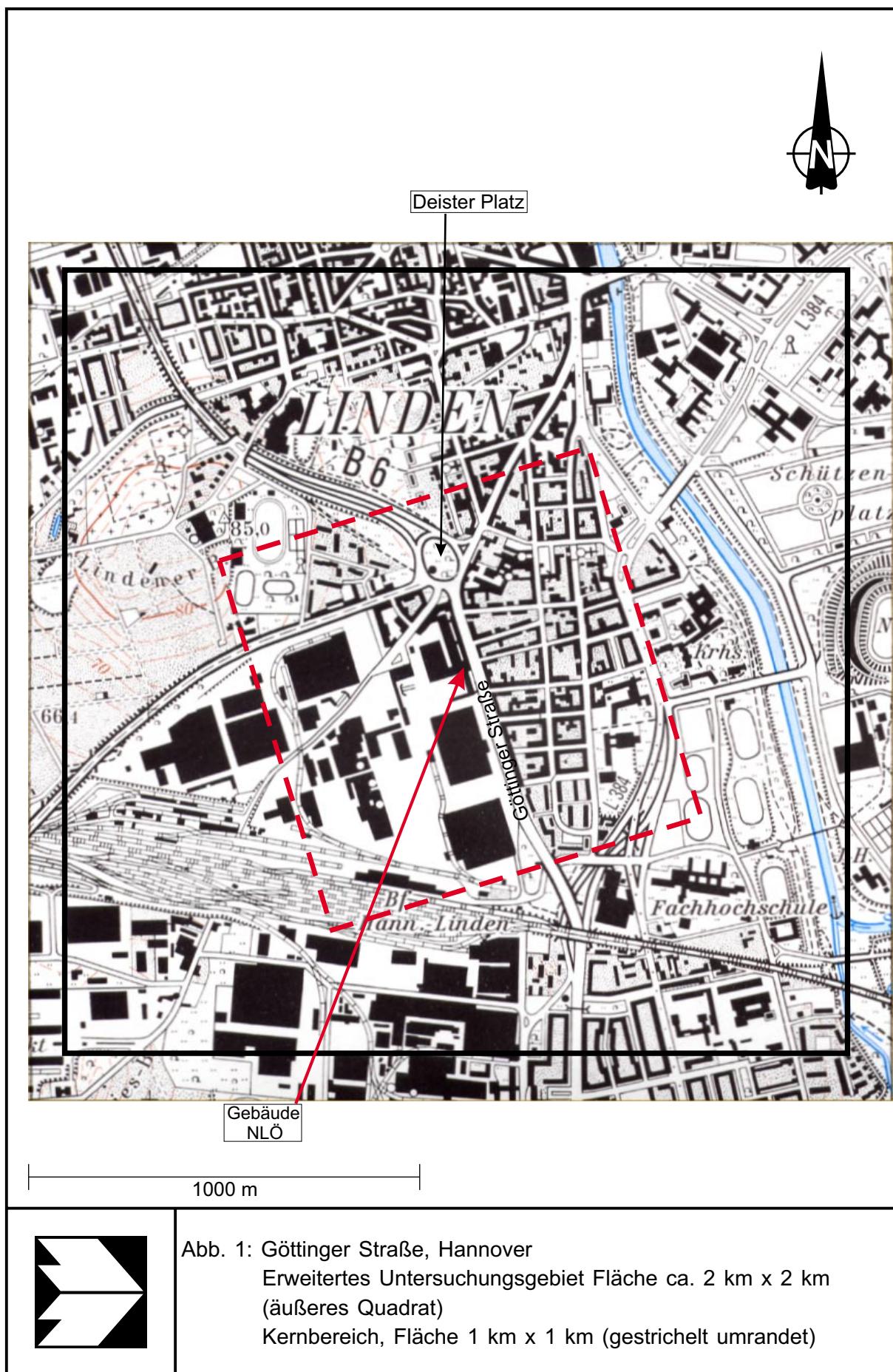
In der Göttinger Straße in Hannover werden derzeit die zulässigen Grenzwerte für PM10 deutlich überschritten. Es ist davon auszugehen, dass - ohne Minderungsmaßnahmen – auch 2005 und später Grenzwertüberschreitungen zum Schutz der menschlichen Gesundheit zu erwarten sind. Zur Vorbereitung von damit notwendigen Maßnahmeplänen nach EU Richtlinie ist es erforderlich, die verursachenden Quellen und Prozesse für den Ursprung der Grenzwertüberschreitungen der Partikel PM10 detailliert zu ermitteln

Im Auftrag des Niedersächsischen Landesamtes für Ökologie (NLÖ) wurde eine Studie mit dem Ziel erstellt, die Entstehungsmechanismen der Feinstaubimmissionen im Straßenraum der Göttinger Straße in Hannover näher zu untersuchen und den Anteil des Verkehrs an den PM10-Gesamtmissionen im Straßenraum zu quantifizieren. Teilergebnisse aus diesem Projekt werden hier vorgestellt. Der Gesamtbericht (siehe Bächlin et al., 2003) steht im Internet unter <http://www.lohmeyer.de/Literatur> bzw. in Kürze unter www.nloe.de zur Verfügung und liegt auf CD vor. Sie kann beim NLÖ angefordert werden.

2 UNTERSUCHUNGSGEBIET UND ÖRTLICHE VERHÄLTNISSE

Das Untersuchungsgebiet liegt im Südwesten von Hannover im Stadtteil Linden. Das Areal wird westlich der Göttinger Straße geprägt durch frühere Industriegebäude, die in den letzten Jahren zurück gebaut wurden. Es haben sich Baumärkte und Speditionen mit großen Frei- und Parkplatzflächen angesiedelt. Der östliche Teil der Göttinger Straße ist geprägt durch städtische 4-6 stöckige Bebauung.

Auf dem Dach des Gebäudes des NLÖ in der Göttinger Straße in einer Höhe von ca. 35 m befindet sich die Messstation HRSW des Lüfthygienischen Überwachungssystems Niedersachsen (LÜN). Hier werden kontinuierlich meteorologische Parameter, u. a. Windrichtung und Windgeschwindigkeit sowie die Feinstaubkonzentration PM10 und gasförmige Schadstoffkomponenten in Überdachhöhe erfasst. HRSW kann als eine Messstation charakterisiert werden, die den allgemeinen städtischen Hintergrund repräsentiert. Im direkt angrenzenden Straßenraum und in der näheren Umgebung befinden sich weitere Messstationen, die als Verkehrsstationen zu charakterisieren sind (siehe Abb. 1).



Die Göttinger Straße ist eine stark befahrene 4-spurige Ein-/Ausfallstraße in Hannover. In der Straße sind vor dem Gebäude des NLÖ Induktionsschleifen in allen vier Fahrspuren eingelassen. Die Induktionsschleifen registrieren die passierenden Fahrzeuge.

Die großräumigen Windverhältnisse im Untersuchungsgebiet sind geprägt durch einen hohen prozentualen Anteil von Anströmungen aus einem westlichen bis nordwestlichen Sektor mit häufig hohen Windgeschwindigkeiten. Windrichtungen aus Ost werden hingegen dominiert von niedrigeren Windgeschwindigkeiten. Die mittlere Windgeschwindigkeit in Überdachhöhe für den Zeitraum von Januar 2002 bis Dezember 2002 beträgt 3.8 m/s.

3 VORGEHENSWEISE UND METHODEN

Bei der Bearbeitung der Fragestellung wurden verschiedene Methoden angewandt. Einerseits wurden umfangreiche Messungen der PM10-Belastung an der Überdachstation (HRSW) und den Straßenmessstationen vorgenommen und ergänzt durch Messungen der Partikelanzahlverteilung sowie Analysen der Inhaltsstoffe. Andererseits wurden Simulationen durchgeführt in Form der Modellierung der PM10-Emission mit anschließender Ausbreitungsmodellierung. Ergänzend erfolgten Betrachtungen anhand einer Rezeptormodellierung. Der vorliegende Beitrag beschränkt sich auf die Darstellung der Emissionsmodellierung, wobei hier die Staubbeladung der Göttinger Straße näher betrachtet wurde, und die Ergebnisse der Ausbreitungsmodellierung.

3.1 Emissionsmodellierung

Die PM_x-Emissionen in einer verkehrsreichen Straßenschlucht setzen sich zusammen aus den direkten Auspuffabgasen, der Aufwirbelung des Straßenstaubes (z. B. Abrieb von Straßen-, Brems-, Kupplungsbelag sowie Reifenabrieb) sowie aus den Beiträgen, die von außen in den Straßenraum eingetragen werden (siehe Lohmeyer und Düring, 2001). Der derzeit verwendete Ansatz für die kfz-bedingte PM10-Emissionsmodellierung lautet:

$$E_{PM10} = a \cdot k \cdot sL^{0.52} \cdot W^{2.14} \cdot (1 - 0.5 r) \quad (1)$$

E = Emissionsfaktor [g/(km Fzg)]

a = Korrekturfaktor [g/(km Fzg)]

k = Basisemissionsfaktor der EPA = 0.18 g/km

sL = PM75-Fraktion der Staubbeladung (0.2 g/m²)

W = mittleres Gewicht der Fahrzeugflotte

r = Anteil der Regentage

W (PKW) = 1.1 t W (INfz) = 1.9 t W (sNfz) = 9 t

PKW-Ant. = 80.4 % INfz-Ant. = 11.6 % sNfz-Ant. = 8 %

Der in Gl. 1 verwendete Parameter sL stellt die PM75-Fraktion der Staubbefallung der Straße dar. Dieser Parameter wurde am Beispiel der Göttinger Straße näher untersucht.

3.2 Ergänzende Messungen - Straßenabsaugungen

Zur Ermittlung des verfügbaren Staubbefalles wurden an insgesamt vier Terminen Straßenabsaugungen vorgenommen und daraus die PM75- und PM10-Anteile sowie die Inhaltsstoffe bestimmt. Die Emissionsanteile aus den Auspuffabgasen können über eine Emissionsmodellierung auf der Basis vorhandener Verkehrszahlen und entsprechender Emissionsfaktoren (UBA, 1999) beschrieben werden.

Die Straßenabsaugungen lieferten für die Göttinger Straße im Vergleich zu anderen Untersuchungen hohe Staubbefallungswerte. Obgleich es sich hier um einen neuwertigen (Fertigstellung 1999) Straßenbelag handelt, ergaben sich ähnlich hohe Werte wie für Straßen mit beschädigten Oberflächen. In **Abb. 2** sind die Staubbefallungen PM75 der abgesaugten Straßenoberflächen nach dem derzeitigen Emissionsansatz für die Göttinger Straße (0.2 g/m^2) im Vergleich zu den Messergebnissen aus Hannover, Berlin und Leipzig dargestellt. In Leipzig handelte es sich dabei um eine vergleichsweise alte, teils beschädigte und ausgeflickte Straßenoberfläche.

Die hohen Beladungen in der Göttinger Straße können teilweise auf die vergleichsweise hohen LKW-Anteile zurückzuführen sein, die für einen stärkeren Abrieb der Straßenoberfläche sorgen. Allerdings sind die LKW-Anteile nicht so hoch, dass hiermit die hohen Werte alleine begründbar wären. Ergänzend zu den Straßenflächen wurden auch die seitlichen Rinnen abgesaugt. Hier waren die PM10-Beladungen bis um den Faktor 100 höher als auf den Straßenflächen.

Es ist davon auszugehen, dass sich der Straßenstaub aus verschiedenen Quellen zusammensetzt. Hierzu gehören das Straßenmaterial selbst, das infolge Abrieb sich an der Straßenoberfläche ablagert, Material aus dem Grünstreifen an der westlichen Straßenseite, sowie Anteile durch nahe Emissionsquellen (Verkehr – Fahrzeugabrieb (Bremsen, Katalysator, Reifen) und Auspuff; Materialabtrag von nahen Gebäuden), Verschleppung (durch verschmutzte Fahrzeuge) und der überregionale Eintrag. Die Fraktionen PM10 und PM75-10 des abgesaugten Straßenstaubs wurden hinsichtlich der Zusammensetzung ihrer Elemente mittels Röntgenfluoreszenzanalyse RFA analysiert. Neben den Absaugungen wurden auch mehrere Straßenmaterialproben sowie eine Probe aus dem seitlichen Grünstreifen entnommen und analysiert.

Die Straßenstaubinhaltsstoffe zeigen zum Teil untereinander ähnliche Verhältnisse wie das Straßenmaterial selbst. Die Inhaltsstoffe des Erdmaterials schlagen weniger durch.

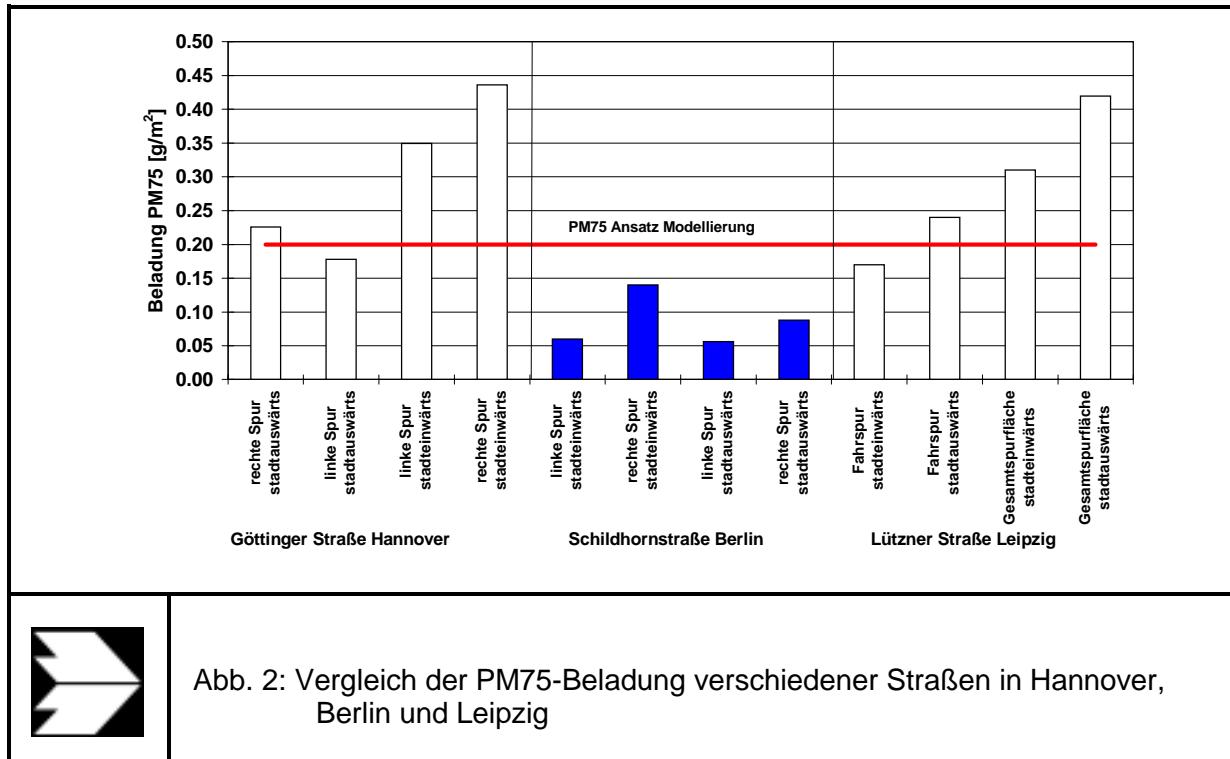


Abb. 2: Vergleich der PM75-Beladung verschiedener Straßen in Hannover, Berlin und Leipzig

3.3 Ausbreitungsmodellierung

Für die Ausbreitungsmodellierung wurde die Göttinger Straße und die nähere Umgebung detailliert mit einem numerischen Strömungs- und Ausbreitungsmodell abgebildet. Im Kernbereich des Untersuchungsgebietes von ca. 1000 m x 1000 m erfolgte die detaillierte Berücksichtigung der Bebauung, für die Simulation wurde das Modell MISKAM eingesetzt. Im äußeren Bereich mit ca. 2000 m x 2000 m wurden die wesentlichen Straßenemissionen detailliert modelliert und daraus mit dem Modell PROKAS die Einflüsse dieser Straßen auf den Kernbereich berücksichtigt. Überlagert wurde diesen Berechnungen die großräumige Vorbelastung, die aus den gemessenen Werten an der Überdachstation HRSW ermittelt wurde.

Die PM10-Emissionen wurden mit dem in Gl. (1) gezeigten Emissionsansatz bestimmt und mit Hilfe des Ausbreitungsmodells die Immissionen berechnet. Im Kernbereich des für die Ausbreitungsmodellierung berücksichtigten Gebietes wurden die einzelnen Gebäude detailliert berücksichtigt. **Abb. 3** zeigt eine perspektivische Darstellung aller im Modell berücksichtigten Gebäude.

Die Strömungsfelder im Untersuchungsgebiet für die verschiedenen Anströmrichtungen wurden für die Rechengitterboxen berechnet und mit den punktuellen Messungen in Natur im Straßenraum verglichen. Die Ausbreitungsrechnungen wurden für den Monat April 2002 und für den Zeitraum Januar-August 2002 durchgeführt. Da die PM10-Emissionsmodellierung angesichts vieler Einflussfaktoren verglichen mit den Emissionsmodellierungsansätzen für andere Schadstoffe eher als weniger belastbar angesehen wird, erfolgten die Ausbreitungs-

rechnungen sowohl für PM10 als auch für den bzgl. der Emissionsmodellierung als belastbarer angenommene Schadstoff NO_x. Für beide Stoffe wurden Ausbreitungsrechnungen durchgeführt. Die Ergebnisse dieser Berechnungen sind für beide Schadstoffe jeweils für die beiden Betrachtungszeiträume April 2002 bzw. Januar bis August 2002 und für alle Messstellen im Straßenraum auf den gemessenen Immissionswert normiert in **Abb. 4** dargestellt. Während sich für NO_x kleine Abweichungen ergaben und eher eine leichte Unterschätzung vorliegt, ergaben sich für PM10 durchweg Überschätzungen bis zu 45 %. Dies weist darauf hin, dass die PM10-Emissionsmodellierung in der vorliegenden Form die tatsächlichen Werte eher überschätzt.

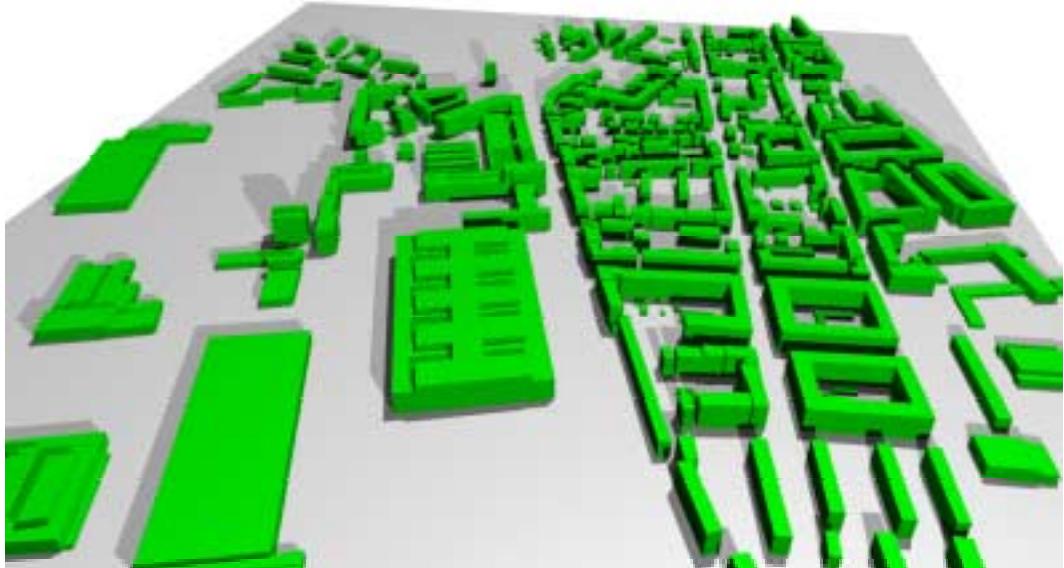
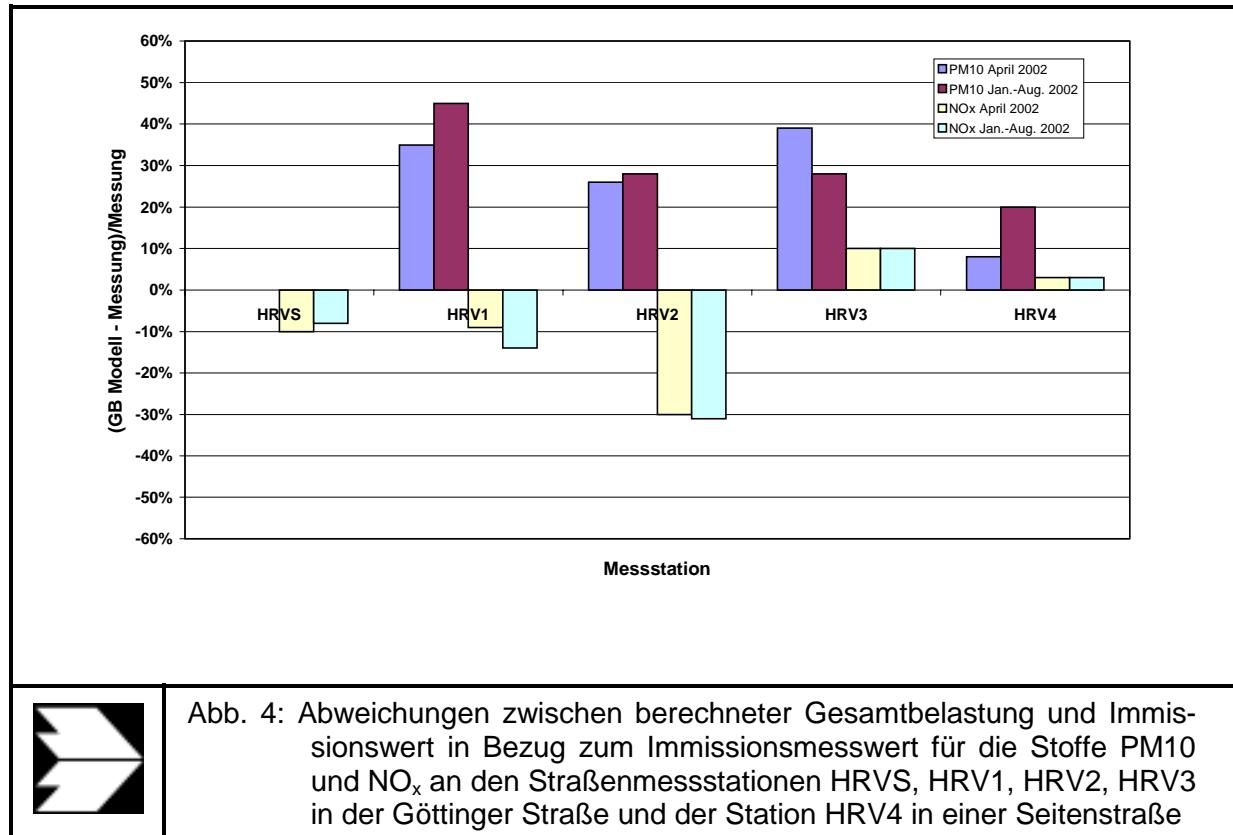


Abb. 3: Perspektivische Darstellung der Bebauung im Untersuchungsgebiet mit Blick nach Norden



3.4 Sensitivitätsanalyse

Aus der Sensitivitätsbetrachtung der einzelnen Parameter aufgrund des Emissionsmodellierungsansatzes aus Gl. (1) lässt sich erkennen, dass insbesondere die Staubbeladung der Straße und vor allen Dingen der LKW-Anteil sowie die mittlere LKW-Masse sensitive Größen darstellen. Das heißt, kleine Änderungen in den Eingangsdaten dieser Parameter, bewirken große Änderungen im Ergebnis. Ein großes Problem stellt die Bestimmung der Staubbeladung dar, weil hier eine Messung durch Straßenabsaugung verglichen mit den Standardwerten sehr unterschiedliche Werte liefern kann. Bei der Absaugung selbst wurde ausdrücklich Wert auf ein weitgehend vergleichbares Verfahren gelegt. Weniger ins Gewicht fällt der Anteil der Regentage sowie die mittlere Masse leichter Nutzfahrzeuge. Die LKW-Anteile und die mittlere LKW-Masse zeigen den größten Einfluss und sind deshalb möglichst exakt zu erfassen.

Sowohl die EPA-Formel als auch die innerhalb dieser Studie genutzte korrigierte EPA-Formel berücksichtigen nicht die Abhängigkeit der PM10-Emission von der Fahrzeuggeschwindigkeit. Es ist jedoch zu erwarten, dass es bei Fahrzeugen mit größerer Fahrgeschwindigkeit zu einer stärkeren Emission in Form von aufgewirbelter Staubbeladung kommt als bei Fahrzeugen mit geringerer Fahrgeschwindigkeit. Es erscheint notwendig, dass bei einer Überarbeitung der EPA-Formel auch die mittlere Fahrgeschwindigkeit berücksichtigt

wird, um bei der Fragestellung nach Emissionsminderungsmaßnahmen auch auf die Sensitivität der PM10-Emission auf die Fahrgeschwindigkeit eingehen zu können.

4 MASSNAHMEN

Aufbauend auf den zuvor ausgeführten Betrachtungen wurde eine Ursachenanalyse durchgeführt und diskutiert. Diese liefert die Grundlagen zur Erstellung eines Maßnahmenplanes zur Reduzierung der PM10-Immissionen im Bereich der Göttinger Straße als typisches Beispiel für ein städtisches Quartier. Als wesentliche Emissionseinflüsse ergaben sich:

- Verkehrsaufkommen
- Fahrweise der Fahrzeuge
- Zusammensetzung der Fahrzeugflotte
- auspuffbedingte Emissionsfaktoren sowie
- nicht auspuffbedingte Emissionsfaktoren

In der Studie von Bächlin et al. (2003) wurden allgemeine Minderungsmaßnahmen zu vorgenannten Themenfeldern diskutiert, unterschieden nach den Quellterminen auspuffbedingte Emissionen und nichtauspuffbedingte Emissionen. Dabei wurde für beide Terme jeweils unterschieden zwischen zukünftigen Verringerungen der Emissionsfaktoren entsprechend dem Stand der Technik aus heutiger Sicht und darüber hinaus gehende Maßnahmen. Diese Minderungsmaßnahmen wurden diskutiert und für eine Anwendung in der Göttinger Straße beurteilt. Es gibt bzgl. der Quantifizierung der Wirkungen solcher Minderungsmaßnahmen bisher aber kaum belastbare Informationen.

Als erfolgversprechende Maßnahmen, anlehnd an den LAI-Bericht „Maßnahmenplanung“ (LAI, 2001), ergaben sich für die Göttinger Straße die Einführung von Verkehrsleit- oder Managementsystemen bzw. gebietsbezogene Verkehrsverbote und –beschränkungen. Die Verstetigung des Verkehrsflusses auch in Zusammenhang mit Geschwindigkeitsbeschränkungen wurde andiskutiert, die Auswirkungen können aber derzeit in diesem Projekt nicht quantifiziert werden.

5 FAZIT

Zusammenfassend können aufgrund der durchgeführten Untersuchung und basierend auf den im Untersuchungszeitraum erfassten Messergebnissen für die Göttinger Straße folgende Aussagen getroffen werden:

- Die PM10-Immissionen in der Göttinger Straße werden mit einem Anteil von 30 – 40 % durch den Verkehr in der Göttinger Straße verursacht. Dies konnte sowohl mit den Ausbreitungsrechnungen als auch mit der Rezeptormodellierung ermittelt werden. Der großräumige Hintergrund liefert einen Beitrag von ca. 45 – 55 %, der lokale Anteil aus dem Raum Hannover liegt bei ca. 15 %.
- Die PM10-Verkehrsemissionen resultieren zu ca. 20 % aus den Auspuffabgasen und zu ca. 80 % aus Kfz-bedingtem Abrieb, Verschleppung und dem aufgewirbelten Straßenstaub (siehe **Abb. 5**).
- Der Straßenstaub wiederum resultiert zu max. 2/3 aus Straßenabrieb. Ein Minimalwert konnte hierfür nicht angegeben werden. Der Rest ist bedingt durch Reifen-, Kupplungs- und Bremsabrieb der durchfahrenden Fahrzeuge sowie durch sonstige Verschmutzungen (Schmutz durch Reifen, Abwehung von Ladungen etc.). Die hohen Anteile der LKW am Verkehr liefern einen wesentlichen Beitrag zu den hohen PM10-Immissionswerten. Andere dominante Quellen außer dem Verkehr konnten nicht ausgemacht werden.

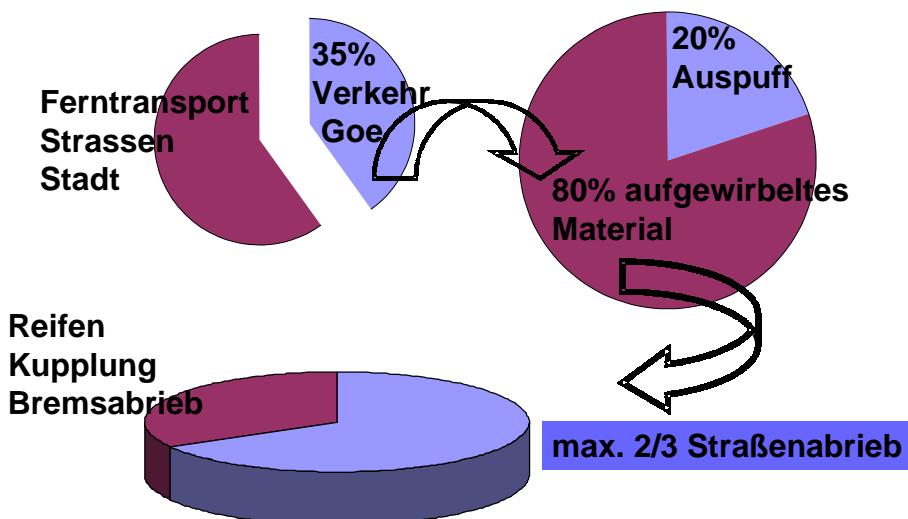


Abb. 5: Anteile der PM10 Herkunft in der Göttinger Straße

6 LITERATUR

Bächlin, W., Frantz, H., Lohmeyer, A., Dreiseidler, A., Baumbach, G., Theurer, W., Heits, B., Müller, W.J., Giesen, K.-P. (2003): Feinstaub und Schadgasbelastungen in der Göttinger Straße, Hannover.

LAI (2001): Maßnahmenkatalog für Aktions- und Maßnahmepläne. Erstellt von dem Ad hoc-AK „Maßnahmenplanung“ des LAI, Bericht vom 2.10.2001.

Lohmeyer, A., Düring, I. (2001): Validierung von PM10-Immissionsberechnung im Nahbereich von Straßen und Quantifizierung der Feinstaubausbildung von Straßen. Auftraggeber: Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Umweltschutz und Technologie, Berlin und Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Dresden. Bericht des Ing.-Büro Lohmeyer, Karlsruhe und Dresden, Juni 2001. Herunterladbar unter www.Lohmeyer.de/literatur.htm.

B.8 Submikrone Partikel und PMx an einem Hot Spot: Stadtautobahn Berlin

D. Bake (UBA)

Submikrone Partikel und PMx an einem Hot Spot: Stadtautobahn Berlin

Dieter Bake, Umweltbundesamt Berlin

(IUTA, Workshop PMx-Quellenidentifizierung, Duisburg 2004)

Die Messstelle des Umweltbundesamtes an der Stadtautobahn Berlin ist seit 1996 in Betrieb. Sie gehört aber nicht zum Messnetz des Umweltbundesamtes, sondern wird für Vergleichsmessungen im Hinblick auf eine Standardisierung genutzt. Hier wurden u.a. die CEN-Vergleichsmessungen für PM_{2,5} durchgeführt. Seit 2001 werden Untersuchungen über ultrafeine Partikel (UFP) mit Hilfe eines „Scanning Mobility Particle Sizer“ (SMPS) vorgenommen. Die Abb. 1 gibt nähere Hinweise über die Messstelle. Ihre Lage westlich der Stadtautobahn ist wohl nicht ideal unter Berücksichtigung der üblichen Westwinde. Aber die mehrjährigen Messungen der Windrichtung an der Messstelle selbst zeigen häufige NNW- bzw. SO-Winde.

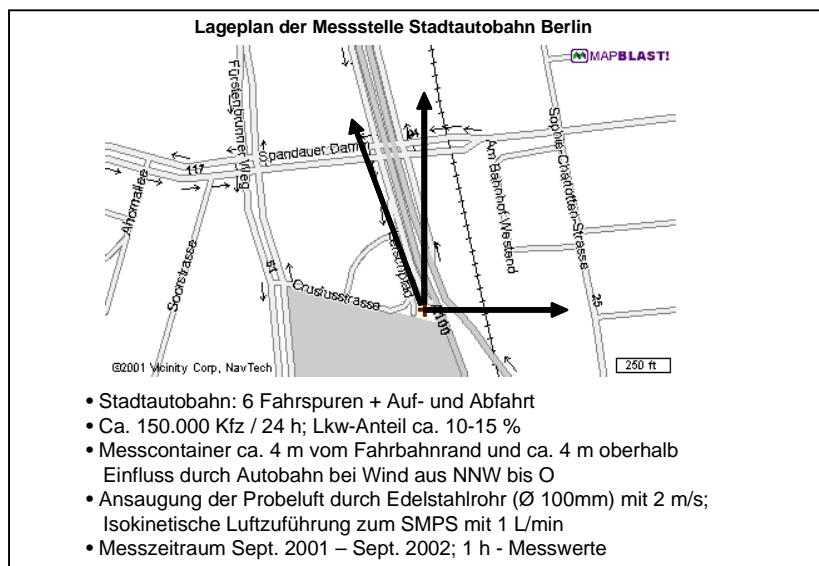


Abb. 1: Lageplan und Beschreibung der Messstelle an der Stadtautobahn Berlin

Die starke Abhängigkeit der Partikelanzahlkonzentrationen von der Windrichtung verdeutlichen Abb. 2 und Abb. 3.

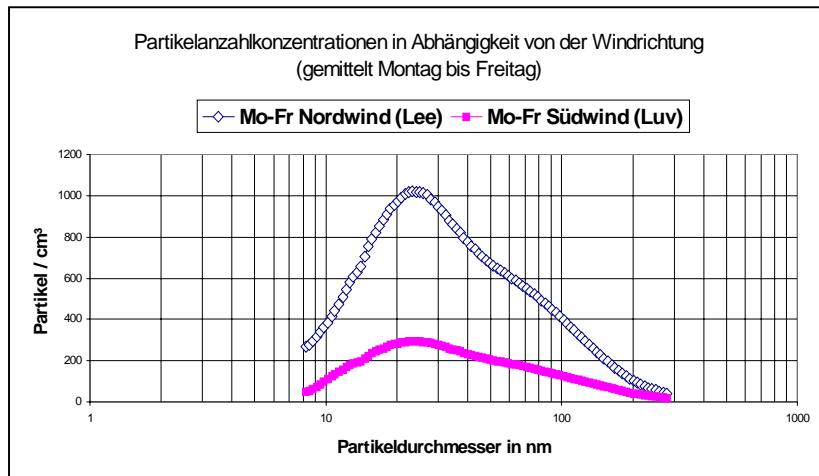


Abb. 2: Einfluss der Windrichtung auf die Konzentration der UFP

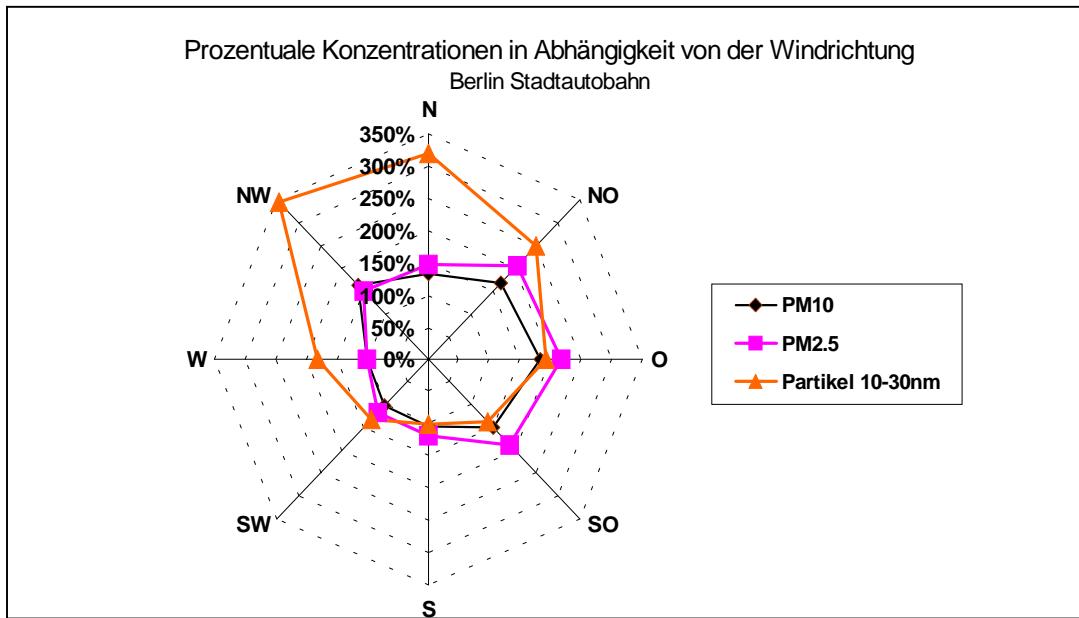


Abb. 3: Windrichtungsabhängigkeit von UFP (10-30nm), PM₁₀ und PM_{2,5}

In Abb. 3 ist erkennbar, dass ultrafeine Partikel (hier nur dargestellt der Größenbereich von 10-30 nm, in dem die höchsten Partikelanzahlen auftreten) stärker von der Verkehrsquelle beeinflusst werden als PM₁₀ und PM_{2,5}.

Die Abb. 4 zeigt den typischen Tagesgang der Partikelanzahlkonzentration (gemittelt aus allen 1h-Werten) bezogen auf 0 Uhr. Der Anstieg zwischen 4 und 8 Uhr geht wohl parallel mit dem zunehmenden Kfz-Verkehr (morgendliche „rush-hour“). Zwischen 16 und 20 Uhr zeigt die Kurve einen Sattel (abendliche „rush-hour“).

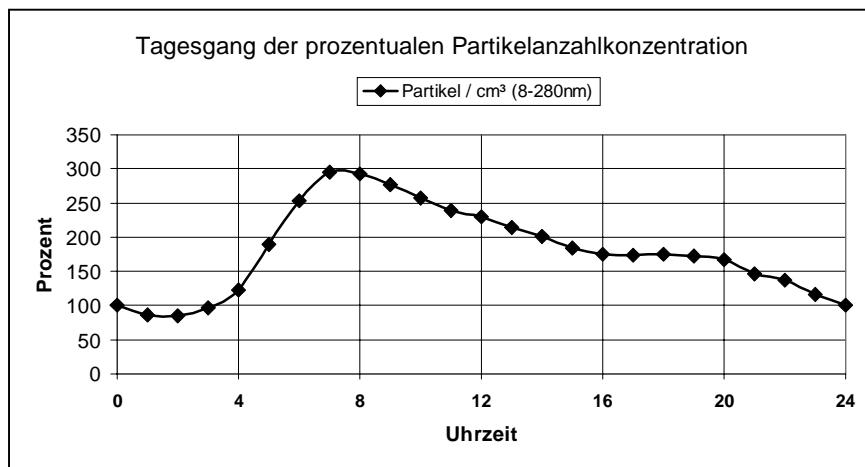


Abb. 4: Tagesgang der Partikelanzahlkonzentration (bezogen auf 0 Uhr = 100 %)

So wie der Tagesgang vom Kfz-Verkehr beeinflusst wird, so ist auch beim Wochengang dessen Einfluss erkennbar. Die Abb. 5 stellt die nach Größenklassen aufgeteilten Partikelanzahlkonzentrationen dar, und zwar relativ bezogen auf die gemittelten Ergebnisse der Sonntage, weil an diesem Wochentag die geringsten Konzentrationen gemessen wurden.

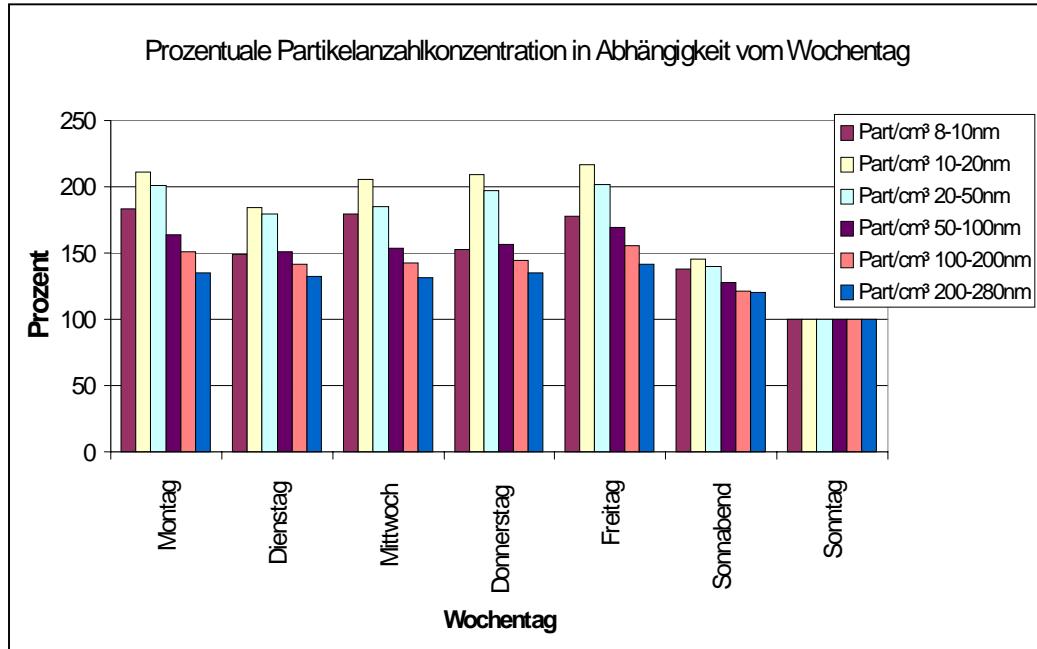


Abb. 5: Wochengang der relativen Partikelanzahlkonzentrationen unterteilt in Größenklassen (bezogen auf Sonntag = 100 %)

Alle Partikelgrößen haben von Montag bis Sonnabend höhere Konzentrationswerte gegenüber Sonntag, aber besonders die Partikel von 10-50 nm zeigen von Montag bis Freitag einen hohen Anstieg bis über 200 % gegenüber Sonntag. Aus den Abb. 4 und 5 lässt sich also der Schluss ziehen, dass der Kfz-Verkehr die Hauptquelle für ultrafeine Partikel ist. Die absoluten Partikelanzahlkonzentrationen in Partikel/cm³ als 1h-Mittelwerte zeigt die Tab. 1. Der gemessene Partikelgrößenbereich umfasste Partikel von 8 – 280 nm.

Anzahl der 1h-Werte	Arithmetischer Mittelwert Partikel/cm ³	Median Partikel/cm ³	98%-Wert Partikel/cm ³	Maximal-Wert Partikel/cm ³
7164	29.000	20.000	111.000	258.000

Tab. 1: Ergebnisse der Partikelanzahlkonzentrationen an der Stadtautobahn Berlin

Wie schon erwähnt wurden bzw. werden regelmäßig, wenn auch in verschiedener Intensität, an der Messstelle PM₁₀- und PM_{2,5}-Messungen vorgenommen. Während der einjährigen Messperiode für die Partikel ergaben sich insgesamt 98 parallele 24 h-Messungen. Die 1h-Werte der Partikelanzahlkonzentrationen wurden entsprechend zu 24h-Werten zusammen gefasst. Die PM₁₀- bzw. PM_{2,5}-Messungen wurden als manuelle gravimetrische Probenahmen durchgeführt und fanden deshalb auch nur jeweils von Montag bis Freitag statt. Somit sind diese Vergleiche nur repräsentativ für diese Wochentage.

Dargestellt sind in der Abb. 6 die Minimum-, Maximum- und einzelne Perzentilwerte. Die linke Ordinate gibt die Massenkonzentrationen in µg/m³ für PM₁₀, PM_{2,5} und Partikelmassen-

konzentration an, die rechte die Partikelanzahlkonzentration in 10^3 Partikel/cm 3 . Die Umrechnung der Partikelanzahlkonzentrationen in Partikelmassenkonzentrationen erfolgte grösstenteils unter der Annahme kugelförmiger Partikel und einer Partikeldichte von 1,5 g/cm 3 .

Auffallend ist in Abb. 6 der fast gleichartige Verlauf aller vier Messgrößen. Zumindest beim Median (0,5 Perzentil) zeigt sich, dass die PM_{2,5}-Konzentration zur Hälfte von der Partikelmassenkonzentration (Partikel von 8-280 nm) bestimmt wird. Des weiteren kann man beim Median erkennen, dass in etwa 20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ PM_{2,5} einer Partikelanzahlkonzentration von 20.000 Partikeln/cm 3 entsprechen.

Die zusätzlich angegebenen Korrelationskoeffizienten zwischen PM-Werten und Partikelanzahl bzw. -masse sind alle größer als 0,5, was auf eine funktionale Abhängigkeit schließen lässt.

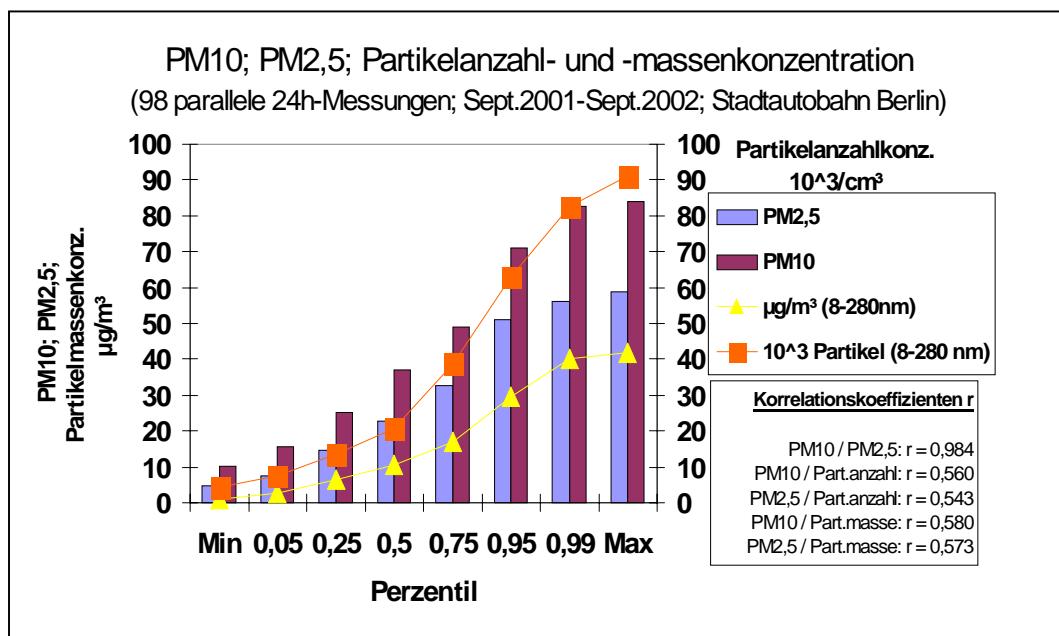


Abb. 6: Vergleich von parallelen PM- und Partikelmessungen

Die Quellenidentifizierung ist also bei den ultrafeinen Partikeln anscheinend eindeutig. Unter der Annahme, dass die Quelle, hier also der Kfz-Verkehr, als einziger Emittent für ultrafeine Partikel anzusehen ist und somit immer gleiche Immissionssituationen auftreten hinsichtlich der Partikelgrößenverteilung, müssten die Partikelanzahlkonzentration und die Partikelmassenkonzentration einen parallelen Verlauf zeigen, da dann immer gleiche Umrechnungsbedingungen gegeben sind.

Die Abb. 7 zeigt nun aber, dass im zeitlichen Verlauf (Monatsmittelwerte) zwischen Anzahl- und Massenkonzentration Unterschiede auftreten können. Demnach muss noch eine weitere Partikelspezies mit einer anderen Größenverteilung auftreten. Der dargestellte zeitliche Verlauf über die Monate lässt den Schluss zu, dass in der Vegetationsperiode zusätzliche Partikel auftreten, die somit die vom Kfz-Verkehr beeinflusste Partikelgrößenverteilung verändern und die Partikelmassenkonzentrationen anwachsen lassen. Durch die Betrachtung der einzelnen Partikelgrößenklassen konnte festgestellt werden, dass hauptsächlich Partikel in der Größe von 20-100 nm an diesem Effekt beteiligt sind.

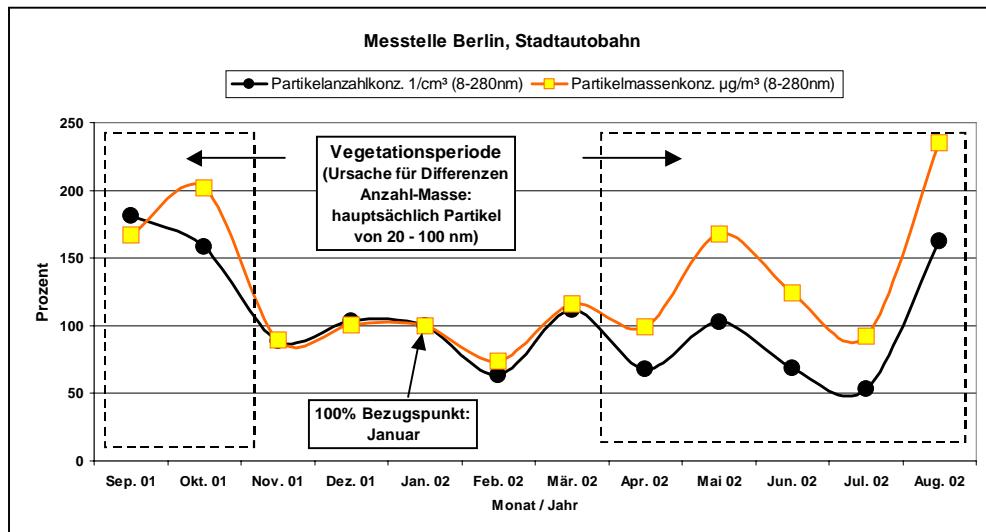


Abb. 7: Vergleich zwischen Partikelanzahl- und Partikelmassenkonzentration

Zusammenfassung

In einer einjährigen Messreihe wurden an der Messstelle Stadtautobahn Berlin Untersuchungen über das Vorkommen von ultrafeinen Partikeln durchgeführt. Durch windrichtungsabhängige Betrachtungen und zeitliche Aufschlüsselung der Partikelanzahlkonzentrationen mit Hilfe von Tages- und Wochengängen lässt sich der Einfluss des Kfz-Verkehrs auf die Immisionssituation der ultrafeinen Partikeln belegen.

Der Vergleich zwischen Partikelanzahl- und -massenkonzentration gibt Hinweise darauf, dass sich Verschiebungen in der Partikelgrößenverteilung und damit der Partikelmassenkonzentration ergeben können durch Partikel, die nicht dem Kfz-Verkehr entstammen.

B.9 Quellenzuordnung anhand aktueller Immissions- und Emissionsdaten in Berlin

**A. John, T. Kuhlbusch, M. Lutz
(IUTA e. V., SenStadt Berlin)**

Quellenzuordnung anhand aktueller Immissions- und Emissionsdaten in Berlin

A. John, T. Kuhlbusch

(IUTA e.V., Duisburg)

und

M. Lutz

(Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Berlin)

Einleitung

Im Zeitraum vom 15/09/01 bis 15/09/02 wurden im Rahmen des Projektes "Ursachenanalyse von Feinstaub(PM10)-Immissionen in Berlin auf der Basis von Messungen der Staubinhaltsstoffe am Stadtrand, in der Innenstadt und in einer Straßenschlucht" an 4 Berliner Stationen Messungen der PM10 Massen- und Inhaltsstoffkonzentrationen durchgeführt. Die untersuchten Standorte waren Frankfurter Allee ("MC174"; Verkehr), Nansenstraße ("MC42", städt. Hintergrund), Marienfelde und Buch ("MC27" bzw. "MC77", Stadtrand). Später wurden noch die Berliner Station Frohnauer Turm ("FT", Höhe 324m über Grund, Hintergrund, ab 18/10/01) sowie die beiden Brandenburger Stationen Paulinenaue ("PA", regionaler Hintergrund, ab 04/01/02) und Hasenholz ("HH", regionaler Hintergrund, ab 08/02/02) ins Messprogramm aufgenommen. Zusätzlich standen über den gesamten Messzeitraum die PM10-Massenkonzentrationen der UBA-Stationen Waldhof und Neuglobsow ("WH" bzw. "NG", Hintergrund) zur Verfügung. Abbildung 1 zeigt die Lage der Messstandorte.

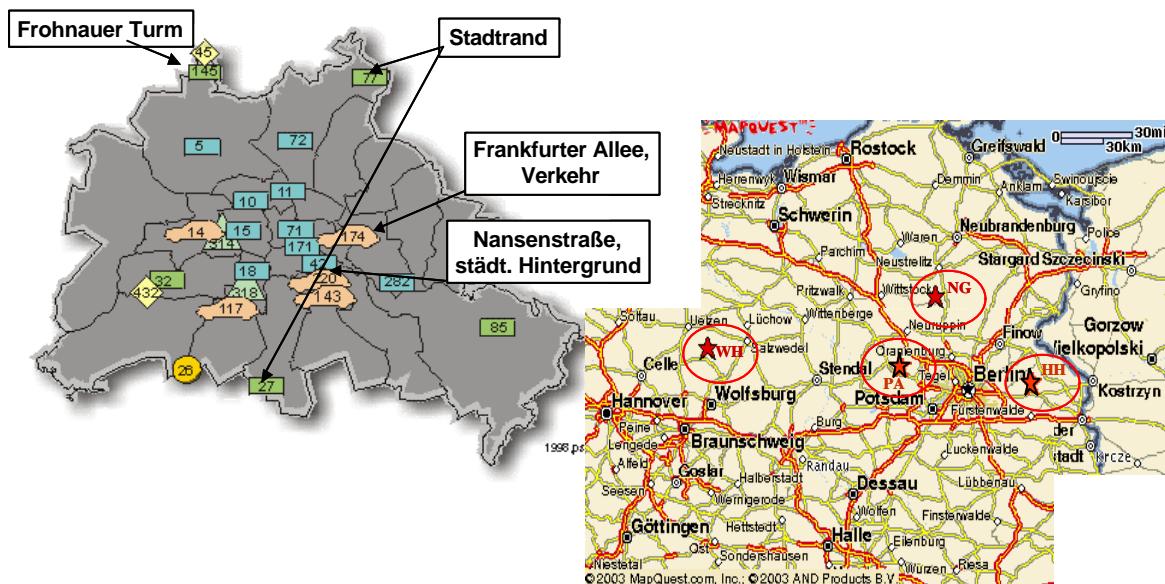


Abbildung 1: Lage der Messstandorte

PM10-Massenkonzentrationen

Die PM10-Massenkonzentrationsbestimmung erfolgte an allen genannten Stationen mit Hilfe der manuellen Filtriersammler Digitel DHA 80. Abbildung 2 zeigt die PM10-Mittelwerte im Messzeitraum 15/09/01-15/09/02 (FT erst ab 18/10/01, PA ab 04/01/02, HH ab 08/02/02) und die Anzahl an Überschreitungen des Tagesmittelwertes von 50 µg/m³ pro Jahr. An keiner der untersuchten Stationen wurde der Jahressgrenzwert von 40 µg/m³ überschritten. Mit 55 Überschreitungen des Tagesmittelwertes liegt die Verkehrsstation MC174 über den maximal erlaubten 35 Überschreitungen pro Jahr (gültig ab 2005).

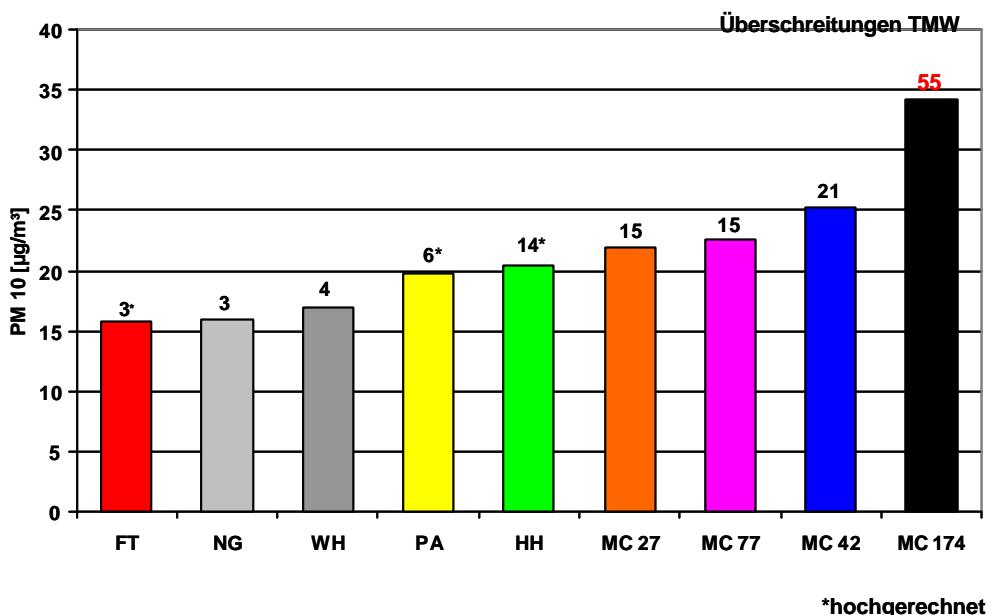


Abbildung 2: Mittelwerte PM10 und Anzahl der Tage > 50 µg/m³ / Jahr

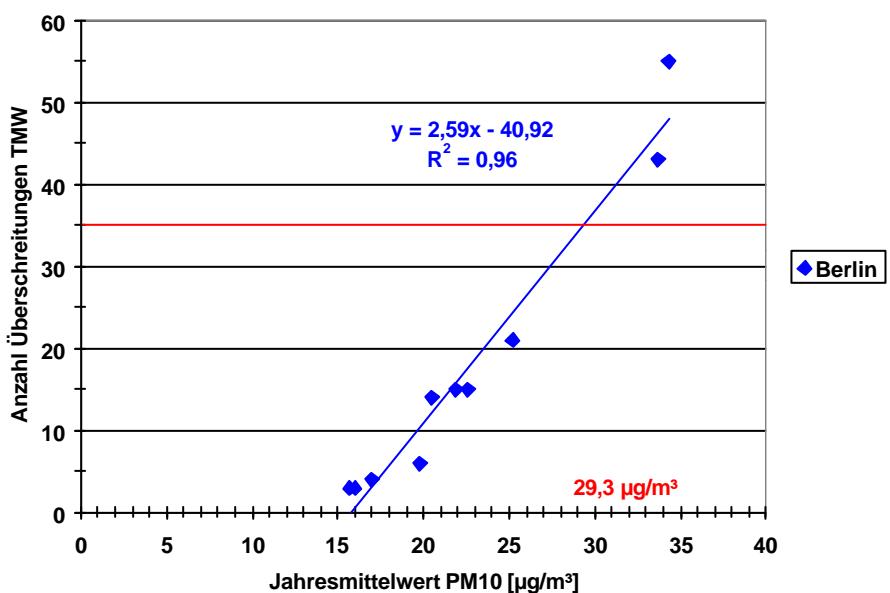


Abbildung 3: Zusammenhang zwischen Jahresmittelwert und Anzahl Überschreitungen Tagesmittelwert

Abbildung 3 zeigt den Zusammenhang zwischen dem Jahresmittelwert und der Anzahl an Überschreitungen des Tagesmittelwertes. Für die untersuchten Stationen ergibt sich, dass bei einem Jahresmittelwert von $29 \mu\text{g}/\text{m}^3$ mit 35 Überschreitungen des Tagesmittelwertes von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zu rechnen ist.

Windrichtungsanalysen

zeigt die Abhängigkeit zwischen Windrichtung und PM10-Massenkonzentration am Beispiel der städtischen Hintergrundstation MC42. Die linke Grafik (Tagesmittelwerte der Windrichtung) zeigt das Vorherrschen insbesondere von (Süd)West- und, weniger ausgeprägt, von Ostwinden. In der rechten Grafik sind die mittleren PM10-Konzentrationen für die 10° -Windrichtungssektoren dargestellt. In dieser Art der Darstellung sind alle Windrichtungen gleichermaßen gewichtet, so dass auch Messungen hoher Massenkonzentrationen aus nicht bevorzugten Windrichtungen zu erkennen sind. Hier zeigen sich die höchsten Konzentrationen bei Ost- und Südostwind. Diese Wetterlagen sind bedeutsam bezüglich Überschreitungen des Tagesgrenzwertes. Hinsichtlich des Beitrages zum Jahresmittelwert ist dagegen die Windrichtungsverteilung mit zu berücksichtigen. In der unteren Grafik ist daher die PM10-Konzentration mit der Windrichtungshäufigkeit gewichtet und normiert. Diese Windrose zeigt, dass im Jahresdurchschnitt Südwestwind- und Ostwind-Wetterlagen den größten Beitrag zur PM10-Immissionssituation liefern, mit geringeren Beiträgen bei Südostwind-Wetterlagen. Damit ergibt sich im Vergleich zur Windrichtungsverteilung eine deutlich stärkere Gewichtung der Ostwindwetterlagen hinsichtlich der PM10-Immissionsbelastung.

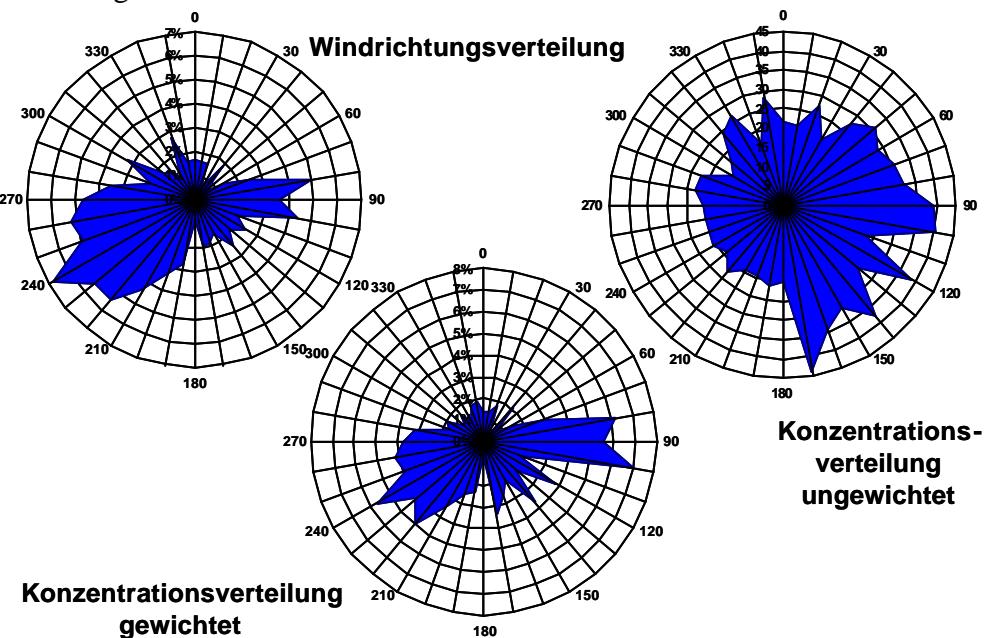


Abbildung 4: Abhängigkeit zwischen Windrichtung und PM10-Massenkonzentration (MC42)

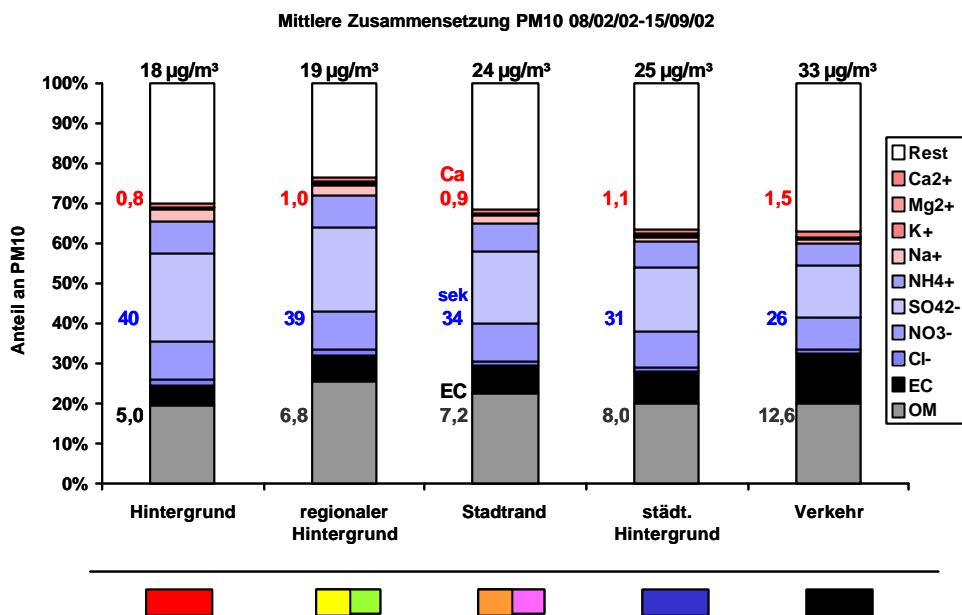


Abbildung 5: Mittlere chemische Zusammensetzung an den einzelnen Stationstypen

Abbildung 5 zeigt die mittlere chemische Zusammensetzung von PM10 für die einzelnen Stationstypen. Dabei wird deutlich, dass beispielsweise elementarer Kohlenstoff von 5 % im Hintergrundaerosol bis auf 13 % an der Verkehrsstation ansteigt, bei ebenfalls ansteigenden absoluten Konzentrationen. Bei Calcium als Erdkrustenbestandteil zeigt sich vom Hintergrund zur städtischen Station nur ein leichter Anstieg des prozentualen Anteils, an der Verkehrsstation dagegen wieder eine deutliche Zunahme. Auch der nicht analysierte Rest hat an städtischer und Verkehrsstation eine höhere Bedeutung als an den anderen Stationen. Die sekundären Inhaltsstoffe Nitrat, Sulfat und Ammonium nehmen zwar absolut auch zu, relativ gesehen nimmt ihr Anteil an PM10 dagegen vom Hintergrund zu den stärker anthropogen belasteten Stationen hin ab.

Vergleich unterschiedlicher PM10-Massenkonzentrationsbereiche

Zur Beantwortung der Frage, welche Inhaltsstoffe insbesondere zu hohen PM10-Massenkonzentrationen beitragen, wird die chemische Zusammensetzung unterschiedlicher Konzentrationsbereiche betrachtet. In Abbildung 6 a) ist zunächst die mittlere chemische Zusammensetzung (absolute Konzentrationen) für den gesamten Messzeitraum dargestellt. Anschließend sind die Daten in die Tage mit Massenkonzentrationen <30 µg/m³, 30-50 µg/m³ sowie >50 µg/m³ aufgeteilt. Abbildung 6 b) zeigt die mittlere Zusammensetzung (relativ) für den Konzentrationsbereich <30 µg/m³. Daneben ist die Zusammensetzung der Massenkonzentrationszuwächse von <30 nach 30-50 µg/m³ sowie von 30-50 nach >50 µg/m³ dargestellt. Gleiche Anteile der Inhaltsstoffe bedeuten dabei einen proportionalen

Massenkonzentrationszuwachs, höhere Anteile einen überproportionalen Zuwachs. Der Vergleich der niedrigen Massenkonzentrationen mit dem Anstieg nach mittleren Konzentrationen zeigt ein relativ proportionales Wachstum der Inhaltsstoffe, mit Ausnahme der Seesalzkomponenten Natrium, Magnesium und Chlorid, deren Konzentrationen sogar abnehmen. Deutlich unterschiedlich ist der Übergang zu hohen Massenkonzentrationen, der durch die Zunahme der sekundären Inhaltsstoffe Nitrat, Sulfat und Ammonium gekennzeichnet ist, bei einer relativen Abnahme der Kohlenstofffraktionen EC und OM sowie des nicht analysierten Restes.

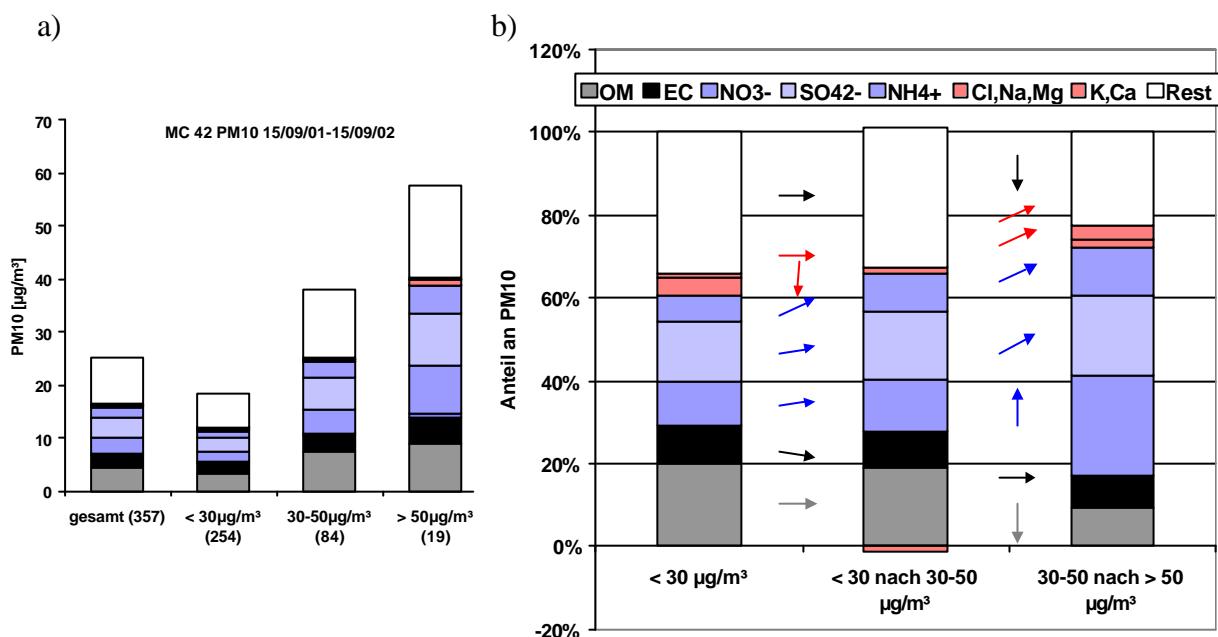


Abbildung 6: Mittlere chemische Zusammensetzung (MC42) für a) unterschiedliche Konzentrationsbereiche sowie b) Konzentrationszuwächse von <30 nach 30-50 µg/m³ und 30-50 nach >50 µg/m³

Beim Vergleich aller untersuchten Stationen ergibt sich, dass insbesondere Nitrat einen überproportionalen Beitrag zum Anstieg der PM₁₀-Massenkonzentration liefert, gefolgt von Ammonium und Sulfat. Elementarer Kohlenstoff, Calcium und Kalium sowie der nicht analysierte Rest zeigen in etwa einen proportionalen Anstieg, wobei hier gewisse Unterschiede für die einzelnen Standorttypen zu verzeichnen sind. Beim organischen Kohlenstoff findet sich meist ein unterproportionaler Anstieg, und die Seesalz-Elemente Natrium, Chlorid und Magnesium sind sogar negativ.

Abbildung 7 zeigt nochmals die Windrichtungsverteilung, diesmal aufgeteilt in die 3 Konzentrationsbereiche <30 µg/m³, 30-50 µg/m³ und >50 µg/m³. Die Grafik zeigt, dass bei niedrigen Massenkonzentrationen westliche Windrichtungen vorherrschen. Bei mittleren

Konzentrationen ist die Vorzugswindrichtung Ost bzw. Südost, und bei hohen PM10-Konzentrationen kommt der Wind vorzugsweise aus Osten.

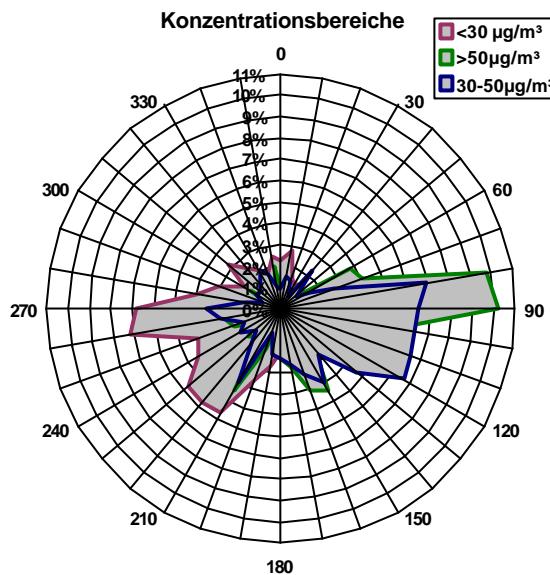


Abbildung 7: Windrichtungsverteilung für 3 PM10-Konzentrationsbereiche

Episodenanalysen

In Abbildung 8 ist die Zeitreihe der PM10-Massenkonzentration für alle Stationen dargestellt, für den Zeitraum 10/03/02 bis 10/04/02. Die Grafik zeigt den parallelen Verlauf der Massenkonzentrationen für die unterschiedlichen Standorte, mit den geringsten Konzentrationen für die Hintergrundstationen und stufenweisem Anstieg über regionalen Hintergrund, Stadtrand, städt. Hintergrund hin zur Verkehrsstation.

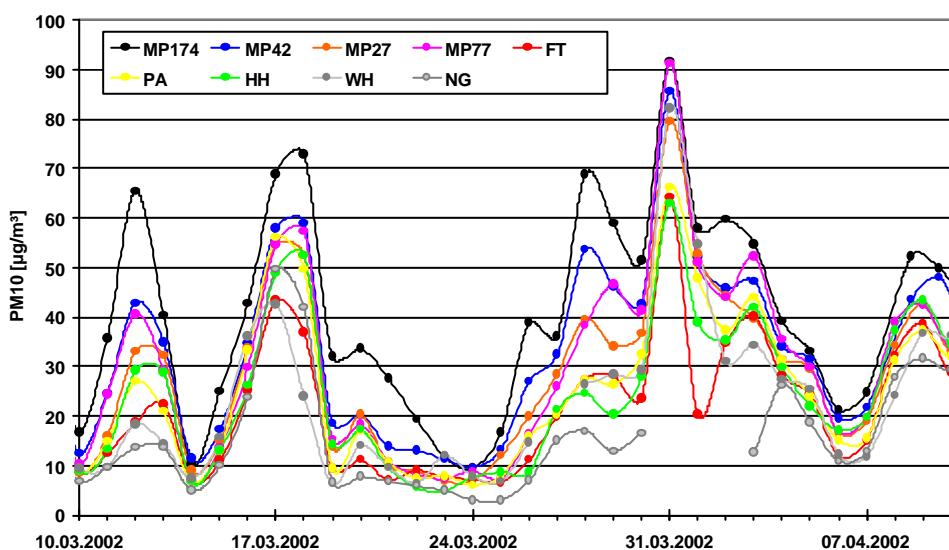


Abbildung 8: Zeitreihe PM10 aller Stationen, März-April 2002

Abbildung 9 zeigt beispielhaft die 3-Tage Rückwärtstrajektorien für den 24/03/02, den Tag mit den niedrigsten PM10-Konzentrationen, und für den 31/03/02, den Tag mit den höchsten Konzentrationen. Während der erstere Fall eine typische Situation für niedrige Immissionsbelastungen darstellt, ist der zweite Fall mit recht langen Rückwärtstrajektorien eher untypisch für hohe Massenkonzentrationen. Im Mittel verkürzt sich die Trajektoriellänge (72h) von 2712 km auf 905 km bei Betrachtung der PM10-Konzentrationsbereiche <30 µg/m³ bzw. >50 µg/m³ für die Verkehrsstation bzw. von 2563 km auf 718 km an der städtischen Hintergrundstation. Deutlich wird an dem Beispiel der Einfluss maritimer bzw. kontinentaler Luftmassen auf die Immissionssituation.

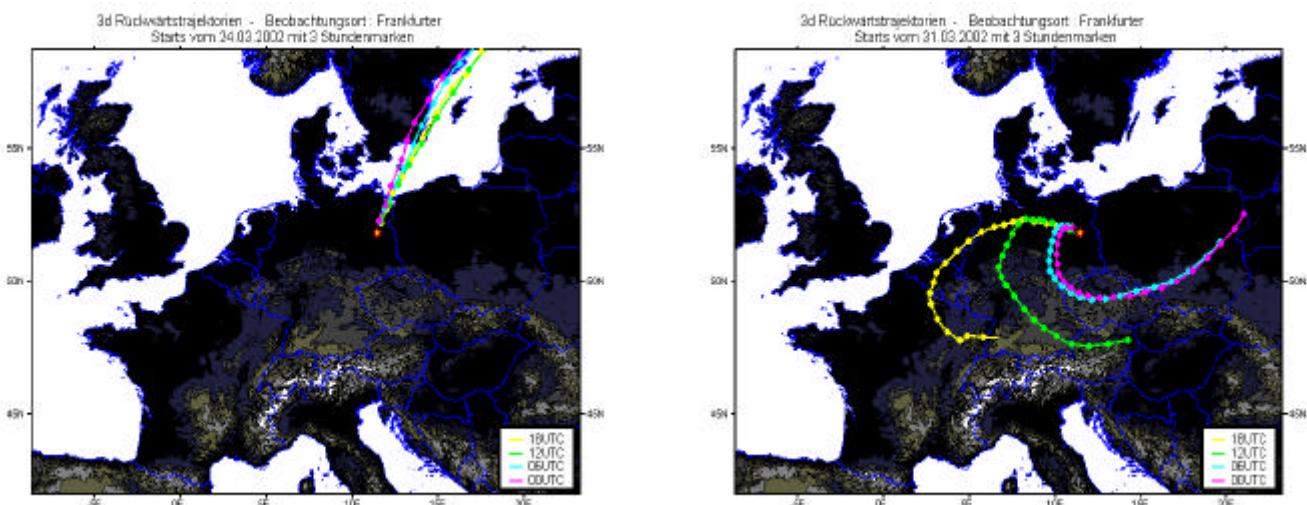


Abbildung 9: 72-Stunden Rückwärtstrajektorien für die Tage 24/03/02 und 31/03/02

Betrachtet man die Tage mit Massenkonzentrationen >50 µg/m³, so standen für alle Stationen 103 Messtage mit kompletter chemischer Analytik der Inhaltsstoffe zur Verfügung. Mit Hilfe von Ähnlichkeitsanalysen lassen sich diese Tage mit Überschreitungen des Tagesgrenzwertes in unterschiedliche Episodentypen einteilen. ¾ dieser Tage waren an der Stadtstation durch sekundäre Ionen geprägt, ein knappes Viertel waren Mischtypen aus sekundären Ionen mit Calcium und dem Rest bzw. EC. Ein Tag war durch Calcium und den "Rest" als Indikator für Aufwirbelungsprozesse charakterisiert, und eine weitere Grenzwertüberschreitung entstand durch das Silvesterfeuerwerk. Teilt man den sekundären Episodentyp weiter auf, so entfallen etwa 40 % auf Nitrat-geprägte Episoden, 30 % auf Sulfat-geprägte Episoden, und weitere 30 % auf Tage, an denen sowohl Nitrat als auch Sulfat erhöht sind.

Betrachtet man die Verteilung der PM10-Massenkonzentrationen >50 µg/m³ auf die Wochentage, so lässt sich für die städtische Hintergrundstation MC42 kein Wochengang erkennen, der die Tagesgrenzwertüberschreitungen auf lokale anthropogene Aktivitäten

zurückführen ließe. Auch für die Verkehrsstation MC174 ergibt sich noch kein ausgeprägter Wochengang. Klammert man dagegen den regionalen und überregionalen Einfluss durch Differenzbildung MC174-MC42 aus, so ergibt sich ein durch den lokalen Verkehrsbeitrag geprägtes Bild mit den niedrigsten Werten am Wochenende und deutlich höherer Anzahl während der Woche.

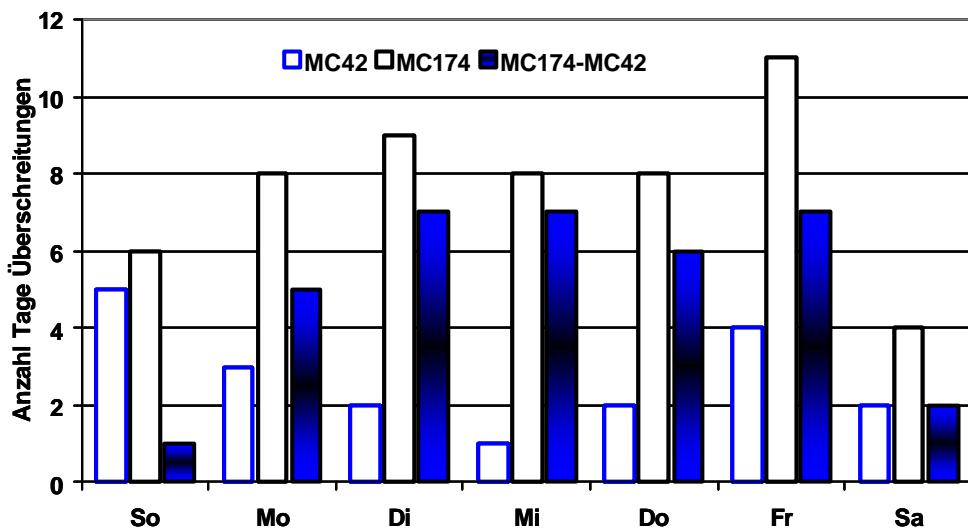


Abbildung 10: Verteilung der Tagesgrenzwertüberschreitungen auf die Wochentage

Quellzuordnung nach dem Ansatz Lenschow et al. (2001)

In ihrem Ansatz gehen Lenschow et al. (2001) von dem Beitrag unterschiedlicher Quellregionen zur PM₁₀-Immissionssituation an einem bestimmten "Hot Spot" aus. An der Verkehrsstation handelt es sich dabei bei den durchschnittlich $33 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zu 49 % um Hintergrundaerosol, 11 % Beitrag aus dem regionalen Hintergrund und 9 % Beitrag der Strandgebiete. Weitere 8 % sind städtischer Beitrag, und 23 % kommen schließlich von der lokalen Quelle "Verkehr" hinzu. Für eine detailliertere Betrachtung der Beiträge der Quellregionen zu PM₁₀ einschließlich der chemischen Inhaltsstoffe lassen sich die Stationstypen "Hintergrund"

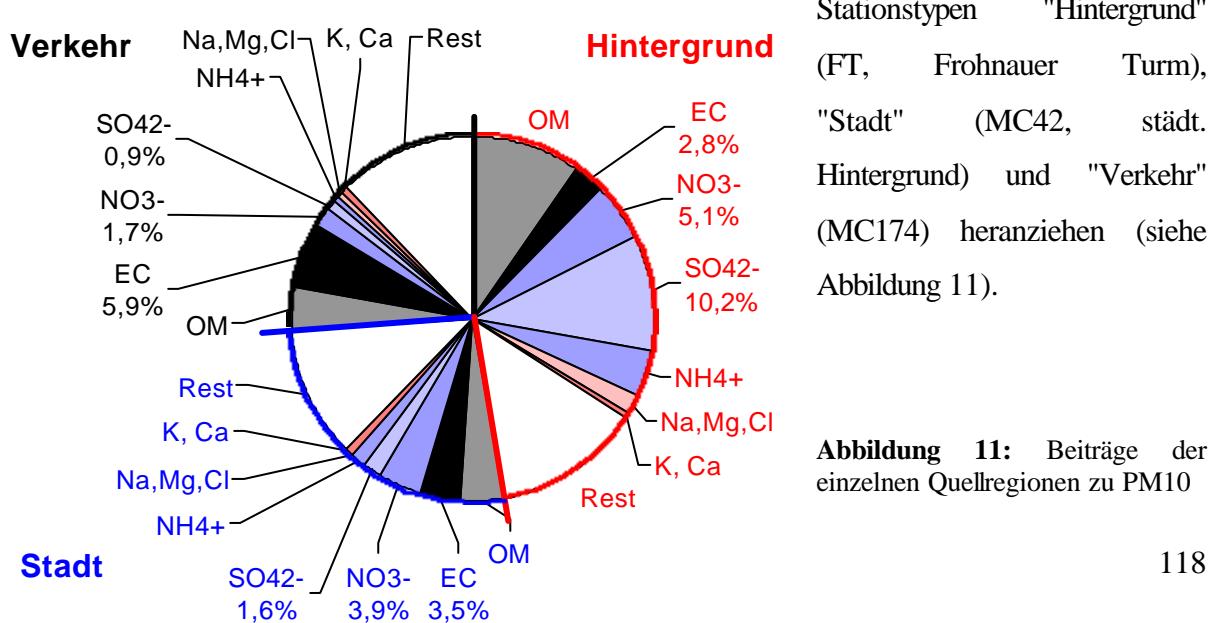


Abbildung 11: Beiträge der einzelnen Quellregionen zu PM₁₀

Betrachtet man die am Messpunkt bestimmte PM10-Konzentration, so liefert beispielsweise der elementare Kohlenstoff im Mittel nur 2,8 % Beitrag dazu aus dem Hintergrund, aber 3,5 % aus dem Stadtbereich und 5,9 % aus der lokalen Quelle "Verkehr".

Im Unterschied dazu stammt das sekundäre Sulfat zu 10,2 % aus dem Hintergrund und nur zu 1,6 % und 0,9 % aus "städtischen" bzw. "lokalen" Quellen.

Etwas abweichend schaut das Bild beim sekundären Nitrat aus, (5,1 %, 3,9 %, 1,7 % für Hintergrund, Stadt, Verkehr), bei dem die lokalen Beiträge nicht zu vernachlässigen sind.

Abbildung 12 fasst die Beiträge der einzelnen Quellregionen zu PM10 nochmals zusammen. Die Grafik differenziert nach den Inhaltsstoffen, die wie die Seesalzkomponenten Natrium und Magnesium oder das sekundäre Sulfat hauptsächlich aus dem Hintergrund stammen, wohingegen der nicht analysierte Rest, Calcium und elementarer Kohlenstoff hauptsächlich aus der lokalen Quelle "Verkehr" kommen.

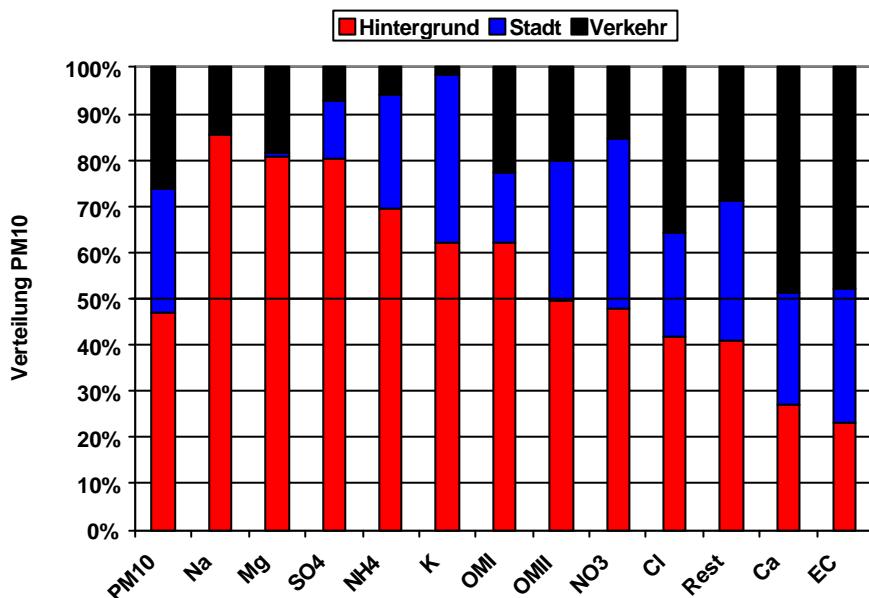


Abbildung 12: Beiträge der einzelnen Quellregionen zu PM10 bzw. Inhaltsstoffen

Ordnet man die in Abbildung 11 gezeigten Immissionsbeiträge mit Hilfe von regionalen und lokalen Emissionskatastern den einzelnen Quellgruppen zu (Berücksichtigung sowohl von primären als auch sekundären Partikeln), so ergibt sich das in Abbildung 13 gezeigte Bild. So trägt beispielsweise der Verkehr über Auspuffemissionen zu 7 % über das Hintergrundaerosol, zu 9 % über den städtischen und zu weiteren 11 % über den lokalen Anteil zur PM10-Konzentration an der Verkehrsstation bei. Die durch die Quelle "Verkehr" über Aufwirbelung und Abrieb erzeugten Partikel gehören eher zur Grobstaubfraktion und haben daher insbesondere lokalen Einfluss (15 % Beitrag Verkehrsstation), ihre Bedeutung nimmt jedoch mit zunehmender Distanz vom Messort ab (6 % Stadt, 1 % Hintergrund).

Während Industrie und Heiz-/Kraftwerke noch 14 % bzw. 9 % im Hintergrundaerosol ausmachen, reduziert sich deren Beitrag im Stadtbereich auf jeweils 1 %.

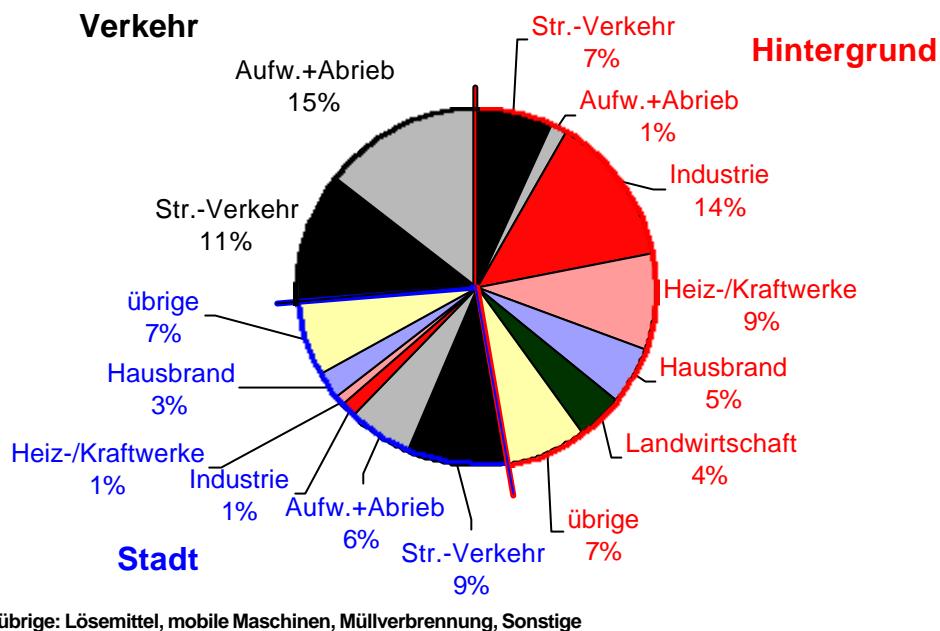


Abbildung 13: Beiträge der einzelnen Quellgruppen zu PM10, gegliedert nach Quellregion

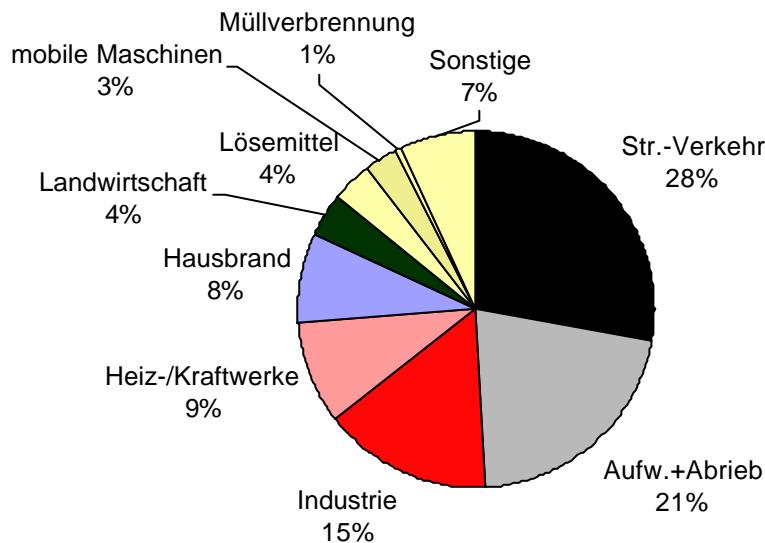


Abbildung 14: Beiträge der einzelnen Quellgruppen zu PM10 (gesamt)

Abbildung 14 fasst die Beiträge der Quellgruppen aus den einzelnen Quellregionen zusammen. Damit ergibt sich für die an der Verkehrsstation MC174 gemessenen 33 µg/m³ PM10 ein Beitrag des Verkehrs von insgesamt knapp der Hälfte (49 %), der sich aus Auspuffemissionen (28 %) und Aufwirbelung/Abrieb (21 %) zusammensetzt.

Zusammenfassung

Die PM10-Massenkonzentrations- und Inhaltsstoffbestimmungen an unterschiedlichen Standorten in Berlin und Brandenburg über den Messzeitraum eines Jahres (Sept. 2001-Sept. 2002) haben gezeigt, dass

- an keiner der Stationen der Jahresgrenzwert von 40 µg/m³ überschritten wurde
- an der Verkehrsstation der Tagesgrenzwert von 50 µg/m³ häufiger als 35 mal überschritten wurde
- bei einem Mittelwert von 29 µg/m³ mit den maximal erlaubten 35 Überschreitungen des Tagesgrenzwertes zu rechnen ist.

Analysen der Tage mit Grenzwertüberschreitungen haben ergeben, dass

- östliche Windrichtungen einen überproportionalen Beitrag zu den Tagen mit hohen Massenkonzentrationen lieferten
- Leitsubstanzen hoher Massenkonzentrationen Nitrat, Ammonium und Sulfat waren
- ¾ der Tage mit Tagesgrenzwertüberschreitungen dem Episodenyp "sekundär" zugeordnet werden konnten, der sich in die Untertypen "Nitrat" (40 %), "Sulfat" (30 %) und "Nitrat/Sulfat" (30 %) aufteilen ließ.

Für Minderungsmaßnahmen bedeutet dies, dass insbesondere die Vorläufersubstanzen Stickoxide, Ammoniak und Schwefeldioxid gesenkt werden müssen, um Grenzwertüberschreitungen zu reduzieren. Neben diesen eher regionalen bis überregionalen Maßnahmen bietet jedoch auch der lokale Verkehr Ansätze zur PM10-Minderung, da gerade hier das "Fass zum Überlaufen" gebracht wird, d.h. an diesen "Hot Spots" der Grenzwert überschritten wird (siehe Wochengang der Tagesgrenzwertüberschreitungen).

Für die untersuchte Verkehrsstation ergab die Analyse nach Quellregionen, dass 49 % der PM10-Immissionsbelastung durch Hintergrundaerosol verursacht wird, 27 % durch städtischen Beitrag und 26 % durch die lokale Quelle "Verkehr". Bei der Betrachtung nach Emittentengruppen resultierte für die untersuchte Station ein Gesamtbeitrag des Verkehrs von 49 %. Weitere wichtige Quellen sind Industrie und Kraftwerke (24 %) sowie Hausbrand (8 %). Minderungsmaßnahmen, die an diesen Quellen ansetzen, können sowohl die "Grundbelastung", d.h. den Jahresmittelwert senken, als auch die Anzahl der Tagesgrenzwertüberschreitungen reduzieren.

Literatur

- Lenschow, P., H.-J. Abraham, K. Kutzner, M. Lutz, J.D. Preuß, W. Reichenbächer, Some ideas about the sources of PM₁₀, *Atmos. Env.* 35/1001, pp23-33, 2001.
John, A.C., Kuhlbusch, T.A.J., Ursachenanalyse von Feinstaub(PM10)-Immissionen in Berlin, Senatsverwaltung für Stadtentwicklung Berlin, in Vorbereitung, 2004.

Danksagung

Stellvertretend für alle Beteiligten sei den nachfolgend aufgeführten Projektpartnern für die gute Zusammenarbeit gedankt:

W. Reichenbächer, Dr. Abraham, M. Preuss (SenStadt Berlin), verantwortlich für Emissionskataster Berlin und BLUME-Messnetz,
Prof. Möller, Dr. Wieprecht (BTU Cottbus), verantwortlich für Probenahme und Analytik,
R. Offermann, M. Lotz (LUA Brandenburg), verantwortlich für die Probenahme,
Dr. Frenzel (TU Berlin), verantwortlich für OC/EC-Analytik,
Dr. Reimer (FU Berlin), verantwortlich für meteorologische Daten und Rückwärtstrajektorien

B.10 Feinstaubquellen in Rheinland-Pfalz

**T. Kuhlbusch, A. John, O. Romazanowa, S. Top,
M. Weissenmayer
(IUTA e. V., LfUG Mainz)**

Feinstaubquellen in Rheinland-Pfalz

**T. Kuhlbusch, A. John, O. Romazanowa, S. Top
(IUTA e.V.)**

und

M. Weissenmayer

(Landesamt für Umweltschutz und Gewerbeaufsicht, Rheinland-Pfalz)

Einleitung

Im Zeitraum vom 28.3.2002 bis 26.3.2003 wurden an vier Standorten in Rheinland-Pfalz PM₁₀-Massenkonzentrationsbestimmungen und chemische Inhaltsstoffanalysen durchgeführt. Die untersuchten Standorte waren Pfälzerwald-Hortenkopf (Hintergrund), Mainz-Goetheplatz (städtischer Hintergrund), Koblenz-Zentralplatz (Verkehrsstation) und Ludwigshafen-Mundenheim (industriell und verkehrsbeeinflusste Station, städtisch)(Abbildung 1). Ziel dieser Messkampagne war die Identifizierung und Quantifizierung der Quellen von PM₁₀.



Abbildung 1: Lage der Messstandorte

Als Datengrundlage standen die Messwerte aus dem Zentralen Immissionsmessnetz Rheinland-Pfalz - ZIMEN über den gesamten Messzeitraum zur Verfügung. PM₁₀-Massenkonzentrationen wurden online mit den FH-62 IR (1 Stunde Zeitauflösung) und manuell mit Digital DHA 80 (24 Stunden Probenahme) bestimmt. Die mit dem manuellen Verfahren belegten Filter wurden chemisch auf Partikelinhaltstoffe analysiert.

Basierend auf den online und manuell bestimmten PM₁₀-Massenkonzentrationen ergaben sich die in Tabelle 1 und Abbildung 2 aufgeführten Kennwerte. Die Kenndaten der online Messwerte beruhen auf FH-62 IR Werten, die mit einem Faktor 1,3 multipliziert wurden. Tabelle 1 zeigt keine Überschreitung des Jahresgrenzwertes von PM₁₀ ($40 \mu\text{g}/\text{m}^3$) an den vier Messsta-

tionen. Die Station in Ludwigshafen-Mundenheim zeigt eine Überschreitung der Tagesgrenzwerte für die online und die manuell bestimmten PM₁₀-Massenkonzentrationen ($> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ nicht häufiger als 35-mal zu überschreiten). Die Station Koblenz zeigt für die online Messwerte mit 1.3 als Korrekturfaktor 44 Überschreitungen des Grenzwertes pro Jahr. Auf Grund von Korrelationsuntersuchungen der online-Werte mit den Werten des Digital DHA 80 kann aber davon ausgegangen werden, dass der Korrekturfaktor von 1.3 in Koblenz zu hoch ist und die mit dem manuellen Verfahren bestimmte Überschreitungshäufigkeit von 29 Tagen im Jahr richtig ist. Somit ist zu vermuten, dass nur in Ludwigshafen-Mundenheim der ab 2005 (ohne Toleranzmargen) geltende Tagesgrenzwert für PM₁₀ überschritten wird.

Tabelle 1: PM₁₀-Kennwerte für den Zeitraum der Messkampagne

	Ludwigshafen	Koblenz	Mainz	Hortenkopf
Filter	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	$\mu\text{g}/\text{m}^3$
Mittelwert	31.6	28.0	25.1	16.1
Überschr./Jahr*	47	29	20	3
Online				
Mittelwert	28.8	33.0	28.0	16.2
Überschr./Jahr*	37	44	34	2

* hochgerechnet auf 365 Tage

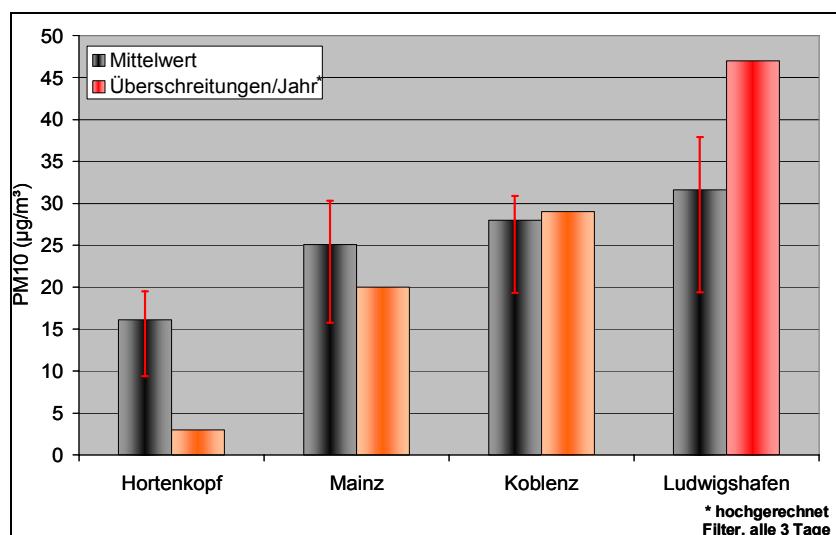


Abbildung 2: Kenndaten der Stationen (basierend auf Filterwerten)

Windrichtungsanalysen

Die Windrichtungsanalysen für die PM₁₀-Massenkonzentrationen (1 Stunden Mittelwerte) zeigten für den Hortenkopf keine ausgeprägte Vorzugswindrichtung. Für die Mainzer Station zeigte sich eine Vorzugswindrichtung für PM₁₀ aus süd-östlicher Richtung (Stadtzentrum Mainz) und nicht so ausgeprägt aus nord-westlicher Richtung (Industriehafen und Industriegebiet). Eine ausgeprägte Vorzugswindrichtung für PM₁₀ in Ludwigshafen sind Winde aus Osten. In dieser Richtung liegt ein größeres Industriegebiet. Eine zweite Vorzugswindrichtung für PM₁₀ in Ludwigshafen liegt im Nordwesten. In dieser Richtung liegt eine größere Eisenbahnstation und weiter entfernt Industriegebiete. In Koblenz liegen die Vorzugswindrichtungen im Südosten und im Norden. Die letztere Windrichtung liegt in Richtung Industriehafen. Die Hauptvorzugswindrichtung für PM₁₀ Südosten kann keinem spezifischen Gebiet zugeordnet werden und ist vielleicht auf den lokalen Verkehr zurückzuführen.

Chemische Zusammensetzung

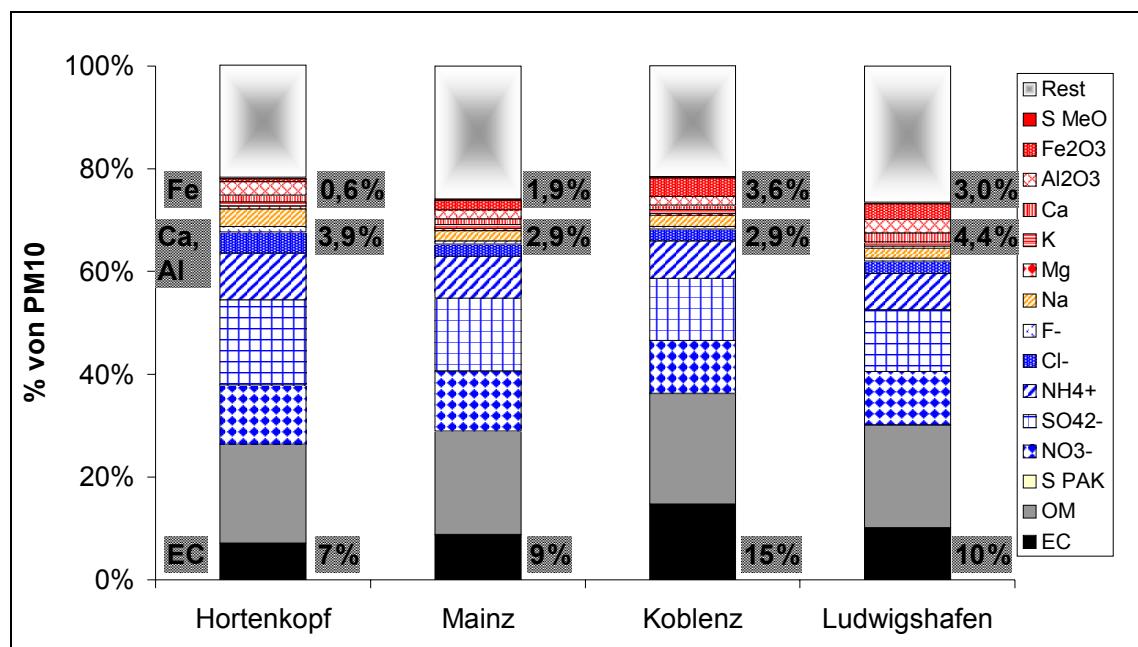


Abbildung 3: Mittlere chemische Zusammensetzung der PM₁₀-Partikelfraktion an den vier Messstandorten

Abbildung 3 gibt eine Übersicht der mittleren chemischen Zusammensetzung von PM₁₀ an den untersuchten Stationen in Rheinland-Pfalz. Insgesamt zeigt sich ein plausibles Bild. Die Anteile der Kohlenstofffraktionen (EC+OM) steigen von der Hintergrundstation (Hortenkopf) zur Verkehrsstation (Koblenz) von 24% auf 34% mit den städtischen Stationen Mainz und Ludwigshafen bei 28%. Der Anteil der sekundären Partikelbestandteile (SO₄²⁻, NO₃⁻ und NH₄⁺) ist am höchsten an der Hintergrundstation (41%) mit abnehmenden Anteilen bei steigender mittlerer PM₁₀-Massenkonzentrationen über Mainz, Koblenz nach Ludwigshafen. Die für Seesalz typischen Inhaltsstoffe Na, Cl⁻ und Mg haben Anteile von 6% am Hortenkopf und 4% an den städtischen Stationen. Eisen und die Mineralstaubelemente Ca, Al, K haben höhere PM₁₀-Anteile in den städtischen Gebieten. Hierbei sind die relativ hohen Anteile dieser Elemente in Ludwigshafen trotz geringerer Verkehranteil auffällig.

Ein Vergleich der chemischen Zusammensetzungen von PM₁₀ mit Messwerten anderer Stationen in Deutschland und der Schweiz zeigte, dass die untersuchten Stationen eine vergleichbare chemische Zusammensetzung innerhalb ihres Standorttypus (Hintergrund, städtischer Hintergrund, Verkehrsstation) aufweisen, wenn auch im unteren Konzentrationsbereich.

PM₁₀-Massenkonzentrationsabhängige chemische Zusammensetzung

Die chemische Zusammensetzung wurde für drei PM₁₀-Massenkonzentrationsbereiche berechnet (< 30 µg/m³, 30-50 µg/m³, > 50 µg/m³) um zu untersuchen welche Inhaltsstoffe spezifisch zu erhöhten PM₁₀-Massenkonzentrationen beitragen. Abbildung 4 zeigt diese chemische Zusammensetzung für die Konzentrationsbereiche < 30 µg/m³ und > 50 µg/m³ für Ludwigshafen. Die deutlichste Zunahme an PM₁₀-Massenanteilen von 7,7% auf 16,4% ist für Nitrat zu erkennen. Für die meisten anderen gemessenen Inhaltsstoffe (außer Ammonium) sinken die prozentualen Anteile.

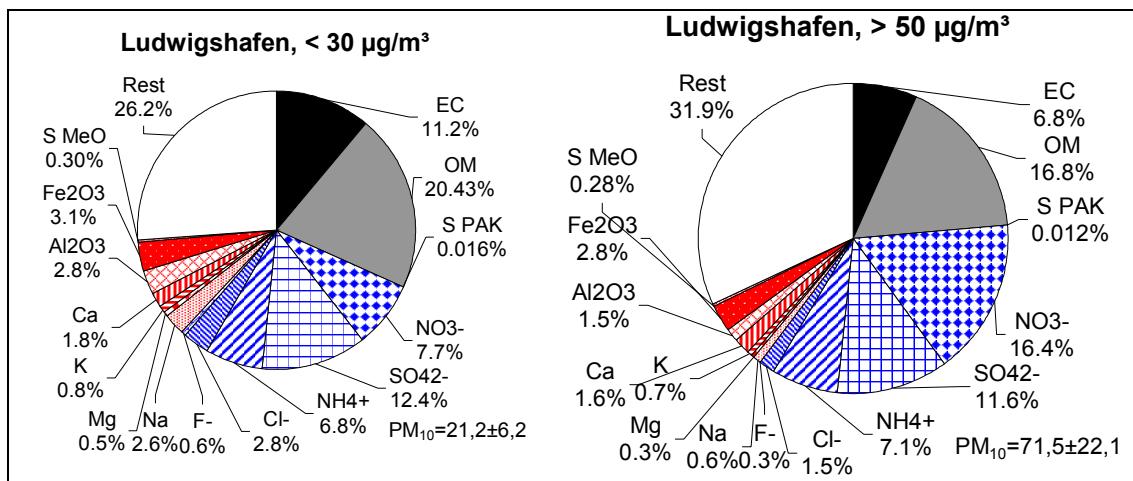


Abbildung 4: Konzentrationsabhängige chemische Zusammensetzung (Bsp. Ludwigshafen)

Abbildung 5 zeigt die normierten Elementkonzentrationsverhältnisse zwischen den Konzentrationsbereichen < 30 µg/m³ und > 50 µg/m³ für die vier untersuchten Stationen. Aus dieser Abbildung wird deutlich, dass die massenrelevanten Verbindungen Nitrat und Ammonium deutlich überproportional zum Massenkonzentrationsanstieg beitragen.

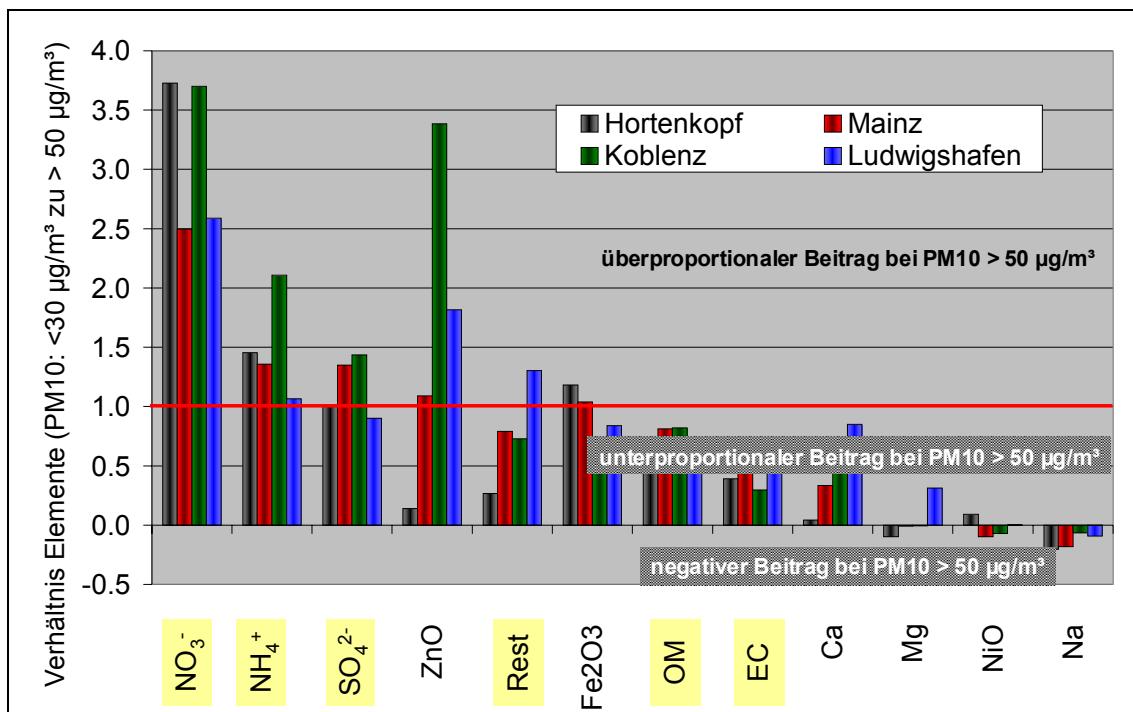


Abbildung 5: Normierte konzentrationsabhängige Elementverhältnisse

Prozentual sind Nitrat, Ammonium und Sulfat (36%-61%), EC+OM (15-23%), der nicht analysierte Rest (15-36%) und die Summe von Ca, Al, Fe und MeO (0.6%-5,5%) die wichtigsten Inhaltsstoffe, die zum Anstieg der Massenkonzentration von < 30 µg/m³ auf > 50 µg/m³ beitragen. Aufgeteilt nach den Messstationen erklären die Ionen 61% des PM₁₀-Massenkonzentrationsanstieges am Hortenkopf, aber nur 36% in Ludwigshafen. Dafür erklären in Ludwigshafen die Summe von Ca, Al, Fe und ΣMeO 5,5% und der Rest 36% und damit deutlich mehr als an den anderen Stationen. Insgesamt zeigt diese Untersuchung, dass in Ludwigshafen die Elemente Mg, Ca, Al, Fe und ΣMeO sowie der Rest, der u.a. SiO₂ enthält,

zu den erhöhten Massenkonzentrationen beitragen. In Koblenz (Verkehrsstation) sind insbesondere die Inhaltsstoffe PbO, Cr₂O₃, Mn₂O₃ und ZnO erhöht.

Rückwärtstrajektorien

Zur Untersuchung in wie weit meteorologische Bedingungen die erhöhten PM₁₀-Massenkonzentrationen beeinflussen, wurden die Entfernung der Rückwärtstrajektorien zur Messstation für die drei untersuchten Konzentrationsbereiche berechnet (Trajektorien berechnet von Herrn Reimer, FU Berlin). Eine Betrachtung der Entfernung der Luftmassen zeigt eine mittlere Verkürzung der Distanz zur Messstelle auf 69%, 42% und 31% für 24 Stunden, 48 Stunden und 72 Stunden vor der Messung für das Verhältnis der Distanzen (mittlere Distanz PM₁₀ > 50 µg/m³/ mittlere Distanz PM₁₀ < 30 µg/m³). Allgemein zeigte sich, dass höhere PM₁₀-Massenkonzentrationen mit kürzeren Rückwärtstrajektorien korrelieren. Dieser Rückgang der Trajektoriellänge ist ein Maß für die Mischung der Mischungsschicht mit höheren Luftsichten und der Verweilzeit der Luftmassen in der Mischungsschicht. Kürzere Trajektorien bedeuten stabile Luftmassen d.h. geringere Durchmischung der Luftmassen, was zu einer „Anreicherung“ von Luftschadstoffen führt. Denselben Effekt hat auch die höhere Verweilzeit der Luftmassen in der Mischungsschicht. Diese Veränderung in den Transportvorgängen der Luftmassen hat Bedeutung für die räumliche Zuordnung der Quellen. Kürzere Rückwärtstrajektorien führen dazu, dass das Hauptquellgebiet der Luftschadstoffe eher im „näheren“ Gebiet zur Messstation liegen im Vergleich zu Zeiträumen mit längeren Rückwärtstrajektorien.

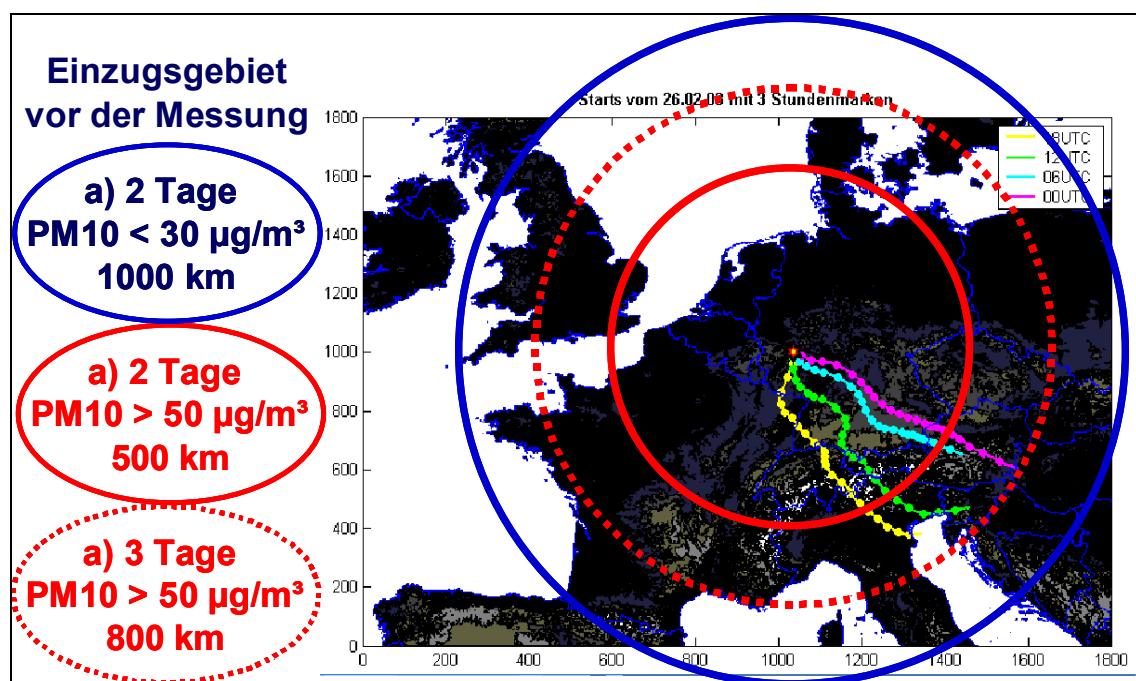


Abbildung 6: Mittlere Entfernung der Rückwärtstrajektorien während der letzten 48 Stunden bzw. 72 Stunden in Abhängigkeit von der PM₁₀-Massenkonzentration.

Dieses verdeutlicht Abbildung 6, die die Entfernung der Luftmassen von der Messstelle in Abhängigkeit der PM₁₀-Massenkonzentration darstellt. Bei PM₁₀-Massenkonzentration < 30 µg/m³ waren die Luftmassen 48 Stunden vor der Messung im Mittel 1000 km von der Messstelle entfernt, bei Konzentrationen > 50 µg/m³ nur 500 km. Selbst 72 Stunden vor der Messung waren die Luftmassen bei PM₁₀-Massenkonzentration > 50 µg/m³ nur 800 km von der

Messstelle entfernt und somit näher an der Messstelle als im Fall der niedrigen Massenkonzentration 48 Stunden vorher.

Vergleich der chemischen Zusammensetzung zwischen den Stationen

Zur Identifizierung der wesentlichen Inhaltsstoffe, die zu erhöhten PM₁₀-Massenkonzentrationen in den städtischen Bereichen führen, wurden die Inhaltsstoffkonzentrationsverhältnisse der städtischen Stationen zu denen am Hortenkopf berechnet. Wesentliche Anreicherungen (Anstieg der prozentualen PM₁₀-Anteile) wurden an allen städtischen Stationen für EC, OM, K, Fe, Cr, Mn, Cu und Zn gefunden, alles Elemente und Verbindungen die dem Verkehr oder der Emission von Mineralstaub zugeordnet werden können. Stationsspezifisch zeigten sich Anreicherungen von Ca und Al (Mineralstaub) für Ludwigshafen, As, Pb und Cd (Glashütte für As) für Mainz und Ni (Verkehr) für Koblenz.

Quellenzuordnung nach Lenschow et al. (2001)

Die quantitativen Beiträge der verschiedenen Quellregionen (Hintergrund, Stadt, Lokal) wurden nach einem Ansatz von Lenschow et al. (2001) berechnet. Die Beiträge aus dem Hintergrund erklärten nach diesem Ansatz 60% (Koblenz) und 54% (Ludwigshafen). Der städtische Beitrag wurde mit 26% (Koblenz) und 23% (Ludwigshafen) berechnet. Der lokale Betrag zu PM₁₀ war in Ludwigshafen (23%) deutlich höher als in Koblenz (14%). Insgesamt liegen die Beiträge der verschiedenen Regionen in dem Bereich, der auch für andere Städte in Europa bestimmt wurde.

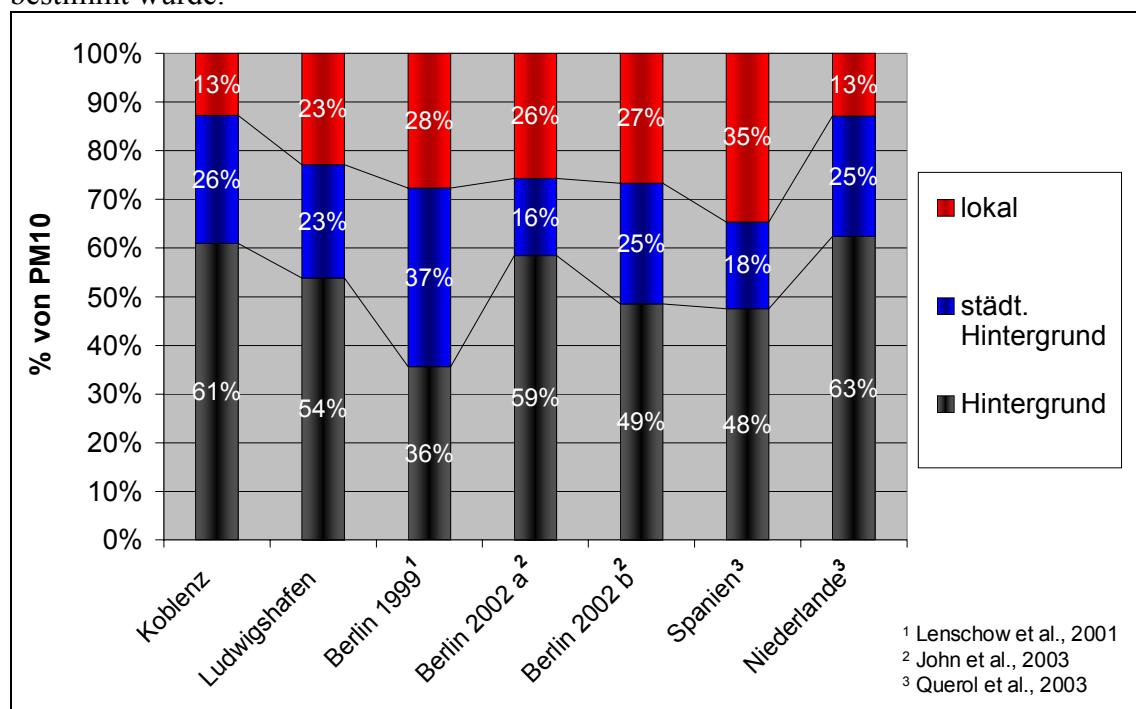


Abbildung 7: Vergleich der Zuordnung der Quellregionen nach dem Ansatz von Lenschow et al (2001)

Eine separate Auswertung der Zuordnung der Quellregionen nach dem Ansatz von Lenschow et al (2001) wurde für zwei Datengruppen durchgeführt, um spezifisch die Veränderung der Beiträge der Quellregionen an Tagen mit erhöhten PM₁₀-Massenkonzentrationen zu untersuchen. Hierzu wurde das 1. Quartal 2003 und alle Tage mit PM₁₀-Massenkonzentrationen > 45 µg/m³ in Ludwigshafen analysiert. Diese Analyse zeigte relativ gleichbleibende Anteile der Quellregionen an PM₁₀. Für Koblenz zeigte sich für die Tage > 45 µg/m³ ein erhöhter Beitrag aus dem Hintergrund (70%) und für Ludwigshafen ein erhöhter lokaler Beitrag (31%).

Basierend auf der Berechnung der Anteile der verschiedenen Quellregionen an PM₁₀ und den chemischen Inhaltstoffen wurde mit Hilfe von Emissionskatastern eine Quellgruppenzuordnung durchgeführt.

Abbildung 8 und Abbildung 9 zeigen die Ergebnisse der Quellenzuordnung. In Abbildung 8 sind die Quellgruppen entsprechend den Quellregionen farblich gekennzeichnet: Schwarz = Hintergrund, Blau = städtischer Hintergrund, Rot = lokal). Anhand dieser Abbildung ist zu erkennen, dass in Ludwigshafen etwa 17% der PM₁₀-Massenkonzentration im Jahresmittel auf lokale industrielle Quellen zurückzuführen ist. Der lokale Beitrag in Koblenz ist mit 14% auf den Verkehr zurückzuführen.

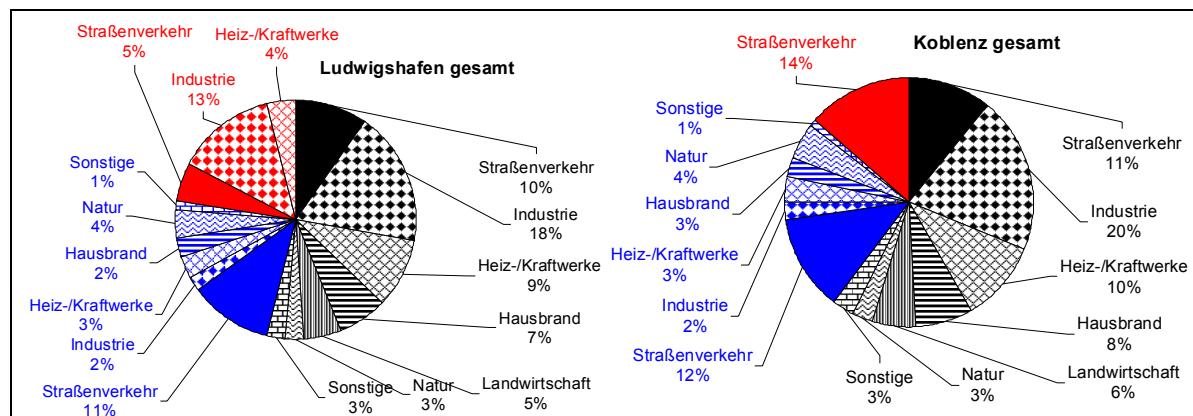


Abbildung 8: Quellenzuordnung für Ludwigshafen und Koblenz

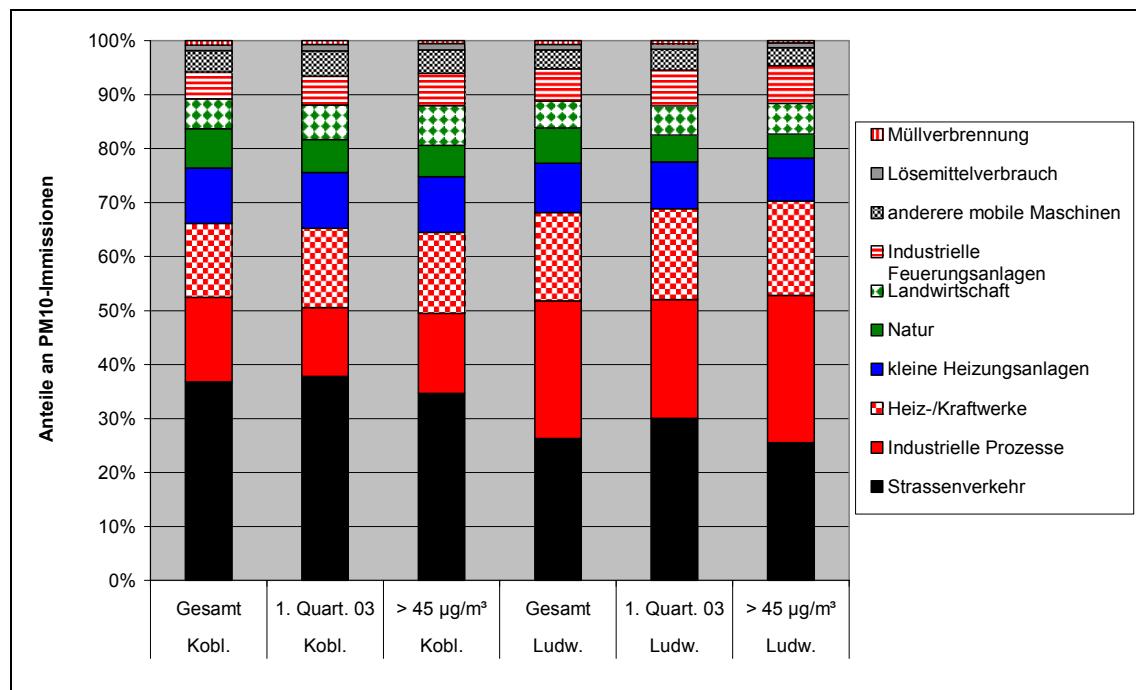


Abbildung 9: Ergebnis der Quellenzuordnung nach Emittentengruppen gesamt

In Abbildung 9 sind die Quellen nur nach Quellgruppen aufgetragen. Die wichtigsten identifizierten Emittentengruppen sind der Straßenverkehr (ca. 36% Koblenz, ca. 28% Ludwigshafen), Industrielle Prozesse (ca. 16% Koblenz, ca. 26% Ludwigshafen), Heizkraftwerke (14-16%) und kleine Heizungsanlagen (8-10%). Signifikante Differenzen in der Quellenzuordnung zwischen den drei betrachteten Datengruppen untereinander können nicht festgestellt werden. Es zeigt sich, wie aus den vorherigen Analysen zu erwarten war, dass der Verkehr an

der Station Koblenz einen höheren Beitrag hat als in Ludwigshafen, in Ludwigshafen aber deutlich höhere Beiträge aus industriellen Prozessen zu den PM₁₀-Massenkonzentrationen beitragen als in Koblenz.

Quellbeiträge aus lokalen/städtischen Quellen mit regelmäßiger Quellaktivität

Ein separater Ansatz zur Berechnung der lokalen/regionalen Beiträge (etwa 30 km Umkreis zur Messstation) kann über die Tagesgänge der PM₁₀-Massenkonzentrationen erfolgen (Kuhlbusch et al., 2001). Hierbei wird der Anteil der Emittenten mit regelmäßig wiederkehrender Emissionsaktivität an PM₁₀ berechnet. Tabelle 2 gibt eine Übersicht der Ergebnisse dieser Methode.

Tabelle 2: lokale/regionale Quellbeiträge (Mittelwerte)

	Mainz	Koblenz	Ludwigshafen
Wochentage	15.3%	21.4%	23.8%
<i>Median</i>	13.8%	19.2%	22.1%
Samstag	11.1%	17.7%	14.5%
Sonntag	5.1%	5.2%	3.8%
Wochenmittel	13.2%	18.6%	19.6%

Die Berechnung der lokalen Beiträge nach Lenschow et al. (2001) ergab 14% für Koblenz und 23% für Ludwigshafen. Ein Vergleich der Ergebnisse zeigt für Koblenz einen um etwa 5% höheren lokalen Beitrag berechnet aus Tagesgängen. Im Ansatz nach Lenschow et al. (2001) wird hierbei nur der lokale Beitrag betrachtet, wobei die Berechnung basierend auf den Tagesgängen auch das gesamte städtische Gebiet von Koblenz mit einbezieht, wodurch der Unterschied erklärt werden kann. Für Ludwigshafen liegen die Beiträge relativ ähnlich. Eine Erklärung hierfür ist der wesentliche lokale Beitrag in Ludwigshafen durch Mineralstaub oder Erze, der keine regelmäßige Emissionsaktivität aufweist.

Wochengang der Tagesgrenzwertüberschreitungen

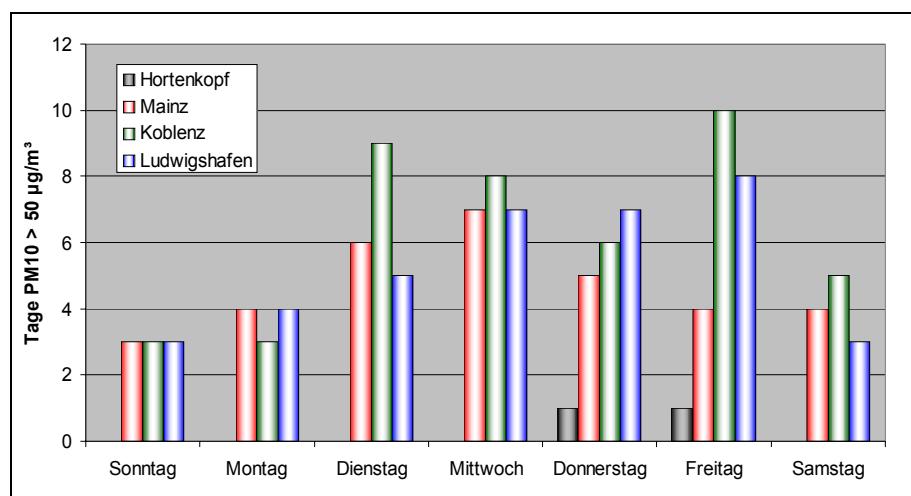


Abbildung 10: Wochengang der Tagesgrenzwertüberschreitungen

Abbildung 10 zeigt den Wochengang der Tagesgrenzwertüberschreitungen. Anhand dieser Abbildung ist für die vier untersuchten Stationen zu erkennen, dass die meisten Tagesgrenzwertüberschreitungen an den Wochentagen zwischen Dienstag und Freitag auftreten. Dieser

Wochengang deutet auf den anthropogenen Einfluss hin, u.a. Straßenverkehr und industrielle Prozesse.

Natürliche Quellen

Basierend auf dem Ansatz der konstanten chemischen Zusammensetzung von Seesalz und Erdkrustenelementen (Mineralstaub) wurden die Anteile dieser Quellgruppen separat für die Stationen berechnet. Es ergaben sich im Mittel Beiträge von etwa 1 µg/m³ an Seesalz und 2-3 µg/m³ an Mineralstaub (ansteigend vom Hortenkopf über Mainz zu Koblenz) und 4,7 µg/m³ Mineralstaub für Ludwigshafen. Letzteres und ein nicht erklärter Rest an Fe und Ca deuten auf eine wesentliche Quelle von Mineral- oder Erzstaub in der Nähe der Messstation in Ludwigshafen hin. Prozentual liegt der PM₁₀-Anteil von Mineralstaub bei 12% und von Seesalz bei 6% an der städtischen Verkehrsstation Koblenz. Nach dem Ansatz von Lenschow et al. (2001) liegen die natürlichen Beiträge bei 2 µg/m³ für die Station Koblenz. Nach der Berechnung über die Inhaltsstoffe liegen die natürlichen Beiträge bei 1 µg/m³ Seesalz plus 2 µg/m³ Mineralstaub (natürlich) plus 1 µg/m³ Mineralstaub (aus Verkehr). Somit liegt der natürliche Beitrag nach beiden Ansätzen in einem ähnlichen Bereich.

Zusammenfassung

Die Untersuchungen der PM₁₀-Massenkonzentrationen und deren chemischer Inhaltsstoffe an vier Stationen in Rheinland-Pfalz zeigten, dass an einer Station (Ludwigshafen, industriell- und verkehrsgeprägt) vermutlich die erlaubte Überschreitungsanzahl des Tagesgrenzwertes für PM₁₀ (22. BImSchV) überschritten wird. Ein Vergleich der chemischen Inhaltstoffe zwischen den Stationen zeigte spezifische Unterschiede mit z. B. erhöhten EC, Cu und Fe Konzentrationen in Koblenz (Verkehrsstation), erhöhten Ca, Al und Fe Konzentrationen in Ludwigshafen (städtische Station, industriell- und verkehrsgeprägt) und As in Mainz (städtische Hintergrundstation).

Eine Zuordnung der PM₁₀-Massenkonzentrationen nach Quellregionen ergab 50-60% Beiträge aus dem Hintergrund, 15-25% Beiträge aus dem städtischen Hintergrund und 13-30% lokale Beiträge. Der höchste lokale Beitrag wurde hier für Ludwigshafen bestimmt.

Untersuchungen der Beiträge der Quellregionen zu spezifischen Inhaltsstoffen zeigten insbesondere lokale Beiträge der Inhaltsstoffe EC, Cu, Cr, Mn, Zn und Fe für Koblenz und Ca, Cr, Cu, Al, Mn, Mg und Fe für Ludwigshafen.

Eine Quellenzuordnung nach Lenschow et al. (2001) ergab für die lokalen Quellen 14% Verkehrsbeitrag für Koblenz und 5% Verkehrs-, 13% Industrie- und 4% Heiz- und Kraftwerksbeiträge in Ludwigshafen. Unabhängig von der Quellregion betragen die Beiträge aus dem Straßenverkehr (ca. 36% Koblenz, ca. 28% Ludwigshafen), aus industriellen Prozessen (ca. 16% Koblenz, ca. 26% Ludwigshafen). Kein signifikanter Unterschied zwischen Koblenz und Ludwigshafen ist für die Emissionsbeiträge aus Heizkraftwerken (14-16%) und aus kleinen Heizungsanlagen (8-10%) festzustellen.

Berechnungen der Quellbeiträge aus lokalen/städtischen Quellen mit regelmäßiger Quellaktivität ergaben 13% für Mainz, 19% für Koblenz und 20% für Ludwigshafen. Diese Beiträge liegen im ähnlichen Bereich, wie die der Quellregionsbetrachtung nach Lenschow et al. (2001).

Eine spezifische Betrachtung der Ergebnisse im Hinblick auf Tagesgrenzwertüberschreitungen zeigt, dass

- die Überschreitungen hauptsächlich von Dienstag bis Freitag auftreten,

- die Rückwärtstrajektorien eine deutlich kürze Distanz zum Messstandort aufweisen,
- an Tagen mit Grenzwertüberschreitungen die lokalen Beiträge erhöht sind.

Diese Ergebnisse zeigen die Bedeutung lokaler Quellen für die Tagesgrenzwertüberschreitungen auf. Andererseits sind die Leitsubstanzen für erhöhte PM₁₀-Massenkonzentrationen (Nitrat und Ammonium) eher nicht lokalen Quellen zuzuordnen.

Daher ist davon auszugehen, dass sowohl „Ferntransport“ (Umkreis etwa 500 km) als auch lokale Quellen zu den Überschreitungen der Tagesgrenzwerte in den untersuchten städtischen Gebieten führen.

Literatur

- John, A. C., Kuhlbusch, T.A.J., Ursachenanalyse von Feinstaub(PM₁₀)-Immissionen in Berlin, Senat der Stadtverwaltung Berlin, in Vorbereitung, 2004.
- Kuhlbusch, T.A.J., A.C. John, H. Fissan, Diurnal variation of aerosol characteristics at a rural measuring site close to the Ruhr-Area, Germany, *J. Aerosol Sci.* 35, suppl. 1, 13-21, 2001.
- Lenschow, P., H.-J. Abraham, K. Kutzner, M. Lutz, J.D. Preuß, W. Reichenbächer, Some ideas about the sources of PM₁₀, *Atmos. Env.* 35/1001, pp23-33, 2001.
- Querol, X., R.M. Harrison, E. Buringh, M. Lutz, P. Bruckmann, P. Straehl, J. Schneider, PM characterisation and sources, Presentation CAFE-Workshop, http://www.itm.su.se/dokument/CAFE_dokument/CAFE.html, 20.-21. Oktober 2003.

Danksagung

Dieses Projekt wurde vom Landesamt für Umweltschutz und Gewerbeaufsicht, Rheinland-Pfalz gefördert.

B.11 Korngrößen und Inhaltsstoffe von urbanen Stäuben – Einflüsse von Kfz-Emissionen

F. Palme, P. Rabl (LfU Bayern)

Korngrößen und Inhaltsstoffe von urbanen Stäuben – Einflüsse von Kfz-Emissionen

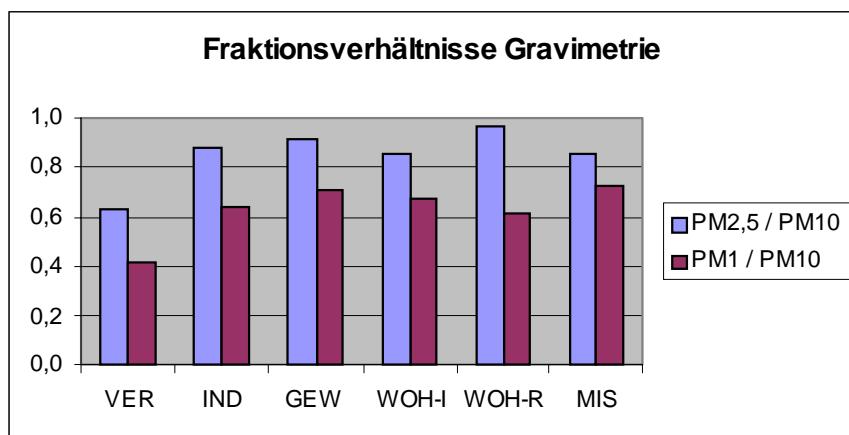
Frank Palme und Peter Rabl

Bayerisches Landesamt für Umweltschutz, Augsburg

Einführung. Neben der allgemeinen Tatsache, dass verkehrsnah der Anteil der gröberen Schwebstaubfraktionen gegenüber den feineren generell zunimmt, gibt es weitergehende Möglichkeiten zur Identifizierung von Quellen über *kombinierte Korngrößen- und Inhaltsanalysenvergleiche*. In diesem Beitrag werden Ergebnisse von Messprojekten vorgestellt, die zur Identifizierung *verkehrspezifischer* Parameter geeignet sind:

- ein- bis zweiwöchige Immissionsmessungen¹ verschiedener PM-Fraktionen (TSP, PM₁₀, PM_{2,5}, PM₁) an drei verkehrsnahen Punkten Münchens (am Portal und in der Mitte des Brudermühl tunnels, Luise-Kiesselbach-Platz) in den Jahren 2000 und 2001
- einjährige Immissionsmessungen² der PM-Fraktionen PM₁₀, PM_{2,5}, PM₁ an emittentenspezifisch beeinflussten Standorten im Stadtgebiet Augsburgs von März 2002 bis Februar 2003.

Quellenidentifikation Kfz-Verkehr. Aufgrund der meist guten standortspezifischen Korrelation der Fraktionen kann die Quelle Verkehr allgemein über vergleichsweise niedrige Fraktionsverhältnisse im Bereich von 0,6 für PM_{2,5}/PM₁₀ bzw. 0,4 bis 0,5 für PM₁/PM₁₀ identifiziert werden (Abb. 1).



¹ Rabl, P., Zischka, M.: F+E-Vorhaben „Messung von kfz-bedingten Edelmetall-Immissionen in verkehrsnahen Bereichen (MEDIV)“ und „Tunnel-Immissionsmessungen zur Bewertung kfz-spezifischer Emissionen (TIBE)“; Abschlussbericht, Augsburg 2004 (in Vorbereitung)

² Rabl, P., Palme, F.: F+E-Vorhaben „Fein- und Feinstäube im städtischen Raum (FESIS)“; Abschlussbericht, Augsburg 2004 (in Vorbereitung)

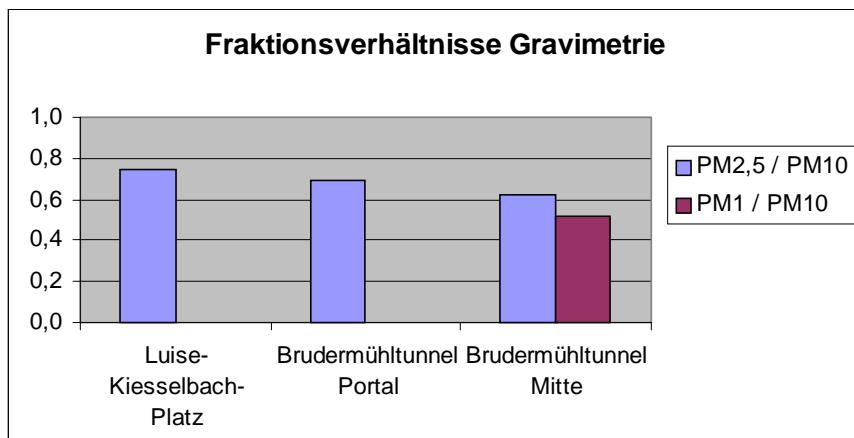
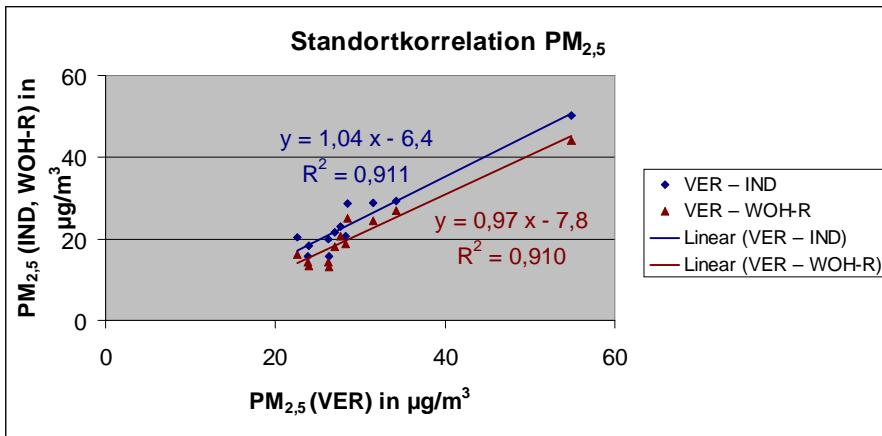
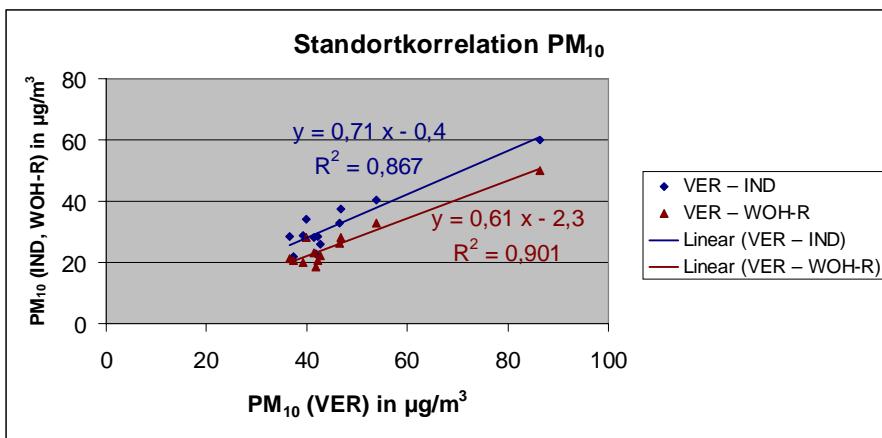


Abb. 1: Emittentenspezifische Fraktionsverhältnisse

Eine fraktionsspezifische Standortkorrelation der Augsburger Messstellen³ zeigt dabei eine vergleichsweise hohe Korrelation der verkehrsnahen Immission mit anderen Emittentengruppen, was auf einen gemeinsamen Hintergrundanteil schließen lässt (Abb. 2). Die Korrelation wird dabei durch die hohen Konzentrationswerte dominiert und nimmt mit fallender Partikelgröße ab. Nimmt man das städtische Randgebiet als repräsentativ für den städtischen Hintergrund an, kann aus diesen Messungen für die betrachteten Standorte abgeleitet werden, dass die industrienahen Anteile zu etwa 10 % und der Verkehr zu etwa 30 % zur PM₁₀-Gesamtbelastung beitragen.



³ 6 emittentenspezifische Standorte: Verkehr (VER), Industrie (IND), Gewerbe (GEW), Wohngebiet innerstädtisch (WOH-I) und Stadtrand (WOH-R), Mischeinflüsse (MIS)

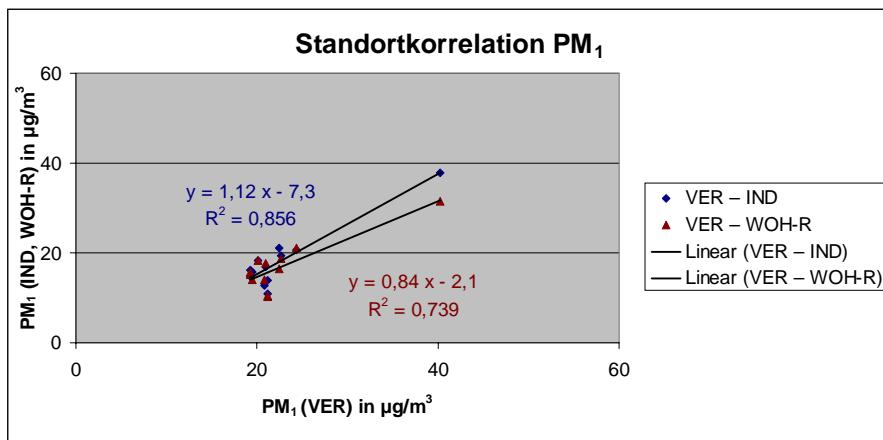


Abb. 2: Fraktionsabhängige Standortkorrelation der Emittentengruppen Verkehr (VER), Industrie (IND) und Wohngebiet/Standrand (WOH-R) in Augsburg

Die Anteile von EC im Schwebstaub (Abb. 3) zeigen an den Münchener Standorten allgemein die typische Zunahme mit steigender Verkehrsnähe (geringerer Hintergrundanteil), bei kleineren Fraktionen (dominierender Abgasanteil) und an Werktagen (höherer Schwerlastanteil). Die entsprechenden Fraktionsverhältnisse lagen bei hoher Verkehrsnähe (in Tunnelmitte) bei 0,9 für PM_{2,5}/PM₁₀ bzw. 0,8 für PM₁/PM₁₀ (Abb. 4).

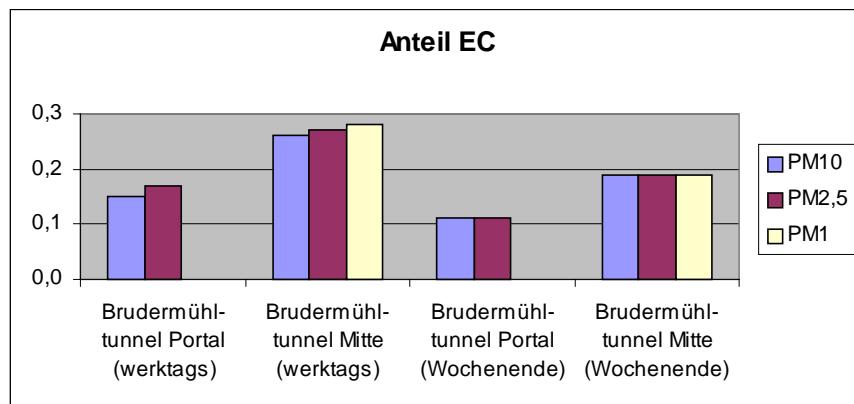


Abb. 3: Fraktions- und wochentagsspezifische EC-Anteile im Schwebstaub

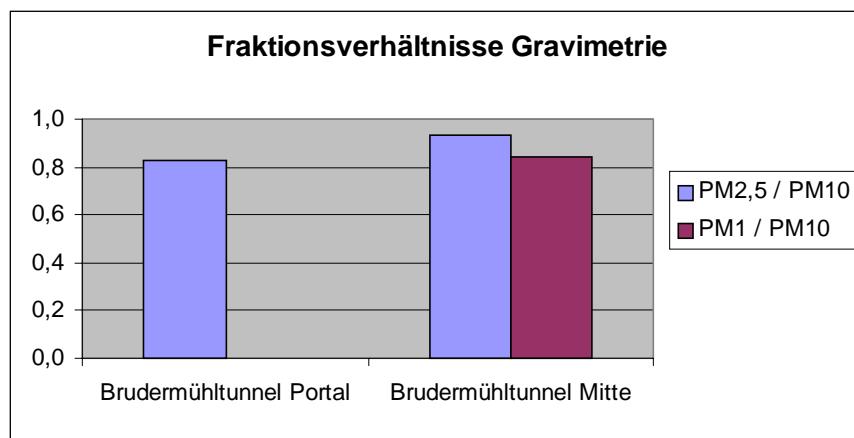


Abb. 4: Fraktionsverhältnisse EC

Die Zusammenhänge zwischen einzelnen und mehreren Staub-Inhaltsstoffen ermöglichen weitergehende Zuordnungen auf die Quelle Straßenverkehr. Hier wird in der Regel von bekannten Verknüpfungen ausgegangen und geprüft, ob sie sich im Staub wiederfinden, wie z.B. bei den Metallen Platin, Palladium und Rhodium aus Katalysatoren (Abb. 5).

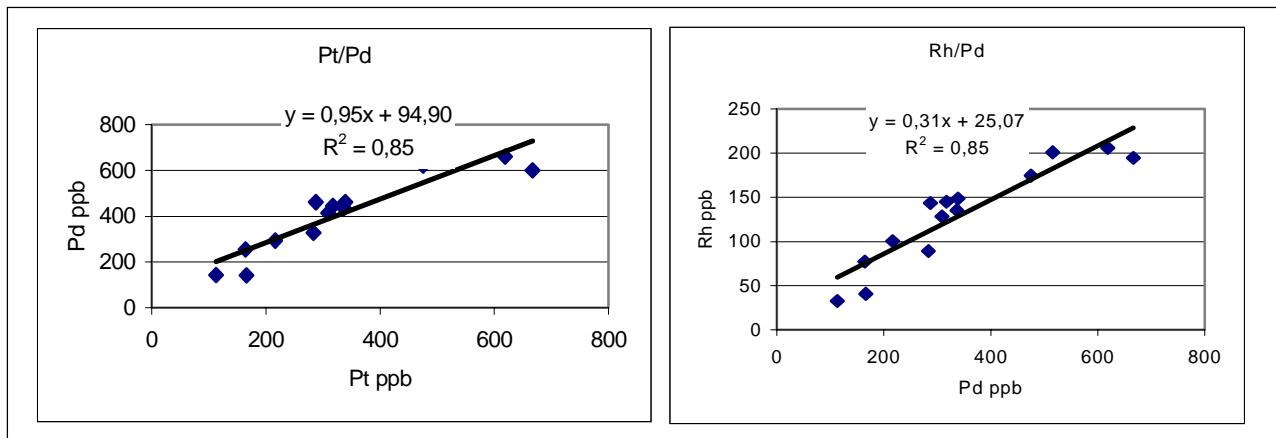


Abb. 5: Mittlere Massekonzentrationsverhältnisse von Katalysatormetallen im Schwebestaub (TSP, PM₁₀, PM_{2,5} und PM₁) von drei verkehrsnahen Messstellen in München (2000, 2001)

Anteil des Bremsabriebs. In Bremsbelägen ist nach eigenen Analysen⁴ und Literaturangaben⁵ Antimon, Chrom, Kupfer, Eisen und Blei in Konzentrationen von jeweils mehr als 1 % in Bremsbelägen enthalten. Bei der genannten Messreihe ergab sich zudem ein einigermaßen guter Zusammenhang der Blei- und Antimon-Immissionskonzentrationen und der Verkehrsstärke (Abb. 6). Aus dem Antimonanteil des PM₁₀-Staubes und der analytisch gestützten Annahme, dass Antimon im Mittel zu 2 % in Bremsbelägen vorliegt und ausschließlich von diesen stammt, ergibt sich ein Bremsabrieb- Anteil von 7-10 % im PM₁₀-Staub des Straßentunnels und etwa 3 % im Abflussbereich der Straßenkreuzung (Luise-Kiesselbach-Platz).

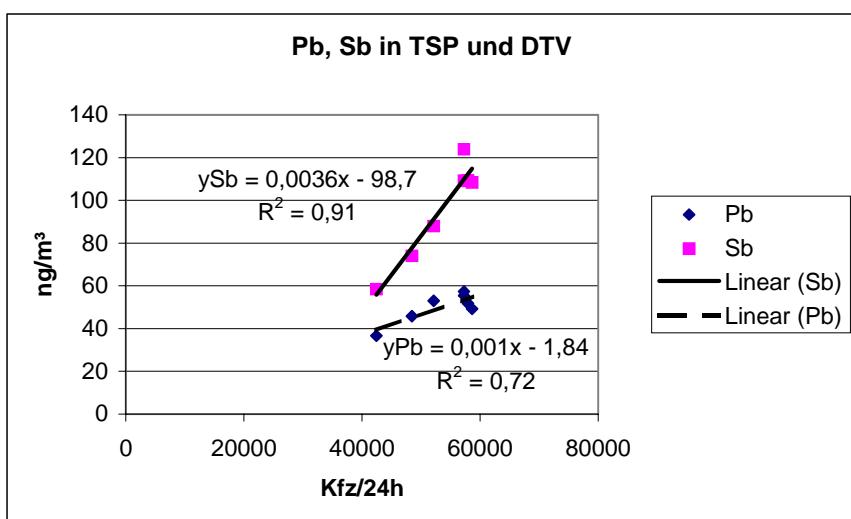


Abb. 6: Abhängigkeiten von Metall-Immissionen in TSP von der Verkehrsstärke

⁴ Bayerisches Landesamt für Umweltschutz, Ref. Z5: Analysenauftrag Nr. 030001, 2002

⁵ Ondov, J.M., Zoller, W.H., Gordon, G.E.: „Trace Element Emissions on Aerosols from Motor Vehicles”; Environm. Sci. Technol. 16, 318-328 (1982)

Anteil des Reifenabriebs. Mit Hilfe der Kenntnis, dass Abgas-EC-(Diesel)-Partikel überwiegend aerodynamische Durchmesser $< 1 \mu\text{m}$ aufweisen⁶, konnte anhand der Messungen am Portal und der Mitte des Brudermühl tunnels aus der Differenz der EC-Konzentrationen in PM₁₀ und PM₁ grob auf den Anteil des Reifenabriebs am Feinstaub geschlossen werden⁷. Dabei können etwa 16 % des Kohlenstoffanteils in PM₁₀ auf Reifenabrieb zurückgeführt werden. Bei einem mittleren Kohlenstoffgehalt von Reifen⁸ von ca. 30 % entsprachen diese Verhältnisse im Tunnel Reifenabriebsanteilen an Werktagen um 14 % und an Wochenenden um 11 % des PM₁₀-Feinstaubes.

Anteil der Diesel-Emissionen. Der Anteil der Diesel-Kfz an Abgas-bürtigen PM₁₀-Partikeln lässt sich grob folgendermaßen abschätzen: Aus den Ergebnissen der erwähnten Messkampagne im Münchener Stadttunnel konnten aus den Verkehrsstärken (ca. 50.000 Kfz/Tag, Lkw-Anteil durchschnittlich p = 8 %) und den Konzentrationsdifferenzen zwischen Tunnelmitte und Tunneleingang PM₁₀- und Ruß-Emissionsfaktoren für Pkw und Lkw abgeleitet werden. Diese betrugen bei PM₁₀ für Pkw 17 mg/km, bei Lkw 193 mg/km, bei EC für Pkw 9 mg/km, für Lkw 56 mg/km.

Bei einem Lkw-Anteil von durchschnittlich 8 % enthalten die PM₁₀-Ruß-Gesamtemissionen von Pkw etwa 50 % Ruß, die von Lkw etwa 30 %. Für das Kfz-Emissionsmodellierungs-Programm Mobilev⁹ ist aus einer Literaturrecherche ein ungefähres EC/Partikel-Verhältnis in Dieselabgasen bei Pkw von 0,6 und bei Lkw von 0,4 abgeleitet worden. Die etwas geringeren Verhältnisse aus unseren Messungen erklären sich daher, dass es sich im Ergebnis um die Summe der Stäube aus dem Motor und anderen Quellen, wie Reifenabrieb, Bremsen und Aufwirbelung handelt.

Geht man von einem Dieselanteil bei Pkw und leichten Nutzfahrzeugen von rund 30 % sowie der Annahme aus, dass die messbaren Abgas-bürtigen Partikel ausschließlich von diesen Diesel-Kfz stammen (die Partikelemissionen von Ottomotoren liegen ca. 4 Größenordnungen unter denen von Dieselmotoren¹⁰) und dass gemäß obiger Betrachtung etwa 84 % des in PM₁₀ gemessenen elementaren Kohlenstoffs aus Dieselmotorabgas und 16 % aus Reifen stammen, so errechnen sich mit den EC/Partikel-Verhältnissen nach Mobilev (s.o.) PM₁₀-Abgas-Emissionsfaktoren für die Diesel-Pkw und leichten Nutzfahrzeuge von etwa 42 mg/km, für die Lkw von 118 mg/km. Zum Vergleich: Das HBEFA¹¹ weist für das Jahreskollektiv 2001 für den auf die untersuchte Straße anwendbaren Fahrmodus „Innerort-Hauptverkehrsstraße > 50 km/h“ ($v_{\text{mittel}} = 58,4 \text{ km/h}$) ohne Berücksichtigung der leichten Steigung der Straße von 0,7 % mittlere Partikelemissionen bei Diesel-Pkw von ca. 70 mg/km und bei schweren Nutzfahrzeugen von 224 mg/km aus. Partikel-

⁶ Drechsler, S.: „Ermittlung von Art und Umfang der Partikelemissionen von Dieselmotoren“; Bericht der Landesanstalt für Umweltschutz Baden-Württemberg, 1999

⁷ A. Rauterberg-Wulf: „Beitrag des Reifen- und Bremsabriebs zur Rußemission an Straßen“; Fortschrittberichte VDI, Reihe 15: Umwelttechnik, Nr. 202 (1999)

⁸ Umweltbundesamt: „Die Belastung der Umwelt durch Reifenabrieb“; Umwelt 6, 292 (1998)

⁹ FIGE GmbH: „Maßnahmen orientiertes Berechnungsinstrumentarium für die lokalen Schadstoffemissionen des Kraftfahrzeugverkehrs“; Forschungsvorhaben 105 06 044 im Auftrag des Umweltbundesamtes; Herzogenrath 1996

¹⁰ „A Study of the Number, Size & Mass of Diesel and Gasoline Vehicles under Steady State and European Driving Cycle Conditions“; Concawe Report 98/51 (1998)

¹¹ INFRAS AG: Handbuch der Emissionsfaktoren des Straßenverkehrs 1980-2020, Version 1.2; Hrsg. Umweltbundesamt, Berlin 1998

Emissionen in ähnlicher Größenordnung waren auch im Rahmen eines im LfU durchgeführten F+E-Vorhabens bei Fahrversuchen mit einem Mittelklasse-Diesel-Pkw und einem 9t-Bus unter verschiedenen Geschwindigkeitsregimes festgestellt worden¹² (bei unterschiedlicher Fahrweise um 50 km/h: 49-74 mg/km beim Pkw, 84-158 mg/km beim Lkw).

Das Verhältnis des Abgas-bürtigen PM₁₀ zwischen Diesel-Pkw und Lkw im vermessenen Tunnel beträgt 57 % zu 43 %, d.h. die Motorabgase von Diesel-Pkw+Leichte Nfz und Lkw tragen etwa gleich zur PM₁₀-Emission bei.

Die Differenzen zu den aus den Messungen abgeleiteten PM₁₀-Gesamtemissionsfaktoren betragen für Lkw etwa 40 %, für Pkw etwa 26 % (Gesamtverkehr: 27 %) und sind den Quellen Bremsabrieb, Reifenabrieb und Aufwirbelung zuzuordnen.

Die bisher getroffene Feststellung, dass die Aufwirbelung auf Stadtstraßen ein Mehrfaches der Abgasemissionen betragen kann¹³ und insbesondere die Anwendung der modifizierten EPA-Formel für Staubaufwirbelung und Straßenabrieb¹⁴ muss deshalb kritisch hinterfragt werden.

¹² Rabl, P., Deimer, R., Ottmüller, B., Gärtner, H.: „Auswirkungen von verkehrsbezogenen Maßnahmen auf die Emissionen von Partikeln, Benzol und Stickstoffdioxid“, Tätigkeitsbericht 2002 des Bayerischen Landesamtes für Umweltschutz, Augsburg 2002

¹³ Niedersächsisches Landesamt für Ökologie: „Feinstaub- und Schadstoffbelastungen in der Göttinger Straße Hannover“; Kurzbericht in der Reihe „Nachhaltiges Niedersachsen“ Nr. 24, Hannover 2003

¹⁴ Lohmeyer, A., Düring, I.: „Validierung von PM₁₀-Immissionsberechnungen im Nahbereich von Straßen und Quantifizierung der Feinstaubbildung von Straßen“; Projekt 2286/C; Auftraggeber: Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Berlin und Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Dresden, Bericht Juni 2001

B.12 Untersuchung der PM10-Zusammensetzung zur Identifizierung des Hauptverursachers – Zwischenbericht

**E. Danninger, W. Mayrhofer, G. Minniberger (Amt der
Oberösterr. Landesregierung)**

Untersuchung der PM10-Zusammensetzung zur Identifizierung des Hauptverursachers - Zwischenbericht

Elisabeth Danninger, Wolfgang Mayrhofer, Günter Minnberger (Amt der Oberösterreichischen Landesregierung, Linz)

PM10-Messungen

In Oberösterreich wird derzeit an 14 Messstellen PM10 gemessen, davon an 4 Stellen gravimetrisch, sonst überwiegend mit TEOM-Geräten. Im Jahr 2003 wurden sowohl im Ballungsraum Linz als auch außerhalb so viele PM10-Tagesmittelwerte über $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ registriert, dass auf Grund der Gesetzeslage eine Statuserhebung zur Ermittlung der Hauptverursacher und die Erstellung eines Maßnahmenkatalogs erforderlich ist. Die Überschreitungen traten überwiegend in den ersten 3 Monaten des Jahres auf.

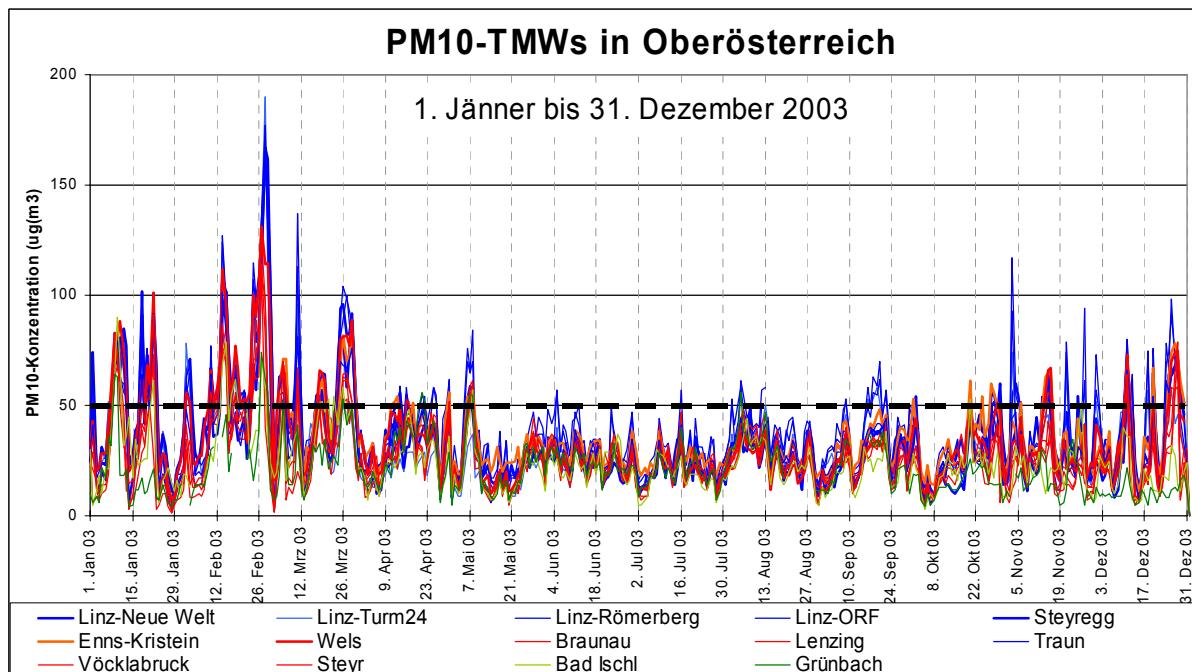


Abbildung 1: PM10-Tagesmittelwerte 2003, alle Stationen (Stationen im Ballungsraum blau, im Alpenvorland rot, im Bergland grün)

Um aus der Staubzusammensetzung Rückschlüsse auf die Quellen zu ziehen, wurde der PM10-Staub an 4 Standorten mit unterschiedlicher Emittentencharakteristik mittels High-Volume-Sampler täglich gesammelt und analysiert.

	Lage	Siedlungsstruktur	Entfernung Verkehr	Entf. Punktemittenten
Linz-Neue Welt	Zentrum des Ballungsraums	Stadt mit 200000 EW, Westlich der Station Wohngebiet, östlich Industriegelände	Straße 20 m (JDTV 30000, SV 10 –15 %), Eisenbahn 50 m	Eisen- und Stahlindustrie 300 m, Chemische Industrie 500m
Steyregg	Rand des Ballungsraums	Landwirtschaft, Einzelhäuser	Straße 300 m horizontal, 100 m tiefer (JDTV 19000, SV 8%)	Eisen- und Stahlindustrie 1000 m, Chemische Industrie 1000m
Wels	Alpenvorland	Stadt mit 50000 EW, Zentrum (Schule, Krankenhaus)	Straße 50 m (JDTV 20000, SV 15%)	Klein- und Mittelbetriebe
Enns-Kristein	Alpenvorland	Autobahn, Landwirtschaft	Autobahn 5 m (JDTV 60000, 20% SV)	keine

Tabelle 1: Messstellen

Derzeit liegen die Ergebnisse der Wägung bis Jahresende, die Analysen der Ionen und Schwermetalle bis Anfang September vor.

Von den 4 Stationen liegen 2 im Ballungsraum Linz im Einfluss der Schwerindustrie. Die eine (Linz-Neue Welt) liegt zusätzlich nahe einer stark befahrenen Straße und Bahnlinie und einem gemischten Wohn- und Gewerbegebiet, die andere (Steyregg) hat so gut wie keine lokalen Emissionsquellen.

Von den beiden Stationen außerhalb des Ballungsraums ist die eine (Enns-Kristein) unmittelbar verkehrsnah situiert und die Autobahn ist auch der einzige Nahemittent. Die andere (Wels) ist ähnlich wie Linz-Neue Welt in einem gemischten Wohn- und Gewerbegebiet situiert, nur ohne Schwerindustrie.

Ionenchromatographische Analysen

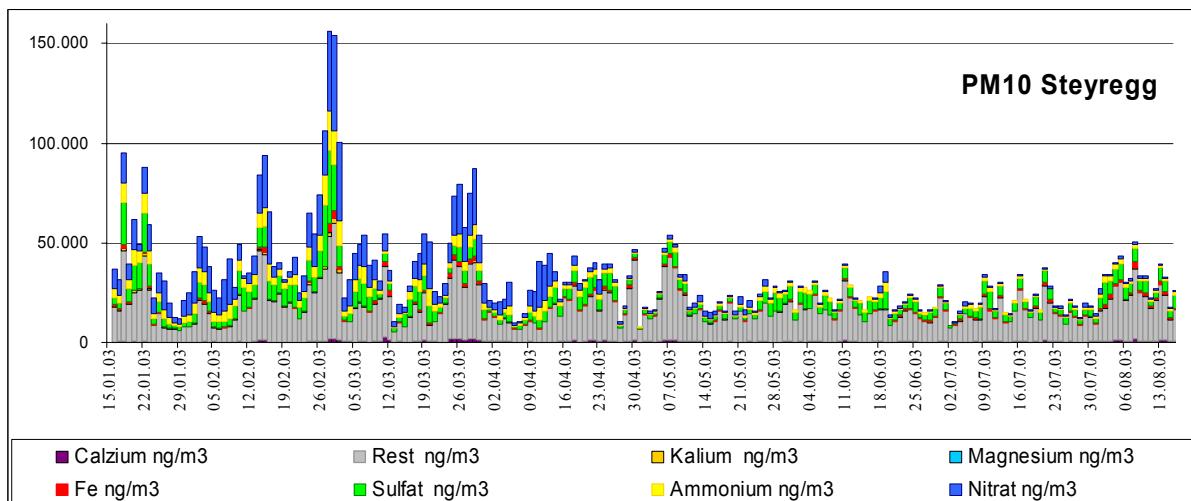


Abbildung 2: Zusammensetzung der PM10-Tagesproben in Steyregg

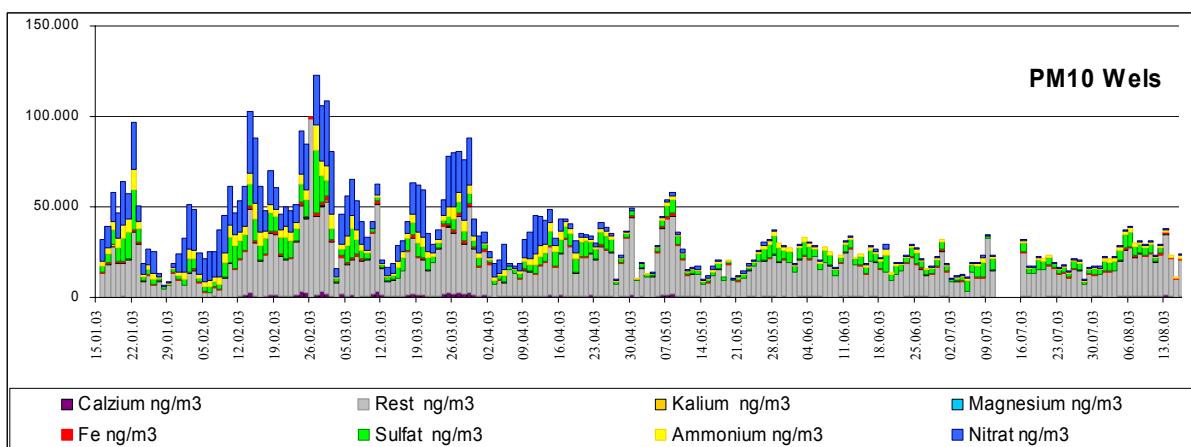


Abbildung 3 : Zusammensetzung der PM10-Tagesproben in Wels

Das Überraschendste an den Ergebnissen der ionenchromatographischen Analyse war einerseits die große Ähnlichkeit zwischen den Messstellen und andererseits der hohe Gehalt, insbesondere von Nitrat, in den ersten Monaten des Jahres.

An einzelnen Tagen wurden Nitratgehalte von bis 50 µg/m³ erreicht, was bedeutet, dass allein das in der Luft vorhandene Nitrat schon nahezu eine Grenzwertüberschreitung verursachte. Ab Mai fehlte dagegen Nitrat praktisch völlig.

Der Ammoniumgehalt sank gleichzeitig mit dem Nitratgehalt in der warmen Jahreszeit ab, verschwand aber nicht völlig, sondern ging lediglich auf etwa die Hälfte zurück.

Der Sulfatgehalt schien dagegen keinen Jahresgang aufzuweisen, sank aber deutlich bei Regenfällen.

Der Ursache für die hohen Nitratwerte muss noch nachgegangen werden. Falls es sich um ein großräumiges Phänomen handelt, müssten in den benachbarten Bundesländern Salzburg und Niederösterreich, aber auch in Bayern, ähnlich hohe Konzentrationen aufgetreten sein. In dem Fall sind vor allem die Stickoxidemissionen aus dem Verkehr als Hauptquelle verantwortlich zu machen.

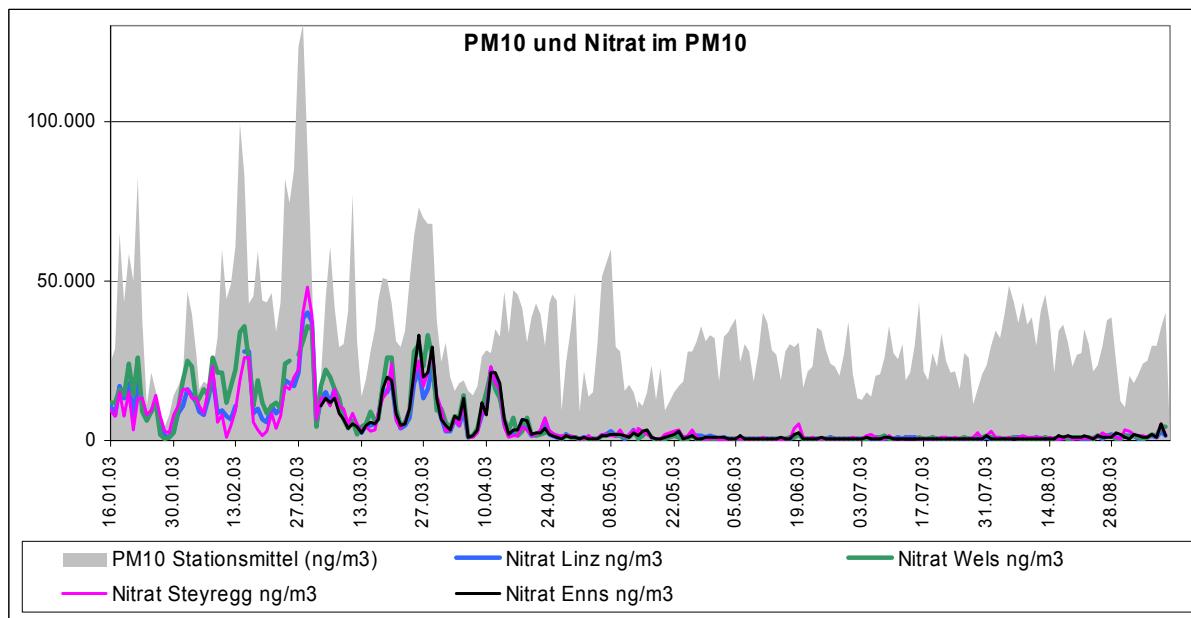


Abbildung 4: Nitrat an den 4 Messstellen und PM10 als Mittel aller Stationen

Die Ursache für das plötzliche Verschwinden des Nitrats dürfte jedenfalls mit den meteorologischen Verhältnissen zu tun haben. Der Winter dauerte 2003 sehr lange und noch im April gab es einen Kälteeinbruch mit Schnee und kräftigem Frost. Danach wurde es aber übergangslos Sommer. Innerhalb weniger Tage kletterten die Temperaturen auf bis zu 30°.

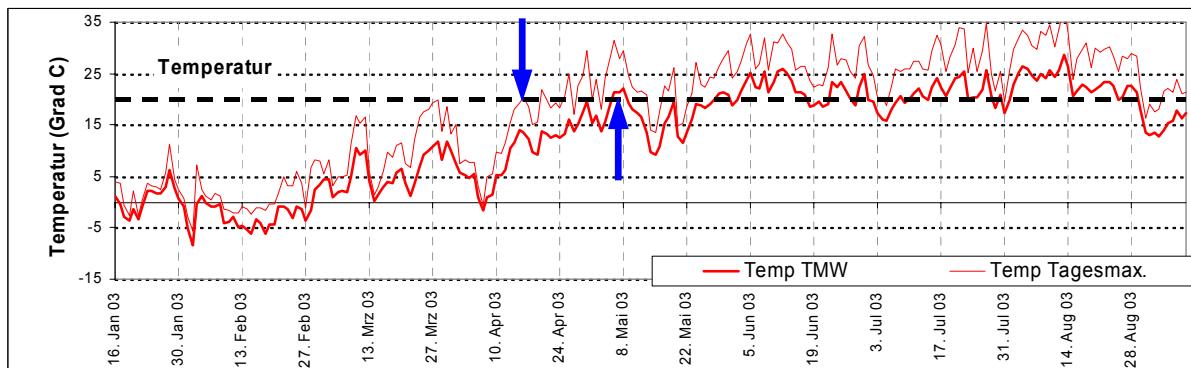


Abbildung 5: Lufttemperatur Tagessmittelwert und Tagesmaximum

Gleichzeitig mit dem Temperaturanstieg ging auch der Nitratgehalt zurück, und zwar schon ab einem Tagesmaximum von 20°C, und war bei 30°C praktisch verschwunden.

Indessen gab es gerade während dieses verfrühten Sommereinbruchs noch einzelne Tage mit erhöhter Staubbelastung, und zwar den 30. April und den 7. und 8. Mai. An diesen Tagen war der Staub völlig anders zusammengesetzt als in den Monaten zuvor und enthielt kaum Ionen. Da die Trajektorien direkt aus Nordafrika kamen, dürfte hier eine Fernverfrachtung von Saharastaub mitgespielt haben.

Im Mittel über den bisherigen Messzeitraum Mitte Jänner bis Anfang September 2003 bestanden die Staubproben zu ca. 1/3 aus den Ionen Nitrat, Sulfat und Ammonium.

Betrachtet man nur die Tage mit PM10 über 50 µg/m³, so waren es in Linz 40%, in Steyregg 47% und Wels 49%, also fast die Hälfte des Staubs bestand aus sekundären Ionen.

Dieses Ergebnis ist deshalb überraschend, weil bereits in den Jahren zuvor ähnliche Analysen durchgeführt wurden – allerdings in geringerem Ausmaß – und damals im Ballungsraum der

Ionengehalt des Staubs an belasteten Tagen eher geringer war als im Durchschnitt. Außerhalb des Ballungsraums waren die relativen Ionengehalte an belasteten Tagen auch damals ähnlich hoch, Tage mit hohen PM10-Konzentrationen waren aber sehr viel seltener als 2003.

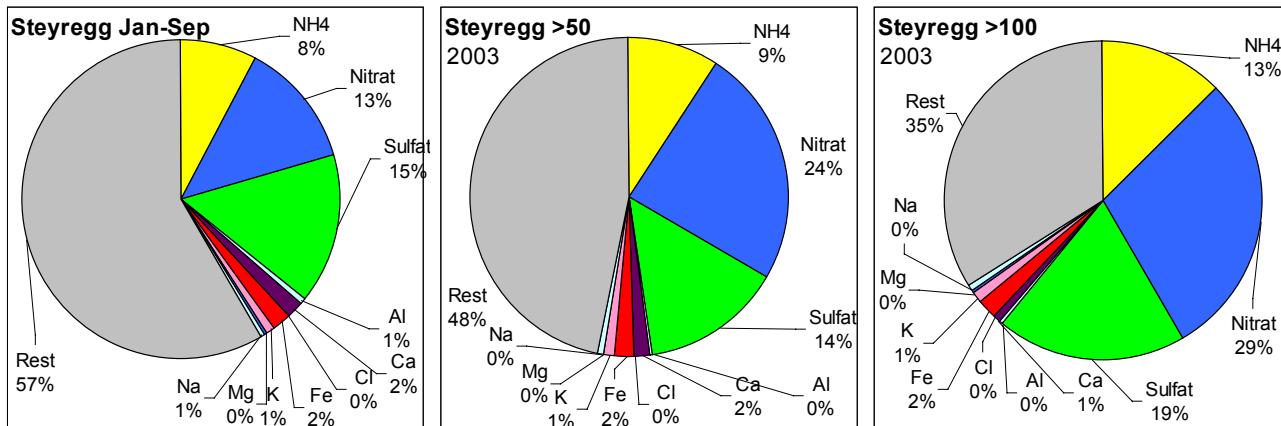


Abbildung 6: Staubzusammensetzung in Steyregg 2003, alle Tage und Tage über 50 bzw. 100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ PM10

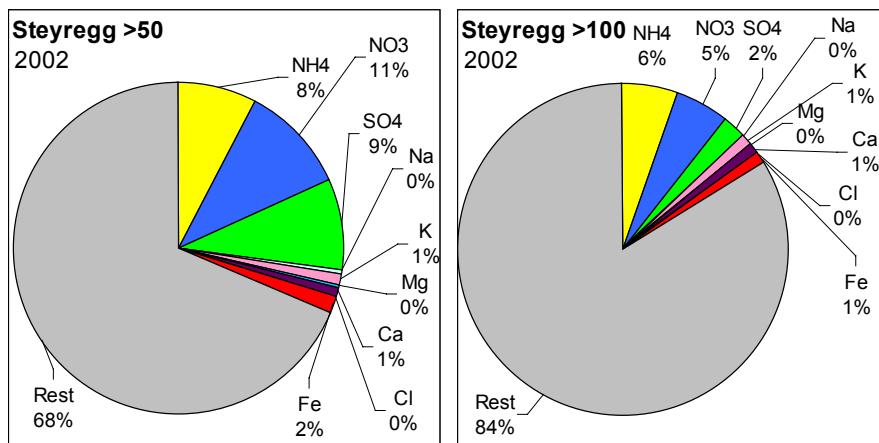


Abbildung 7: Staubzusammensetzung in Steyregg 2002 (Tage über 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ und über 100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

Daraus wurde bisher der Schluss gezogen, dass die sekundären Salze, die sich aus Gasen gebildet und großräumig fernverfrachtet haben, zwar zu Basisbelastung erheblich beitragen, aber bei Episoden mit hohen PM10-Konzentrationen gegenüber lokalen Quellen eine untergeordnete Rolle spielen.

Die Ergebnisse von 2003 zeigen aber, dass es sinnvoll sein kann, den Schwerpunkt der Anstrengungen in Richtung Stickoxidminderung zu legen. Europaweit effektive Maßnahmen bei den in der NEC-Richtlinie geregelten Gasen können einen wesentlichen Fortschritt auch zur Lösung des Partikelproblems bewirken.

Analysen mit ICP-MS

Während der Ionengehalt an allen Stationen sehr ähnlich war, zeigten sich bei den Schwermetallen differenziertere Profile.

In den folgenden Grafiken sind die relativen Gehalte in mg/kg PM10 dargestellt. Die Verläufe wurden durch die Bildung von gleitenden Mittelwerten über 7 Tage geglättet. In den Diagrammen sind gleichzeitig Temperatur, Windgeschwindigkeit und Niederschlag ebenfalls in geglätteter Form dargestellt. Neben den Stationsnamen ist in Klammer der Gesamtmittelwert angezeigt.

Schwermetalle wie Eisen, Mangan, Zink und Cadmium waren in Linz und Steyregg gegenüber den Standorten ohne Schwerindustrie angereichert. Das traf auch auf Blei zu, dessen Hauptquelle zumindest hier nicht mehr wie früher der Verkehr ist.

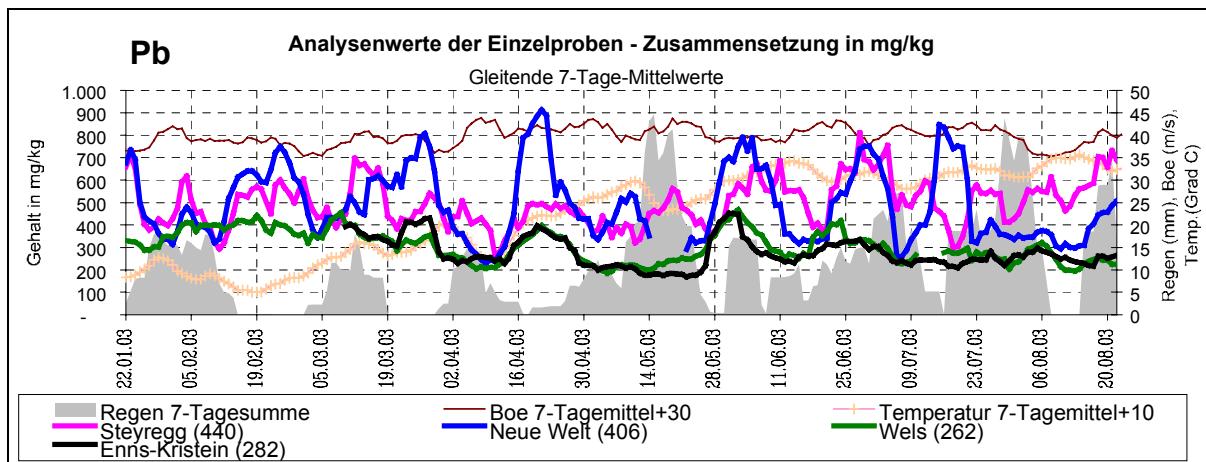


Abbildung 8: Blei im PM10 (gleitende 7-Tagesmittelwerte in mg/kg)

Umgekehrt scheint es beim Kupfer zu sein. Der Staub der verkehrsfernen Station Steyregg enthält nicht einmal halb soviel Kupfer wie der der verkehrsnahen Stationen.

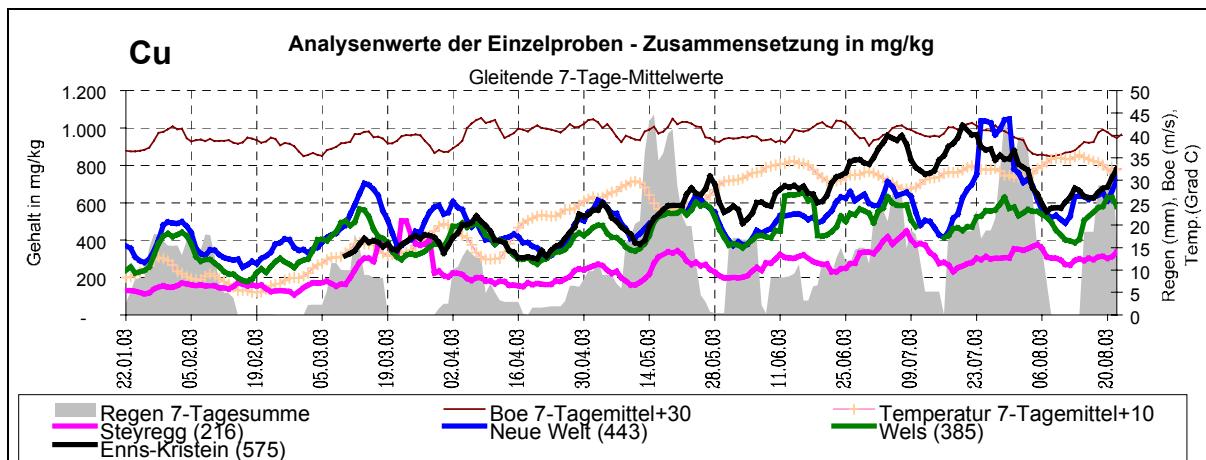


Abbildung 9: Kupfer im PM10 (gleitende 7-Tagesmittelwerte in mg/kg)

Der Gehalt im PM10 an Aluminium und Magnesium scheint dagegen mit der Temperatur zu steigen. Ein Teil dieses Effekts kommt durch das Verschwinden des Nitrats bei hohen Temperaturen zustande. Aber auch wenn man den Gehalt auf das nitratfreie PM10 bezieht, war er im Jänner und Februar geringer als später. Möglicherweise hat die Schneedecke die Aufwirbelung von Erde verhindert.

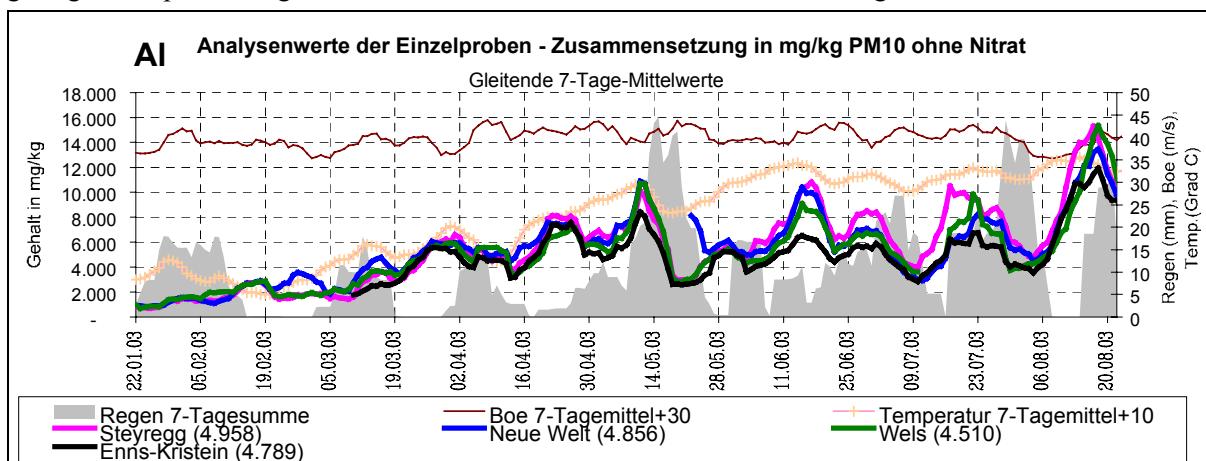


Abbildung 10: Aluminium im PM10 (gleitende 7-Tagemittelwerte in mg/kg)



Bei den hier dargestellten Daten handelt es sich erst um Zwischenergebnisse. Nicht nur, dass der Messzeitraum noch unvollständig ist, es ist auch der große Bereich von Inhaltsstoffen, der in den Diagrammen als „Rest“ bezeichnet ist, noch nicht untersucht. Dabei handelt es sich um so wichtige Bestandteile wie den organischen, anorganischen und elementaren Kohlenstoff sowie einen Großteil der Mineralbestandteile.

Auch wurden die Daten bisher nur optisch kontrolliert. Mit Hilfe eines Rechenmodells lassen sich vermutlich weitere nicht so augenfällige Zusammenhänge aufklären.

Literatur

Symposium „Particulate Matter“, Österreichische Akademie der Wissenschaften, Wien, Dezember 2002, <http://www.oeaw.ac.at/krl/pmsymposion/symposionpapers.html>

Hauck et al., AUPHEP (Austrian Project on Health Effects of Particulates), Österreichische Akademie der Wissenschaften, 3. Zwischenbericht 2001

E. Scheicher, PM10 in Österreich, Amt der Niederösterreichischen Landesregierung, Baden März 2003

E. Danninger, Episoden hoher Staubbelastung im Jahr 2002, Amt der OÖ. Landesregierung, Linz Mai 2003, http://www.ooe.gv.at/umwelt/luft/luftguet/episoden_staub.htm

Kuhlbusch, Quass, Fissan, Identifizierung von Quellen des Feinstaubs - Grundlagen, Methoden und Ergebnisse, in: Neuere Entwicklungen bei der Messung und Beurteilung der Luftqualität, Tagung Schwäbisch Gmünd Juni 2002, VDI Bericht 1656

Astrid C. John, Probenahme und chemische Analytik von korngrößenfraktionierten Immissions- und Emissionsaerosolen, Dissertation Universität Duisburg 2002

Ministerium für Umwelt, Naturschutz, Landwirtschaft und Verbraucherschutz Nordrhein-Westfalen (Hrsg.); Workshop PMx-Quellenidentifizierung: Methoden und Ergebnisse, September 2001, Konferenzbericht

Brüggemann et al., Korngrößendifferenzierte Identifikation der Anteile verschiedener Quellgruppen der Feinstaubbelastung, Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Leipzig 2000



B.13 Ostdeutschland 1990 bis heute: Veränderung der Schadstoffbelastung, ihrer Quellen und Wirkung auf die Gesundheit

J. Cyrys, A. Peters, M. Stölzel, M. Pitz, J. Heinrich (GSF)

Luftschadstoffe in ausgewählten Regionen Ostdeutschlands: Trend, Quellen und gesundheitliche Wirkung

Josef Cyrys^{1,2)}, Annette Peters²⁾, Matthias Stölzel^{1,3)}, Mike Pitz¹⁾, Joachim Heinrich²⁾

1) Ludwig-Maximilians-Universität München, Institut für Medizinische Informationsverarbeitung, Biometrie und Epidemiologie, München

2) GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, Institut für Epidemiologie, Neuherberg

3) GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, Projektfeld „Gesundheitsrelevanz von Aerosolen“, Neuherberg

Veränderungen der Luftbelastung in Ostdeutschland

Die politische Umwälzung im Ostblock brachte grundsätzliche Änderungen der politischen, ökonomischen und sozialen Verhältnisse in Ostdeutschland mit sich. Die Schließung industrieller Großbetriebe und die Ablösung der heimischen Kohle als Hauptenergeträger durch Erdgas führten bereits kurz nach der deutschen Wiedervereinigung zu einem deutlichen Abfall der SO₂--, NO_x- und TSP-Konzentrationen (TSP = total suspended particles, Schwebstaub) in Ostdeutschland. So beobachtete man in Erfurt in dem Zeitraum 1991-1998 einen Rückgang der Jahresmittelwerte der TSP-Konzentration um 58 %, der PM_{2.5} Konzentration um 74 % und der SO₂ Konzentration um 91 % (Ebelt et al., 2001). Allerdings hat die Partikelanzahlkonzentration der Partikel zwischen 10 und 30 nm im selben Zeitraum um 115 % zugenommen. Es zeigte sich, dass gravierende Veränderungen in der Partikelgrößenverteilung stattgefunden haben (das Verhältnis der ultrafeinen Partikel zu TSP ist um 500 % angestiegen). Diese Beobachtungen aus Erfurt wurden auch in Sachsen-Anhalt reproduziert (Pitz et al. 2001). Dies deutet darauf hin, dass diese Veränderungen des Umweltaerosols auch für andere Gebiete Ostdeutschlands außer Erfurt charakteristisch sind. Es wurde postuliert, dass die drastische Reduktion größerer Partikel in den letzten Jahren dazu geführt hat, dass der früher sehr effektive *scavangig effect* (Auffangen von ultrafeinen Partikeln durch feine und grobe Partikel) heute wegfällt (Kreyling et al., 2003).

Diese Veränderungen werden bei der Betrachtung des zeitlichen Trends der Partikelanzahl- und Massekonzentration in Erfurt deutlich (Abb 1). Während die PM_{2.5} Massekonzentration in den 90er Jahren deutlich abfiel (von 82 µg/m³ im Winter 1991/92 auf 21 µg/m³ im Winter 2000/2001), stieg die Partikelanzahlkonzentration der ultrafeinen Partikel (0.01-0.10 µm) im Winter 1995/96 zunächst auf 23 400 cm⁻³ an, und blieb seit dem Winter 1998/99 bei ca. 15 000 Partikel /cm³ in etwa stabil.

Die Änderung des mittleren Tagesprofils der Partikelanzahlkonzentration im Größenbereich 10-30 nm macht die Zunahme dieser Partikelfraktion in den letzten Jahren deutlicher (Abb. 2). Diese Zunahme ist für die Wochentage stärker ausgeprägt als für das Wochenende.

Der Tagesgang der Partikelanzahlkonzentrationen an Werktagen, mit einem starken Anstieg zwischen 7.00 und 10.00 Uhr (der am Wochenende nicht zu beobachten ist) stützt die Hypothese, dass der Kfz-Verkehr eine der Hauptquellen von ultrafeinen Partikeln darstellt.

Quellenidentifizierung für das städtische Aerosol in Erfurt

Seit September 1995 wurde in Erfurt eine Messstation durch die GSF kontinuierlich betrieben, die die größenspezifische Anzahl- und Massekonzentrationen von Partikeln, gasförmige Luftschadstoffe sowie meteorologische Parameter bestimmt (Wichmann et al.,

2000, Cyrys et al., 2003). Von September 1997 an, wurden an dieser Station Partikel auf einem neunstufigen Berner Impaktor gesammelt. Anschließend wurde die elementare Zusammensetzung der Partikel im Größenbereich zwischen 0,05-1,62 µm (5 Stufen des Berner Impaktors) durch PIXE (proton induced x-ray emission) bestimmt.

Dieser Datensatz bietet die Möglichkeit, eine Quellenzuordnung des Umweltaerosols in Erfurt vorzunehmen, um anschließend die Wirkung der einzelnen Partikelquellen auf die Mortalität zu untersuchen. So wurde in einer Pilotstudie für den Zeitraum September 1997 bis Dezember 1998 eine Quellenzuordnung für das städtische Aerosol in Erfurt vorgenommen und der Einfluss der einzelnen Quellen auf die täglichen Sterbezahlen untersucht.

Zur Quellenzuordnung wurden die Daten zur Elementarzusammensetzung der Partikel sowie weitere Parameter in verschiedenen faktorenanalytischen Modellen untersucht. Ferner wurde eine Procrustes-Rotation der Faktoren, mit aus der Literatur entnommenen Zielelementen, durchgeführt (Stölzel et al., 2004). Die Zeitreihen der täglichen Faktoren-Koeffizienten dienten als Maß für die täglichen Schadstoffkonzentrationen der einzelnen Quellen.

Als Indikatoren für Erdkrustenmaterial wurden Aluminium, Silizium und Titan ausgewählt. Zink und Blei dienten als Verkehrsindikatoren. Der von den Elementen gebildete Faktor war außerdem hoch mit der Anzahlkonzentration ultrafeiner Partikel sowie Kohlenmonoxid, Stickstoffmonoxid und Stickstoffdioxid korreliert. Als weitere Verbrennungsindikatoren dienten Schwefel, Nickel und Vanadium. Die Massekonzentrationen feiner Partikel waren mit diesem Faktor korreliert (Abb. 3). Diese drei Faktoren erklärten 38%, 21% und 26% der Varianz. Ähnliche Faktoren wurden gefunden, wenn man die Elementzusammensetzung separat für die einzelnen Stufen analysiert.

Gesundheitliche Wirkung von feinen und ultrafeinen Partikeln - Kurzzeiteffekte

Epidemiologische Studien zur Kurzzeiteffekten der Partikel untersuchen, ob hohe Partikelkonzentrationen am selben Tag oder mit einigen Tagen Verzögerung mit einem Anstieg der Morbidität oder Mortalität in der Bevölkerung assoziiert sind. Es wird übereinstimmend berichtet, dass bei den derzeit vorkommenden Außenluftkonzentrationen inhalierbarer Partikel (PM_{10} , aerodynamischer Durchmesser kleiner als 10 µm) Kurzzeitwirkungen zu beobachten sind, z.B. erhöhte Sterblichkeitsraten, Verschlechterung von Symptomen bei Asthmatischen und Patienten mit chronischen Atemwegserkrankungen und eine Zunahme des Medikamentenverbrauchs bei diesen Patienten (Dockery and Pope, 1994; Brunekreef et al., 1995, WHO 2000). Darüber hinaus haben zahlreiche Studien auch Auswirkungen von Partikeln auf das Herz-Kreislauf-System aufgezeigt. (Seaton et al., 1995, Peters et al., 1997a, Peters et al., 2001). Es zeigte sich, dass diese Gesundheitseffekte insbesondere auf die feine Partikelmasse ($PM_{2.5}$) zurückzuführen sind (Dockery et al., 1992; Schwartz et al., 1996, Wichmann et al., 2000). Neuere Studien zeigen ferner, dass ultrafeine Partikel (mit einem aerodynamischen Durchmesser < 100 nm) zusätzliche Gesundheitseffekte verursachen können (Peters et al., 1997b, Penttilä et al., 1998, Wichmann et al., 2000, Ibal et al., 2002).

Auch bei der in Erfurt durchgeföhrten Studie „Partikelförmige Luftverunreinigungen und tägliche Mortalität“ (Wichmann et al., 2000) wurden Assoziationen zwischen der Mortalität und der Partikelanzahl- und Partikelmassekonzentration in den verschiedenen Größenklassen beobachtet (Abb. 4). Betrachtet man den zeitlichen Zusammenhang zwischen Partikelexposition und auftretenden Effekten, dann sind die sofortigen Effekte (0 oder 1 Tag Verzögerung) eher mit feinen Partikeln, und um 4 Tage verzögerte Effekte mit ultrafeinen Partikeln assoziiert.

Quellenspezifische Wirkung von Partikeln auf die Mortalität

Weltweit wurde bisher in epidemiologischen Studien überwiegend die Massekonzentration als Indikator für die Partikelbelastung verwendet, viel seltener die Anzahlkonzentration oder Daten über die chemische Zusammensetzung der Partikel. In einer Studie von Laden et al. (2000) wurden Daten zur Elementzusammensetzung der feinen Partikel ($PM_{2.5}$) verwendet, um gesundheitliche Effekte quellspezifischer Partikel zu studieren. Die Autoren konnten zeigen, dass ein Anstieg von $PM_{2.5}$ aus mobilen Quellen und aus der Kohleverbrennung zu einem Anstieg der Mortalität führt, dagegen war der Anstieg von $PM_{2.5}$ aus dem Erdkrustenmaterial mit dem Anstieg der Mortalität nicht assoziiert.

Ähnliche Analyse wurde auch für die im Erfurter Aerosol gefunden Faktoren durchgeführt. Ihre Assoziationen mit der Mortalität wurden in Regressionsrechnungen untersucht, in denen für Trend, Saison, Wochentag und meteorologische Einflüsse adjustiert wurde. Die Ergebnisse sind in der Tabelle 1 exemplarisch dargestellt (für die Berner Impaktor Stufen 3, 4 und 5 und zusammengefasst für die Stufen 1-5). Erhöhte Konzentrationen von aus der Verbrennung stammenden Partikeln der Stufen 4 und 5 waren grenzwertig signifikant mit einer um 5 % bzw. um 3,5 % erhöhten Anzahl der täglichen Sterbefälle assoziiert ($p<0,10$).

Tabelle 1: Relative Risiken und Konfidenzintervalle der Regression der täglichen Mortalität auf die täglichen Konzentrationen der Partikelquellen von Stufe 3 (0.19-0.40 μm), Stufe 4 (0.40-0.80 μm), Stufe 5 (0.80-1.62 μm) und Stufe 1-5 (0.05-1.62 μm), Erfurt, September 1997 – Dezember 1998 (nach Stölzel et al., 2004)

Stufe	Faktor 1 (Verkehr)			Faktor 2 (Erdkrustenmaterial)			Faktor 3 (Verbrennung)		
	RR	95% CI	p	RR	95% CI	P	RR	95%CI	P
3	1,007	0,940-1,078	0,84	0,986	0,936-1,039	0,60	1,037	0,981-1,097	0,20
4	1,001	0,949-1,055	0,97	0,981	0,936-1,028	0,41	1,049	0,996-1,104	0,07
5	1,013	0,960-1,068	0,63	1,004	0,943-1,069	0,90	1,035	0,998-1,073	0,06
1 to 5	0,986	0,936-1,040	0,61	0,978	0,925-1,033	0,42	1,028	0,977-1,081	0,29

Es ergaben sich somit Hinweise auf Assoziationen von Partikeln aus Verbrennungsprozessen mit der Mortalität. Die vorliegenden Ergebnisse reichen jedoch nicht aus, um klare Aussagen zu treffen. Hierzu ist es erforderlich, umfangreichere Zeitreihenstudien mit längeren Beobachtungszeiträumen durchzuführen.

Führt eine verbesserte Luftqualität zu einer Abschwächung der gesundheitlichen Wirkung von Luftschaadstoffen?

Heinrich et al. (2003) zeigten, mittels wiederholter Querschnittsuntersuchungen zur Atemwegsgesundheit bei Kindern aus den drei Orten Bitterfeld, Hettstedt und Zerbst, dass die Verbesserung der Luftqualität in dieser Region von fallenden Häufigkeiten nicht allergischer Atemwegserkrankungen und –Symptome begleitet war (Abb. 5). Diese Ergebnisse weisen auf Langzeitwirkungen von Luftschaadstoffen auf die Gesundheit von Kindern und sind zusätzlich ein Indiz für die Kausalität der gesundheitsschädigenden Wirkung von partikelförmigen Luftschaadstoffen.

Die Effekte einer verbesserten Luftqualität im Bereich der Kurzzeitwirkungen wurden bisher noch nicht nachgewiesen. So wird an unserem Institut seit März 2003 eine neue Studie

‘Verbesserte Luftqualität und deren Einfluss auf die Epidemiologie der Kurzzeiteffekte in Erfurt, Ostdeutschland’ durchgeführt. Diese Studie soll im Hinblick auf die Veränderung der Partikelbelastung in Erfurt seit 1991:

1. die Auswirkungen der Außenkonzentrationen von PM₁₀, PM_{2,5} und der Partikelgrößenverteilung auf die tägliche Sterblichkeitsrate für die Zeitperiode zwischen September 1991 und März 1992 und zwischen September 1995 und März 2002 vergleichen.
2. testen, ob die Auswirkung der Partikelgrößenverteilung auf das relative Risiko der täglichen Mortalität unverändert über die ganze Studie bleibt (ungeachtet der sich ändernden Partikelkonzentrationen).
3. testen, ob die Veränderungen der Konzentrationen von gasförmigen Luftschadstoffen sowie die Veränderungen der Emissionen das relative Risiko von PM₁₀, PM_{2,5} und ultrafeinen Partikeln auf die Mortalität beeinflussen.

Literatur:

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

Cyrys J, Heinrich J, Peters A, Kreyling W, Wichmann HE. 2002. Emission, Immission und Messung feiner und ultrafeiner Partikel. Umweltmed Forsch Prax 7 (2): 67-77.

Cyrys J, Stölzel M, Heinrich J, Kreyling W, Menzel N, Wittmaack K, Tuch T, Wichmann HE. 2003. Sources and Elemental Composition of Ambient Particles in Erfurt, Germany. The Science of the Total Environment 305, 143-156.

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

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

Ebelt S, Brauer M, Cyrys J, Tuch T, Kreyling WG, Wichmann HE, Heinrich J. 2001. Air quality in postunification Erfurt, East Germany: Associating changes in pollutant concentrations with changes in emissions. Environ Health Perspect 109: 325–333.

Frye C, Hölscher B, Cyrys J, Wjst M, Wichmann HE, Heinrich J. Association of lung function with declining ambient air pollution. 2003. Environ Health Perspect 111 (3) :383-388.

Heinrich J, Hoelscher B, Frye C, Meyer E, Pitz M, Cyrys J, Wjst M, Neas L, Wichmann HE. 2002. Improved Air Quality in Reunified Germany and Decreases in Respiratory Symptoms. Epidemiology 13 (4):394-401.

Ibald-Mulli A, Wichmann HE, Kreyling WG, Peters A. 2002. Epidemiological Evidence on Health Effects of Ultrafine Particles. Journal of Aerosol Medicine 15: 189-201.

Kreyling WG, Tuch T, Peters A, Pitz M, Heinrich J, Stölzel M, Cyrys J, Heyder J, Wichmann HE. 2003. Diverging long-term trends in ambient urban particle mass and number

concentrations associated with emission changes caused by the German unification. *Atmospheric Environment*, 37 (27): 3841-3848.

Laden F, Neas LM, Dockery DW, Schwartz J. 2000. Association of fine particulate matter from different sources with daily mortality in six U.S. cities. *Environ Health Perspect* 108 (10): 941-947.

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

Peters A, Döring A, Wichmann HE, König W. 1997a. Increased plasma viscosity during the 1985 air pollution episode: a link to mortality? *Lancet* 349, 1582-1587.

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

Peters A, Dockery DW, Muller JE, Mittleman MA. 2001. Increased Particle Air Pollution and the Triggering of Myocardial Infarction. *Circulation* 103: 2810-2815.

Pitz M, Kreyling WG, Hölscher B, Cyrys J, Wichmann HE, Heinrich J. 2001. Change of the ambient particle size distribution in East Germany between 1993 and 1999. *Atmospheric Environment* 35: 4357-4366.

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

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

Stölzel M, Peters A, Wichmann HE 2003. Daily mortality and fine and ultrafine particles in Erfurt, Germany. In: Health Effects Institute: Revised Analyses of Time-Series Studies of Air Pollution and Health. Special Report. Health Effects Institute, Boston, MA, pp. 231-240.

Stölzel M, Peters A, Cyrys J, Menzel N, Wittmaack K, Heinrich J, Hopke PK, Dockery DW, Wichmann HE. 2004. Sources of fine and ultrafine particles and daily mortality in Erfurt, Germany – a pilot study. Eingereicht.

WHO, World Health Organization (2000): Air Quality Guidelines for Europe – Second Edition. WHO Regional Publications, European Series No. 91, 1-273.

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

Abbildung 1: 9-Jahres Trend der $\text{PM}_{2.5}$ Massekonzentration (blaue Balken) und der ultrafeinen Partikelanzahlkonzentration (gelbe Balken) in Erfurt, Winter 1991/92 bis 2000/2001 (nach Cyrys et al., 2002).

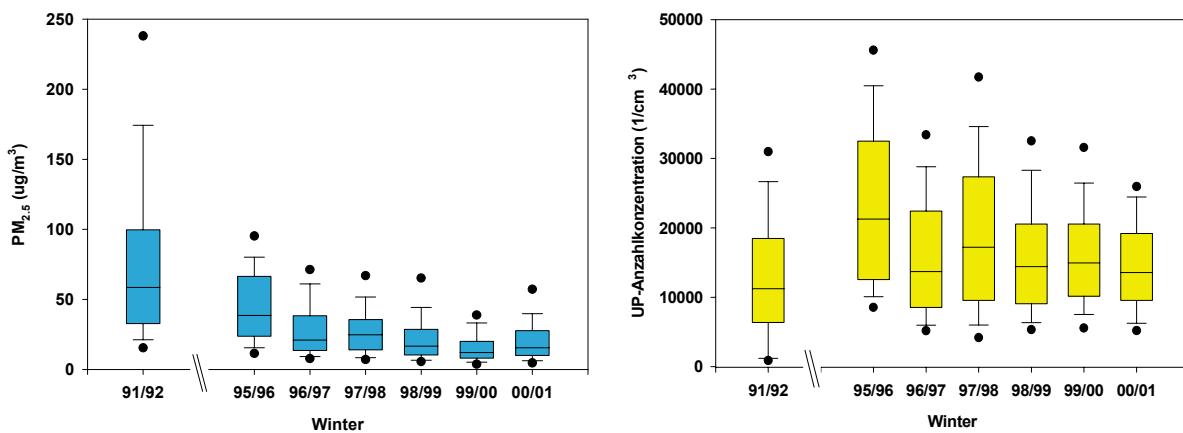


Abbildung 2: Der mittlere Tagesprofil der Partikelanzahlkonzentration im Größenbereich 10-30 nm für den Winter 1991/92 vs. Winter 2000/01 (Oktober – März) in Erfurt an Wochentagen und am Wochenende (Samstag und Sonntag).

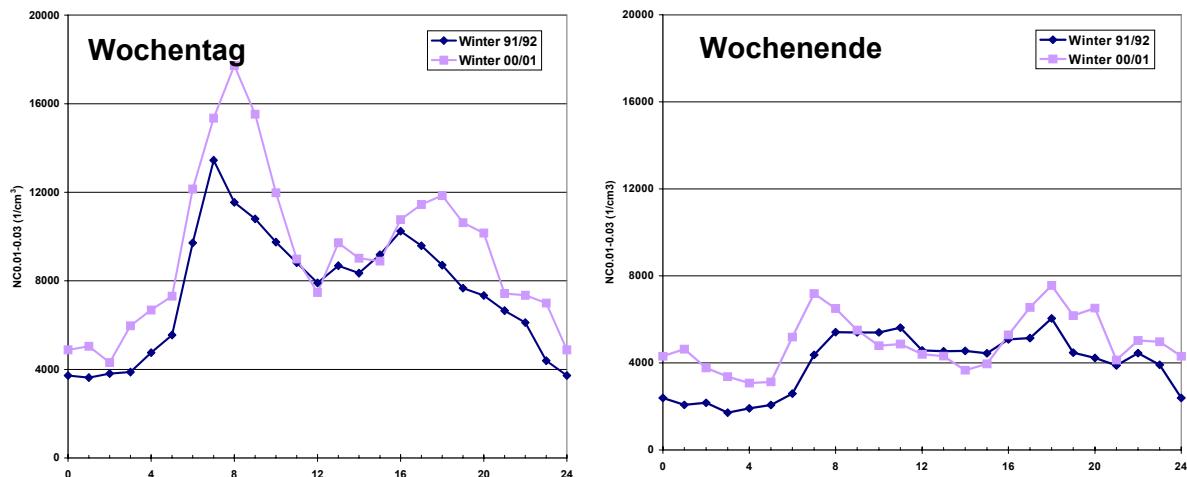


Abbildung 3: Faktoren der Elementarzusammensetzung von Partikeln aus Stufe 1-5 (0.05-1.65 μm) und zusätzlicher Luftsadstoffe, Procrustes-Rotation, drei Faktoren. UP = Anzahlkonzentration der ultrafeinen Partikel 10-100 nm, FP = Massekonzentration der feinen Partikel (PM2.5) (nach Stölzel, 2004).

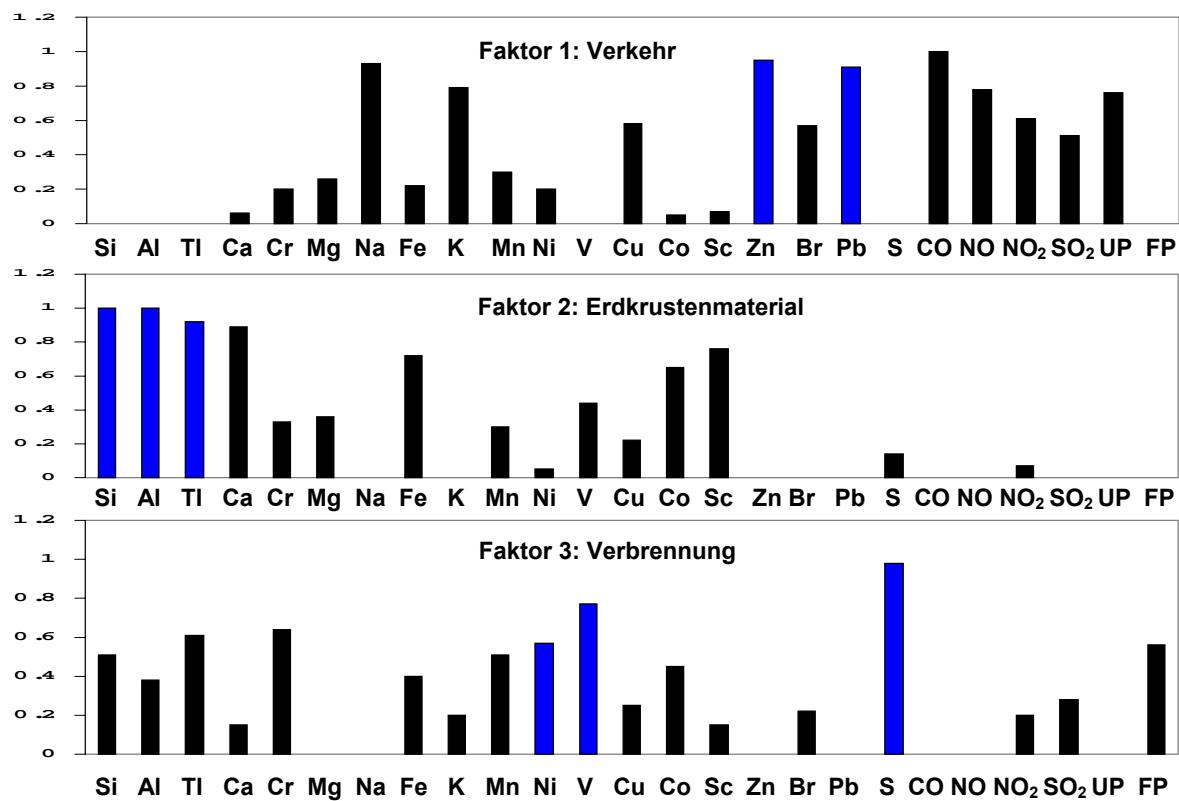


Abbildung 4: Kurzzeitwirkungen: Auswirkungen der verschiedenen Größenklassen der ultrafeinen (UP) und feinen (FP) Partikel auf die tägliche Sterblichkeit in Erfurt 1995 bis 1998. Die UP sind durch Anzahlkonzentration, die FP durch Massekonzentration charakterisiert. Die Verzögerung der Effekte in Tagen (*lags*) zwischen Partikelkonzentration und Sterblichkeit werden unten angegeben (nach Stölzel et al., 2003)

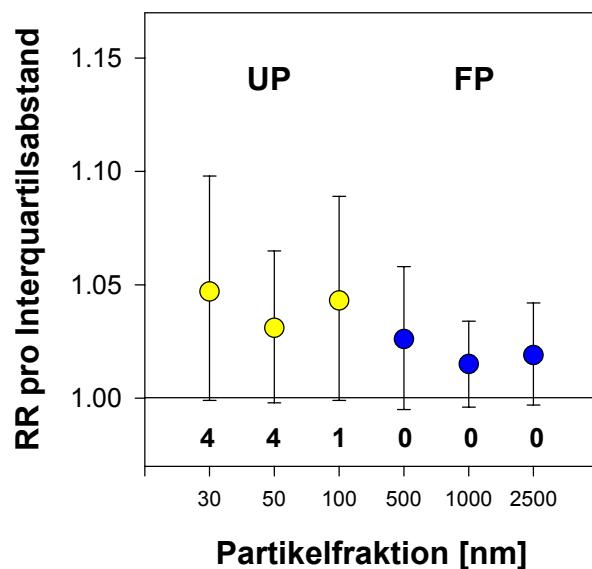
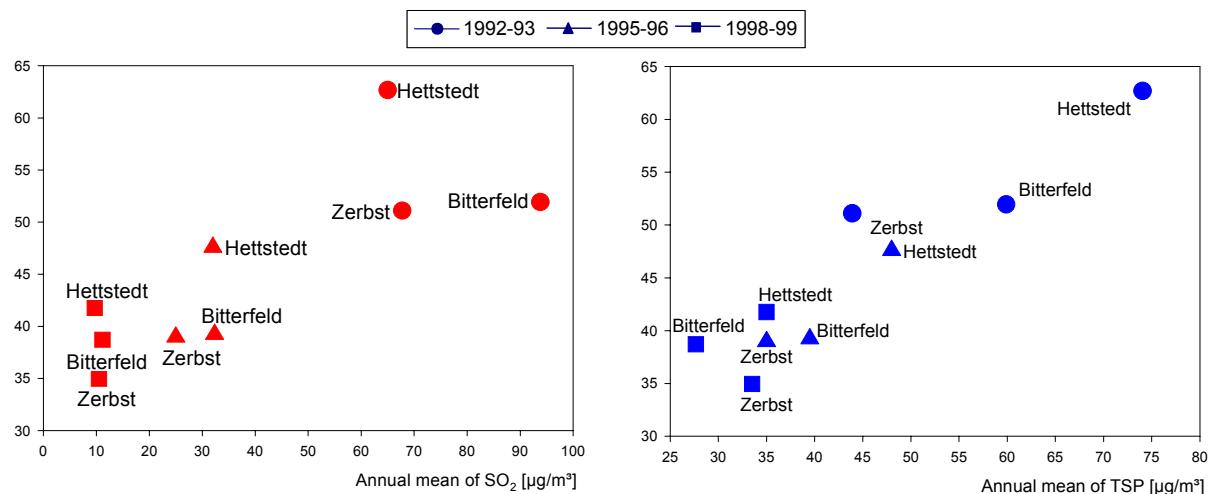


Abbildung 5: Regionsspezifische, alters- und geschlechtsadjustierte Prävalenz der Bronchitis (Lebenszeitprävalenz) bei 5- bis 14-jährigen Kindern, untersucht in den Jahren 1992 bis 1993 (●, n=2138), 1995-1996 (▲, n=2354) und 1998-1999 (■, n=1893) im Vergleich mit Jahresmittelwerten von SO₂ (rot) und TSP (blau) zwei Jahre vor den Surveys (modifiziert nach Heinrich et al., 2002).



B.14 PM-Quellenidentifizierung mittels Impaktormessungen

J. Müller (UBA)

PM-Quellenidentifizierung mittels Impaktormessungen

Jürgen Müller

*Umweltbundesamt, Außenstelle Langen
Paul-Ehrlich-Str. 29, 63225 Langen*

1 Einführung

Die großenfraktionierte Schwebstaubsammlung erfolgt mittels mehrstufiger Impaktoren. Mittels Wägung und Analyse der einzelnen Größenfraktionen wird die Korngrößenverteilung von Gesamtstaub sowie organischer und anorganischer Inhaltsstoffe ermittelt.

Im Nahbereich von Emissionsquellen (z.B. Kfz-Abgase, Straßenstaubaufwirbelung, Kraftwerke, Zementwerke, Wohnquartiere, Ackerstaubaufwirbelung) können deren charakteristische Korngrößenprofile ermittelt werden, wobei es sich hier überwiegend um „Primäraerosole“ handelt. Im Verlauf der luftgetragenen Wanderung wird der Schwebstaub zusätzlich mit „Sekundäraerosolen“ angereichert, die aus Vorläufergasen gebildet werden.

Die in der Immission gemessenen Korngrößenverteilungen ergeben sich aus dem Beitrag vieler verschiedener Quellen. Die Emissionsraten und die Immissionskonzentrationen sind über die Verweilzeit miteinander verknüpft. Die Verweilzeit einer luftgetragenen Substanz hängt von ihren physikalisch-chemischen Eigenschaften und den meteorologischen Randbedingungen ab. Aus den Immissionskonzentrationen kann rückwirkend auf die Größe der Quellbeiträge geschlossen werden.

2 Methodik und Formeln

Im stationären Gleichgewicht („steady state“) eines in die Außenluft gelangten Stoffes wird im Mittel gleichviel abgebaut wie nachgeliefert. Produktion und Abbau des Stoffes halten sich die Waage, so dass die Konzentrationen, über mehrere Tage gemittelt, weitgehend konstant bleiben.

Im stationären Gleichgewicht gilt die Beziehung:

$$(1) \quad E_i = \frac{m_i}{\tau_i}$$

E_i = Emissionsrate des atmosphärischen Stoffes, meist verursacht durch mehrere Quellen

(Angabe allgemein in Tonnen pro Jahr)

m_i = atmosphärische Masse des betrachteten Stoffes

τ_i = mittlere atmosphärische Verweilzeit dieses Stoffes

Für m_i gilt:

$$(2) \quad m_i = c_i \cdot V_o$$

Hierbei ist c_i die Immissionskonzentration des betrachteten Stoffes und V_o das atmosphärische Reaktionsvolumen, das sich über die Fläche erstreckt, über der die durchschnittliche Immissionskonzentration ermittelt wird.

V_o setzt sich aus der betrachteten Landfläche F_o und der Mischungsschichthöhe H_o zusammen. In die Gleichungen (1) und (2) eingesetzt, ergibt sich:

$$(3) \quad E_i = \frac{c_i \cdot F_o \cdot H_o}{\tau_i}$$

Die Trockenverweilzeit τ_{idry} eines Schwebstaubinhaltsstoffes kann mit Kenntnis von dessen „Mittlerem Massendurchmesser (MMD)“ errechnet werden. Der MMD_i wird mit Hilfe eines Impaktors bestimmt, dessen gesammelte Schwebstaubmasse großenfraktioniert analysiert wird. Es gilt die Beziehung (15):

$$(4) \quad \frac{1}{\tau_{idry}} = \frac{V_o}{2H_o} \left[\left(\frac{MMD_i}{d_o} \right)^2 + \left(\frac{d_o}{MMD_i} \right)^2 \right]$$

Unter mitteleuropäischen Bedingungen haben die Konstanten folgende jährlichen Mittelwerte:

$$V_o = 0,1 \text{ cm/s}; \quad H_o = 1000 \text{ m}; \quad d_o = 0,5 \mu\text{m}$$

Die Gesamtverweilzeit τ_i wird durch Addition der Nassverweilzeit τ_{iwet} zu τ_{idry} ermittelt:

$$(5) \quad \tau_i = \tau_{idry} + \tau_{iwet}$$

Unter mitteleuropäischen Bedingungen beträgt τ_{iwet} ca. 6 Tage. Dies bedeutet, dass mittels „Ausregnung“ durch Wolken und „Auswaschen“ durch Niederschlag der Schwebstaub der Außenluft durchschnittlich alle 6 Tage abgebaut wird.

Durch langjährige Immissionsmessungen wurde gefunden, dass sich der MMD_i eines im Schwebstaub enthaltenen Stoffes als Funktion seines spezifischen Dampfdruckes p_s darstellen lässt:

$$(6) \quad MMD_i = -d_o \left(\frac{1}{5} \lg \frac{p_s}{p_o} + 1 \right)$$

$$d_o = 0,5 \mu m; \quad p_o = 10^5 Pa; \quad p_s < 1 Pa$$

Mit Hilfe des Schmelz- und Siedepunktes kann p_s auch für schwerflüchtige anorganische Verbindungen, die die Hauptmasse des luftgetragenen Schwebstaubes sind, näherungsweise errechnet werden:

$$(7) \quad \lg \frac{p_s}{p_o} = -c \frac{T_m}{T} \lg T$$

$$p_o = 10^{14} Pa; \quad T_m = \frac{T_F + T_B}{2}; \quad c = \text{substanzspezifischer Faktor}$$

T, T_F, T_B = Außenlufttemperatur sowie Schmelz- und Siedepunkt in Kelvin.

Der substanzspezifische Faktor schwankt zwischen 3 und 4. Mit Anwendung des Mittelwertes von 3,5 kann schon eine gute Näherung von c erzielt werden.

In Tab. 1 sind errechnete Werte für die MMD's von anorganischen Schwebstaubinhaltsstoffen angegeben.

3 Ergebnisse und Diskussion

Größenfraktionierte Impaktoranalysen mittels AAS, ICP-MS, PIXE, IC, HPLC und GC-MS wurden im Verlauf der letzten drei Jahrzehnte an Messorten unterschiedlicher Luftqualität durchgeführt – insbesondere an ländlichen (rural) und städtischen (urban) Messorten sowie im Bereich von Hauptverkehrsstraßen. Hierbei stellte sich heraus, dass sich trotz deutlicher Unterschiede in den Absolutkonzentrationen die relativen Korngrößenverteilungen der Schwebstaubinhaltsstoffe nahezu gleichbleibend verhielten (13, 14). Jedem Inhaltsstoff kann ein charakteristischer MMD zugeordnet werden.

Die in Tab. 1 errechneten MMD's vieler anorganischer Verbindungen und einiger PAH-Verbindungen mit Hilfe der Gleichungen (6) und (7) entsprechen den Untersuchungsergebnissen, die mit den genannten unterschiedlichen Analysenmethoden erzielt wurden.

Der Schwebstaub der Außenluft kann entsprechend seiner Entstehungsgeschichte in Primärstaub (emittiert von Verbrennungsquellen (V) und sonstigen Quellen (S)) sowie Sekundärstaub, der von Vorläufergasen gebildet wird, unterteilt werden.

Nahezu alle Partikel des Akkumulationsbereiches (Partikeldurchmesser zwischen 0,1 und 2,5 µm), die ca. 50 % zur Gesamtschwebstaubmasse beitragen, sind eine Mischung aus Primärstaub und Sekundärstaub. In Tab. 2a und 2b sind die Primär- und Sekundäranteile des PM₁₀- und PM_{2,5}-Staubes in ruraler Luft dargestellt. Die Hauptmasse wird vom Sekundärstaub verursacht (ca. 60 % für PM₁₀ und ca. 70 % für PM_{2,5}). Fast die gesamte Sekundärstaubmasse ist in Partikeln unterhalb 2,5 µm Durchmesser angereichert.

Der Primärstaub aus Verbrennungsquellen (Autos, Hausbrand, Kraftwerke, Industrieanlagen) ist anthropogen, nur ein Bruchteil wird natürlichen Wald- oder Grasbränden zugeordnet.

Der Primärstaub sonstiger Quellen entstammt hauptsächlich aus Staubaufwirbelungen von der Erdoberfläche (Straßen, Felder, Wälder) und Umschüttungen. Es handelt sich hierbei überwiegend um Grobstaub, der in Partikeldurchmessern oberhalb 2,5 µm angesiedelt ist. Die PM₁₀-Anteile sind hälftig anthropogen und natürlich. Im Falle von PM_{2,5} überwiegt der anthropogene Anteil.

Der Sekundärstaub besteht überwiegend aus Sulfat-, Nitrat- und Ammonium-Ionen, die als partikuläre Folgeprodukte aus den Vorläufergasen SO₂, NO_x und NH₃, die größtenteils aus anthropogenen Quellen stammen, gebildet werden.

Das hochlösliche basische Ammoniak (NH_3) wird durch Reaktion mit Schwefel- und Salpetersäure in Ammoniumsulfat und Ammoniumnitrat überführt. Sulfat und Nitrat konkurrieren um das vorhandene Ammonium. Weil Nitrat bei Außenlufttemperatur semivolatil ist, neutralisiert Ammonium mehr Sulfat als Nitrat. Falls die Sulfatkonzentration ausreichend hoch ist, wird das Überschussnitrat gezwungen als Salpetersäure in die Gasphase zu gehen. Je weniger Sulfat vorhanden ist, desto mehr Nitrat kann in die Aerosolphase transferiert werden. Das Sulfat spielt deshalb trotz enormer Abnahme der SO_2 -Emissionen noch eine dominante Rolle bei der Sekundärstaubmasse. Die PM_{10} -Masse und die Sulfatmasse haben im Konzentrationstrend der letzten Jahrzehnte ein konstantes Verhältnis, wie an der Messstelle Schauinsland (Schwarzwald) gemessen wurde.

Ein Teil des Sekundärstaubes ist auch organischer Natur. Aus aromatischen Vorläufergasen (Benzol, Toluol, Xylool) entstehen durch atmosphärische Oxidation mit OH , O_3 und NO_3 Reaktionsprodukte niedrigen Dampfdruckes, die in die Partikelphase kondensieren.

Ein Teil wird auch aus natürlichen Kohlenwasserstoffen wie Monoterpenen ($\text{C}_{10}\text{H}_{16}$) und Isopren (C_5H_8) gebildet, die von Bäumen und sonstigen Pflanzen ausgedünstet werden.

Die als Sekundärstaub entstandenen Produkte, wie aliphatische Nitrate, Carbon- und Dicarbonsäuren, können jedoch auch als Primärstaub aus Verbrennungsmotoren stammen, so dass deren Quellzuordnung erschwert wird.

Ein Teil des organischen Materials ist auch Primärstaub, der aus biogenen Quellen stammt (ca. 4 % der PM_{10} -Masse). Es handelt sich hierbei um Pflanzenstreu und Mikroorganismen (Pollen, Sporen, Viren, Bakterien).

Elementarer Kohlenstoff (EC), entstanden als kleinste Rußteilchen aus Verbrennungsquellen, ist in der $\text{PM}_{2,5}$ -Masse gebunden und unterliegt ubiquitärer Ausbreitung. Ein geringer Anteil im Grobstaubbereich entsteht auch durch Reifenabrieb.

Metalloxide aus Verbrennungsprozessen sind in Flugasche und Kfz-Abgasen enthalten. Teilweise gelangen sie auch durch Resuspension in die Außenluft. Mineralien entstammen größtenteils der Erdkruste, entstehen durch Winderosion, und ihre Feinstaubanteile können über weite Entfernungen transportiert werden. Durchschnittlich wird auch in Deutschland einmal im Jahr eine Saharastaubeindringung beobachtet. Zuletzt im Februar 2002, als an der Messstelle Schauinsland ein PM_{10} -Tageswert von $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gemessen wurde. Hauptbestandteile des weit transportierten Saharastaubes sind Haematit ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$), Calcit (CaCO_3) und Silikate. Haematit bewirkt die charakteristische Gelbfärbung.

Tab. 1: Errechnete „Mittlere Massendurchmesser (MMD“ von Schwebstaubinhaltsstoffen

MMD (μm)	Schwebstaubinhaltsstoffe
0,1 – 0,2	H_2SO_4 , SbBr_2
0,2 – 0,4	NH_4NO_3
0,4 – 0,6	AlCl_3 , Cr(VI)O_3 , FeCl_3 , KHSO_4 , TINO_3 , BbF
0,6 – 0,8	CHR , BkF , BaP , BeP
0,8 – 1,0	NaNO_3 , U_3O_8 , PER , BghiP , DahA
1,0 – 1,2	As_2O_3 , COR
1,2 – 1,4	As_2S_3 , Cd(met.) , PtO_2 , ZnCl_2
1,4 – 1,6	KNO_3 , TICl
1,6 – 1,8	PbO
1,8 – 2,0	NH_4Cl , $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$, PbCl_2 , PbBr_2
2,0 – 2,2	CdCl_2
2,2 – 2,4	AlF_3 , CuCl_2 , Sb_2S_3 , ThCl_4
2,4 – 2,6	CoCl_2 , KOH , $\text{Sr(NO}_3)_2$
2,6 – 3,0	CuCl , Fe_2O_3 , MnCl_2 , MnSO_4 , Pb(met.) , PdCl_2 , Ti_2O_3
3,0 – 3,5	$\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$, KCl , MgCl_2 , Na_2CO_3 , NaCl , NiS
3,5 – 4,0	CaCO_3 , CaSO_4 , K_2CO_3 , Na_2O , Na_2SO_4 , PdS , RuO_2 , V_2O_5
4,0 – 4,5	CaCl_2 , CdSO_4 , CdS , CoSO_4 , K_2SO_4 , LaCl_2 , NiCl_2 , PbSO_4 , SrCl_2
4,5 – 5,0	CrCl_3 , MgSO_4 , PbS , RhO
5,0 – 5,5	CdO , Cu_2O , Fe_2SiO_4
5,5 – 6,0	CuO , Cu(met.)
6,0 – 6,5	
6,5 – 7,0	Fe_3O_4 , La(met.) , Mn_3O_4 , Ni(met.) , SrSO_4
7,0 – 7,5	Fe(met.) , SiO_2 , TiO_2
7,5 – 8,0	$\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{SiO}_2$, CoO , MnO_3 , Ti(met.)
8,0 – 8,5	NiO , Pd(met.) , Ti_2O_3
8,5 – 9,0	Al_2O_3 , Cr_2O_3 , SrO , VO , ZnO
9,0 – 9,5	Rh(met.)
9,5 – 10,0	CaO , Pt (met.)
10,0 – 10,5	La_3O_3
10,5 – 11,0	Ir(met.) , Ru(met.)
11,0 – 11,5	
11,5 – 12,0	ThO_2
12,0 – 12,5	MgO , UO_2

Tab. 2a: Ruraler PM₁₀-Feinstaub in Deutschland; Primärstaubanteile aus Verbrennungsquellen (V) und sonstigen Quellen (S), Sekundärstaubanteile; anthropogene und natürliche Anteile

PM ₁₀ -rural	Staubart und Anteil	Anteile	
		anthropogen	natürlich
Jahresmittelwert	Primärstaub (V)	20 %	19 %
2001: 13 µg/m ³	Primärstaub (S)	20 %	10 %
	Sekundärstaub	60 %	50 %
		100 %	79 %
			21 %

Tab. 2b: Ruraler PM_{2,5}-Feinstaub in Deutschland; Primärstaubanteile aus Verbrennungsquellen (V) und sonstigen Quellen (S), Sekundärstaubanteile; anthropogene und natürliche Anteile

PM _{2,5} -rural	Staubart und Anteil	Anteile	
		anthropogen	natürlich
Jahresmittelwert	Primärstaub (V)	23 %	22 %
2001: 11 µg/m ³	Primärstaub (S)	7 %	4 %
	Sekundärstaub	70 %	54 %
		100 %	84 %
			16 %

Tab. 2c: Rurale Feinstaubinhaltsstoffe in PM₁₀ und PM_{2,5}

Inhaltsstoffe	PM ₁₀	PM _{2,5}
Masse (Jahresmittel)	13 µg/m ³	11 µg/m ³
Sulfat-Ionen SO ₄ ⁼	20 %	22 %
Nitrat-Ionen NO ₃ ⁻	15 %	15 %
Ammonium-Ionen NH ₄ ⁺	12 %	14 %
Chlorid-Ionen Cl ⁻	2 %	2 %
Metall-Ionen: Na ⁺ , K ⁺ , Ca ²⁺ , Mg ²⁺	6 %	5 %
Organischer Kohlenstoff (OC)	14 %	16 %
Elementarer Kohlenstoff (EC)	9 %	10 %
Metalloxide, Mineralien	15 %	5 %
Wasser und Sonstiges	9 %	11 %
	100 %	100 %

Literatur:

1. Proceedings der „European Aerosol Conference“ von 1984 bis 2001, Journal of Aerosol Science, Vol. 15/3, 16/3, 17/3, 19/7, 20/8, 21/S1, 22/S1, 23/S1, 24/S1, 25/S1, 26/S1, 27/S1, 28/S1, 29/S1(1), 29/S1(2), 30/S1, 31/S1, 32/S1: c/o Elsevier Science, PO Box 211, 1000 AE Amsterdam (Niederlande)
2. VDI-Berichte 429 (1981), 1122 (1994), 1257 (1996), 1443 (1999), c/o VDI Verlag GmbH, Düsseldorf
3. Proceedings der „European Symp.: Physico-Chemical Behaviour of Atmospheric Pollutants“: 1981, 1984, 1986: c/o Reidel Publ. Comp., Dordrecht (Niederlande); 1989: c/o Kluwer Academic Publ., Dordrecht (Niederlande); 1994 (Report EUR 15609/1 und 2/EN), 1997 (Report EUR 17482 EN): c/o European Commission, Directorate XII, B-1049 Brüssel
4. EMEP/CCC-Report 9 (2000) und 8 (1999): c/o NILU, N-2027 Kjeller, Norwegen
5. Report „Health Risk of Particulate Matter from Long-Range Transboundary Air Pollution“: c/o WHO, European Centre for Environment and Health, P.O. Box 10, 3730 AA De Bilt (Niederlande)
6. Bericht „Schwebstaubbelastung in Baden-Württemberg“ c/o LfU, UMEG, Daimlerstr. 5b, 76185 Karlsruhe
7. Jahresbericht zur Immissionssituation 2000 Freistaat Sachsen: c/o Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Zur Wetterwarte 11, 01109 Dresden
8. Gemeinsamer Bericht zur Luftqualität im Schwarzen Dreieck 2000 c/o Umweltbundesamt, Bismarckplatz 1, 14193 Berlin
9. Proceedings „Annual Aerosol Conference (2001): c/o The Aerosol Society, PO Box 34, Portishead Bristol BS 20 7FE (England)
10. Schriftenreihe Umwelt Nr. 270 Luft, Schwebstaub, „Messung und gesundheitliche Bewertung“: c/o Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft, 3003 Bern (Schweiz)
11. UBA-Texte 58/2000 und 56/2001: c/o Umweltbundesamt, Bismarckplatz 1, 14193 Berlin

12. Lenschow, P., H.-J. Abraham, K. Kutzner, M. Lutz, J.-D. Preuß, W. Reichenbächer: Atmospheric Environment 35 Supplement No. 1 (2001) S 23-S 33
13. Müller, J.: "Invariant Properties of the Atmospheric Aerosol", Journal of Aerosol Science, Vol. 17, No. 3, pp. 277-282, 1986
14. Müller, J.: "Korngrößenverteilung von Feinstaubinhaltsstoffen", VDI Bericht 1443, pp. 529-534, 1999
15. Müller, J.: „Classification of Aerosol Substances by Use of Specific Vapour Pressures”, CP 534, Nucleation and Atmospheric Aerosols 2000: 15th Int.'l Conf., 2000 American Institute of Physics I-56396-958-0/00, pp. 800-803

B.15 Smogkammer-Untersuchungen der Bildung von sekundären Partikeln am Beispiel von Toluol in Abhängigkeit von der Oxidationsgeschwindigkeit

**C. Zetzsch, H.-U. Krüger (Forschungsstelle Atmosphärische
Chemie Universität Bayreuth)**

Smogkammer-Untersuchungen der Bildung von sekundären Partikeln am Beispiel von Toluol in Abhängigkeit von der Oxidationsgeschwindigkeit

Heinz-Ulrich Krüger und Cornelius Zetzsch
Forschungsstelle Atmosphärische Chemie der Universität Bayreuth
Dr.-Hans-Frisch-Str. 1-3, 95448 Bayreuth
E-mail: cornelius.zetzsch@uni-bayreuth.de

Zum sekundären Aerosol tragen außer den Ammoniumsalzen u.a. die Oxidationsprodukte der Nichtmethan-Kohlenwasserstoffe bei, darunter biogene Terpene und anthropogene Verkehrsemissionen und industrielle Emissionen aus Raffinerien, Kohleverarbeitung und Verwendung von Lösemitteln. Im EU-Projekt MOST (Multiphase Chemistry of Oxygenated Species in the Troposphere) werden moderne, zumeist mit Wasser unbegrenzt mischbare Lösungsmittel auf ihre atmosphärischen Transformationsprozesse untersucht. Um Anschluss an frühere Untersuchungen verschiedener Autoren (s. Lehrbuch von Seinfeld und Pandis, 1998) zu gewinnen, wurde zunächst der Aromat Toluol untersucht.

Dafür wurden (noch am Fraunhofer-Institut ITEM in Hannover) Gemische von Toluol (0,2 und 1 ppm) und Methylnitrit (0,1 bis zu 500 ppm) in Teflonsäcken (ca. 600 l) mit einem Sonnensimulator (bestehend aus 16 Solarien-Leuchtstoffröhren, Osram Eversun Super, 80 W) bei Raumtemperatur bestrahlt. Dabei wird die Partikelbildung mit einem differentiellen Mobilitätsanalysator (im Eigenbau modifiziert durch automatisiertes rasches Scannen im Durchmesserbereich bis 1 µm) mit nachgeschaltetem Kondensatkernzähler verfolgt. Zur Bestimmung der OH-Radikalkonzentration wurden Spuren von n-Pentan und als Verdünnungsstandard Perfluorhexan beigemischt, und die Konzentration wird im 20-Minutenrhythmus durch Gaschromatographie mit automatisierter Kryo-Anreicherung bestimmt. Mit Hilfe der bekannten OH-Geschwindigkeitskonstanten wird aus der Abnahme der Kohlenwasserstoffe der zeitliche Verlauf der OH-Konzentration berechnet. Je nach Methylnitrit-Konzentration variiert die Anfangskonzentration von OH zwischen 1×10^6 und 4×10^9 Moleküle/cm³, bis zu drei Größenordnungen höher als Tageswerte in der Troposphäre und verursacht einen entsprechenden Zeitraffer-Effekt der Umsetzung. Zugleich bilden photochemische Reaktionszyklen Ozon bis zu einigen ppm, deutlich höher als typische troposphärische Werte.

Beginnend mit homogener Nukleation bilden sich im Submikrometerbereich rasch anwachsende log-Normalverteilungen aus, deren Standardabweichung sehr gering ist (1,2-1,4) und deren mittlere Durchmesser (anfangs 20-100 nm, am Ende des Experiments 130-230 nm) mit steigender OH-Konzentration monoton steigen. Anzahldichten bis zu 2×10^6 cm⁻³ kommen als Nukleationsspitzen anfangs vor. Die Partikelausbeuten aus diesen Experimenten sind an Aerosolmasse deutlich höher als bekannte Literaturdaten. Berücksichtigt man die kürzlich von anderen Autoren (Wirtz et al., CEAM, Valencia, s. <http://most.univ-lyon1.fr>) bestimmte Dichte solcher Partikel von 1,4 g/cm³, so ergibt sich nach einem anfangs linearen Anstieg bis $[OH] = 10^8$ cm⁻³ ein Grenzwert der Aerosolmasse von mehr als 70% des eingesetzten Toluols. Es ist wahrscheinlich, dass dieser hohe Wert aufgrund des hohen OH-Niveaus auch die Aerosolausbeute sämtlicher Sekundärprodukte des Abbaus von Toluol mit enthält und nicht nur Produkte der Reaktion von OH sondern auch von Ozon, NO₂ und HNO₃ mit Zwischenprodukten umfasst.

Experimente mit Vinyletheren und anderen modernen Lösungsmitteln werden demnächst in der neuen Aerosol-Smogkammereinrichtung (Glas und Teflonfolie, bis 3 m³ und kühlbar auf -28°C) in Bayreuth beginnen.



C Modellsimulationen zu Quellenidentifizierung und Maßnahmeszenarien

C.1 Einflüsse direkter und indirekter Quellen auf die Verteilung von Feinstäuben auf der regionalen Skala

B. Vogel, H. Vogel (FZ/Uni Karlsruhe)

Einflüsse direkter und indirekter Quellen auf die Verteilung von Feinstäuben auf der regionalen Skala

Bernhard Vogel, Heike Vogel

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

1 Einleitung

Die Größenverteilungen für Anzahl-, Oberflächen- und Massendichten sowie die chemische Zusammensetzung von Feinstaub, die an einer bestimmten Stelle gemessen werden, werden bestimmt durch die direkten Emissionen von Partikeln, die Partikelneubildung aus Vorläufersubstanzen, durch heterogene Reaktionen, durch physikalische Vorgänge wie Koagulation oder Sedimentation und durch Transportvorgänge in der Atmosphäre. Möchte man einen Zusammenhang zwischen Emission und Immission herstellen, ist es daher unbedingt erforderlich, die zuvor erwähnten atmosphärischen Prozesse in die Überlegungen hinsichtlich emissionsmindernder Maßnahmen mit einzubeziehen und deren Bedeutung räumlich und zeitlich aufgelöst zu quantifizieren. Da der Zustand der Atmosphäre auf verschiedenen Zeitskalen erhebliche Schwankungen aufweist, die die Immissionen oftmals in gleicher Größenordnung modifizieren, wie dies durch Änderungen in den Emissionen hervorgerufen wird, stellen numerische Simulationsmodelle, die die relevanten Prozesse in adäquater Weise berücksichtigen, ein wichtiges Werkzeug bei der Bewertung von Minderungsmaßnahmen dar.

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

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

Ähnlich wie auf dem Gebiet der Messung von luftgetragenem Feinstaub gibt es allerdings auch auf dem Gebiet der Modellierung des atmosphärischen Aerosols noch erheblichen Forschungsbedarf.

Mit dem Modellsystem KAMM/DRAIS, welches dem aktuellen Stand des Wissens entspricht, wird in der hier vorgestellten Anwendung der Frage nachgegangen, welchen Einfluss die Emissionen von Ammoniak auf die Verteilung des Feinstaubes und dessen

chemische Zusammensetzung haben. Zu diesem Zweck wurde ein typischer Wintertag simuliert.

Im Folgenden wird ein Überblick über das Modellsystem KAMM/DRAIS (Vogel et al., 1995) gegeben, mit dem diese Simulationen durchgeführt wurden.

2 Das Modellsystem KAMM/DRAIS

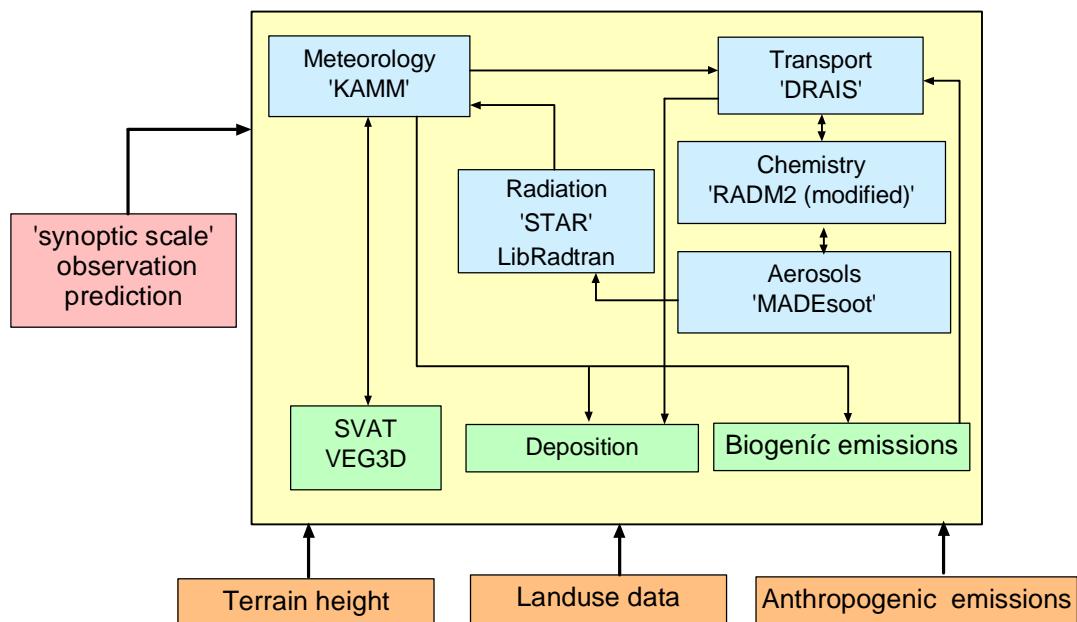


Abbildung 1: Das Modellsystem KAMM/DRAIS

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

Die Behandlung der Aerosole erfolgt mit dem Modell MADEsoot (Riemer et al., 2003). Bei MADEsoot handelt es sich um ein sogenanntes modales Modell, das heißt die Partikelverteilungen werden durch sechs Log-Normalverteilungen beschrieben. Es basiert auf Arbeiten von Ackermann et al. (1998) und Schell et al. (2001) und wurde um die Behandlung von Russ in interner und externer Mischung erweitert (Riemer et al., 2003). Die Partikelneubildung durch Nukleation von Schwefelsäuredampf wird in stark vereinfachter und parametrisierter Form behandelt. Bis auf den Dieselruß werden die Bestandteile der Partikel (Nitrat, Sulfat, Ammonium, organisches Material) stets als intern gemischt behandelt.

Dieselruß ist, wenn er emittiert wird, zunächst extern gemischt, kann jedoch durch Koagulation und Aufkondensieren von Schwefelsäuredampf in die interne Mischung übergeführt werden.

3 Eingabedaten und Modellergebnisse

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

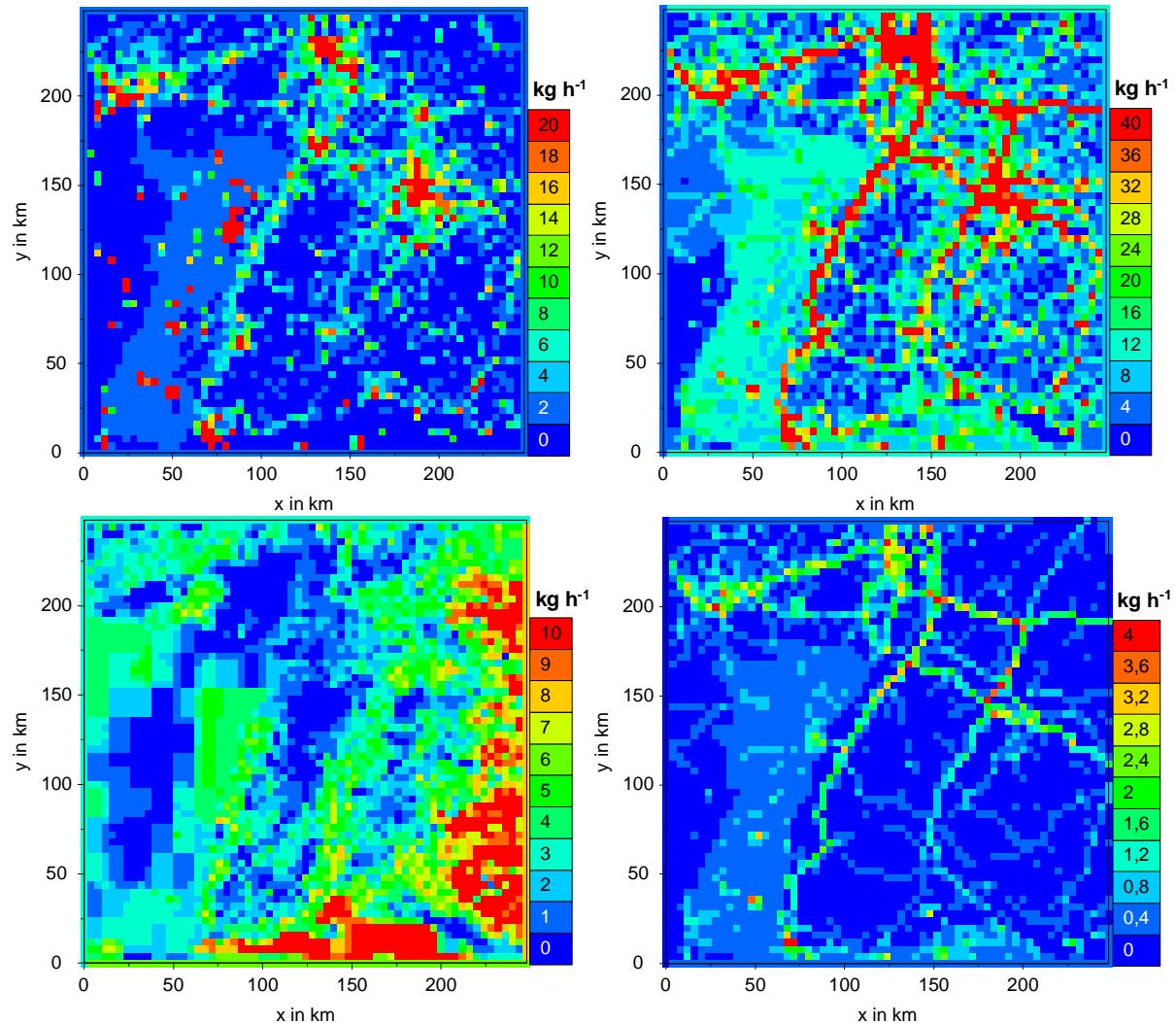


Abbildung 2: Horizontalverteilungen der anthropogenen Emissionen von SO_2 , NO_x , NH_3 und Ruß um 8 Uhr (von links oben nach rechts unten). (Quelle: B. Wickert, T. Pregger, R. Friedrich, IER, Universität Stuttgart)

Man erkennt die unterschiedlichen Emissionsstrukturen für die einzelnen Komponenten. Während SO_2 hauptsächlich in den Ballungszentren emittiert wird, erkennt man in den

Emissionsverteilungen von NO_x und Ruß die Hauptverkehrswege als wichtige Emittenten. Im Gegensatz hierzu finden die NH₃ Emissionen im überwiegend im ländlichen Raum statt. Zusätzlich werden die Emissionen von anthropogenen und biogenen Kohlenwasserstoffen sowie biogene NO Emissionen berücksichtigt.

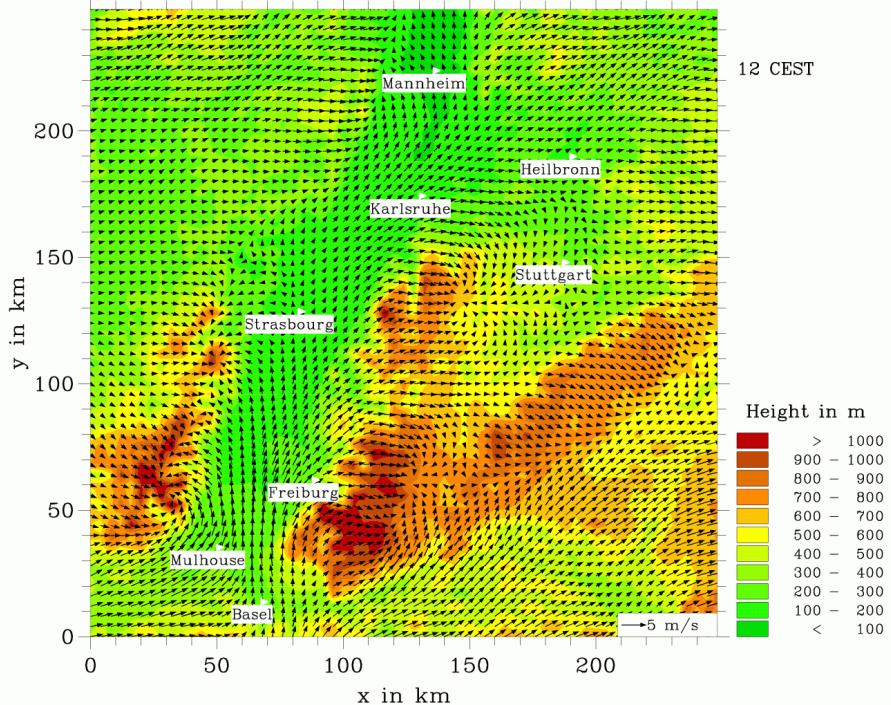


Abbildung 3: Simuliertes Windfeld in 20 m über Grund um 14:00 Uhr.

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

Die Abbildung 4 zeigt die simulierte Horizontalverteilung der trockenen Gesamtmasse-dichte. Hohe Massendichten treten im Rheintal sowie in und im Lee der Ballungsgebiete auf. Die maximalen Massendichten betragen in etwa 30 µg m⁻³.

4 Auswirkungen der Reduktion der NH₃ Emissionen

Ausgehend von dem oben beschriebenen Referenzlauf wurde ein weiterer Modelllauf durchgeführt, bei dem unter Beibehaltung der meteorologischen Situation und der übrigen

Eingabegrößen flächendeckend die NH_3 Emissionen um 50 % reduziert wurden. In der Abbildung 5 ist der Rückgang der Massendichte dargestellt, der mit dieser Reduktion der Emissionen einhergeht. Der maximale Rückgang der Massendichte beträgt in etwa $8 \mu\text{g m}^{-3}$. Es fällt auf, dass die stärksten Rückgänge der Massendichte nicht unbedingt in den Gebieten anzutreffen ist, in denen im Ausgangsfall die höchsten Konzentrationen aufgetreten sind. So ist zum Beispiel im Rheintal der Rückgang in vielen Gebieten recht gering. Dies und weitere detaillierte Auswertungen, auf die hier nicht eingegangen wird, haben gezeigt, dass dieses mit der nichtlinearen Aerosolchemie zusammenhängt. Prinzipiell lassen sich Gebiete unterscheiden, in denen ein Ammoniak Überschuss vorhanden ist und solche, in denen ein Ammoniak Defizit vorliegt.

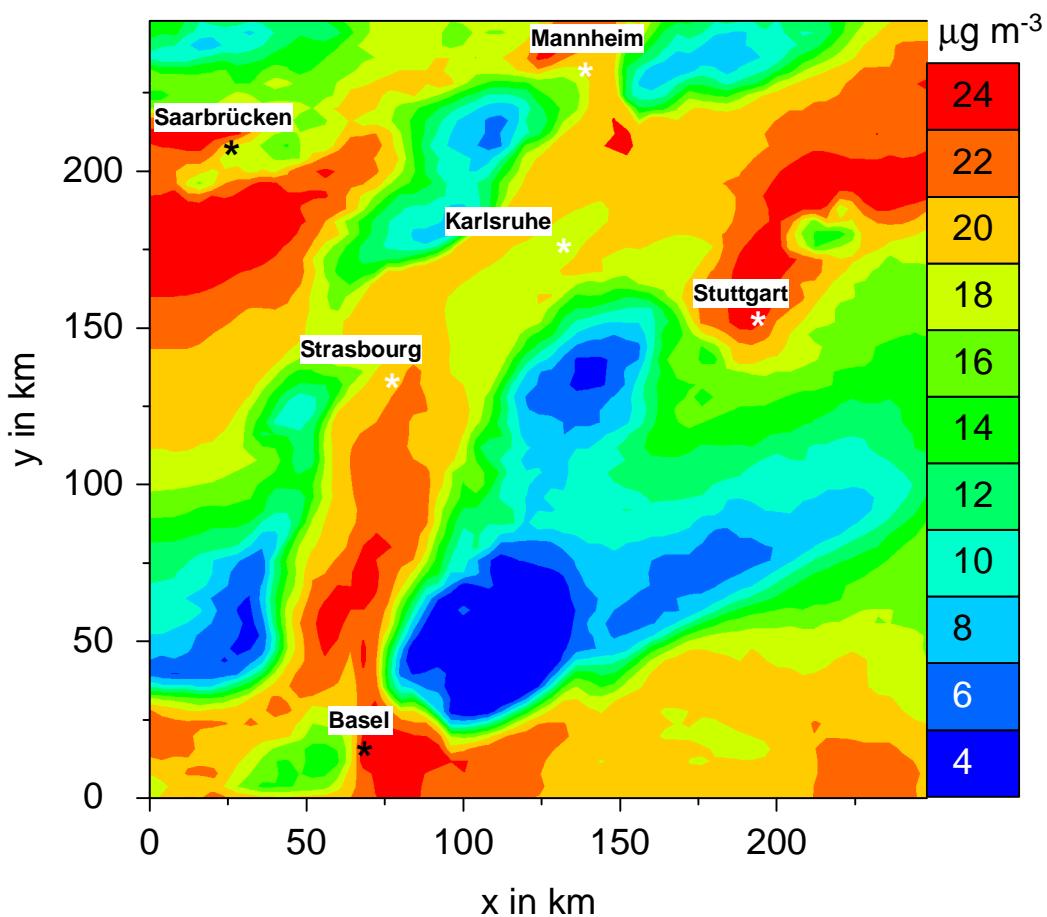


Abbildung 4: Simulierte Horizontalverteilung der trockenen Massendichte in 20 m über Grund um 14 Uhr.

Die Abbildung 6 fasst die Ergebnisse der beiden Simulationen in Form von Gebietsmittelwerten zusammen. Bezogen auf den Ausgangsfall zeigt sich, dass für den betrachteten Wintertag Nitrat den größten Anteil an der trockenen Gesamtmasse hat, gefolgt

von Ammonium und Sulfat. Eine Reduktion der NH_3 Emissionen um 50 % führt zu einem Rückgang der mittleren trockenen Massendichte um 24 %. Zwar geht auch der mittlere Ammonium Gehalt des Aerosols um 26 % zurück, die Abnahme der mittleren Massendichte wird jedoch hauptsächlich durch den Rückgang des Nitratgehaltes bewirkt.

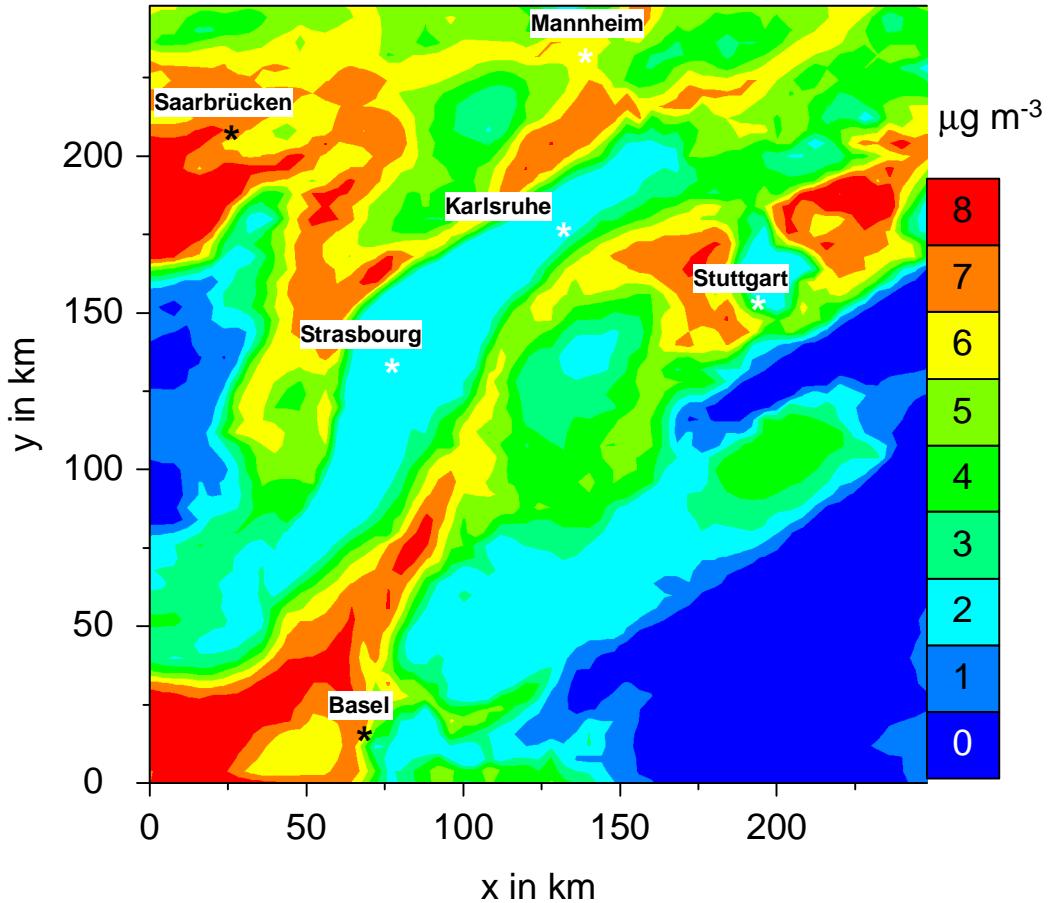


Abbildung 5: Rückgang der trockenen Massendichte bei einer Reduktion der NH_3 Emissionen um 50 %.

5 Zusammenfassung

Mittels numerischer Simulation wurde die Auswirkung einer Reduktion der NH_3 Emissionen um 50 % auf die Konzentrationsverteilung von Feinstaub für den Südwesten der Bundesrepublik am Beispiel eines typischen Wintertages untersucht. Die berechneten Massendichten und deren Zusammensetzung liegen im Bereich dessen, was durch Messungen, die allerdings nicht für das Gebiet von Baden-Württemberg vorliegen, gefunden wurde. Die Reduktion der Ammoniak Emissionen um 50 % führte zu einem Rückgang der Massendichten im Mittel um 24 %. Die räumliche Verteilung des Rückgangs wird zum einen durch die Verteilung der Emissionen zum anderen aber auch durch die nichtlineare heterogene Chemie bestimmt. Der stärkste Rückgang der Massendichte findet nicht unbedingt dort statt, wo die höchsten Ammoniak Konzentrationen zu finden sind. Entscheidend ist

vielmehr ob man sich in einem Ammoniak übersättigten Bereich oder in einem Ammoniak untersättigten Bereich befindet. Neben dem Rückgang des Ammoniums reduziert sich auch der Nitratgehalt der Partikel. Der Rückgang des Nitratgehaltes der Partikel bestimmt sogar im Wesentlichen den Rückgang der Gesamtmasse. Die mittlere Massendichte von Ammonium geht dabei nur um 24 % zurück, obwohl die NH_3 Emissionen um 50 % reduziert wurden. All dies zeigt, zum einen die komplexen Zusammenhänge zwischen den Emissionen dem atmosphärischen Transport und den nichtlinearen heterogenen Reaktionen, zum anderen die Notwendigkeit des Einsatzes numerischen Simulationsmodelle bei der Bewertung von effizienten Emissionsminderungsmaßnahmen.

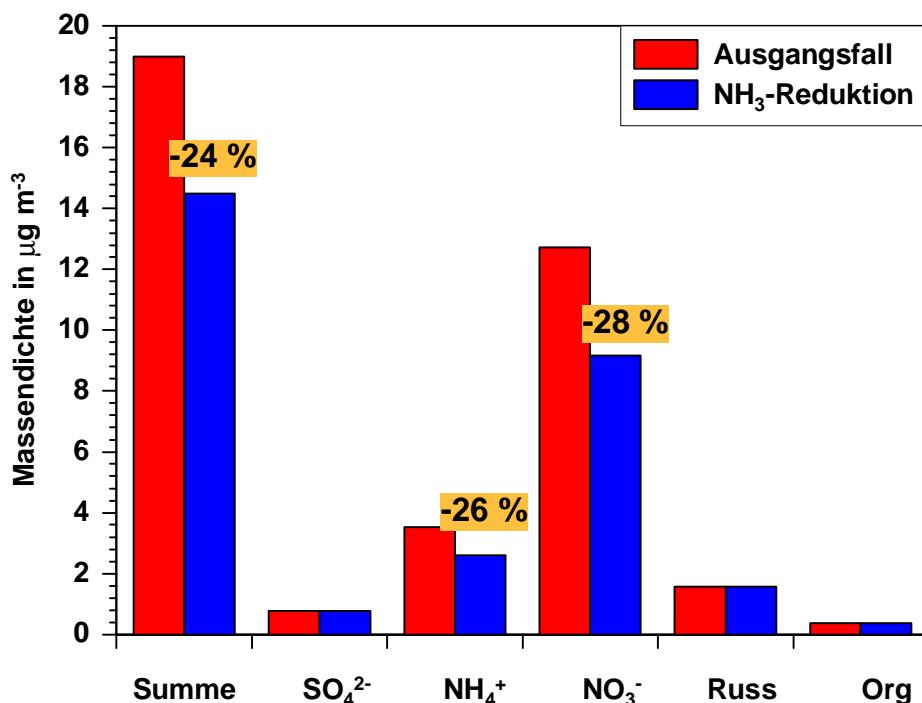


Abbildung 6: Mittlere Gesamtmasse und Anteile einzelner Komponenten gemittelt über das gesamte Simulationsgebiet in 20 m über Grund um 14 Uhr für die betrachteten Fälle.

Es soll aber auch nicht unerwähnt bleiben, dass es noch immer einen Mangel an geeigneten Messungen gibt. Zwar liegen in der Zwischenzeit für ausgewählte Standorte hochwertige Messergebnisse vor, wie sie auch im Rahmen dieses Workshops vorgestellt wurden. Dennoch reichen diese Messungen für eine Validierung der Modelle noch immer nicht aus. Abschließend sei noch darauf hingewiesen, dass die hier vorgestellten Simulationen die Bedeutung der Emissionen aus der Landwirtschaft für die Feinstaubbelastung aufzeigen. Gleichzeitig werfen sie die Frage auf wie genau diese Emissionen bekannt sind.

6 Literatur

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

Riemer N., H. Vogel, B. Vogel, F. Fiedler, (2003), Modelling aerosols on the mesoscale- γ : Treatment of soot aerosol and its radiative effects, *J. Geophys. Res.*, 109, 4601, doi:10.1029/2003JD003448

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

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

C.2 Modellgestützte Bilanzierung von Eintrag und Export von Aerosolen im Berliner Raum

A. Kerschbaumer (FU Berlin)

Modellgestützte Bilanzierung von Eintrag und Export von Aerosolen im Berliner Raum

Andreas Kerschbaumer

Institut für Meteorologie, Freie Universität Berlin
Carl-Heinrich-Becker-Weg 6-10 D-12165 Berlin
kerschba@zedat.fu-berlin.de

Einleitung

Die Ursachen und das Ausmaß der Luftverschmutzung einer Region durch Schadstoffe beruhen auf dem komplexen Zusammenspiel verschiedener Prozesse. Die Emission so genannter Primärstoffe (aus der Industrie, dem Verkehr und den privaten Haushalten) führt in Quellnähe durch Akkumulation und Deposition zu Umweltbelastungen. Schadstoffe, die sich in der Atmosphäre befinden, werden mit dem Wind horizontal transportiert (Advektion). So wird ein Teil der Emissionen aus dem Quellgebiet heraus transportiert und kann in einer weit von dem Emissionsgebiet entfernten Region zur Luftverschmutzung beitragen. Durch chemische Reaktionen werden aus den emittierten Vorläufersubstanzen andere, vielfach auch gesundheitsgefährdende Sekundärstoffe gebildet.

Vertikaltransporte durch den Wind und kleinräumige Turbulenz sind für eine vertikale Umverteilung der Schadstoffe in der Troposphäre verantwortlich. Dadurch können sich Primär- und Sekundärstoffe aus dem Bereich der Planetaren Grenzschicht (PBL: Planetary Boundary Layer, Mischungsschicht) in höhere Schichten ausbreiten, es können aber auch Substanzen, die in eine Region hinein advekiert oder chemisch gebildet wurden, aus großen Höhen in die bodennahen Schichten transportiert werden. Turbulente Transportflüsse führen dazu, dass sich Schadstoffe auf dem Boden, der Vegetation und Gebäuden ablagern (trockene Deposition); durch Bindung an Hydrometeore, hingegen, werden Schadstoffe durch nasse Deposition aus der Atmosphäre entfernt.

Diese Prozesse zusammen bestimmen die Konzentrations- und Depositionsverteilung von Luftschadstoffen in einer Region. Die zeitliche Änderung der Konzentration C eines Schadstoffes am Ort (x, y, z) lässt sich durch eine vereinfachte, nur auf die Prozesse bezogene Bilanzgleichung beschreiben.

$$\frac{\partial C(x, y, z)}{\partial t} = (P_{ADV} + P_{TRB} + P_E + P_{CH}) - (L_{ADV} + L_{TRB} + L_D + L_{CH})$$

Die lokalzeitliche Änderung der Konzentration einer Spezies wird bestimmt durch verschiedene Produktions- (P) und Verlustprozesse (L) in Form von horizontaler und vertikaler Advektion (ADV), horizontalem und vertikalem turbulenten Transport (TRB), Emission (E), Deposition (D) und chemischer Umwandlung (CH).

Durch die Lösung der Gleichung an jedem Punkt einer Region (und zu verschiedenen Zeiten), erhält man eine regionale Konzentrationsverteilung, die die tatsächliche Belastung und deren zeitliche Änderung beschreiben. Diese Verteilungen lassen aber keinen Rückschluss auf die Ursachen der Belastung zu.

Um festzustellen, welchen Anteil die Einzelprozesse Emission, Advektion, turbulent Transport, Deposition und chemische Umwandlung an der Schadstoffbelastung haben, ist es notwendig, diese Komponenten des Schadstoffhaushaltes durch eine Massenbilanzanalyse getrennt zu quantifizieren. Eine derartige Analyse lässt sich sowohl lokal als auch regional durchführen. Mit lokalen Massenbilanzen können nur für einen bestimmten Ort Aussagen über die Beiträge der Einzelprozesse zur Gesamtbilanz gemacht werden. Rückschlüsse auf eine ganze Region sind nur bei homogenen Verhältnissen zulässig, die allerdings in der Realität nicht vorliegen (Panitz, 1999).

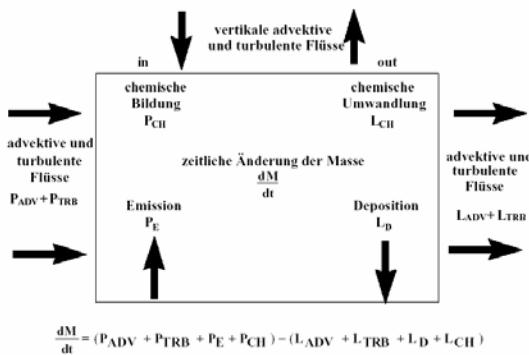


Abb. 1 Schematische Darstellung der Massenbilanzierung

Ziel dieser Analyse ist es, in einer Episodenstudie Massenbilanzen aus den mit dem chemischen Transportmodell REM_CALGRID (Stern, 2003) erzeugten Daten zu berechnen.

Das Untersuchungsgebiet umfasst den gesamten Berliner Raum. Dabei wurde darauf geachtet, den städtischen Bereich vom ländlichen Umland getrennt zu erfassen. Das Gebiet umfasst eine Fläche von ca. $40 \times 40 \text{ km}^2$, während die vertikale Ausbreitung die gesamte modellierte untere Troposphäre bis 2500 m über Grund einbezieht. Als Episode wurde der Januar 2002 gewählt.

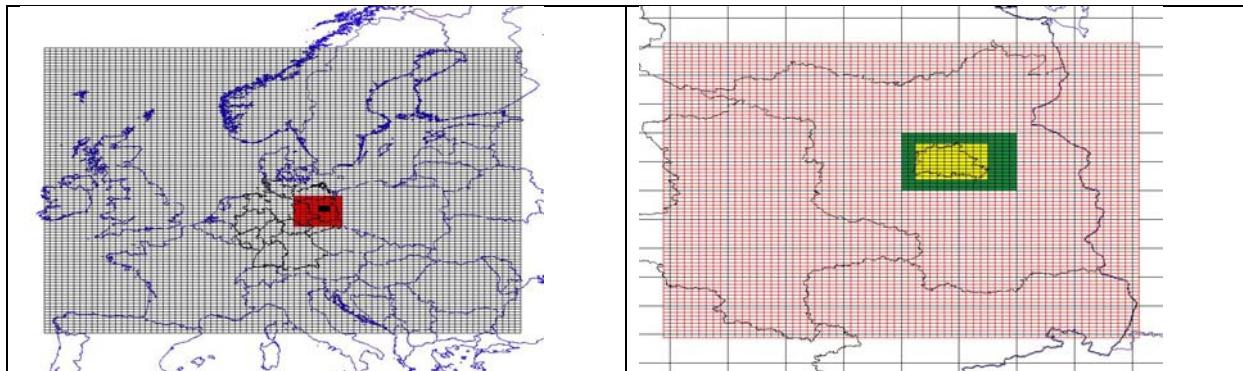


Abb. 2: Links: Großräumiges Rechengitter über Nord- und Mitteleuropa mit einer Maschenweite von ca. $25 \times 25 \text{ km}^2$; Rechts: Ausschnitt aus dem hoch aufgelösten Rechengebiet (Maschenweite: ca. $4 \times 4 \text{ km}^2$): Deutschland; gelb hervorgehoben das Gebiet, für das die Massenbilanzierung durchgeführt wurde

Modelbeschreibung REM_Calgrid

Das chemische Transportmodell REM_CALGRID wird mit meteorologischen Feldern angetrieben, die an der FU-Berlin über ein Interpolationsschema erstellt werden.

Im Modell REM_CALGRID erfolgt eine numerische Lösung der dreidimensionalen Advektions-Diffusionsgleichung in der folgenden Form:

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} + \nabla \left[(\mathbf{V} C_i - \mathbf{K} \rho \nabla \left(\frac{1}{\rho} C_i \right)) \right] = 0$$

mit C_i der Massenkonzentration eines Spezies i , \mathbf{V} dem Windvektorfeld, \mathbf{K} dem Diffusionstensor, und ρ der atmosphärischen Dichte. Die numerische Lösung der horizontalen Transportterme erfolgt mit einer Weiterentwicklung des flusserhaltenden Walcek-Verfahrens (Walcek, 2000). Der vertikale Transport der Schadstoffe wird hingegen mit einem von Yamartino (2003) weiterentwickelten Verfahren behandelt.

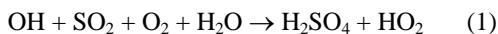
Während die Gasphasenchemie mit dem Carbon Bond-IV-Mechanismus (Carter, 1990, 1996) berechnet wird, soll unser Augenmerk mehr auf die Aerosole gelenkt werden, die sich im Untersuchungsgebiet wiederfinden.

Das in REM_CALGRID integrierte Aerosolmodul ist ein so genanntes Gleichgewichtsmodul, das heißt es wird immer von einem thermodynamischen Gleichgewichtszustand zwischen der Aerosol- und der Gasphase ausgegangen. Dynamische Prozesse, die zur Größenänderung von Aerosolen beitragen, wie die Koagulation und die Kondensation, werden nicht betrachtet. Dieses Aerosolmodul, das lediglich die anorganischen Sulphat-, Nitrat- und Ammoniumaerosole betrachtet, ist ein Teil des komplexeren MADE-Aerosolmoduls, das in EURAD verwendet wird (Ackermann et al., 1995, 1998). Das Modul wurde in einer von Schaap (2000) leicht verbesserten Version von der TNO übernommen. Im Folgenden wird kurz die Funktionsweise des Moduls beschrieben. Details können in Schaap (2000) gefunden werden.

Die Bildung sekundärer Aerosole wird durch chemische Reaktionen in der Gasphase ausgelöst. Eine wichtige Aerosolquelle ist die Neutralisierung von gasförmiger Schwefelsäure und Salpetersäure durch Ammoniak. Dabei entstehen Ammoniumbisulphat- und Ammoniumnitrataerosole. Konzentrationen und Phasenzustand der Aerosole sind dabei eine Funktion der Konzentrationen der Reaktionspartner, der Feuchte und der Temperatur. Die in dem Modul (und der Gasphasenchemie) behandelten Aerosolprozesse sind:

Schwefelsäure- bzw. Sulfatbildung:

H_2SO_4 entsteht aus der Oxidationskette des Schwefeldioxids initiiert durch das OH-Radikal:



Wegen seines niedrigen Dampfdrucks ist die Gasphasenkonzentration H_2SO_4 sehr niedrig. Die gebildete Schwefelsäure kondensiert sofort oder reagiert mit einer Base. Nahezu das gesamte oxidierte Schwefeldioxid wird dadurch zu Sulfataerosol. Das leicht lösliche SO_2 oxidiert auch in Wolkenwasser. Die in den Wolkentröpfchen ablaufenden Nassphasenreaktionen tragen wesentlich zu den Sulfatkonzentrationen bei. Die dominierenden Nassphasenoxidationsmittel sind die in der Gasphase gebildeten Peroxide und Ozon sowie O_2 in der Gegenwart der Katalysatoren Eisen und Mangan. Die Entstehung von Sulfat aus der Oxidation des Schwefeldioxids mit dem OH-Radikal wird im Gasphasenmechanismus simuliert. Die Nassphasenreaktionen werden in REM_CALGRID nicht explizit modelliert sondern durch eine simple Reaktion erster Ordnung parametrisiert.

Aerosolchemie

Wie schon ausgeführt beruht das Aerosolmodul auf der Annahme eines thermodynamischen Gleichgewichts zwischen Gasphase und Aerosolphase ohne Berücksichtigung der Größenverteilung der Aerosole. Folgende Reaktionen werden berücksichtigt:



(Index s: fester Phasenzustand, Index aq: flüssiger Phasenzustand)

Ammoniak reagiert mit der Schwefelsäure. In diesem Reaktionsschritt wird Sulfataerosol gebildet. Diese Reaktion ist irreversibel, d.h. das an das Sulfat gebundene Ammoniak verbleibt in der Aerosolphase. Wird das gesamte zur Verfügung stehende Ammoniak in den Reaktionen (2) und (3) verbraucht, ist die Aerosolbildung in dem Modul beendet. Bleibt noch Ammoniak übrig, kommt es zu folgender Gleichgewichtsreaktion zwischen Ammoniak und Salpetersäure wodurch das Nitrataerosol gebildet wird:



Reaktion (4) ist reversibel, d. h. das Ammoniak kann wieder freigesetzt werden und damit für weitere Reaktionen zur Verfügung stehen. Das Überschussammoniak wird freies Ammoniak genannt, da es nicht irreversibel an das Sulfataerosol gebunden ist. Den obigen Gleichungen kann man entnehmen, dass das Nitrataerosol nur gebildet werden kann, falls das Verhältnis Ammoniak/Sulfat größer als zwei ist.

Ob es überhaupt zur Nitratbildung kommt und ob und wie viel Ammoniak dann wieder freigesetzt werden kann, hängt von der Gleichgewichtskonstante der Reaktion (4) ab, die eine Funktion der Feuchte und der Temperatur ist. Ein weiterer wichtiger Parameter ist der Luftfeuchtwert RH_d (Relative Humidity of deliquescence), bei dem das Aerosol seine Phase wechselt (flüssig oder fest).

Im Aerosolmodul werden damit grundsätzlich zwei Zustände unterschieden:

- a. Verhältnis von Ammoniak zu Sulfat größer zwei
- b. Verhältnis von Ammoniak zu Sulfat kleiner zwei

Im Zustand a) ist das gesamte Sulfat in $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ (s, aq) gebunden. Das Überschussammoniak und die Salpetersäure stehen im Gleichgewicht mit dem Ammoniumnitrat NH_4NO_3 (s, aq).

Im Zustand b) steht nicht genug Ammoniak zur Verfügung, um die gesamte Schwefelsäure zu neutralisieren. Die Nassphase der Aerosole ist daher sauer. Es wird kein Ammoniumnitrat gebildet wodurch die Salpetersäurekonzentration in der Gasphase höher sein wird als im Zustand a). Dieser Effekt wird noch verstärkt, da HNO_3 bei niedrigeren pH-Werten schlechter löslich ist.

Eine detaillierte Diskussion der beiden Zustände einschließlich der Anwendung des Moduls in einem Boxmodell kann in Schaap (2000) gefunden werden.

Die sekundären Aerosole stellen nur einen Teil des PM10, das alle Partikel mit einem Durchmesser von weniger als 10 µm umfasst, unabhängig von deren chemischen Zusammensetzung, deren Entstehungsgeschichte oder deren Ursprung. Da die Aerosolbehandlung in REM_CALGRID relativ einfach gehandhabt wird und viele der chemischen und physikalischen Prozesse vernachlässigt werden müssen, um den Charakter eines operationell einsetzbaren Langfristmodells nicht zu verlieren, setzt sich PM10 im Modell nur aus relativ wenigen Spezies zusammen. Die Emissionsdatenbasis liefert die primären PM10-Emissionen aufgeteilt in zwei Kategorien, PM10 gesamt und Partikel mit einem Durchmesser kleiner 2.5 µm (PM2.5). Diese Emissionen werden den beiden Modellspezies $\text{PMCO}_{\text{prim}} = \text{PM10} - \text{PM2.5}$ und $\text{PM25}_{\text{prim}} = \text{PM2.5}$ zugeordnet.

Der photochemische Gasphasenmechanismus enthält die Gasphasenoxydation des Schwefeldioxids zu Schwefelsäure einschließlich einer einfachen Parametrisierung der Nassphasenoxydation.

Das Aerosolmodul behandelt die thermodynamischen Gleichgewichtsreaktionen der Sulfat-, Nitrat- und Ammoniumaerosolkomponenten SO_4 , NO_3 , NH_4 , in Abhängigkeit von Temperatur, Feuchte und den Gasphasenkonzentrationen von Salpetersäure, Schwefelsäure und Ammoniak.

Damit setzt sich das PM10 insgesamt aus 5 Komponenten zusammen:

$$\text{PM10} = \text{PM25}_{\text{prim}} + \text{PMCO}_{\text{prim}} + \text{SO}_4(\text{A}) + \text{NO}_3(\text{A}) + \text{NH}_4(\text{A})$$

Sekundäre organische Aerosole (SOA), die durch die Kondensation von Kohlenwasserstoffoxidationsprodukten biogenen und anthropogenen Ursprungs entstehen, werden in der gegenwärtigen Modellversion nicht betrachtet.

Alle PM10-Komponenten werden transportiert und unterliegen der nassen und trockenen Deposition. Durch die Aerosolbehandlung erhöht sich die Anzahl der zeitabhängig behandelten Spezies um die 5 neuen Partikel-Spezies $\text{PM25}_{\text{prim}}$, $\text{PMCO}_{\text{prim}}$, $\text{SO}_4(\text{A})$, $\text{NO}_3(\text{A})$, $\text{NH}_4(\text{A})$ sowie um das Ammoniak.

Schadstoffe werden auf dem Boden deponiert oder über Regen ausgewaschen. Weiters können hydrophile Schadstoffe im Wolkenwasser gebunden werden. Diesen Tatsachen trägt REM_CALGRID in den trockenen und nassen Depositionsmodulen Rechnung. Die somit berechnete Entfernung von Schadstoffen geht dann in die Bilanzrechnung ein.

Groß- und kleinräumige Anwendung des chemischen Transportmodells REM_Calgrid

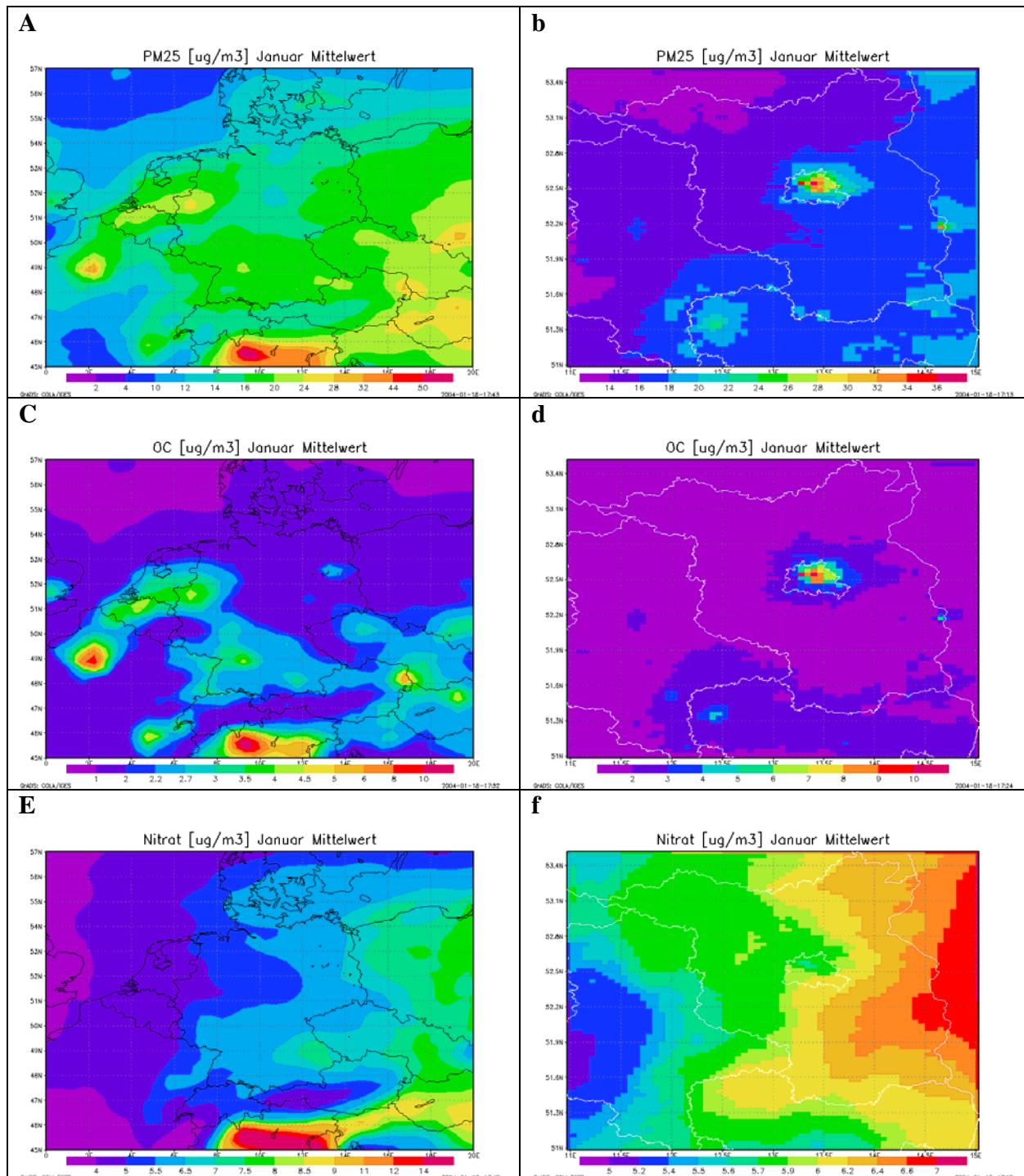


Abb. 3 REM_Calgrid Simulationen: Januar Monatsmittel: a) großräumig: PM25; b) kleinräumig: PM25
c) großräumig: Organischer Kohlenstoff; d) kleinräumig: Organischer Kohlenstoff; e) großräumig: Sulfat;
f) kleinräumig: Sulfat

REM_Calgrid wurde zur Bestimmung der Luftqualität in einer europaweiten Raumskala in einer Auflösung von ca. 25x25 km² und in der urbanen Raumskala (Ballungsgebiet) in einer Auflösung von ca. 4x4 km² verwendet (Abb.

2). Die aus dem großräumigen Modell berechnete Hintergrundbelastung wurde als Randbedingung für die urbane Skala verwendet („one-way-nesting“).

Wie in Abb. 3 zu sehen sind durch die hoch aufgelöste Simulation lokale Effekte bei primären Aerosolkomponenten (Abb. 3 a im Vergleich zu Abb. 3 b) sehr viel deutlicher erkennbar als bei sekundär gebildeten Aerosolen (Abb. 3 e im Vergleich zu Abb. 3 f). Im Modell wird organischer Kohlenstoff als Primäraerosol behandelt. Daraus ist zu schließen, dass auch das in REM_Calgrid simulierte OC einen erhöhten Lokaleffekt aufweist.

Aus der Betrachtung der Effekte der unterschiedlichen Maschenbreite der Modellanwendungen lassen sich phänomenologisch die folgenden Schlüsse ziehen

- Primäraerosole sind viel stärker von lokalen Emittenten bestimmt
- Sekundäraerosole werden weniger von lokalen Emissionscharakteristika beeinflusst und scheinen anderen Phänomenen zu unterliegen.

Während sich großräumig sowohl bei PM2.5 als auch bei Organischem Kohlenstoff im Monatsmittel (Januar 2002) deutlich erhöhte Konzentrationen mit Ballungsgebieten in Verbindung bringen lassen, wie beispielsweise mit dem Großraum Paris, der Poebene in Norditalien mit dem Industriezentrum um Mailand und dem Ruhrgebiet im Westen Deutschlands, lässt sich bei der Sulfatverteilung nur ein absolutes räumliches Maximum in der Poebene erkennen. Sulfat weißt im Monatsmittel einen abfallenden Süd-Ost – Nord-West Gradienten auf.

Während der Berliner Raum in der großräumigen REM_Calgrid Anwendung wenig in Erscheinung tritt, ändert sich dies bei der Berechnung der primären Aerosole in dem hoch aufgelösten Gitter. Hier tritt ein starker Stadt-Land-Effekt sowohl bei PM2.5 als auch bei OC auf. Bemerkenswert ist der Unterschied zur Sulfatsimulation im hoch aufgelösten Rechengitter. Der Stadt-Land-Gradient scheint nicht dominierend zu sein. Weiters ist die großräumige Struktur des Süd-Ost – Nord-West Gradienten fast unverändert beibehalten.

Ziel der Budgetanalyse ist es nun, über Massenbilanzen Schlüsse auf die zu Grunde liegenden Prozesse zu ziehen. Dabei wird zum einen der gesamte Massenaustausch im Monat Januar im oben beschriebenen Kontrollvolumen über Berlin betrachtet, zum anderen werden die Massen differenziert nach den zu Grunde liegenden Prozessen einzeln analysiert.

Massenbilanzbetrachtungen

In Abb. 4 wird in der linken Grafik der Gesamtmassenaustausch der einzelnen Aerosolkomponenten im Monat Januar dargestellt. Im Untersuchungsgebiet über dem Großraum Berlin werden ca. 0.6 Tonnen grobkörniges Aerosol abgebaut und ca. 2 Tonnen feines Aerosol angehäuft; ca. 2 Tonnen elementarer und organischer Kohlenstoff werden im Stadtgebiet abgebaut; auch sekundäre Aerosolkomponenten wie Sulfate, Nitrate und Ammonium werden abgebaut.

Diese Massenbilanz lässt Berlin als Aerosolpartikelquelle erscheinen. Dass dies aber nicht immer der Fall ist, und dass dies weiter untersucht werden muss, beweisen die zwei weiteren Grafiken in Abb. 4. Während im Februar der Trend der Aerosolquelle weiter vorhält, weißt die Massenbilanz im März ein umgekehrtes Erscheinungsbild auf.

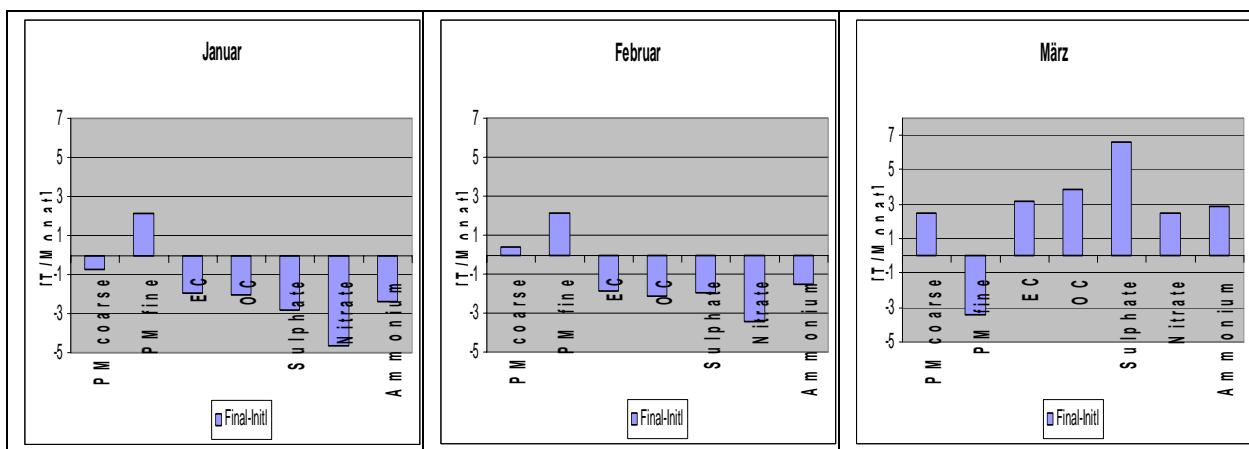


Abb. 4: Monatsmassenbilanz der Aerosolkomponenten; aus REM_Calgrid

Im März erscheint der Großraum Berlin als Quelle an feinem Aerosol, aber als Senke an groben Aerosolteilchen und vor allem als Senke an sekundärem anorganischen Aerosolkomponenten.

Genauere Betrachtungen dieser Phänomene müssen noch angestellt werden. Gründe können in unterschiedlich häufig auftretenden Wetterlagen liegen oder aber in Transportprozessen gesucht werden, die nun exemplarisch für den Monat Januar näher analysiert werden. Hierfür wurden die Massenänderungen in den in REM_Calgrid modellierten Prozessen einzeln summiert.

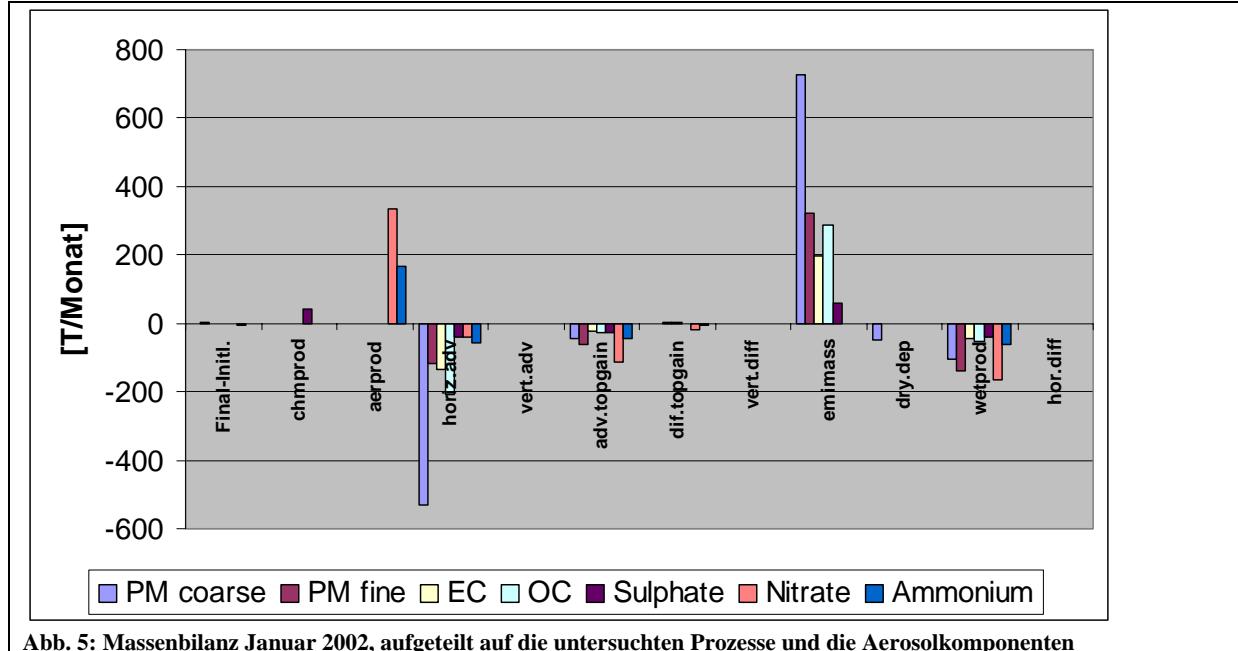


Abb. 5: Massenbilanz Januar 2002, aufgeteilt auf die untersuchten Prozesse und die Aerosolkomponenten

In Abb. 5 werden die Massenänderungen der Aerosolkomponenten im Monat Januar 2002 nach modellierten Prozessen aufgespalten. Die globale Änderung (**Final – Initl**) gibt die schon in Abb. 4 dargestellte Gesamtmasse aller Aerosolkomponenten wieder. Diese Gesamtmasseänderung fügt sich wie folgt zusammen:

- Chemische Produktion/Verlust (**chemprod**): Nur Sulfate werden wie in den oben beschriebenen chemischen Prozessen aufgebaut. Sowohl die primären als auch die übrigen sekundären Aerosole werden in diesem Modul nicht behandelt.
- Produktion/Verlust im Aerosolmodul (**aerprod**): hier werden Ammonium und Nitrat aus den Vorläuferstoffen NH₃ bzw. NO_x gebildet.
- Im horizontalen Advektionsmodul (**horiz. adv**) werden alle Stoffe in unterschiedlichem Ausmaß „produziert“ bzw. „abgebaut“. Dies hängt von der Wirksamkeit anderer Prozesse ab, wie beispielsweise nasser und trockener Deposition.
- Auch die vertikale Advektion (**vert. adv**), die Advektion (**adv. topgain**) bzw. die Diffusion (**dif. topgain**) durch den Oberrand des Modellgebiets sowie die horizontale (**hor.diff**) und vertikale (**vert.diff**) Diffusion im Modellgebiet betreffen alle Schadstoffe.
- Im Emissionsmodul (**emimass**) werden die Massenänderungen durch die Emission der primären Aerosole summiert.
- Massenverluste durch trocken (**dry.dep**) und nasse (**wet.dep**) Deposition

Wie aus Abb. 5 ersichtlich ist, wird die gesamte Massenänderung durch die Änderungen in den einzelnen Prozessen im großen und ganzen kompensiert. Dabei ist der größte „Produzent“ die Emission und der bedeutendste „Konsument“ die horizontale Advektion. Im Berliner Großraum werden vor allem primäre grobkörnige Aerosolpartikel (PM coarse) emittiert. Mit über 700 Tonnen Massendifferenz im Monat Januar tragen diese Teilchen wesentlich zur Akkumulation an Gesamtaerosol bei. Der Abbaumechanismus durch die horizontale Advektion ist dementsprechend hoch. Mehr als 500 Tonnen werden durch diesen Prozess aus dem Kontrollvolumen in das umliegende Gebiet transportiert. Werden nun auch die übrigen mindernden Prozesse dazu gezählt, ergibt sich das oben beschriebene Gesamtbudget an groben Aerosol. Weit interessanter sind die Bilanzrechnungen für sekundäre Aerosolkomponenten. Sulfate beispielsweise werden sowohl durch die Gasphasenchemie angehäuft, als auch als Emissionen direkt in das Kontrollgebiet eingespeist. Die gesamte Massendifferenz im Monat Januar beläuft sich demnach auf ca. 100 T pro Monat. Abbawend wirken dagegen wieder die horizontale Advektion, der Verlust durch die Modellobergrenze, sowie die nasse Deposition. Durch diese Prozesse werden aus dem Kontrollvolumen im Januar ca. 104 Tonnen entfernt. Die Gesamtbilanz ist wiederum fast neutral.

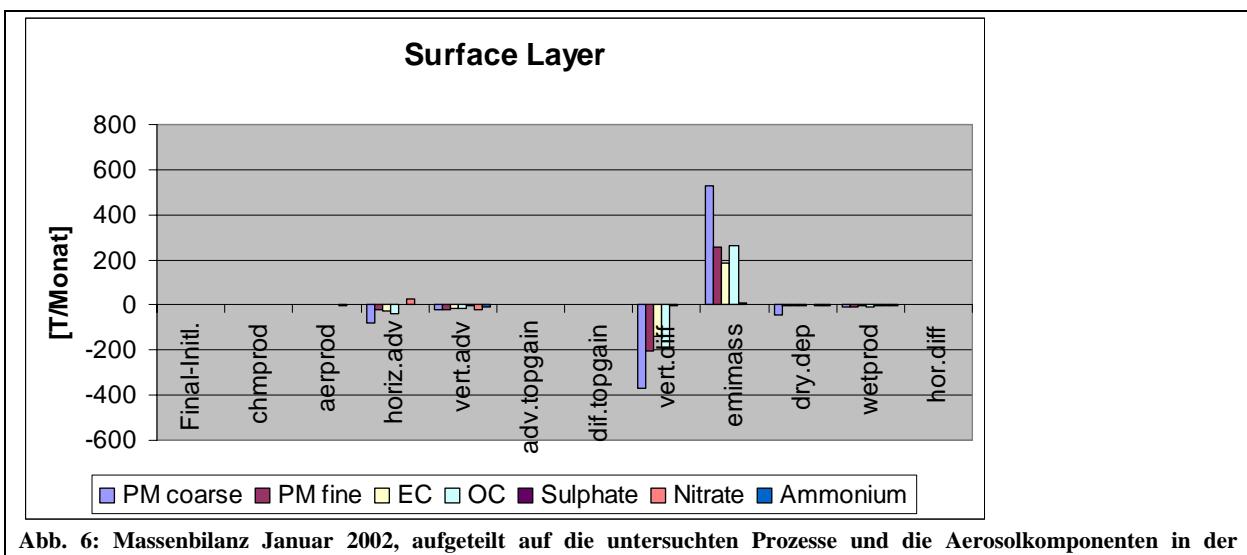


Abb. 6: Massenbilanz Januar 2002, aufgeteilt auf die untersuchten Prozesse und die Aerosolkomponenten in der modellierten Bodenschicht.

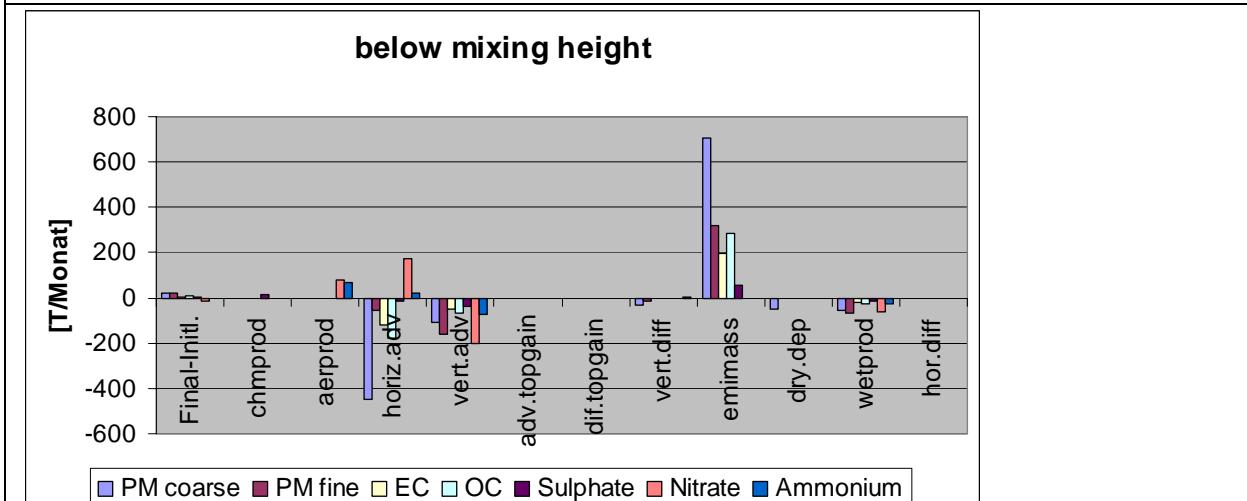


Abb. 7: Massenbilanz Januar 2002, aufgeteilt auf die untersuchten Prozesse und die Aerosolkomponenten in der gesamten Mischungsschicht.

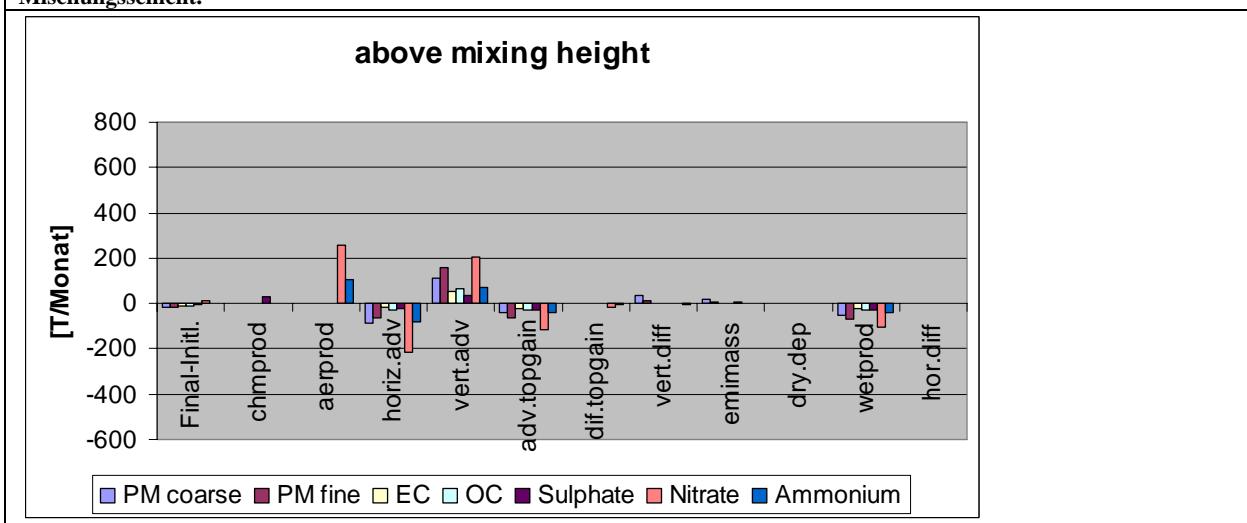


Abb. 8 Massenbilanz Januar 2002, aufgeteilt auf die untersuchten Prozesse und die Aerosolkomponenten oberhalb der Mischungsschicht bis zur Modellobergrenze.

Die Analyse der Prozesse in den einzelnen Transportregionen (Abb. 6 – Abb. 8) ergibt nun folgendes differenzierteres Bild. Während in der Bodenschicht (Abb. 6) (50 m über Grund) vor allem durch die vertikale Diffusion primäre Schadstoffe in höhere Schichten transportiert werden, spielt in dieser Schicht die horizontale Advektion eine viel geringere Rolle. Die Massenbilanz zwischen Emission und vertikaler Diffusion führt zu einer nahezu vollkommenen Aufhebung der Gesamtmassenänderung in dieser Schicht. Sekundäre anorganische Aerosolkomponenten geben einen sehr geringen Anteil am Gesamthaushalt in der Bodenschicht. Die in das Kontrollvolumen eingespeisten Suflatemissionen treten zum Grossteil nicht in dieser Schicht auf, sondern werden über Punktquellen in höhere Schichten verteilt. Weiters werden Sulfate nicht in Bodennähe in der Gasphase angehäuft. Auch Nitrate und Ammonium zeigen kaum Produktionserscheinungen in der Aerosolbildungsphase. In der gesamten Mischungsschicht (Abb. 7) vergrößern sich die Anteile an der Massenbilanz durch die Emission erheblich. Die horizontale Advektion nimmt gegenüber der vertikalen Diffusion zu, wobei nun auch der nassen Deposition eine wichtigere Rolle zukommt. Auffallend ist, dass durch vertikale Advektionsbewegungen die Massenbilanz für die Mischungsschicht negativ ausfällt, und die Masse in höhere Schichten transportiert wird. In der Mischungsschicht wird auch eine Differenzierung zwischen Primäraerosol und Sekundäraerosol im horizontalen Advektionsprozess sichtbar. Während primäre Aerosolkomponenten (grobe und feine Aerosole, elementarer und organischer Kohlenstoff) sich im Kontrollvolumen advektiv anhäufen, bauen sich sekundäre Aerosolkomponenten ab; vor allem Nitrate werden horizontal aus dieser Schicht in das Umland transportiert. Die Gesamtbilanz in der Mischungsschicht ist positiv, das heißt, Schadstoffe wurden im Monat Januar in dieser Region angehäuft. Wiederum ist zu bemerken, dass dem Gesamtmassenaustausch durch die Massenänderungen in den einzelnen Prozesse annähernd die Waage gehalten wird. Die anorganischen Aerosolkomponenten werden durch den vertikalen Austausch prozentual stärker in höhere Schichten transportiert als primäre Staubteilchen. In Abb. 8 wird die Massenbilanz in der Luftsicht über der Mischungsschicht im Kontrollvolumen über dem Berliner Großraum analysiert. Auffallend ist die verstärkte Aktivität in der Aerosolbildungsphase für die anorganischen Komponenten. Sie ist für Nitrat der wichtigste Anhäufmechanismus. Durch die horizontale Advektion wird weniger Primärmasse aus dem Kontrollvolumen in das Umland transportiert als in der Mischungsschicht; auch werden nun Sekundäraerosole einheitlich im Kontrollvolumen angehäuft. Durch vertikale Advektion wird Masse aus dem unterhalb liegenden Luftpaket in diese weniger durchmischte Luftsicht gebracht, es wird aber prozentual weniger in die freie Atmosphäre über der Modelobergrenze abgegeben. Weiters ist auffallend, dass die nasse Deposition in dieser Schicht der nassen Deposition in der Mischungsschicht gleichbedeutend ist. Dies hat sicherlich mit der Wolkenparametrisierung im Model REM_Calgrid zu tun, die über die Feuchte der Atmosphäre gesteuert wird. Die Gesamtbilanz oberhalb der Mischungsschicht im Kontrollvolumen im Modellzeitraum Januar ist negativ, das heißt, Masse sammelt sich in dieser Schicht an.

Zusammenfassung

Es wurde eine Massenbilanzierung der Aerosolkomponenten über dem Berliner Großraum gemacht. Das chemische Transportmodell REM_Calgrid lieferte dafür die notwendigen Daten und die Beschreibung der Transport- und Depositionsprozesse.

Eine Gesamtbudgetierung der Masseneinträge im Berliner Stadtgebiet ergibt eine im Vergleich zu den in den einzelnen Prozessen verteilten Massen nahezu neutrale Bilanz aller Aerosolkomponenten. Die Prozesse, die wesentlich zu einer Anhäufung beziehungsweise Abbau der Schadstoffe beitragen, sind vor allem die Emissionen und die horizontale Advektion. Die vertikale Diffusion spielt nur eine Rolle im Verteilen der Schadstoffe von der Bodenschicht in die Mischungsschicht. Die vertikale Advektion verteilt im wesentlichen die Aerosolmassen zwischen der Mischungsschicht und der darüber liegenden Atmosphäre. Die nasse Deposition ist für Aerosole ein weitaus wichtigerer Abbaumechanismus als die trockene Deposition. Die horizontale Diffusion ist Größenordnungen kleiner als die übrigen Transportprozesse. Die chemische Produktion ist verantwortlich für die Anhäufung von Sulfaten im Kontrollvolumen. Die Aerosolphasenproduktion der sekundären anorganischen Aerosolkomponenten ist in der Atmosphäre oberhalb der Mischungsschicht ein bedeutender Faktor bei der Anhäufung von Nitrat und Ammonium im Kontrollvolumen.

Ein wichtiger nächster Schritt in der Massenbilanzierung ist eine Aufspaltung der Prozessanalysen in Abhängigkeit von unterschiedlich hohen Konzentrationen. Es ist wichtig zu untersuchen, in wie weit Transportprozesse zu erhöhten Schadstoffkonzentrationen beitragen.

LITERATURVERZEICHNIS

- Ackermann, I.J., et al. (1995). *The parametrization of the Sulphate-Nitrate-Ammonia Aérosol System in the Long-Range Transport Model EURAD*, Meteorol. Atmos. Phys., 57, 101-114.
- Ackermann, I.J. (1998). *MADE: Entwicklung und Anwendung eines Aérosol-Dynamikmodells für dreidimensionale Chemie-Transport-Simulationen in der Troposphäre*, Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln, Heft 115, Köln
- Carter, W. (1990). *A detailed mechanism for the gas-phase atmospheric reactions of organic compounds*. Atm. Env. 24A, 3
- Carter, W. (1996). *Condensed atmospheric photooxidation mechanisms for isoprene*, Atmos. Environ. 30 (1996) 4275-4290.
- CITYDELTA: European Modelling Excercise An Inter-comparison of long-term model responses to urban-scale emission-reduction scenarios. An activity in support of the EU-CAFÉ Programme
<http://rea.ei.jrc.it/netshare/thunis/citydelta/>
- Flemming, J. (2003). *Immissionsfelder aus Beobachtung, Modellierung und deren Kombination*. Dissertation am Fachbereich Geowissenschaften der FU Berlin. <http://www.diss.fu-berlin.de/2003/71>
- Panitz H.-J., Nester K., Fiedler F.,(1999) *Bestimmung der Massenbilanzen chemisch reaktiver Luftschadstoffe in Baden-Württemberg und den Teilregionen Freudenstadt und Stuttgart*, Forschungsbericht FZKA-PEF, PEF – Projekt „Europäisches Forschungszentrum für Maßnahmen zur Luftreinhaltung“
- Schaap, M. (2000). *Aerosols in Lotos*, TNO-Report R 2000/405 (2000).
- Stern R., (2003). *Entwicklung und Anwendung des chemischen Transportmodells REM/CALGRID*, Abschlußbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 298 41 252 auf dem Gebiet des Umweltschutzes „Modellierung und Prüfung von Strategien zur Verminderung der Belastung durch Ozon“, FU-Berlin
- Walcek, C.J. (2000). *Minor flux adjustment near mixing ratio extremes for simplified yet highly accurate monotonic calculation of tracer advection*, J. Geophy. Res. , 105, D7 (2000), 9335-9348.
- Yamartino, R. (2003). *Refined 3-d Transport and Horizontal Diffusion for the REM/CALGRID Air Quality Model*. Abschlussbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 298 41 252 des Umweltbundesamts „Modellierung und Prüfung von Strategien zur Verminderung der Belastung durch Ozon“.

**C.3 Source/Receptor-Analyse für
Aerosolmessreihen und Modelloutput auf der
Basis von Trajektorien, HOVERT (Sep 2001 –
Oct 2002)**

E. Reimer, A. Kerschbaumer, M. Beekmann (FU Berlin)

BMBF - Atmosphären Forschungs Programm (AFO2000)

Source/Receptor-Analyse für Aerosolmessreihen und Modellrechnungen auf der Basis von Trajektorien, HOVERT (Sep 2001 – Oct 2002)

Eberhard Reimer, Andreas Kerschbaumer, Mathias Beekmann
Institut für Meteorologie, Freie Universität Berlin

Einleitung

In der 1. Tocherrichtlinie (99/30/EG) zur Rahmenrichtlinie Luftqualität (96/69/EG) sind im Juli 1999 neue, verschärzte Grenzwerte unter anderem für Feinstaub (PM10) eingeführt worden.

Wenn diese PM10- Grenzwerte örtlich wiederholt überschritten werden, besteht die Verpflichtung, Maßnahmen zu ergreifen, damit die Feinstaubemissionen so reduziert werden, dass die Grenzwerte zukünftig nicht überschritten werden. Neben der Messung und Beurteilung der PM10-Belastung ist auch eine Aussage über die Ursachen von Grenzwertüberschreitungen notwendig. So besteht die Verpflichtung eine Analyse des Ursprungs der Feinstäube, inklusive der dafür verantwortlichen wichtigsten Emissionsquellen durchzuführen.

Ziel des Projekts HOVERT besteht darin, die Transporte von Feinstaub (PM10) im Berliner Raum zu charakterisieren und den Eintrag durch Ferntransporte quantitativ für den Projektzeitraum September 2001 bis September 2002 zu bestimmen.

Die Teilnehmer sind:

- Freie Universität Berlin, Institute für Meteorologie
- BTU Cottbus, Lehrstuhl für Luftchemie
- Elight Laser Systems GmbH
- Freie Universität Berlin, Experimentalphysik
- LUA Berlin mit einer umfangreichen, eigenen Messkampagne

Im Vordergrund stehen die Untersuchung von Transportprozessen von Ozon und PM10 in der Region Berlin. Dabei werden modellbasierte Source/Receptor – Beziehungen gesucht, was mit einer Validierung des chemischen Transportmodells REM/Calgrid einhergeht.

Ein wichtiges Anliegen ist die Unterstützung der Berliner Umweltbehörde in Hinsicht auf die Maßnahmenplanung.

In diesem Beitrag werden entsprechend früheren Auswertungen zu

grenzüberschreitenden Schadstoff-Transporten z.B. im Erzgebirgsraum Trajektorien verwendet, die auf der Basis einer numerischen Windfeldanalyse berechnet werden.

Die meteorologische Datenbasis ist wesentlich durch Daten des Deutschen Wetterdienstes gegeben.

Messdaten

Vom Sept. 2001 bis Sept. 2002 wurden umfangreiche Messungen im Berliner Raum durchgeführt. Zusätzlich zu den Monitoringstationen der Länder Berlin, Brandenburg und vom Umweltbundesamt wurden an 10 Beobachtungsorten (2 urbane, 2 suburbane, 5 ländliche, 1 Turm) spezielle Messungen durchgeführt.

Zur PM10 und PM2,5-Messung wurden High-Volume Sampler eingerichtet und mindestens täglich gravimetrisch ausgewertet. Diese Proben wurden darüber hinaus auf anorganische Ionen untersucht, wie Sulphat, Nitrat, Chloride, Ammonium, Sodium, Calcium und Magnesium. Darüber hinaus wurde der Gehalt an elementarem Kohlenstoff und auch der Anteil organischen Kohlenstoffs bestimmt.

In einer weiteren Auswertung sind die Konzentrationen für eine Reihe von Metallen bestimmt worden.

Die chemischen Analysen wurden durch die BTU Cottbus, TU Berlin und die Landesumweltämter Berlin und Brandenburg durchgeführt und von der IUTA ausgewertet.

Die Konzentrationen wurden für PM10 stündlich und für alle anderen Spezies als Tageswerte bestimmt.

Trajektorienbestimmung

Die großräumigen Analysen meteorologischer Felder über Mitteleuropa werden mit einem diagnostischen Analysesystem erstellt. Für kleinräumige Analysen (Gitterweite ca. 2km) wird zusätzlich optional ein Teil des meteorologische Aufbereitungsmodell CALMET, das von der Firma Sigma Res. in den USA im Auftrag der kalifornischen Umweltbehörde entwickelt wurde (Scire et al., 1990), verwendet. Dabei können mit Hilfe von Strömungsadaptionsalgorithmen alle Windfelder im orographisch gegliederten Gelände angepasst werden.

Gegenüber einem prognostisch-numerischen Modellierungsansatz hat diese diagnostische Methode den Vorteil, dass sie sich wesentlich auf vorhandene meteorologische Messungen stützt und daher eine unmittelbare Diskussion lokaler Wetterphänomene in Verbindung mit den Immissionsmessungen erlaubt.

Für die Analyse und Verfolgung von Schadstoffen und chemischen Beimengungen in der Atmosphäre und deren Wirkung wird an eine Trajektorienbestimmung angeknüpft, die für verschiedene Fälle angewendet wurde (Reimer 2003, 2001, Reimer et.al. 1996). Die Berechnungen finden auf raum- und zeitabhängigen isentropen Flächen statt, wobei in der planetarischen Grenzschicht ein Übergang zu einer orographieabhängigen Koordinatenfläche erfolgt.

In der freien Atmosphäre werden mehrere Verfahren kombiniert. Drei verschiedene

Berechnungen des Verlagerungsvektors werden vorgenommen:

- über ein dynamisches Windwegberechnungsverfahren unter Verwendung der Langrange'schen Bewegungsgleichung,
- über einen rein kinematisch gewonnenen Verlagerungsvektor, der durch Iteration im Windfeld bestimmt wird,
- und über einen Verlagerungsvektor, der sich unter der Annahme einer verschwindenden, horizontalen Beschleunigung ergibt.

Mit den Endpunkten der drei Verlagerungsvektoren ergibt sich eine Lösungsfläche, in der der Ort optimaler Energiekonsistenz berechnet wird, indem die horizontale Energiegleichung iterativ in der Fläche geprüft wird. Diese Prozedur wird für jeden Zeitschritt durchgeführt. Der Zeitschritt für diese Berechnungen beträgt 10 Minuten.

In der planetarischen Grenzschicht wird nur die kinematische Methode verwendet, da bei Trajektorien die Verwendung turbulenter Reibungsansätze problematisch ist und z.Zt. die Verwendung der beobachteten, bodennahen Winde im Vordergrund steht. Um einen besseren Eindruck über die vertikale Schichtung in der bodennahen Atmosphäre zu erhalten, werden in diesen Untersuchungen an jedem Ort zwei Trajektorien gestartet:

- eine, die strikt entlang der Bodenfläche berechnet wird und
- eine, die dreidimensional die Entwicklung der Grenzschicht und der Verhältnisse in der freien Atmosphäre berücksichtigt.

Für festgelegte Startorte werden vorwärts und rückwärts alle 10 Minuten Trajektorien gestartet, um eine statistisch relevante Zahl für die Auswertung zu erhalten. Außerdem wird dadurch die starke Variabilität in Zeit und Raum transparent. Auf eine Berücksichtigung turbulenter Ansätze in Form der Monte-Carlo-Methode wurde verzichtet, da z.Zt. nur sehr wenig gemessene Informationen z.B. über die lokale, vertikale Stabilität in der betrachteten Region vorliegen.

Im Folgenden werden 3D-Trajektorien verwendet.

Trajektorien und Einflussmatrizen

Die Windrichtung am Immissionsort ermöglicht keine genaue Zuordnung zu Quellregionen, daher ist die Betrachtung mit 3D-Trajektorien sinnvoll.

Es wurden durchgehend für den Untersuchungszeitraum Rückwärtstrajektorien an der jeweiligen Station im 10-Minutenabstand gestartet. Für den Untersuchungszeitraum wurde eine maximale Laufzeit von 3 Tagen ausgewertet, wobei die ersten beiden Tage wesentlich waren. Da Anteile von Aerosolen über größere Strecken transportiert werden können, wurde zunächst eine längere Laufzeit betrachtet, auch wenn die Unsicherheit zunimmt und die Verdünnung unbestimmt ist. Die Auswertung der Bodenkontakte entlang der Rückwärtstrajektorien wurde mit Interpolation durchgeführt. Die Laufzeit wurde nicht weiter aufgeschlüsselt.

Erwartungsgemäß weist die 3d-Variante in der Regel erheblich geringere Bodenkontakte auf als die Bodentrajektorien. Beide haben ihre eigene Fehlerhaftigkeit, 3-d Trajektorien zum Teil durch die Ungewissheit der realen Vertikalbewegungen und die Bodentrajektorien entsprechend der Annahme bodenparalleler Strömung. Für die nachfolgenden Statistiken werden nur die Auswertungen aus den 3D-Trajektorien dargestellt, da sie ein realistischeres Feld der räumlichen Bezüge ergeben.

Für Mitteleuropa wurde ein Raster von ca. 1 km² Maschenweite aufgespannt. Für dieses Raster und einem Höhenintervall von 0 bis 50m über Grund und/oder unterhalb der Mischungsschichthöhe wurden die 3D-Trajektorien auf Treffer abgefragt. Dabei war eine weitere Interpolation auf Sekundenintervalle notwendig, um eine bessere Zeitauflösung für die direkte Abfrage im Sinne eines Integrals zu erhalten. Die 3D-Trajektorien sind je nach Temperaturstruktur und Tageszeit nur zeitweise mit der Bodenschicht in Kontakt, so dass sich eine unterschiedliche räumliche Trefferhäufigkeit ergibt.

Daraus ergibt sich für den jeweiligen Zeitraum eine Bodenkontaktmatrix, die witterungsabhängig ist und für jede Station eine eigene Form aufweist. In der Abb. 1 ist für die Station Berlin-Neukölln diese Trajektoriendichten als „HITS“ für das Winterquartal dargestellt. Im Detail sind die Rasterinformationen in Perzentilen dargestellt, wobei die gesamte Matrix betrachtet wird. Die Maximalwerte geben die häufigste Verbindung zwischen dem Beobachtungsort und dem jeweiligen Rasterpunkt. Je nach Hauptwindrichtung ergibt sich eine anisotrope Struktur, die mit einer räumlichen Kovarianzfunktion verwandt ist.

Die jeweilige Bezugsstation ist als Stern besonders hervorgehoben.

Aus den Zeitreihen der chemischen Parameter wird jeder Trajektorie, stündlich der entsprechende Messwert zugeordnet und bei Kontakt mit einem Bodenraster jeweils direkt aufsummiert. Daraus ergibt sich eine Konzentrationssumme, die eine Wichtung des Trajektorienkontaktees mit der Immissionsstärke und des Kontakthäufigkeit verbindet. Aus den Kontaktsummen und den Summen von PM10 wird eine jeweils mittlere Konzentration für jedes 1km²-Einheit bestimmt, die unabhängig von der Trefferhäufigkeit ist. Diese Konzentrationen sind nur dann hoch, wenn häufige Trajektorienkontakte und hohe Immissionswerte zusammentreffen.

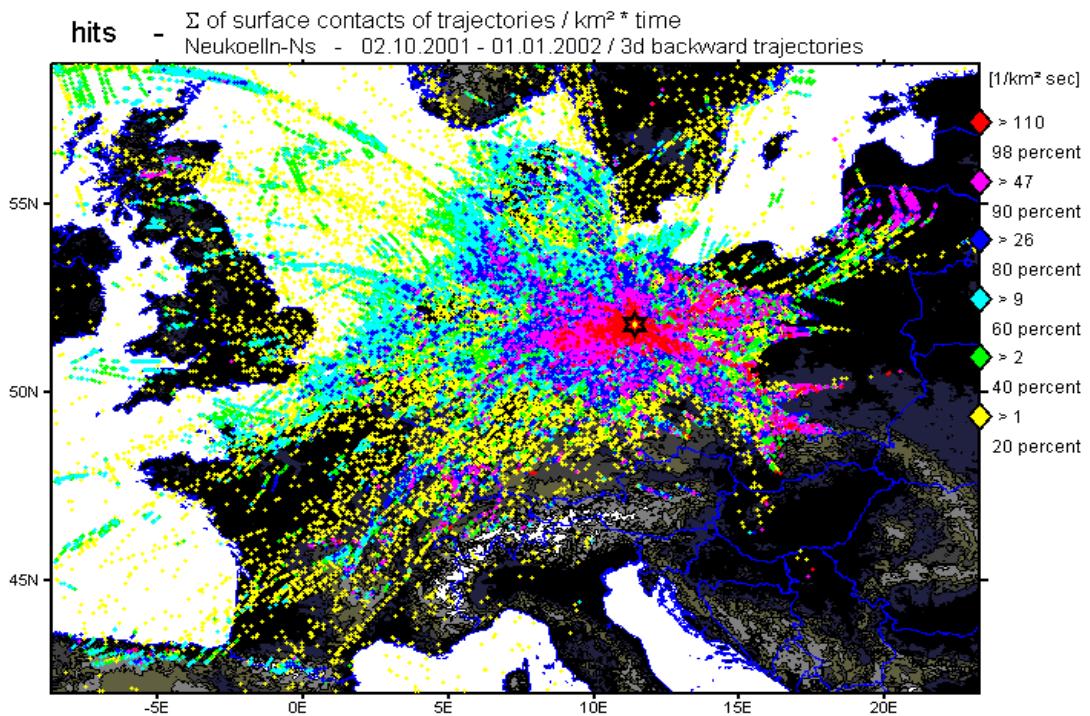


Abb. 1 Einflussmatrix, integraler Kontakt innerhalb 1km²*50m
 3d-Rückwärtstrajektorien für Okt – Dez 2001,

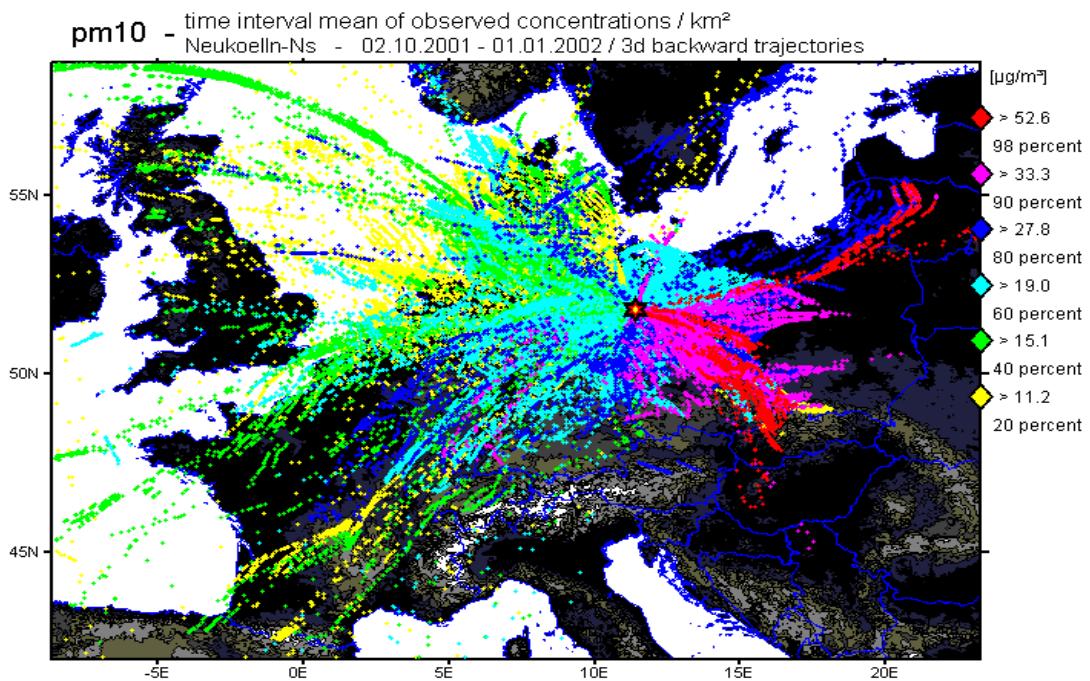


Abb. 2 integraler Kontakt innerhalb 1km²*50m,
 Einflussmatrix gewichtet mit PM10-Beobachtungen
 3d Rückwärtstrajektorien für Okt – Dez 2001.

In Abb. 2 wird diese mittlere Konzentration von Berlin-Neukölln aus gesehen für das

Winterquartal dargestellt.

Für die beobachteten PM10-Konzentrationen in Berlin-Neukölln ergeben sich sehr konzentrierte Transporte aus südöstlicher Richtung von Kattowitz her, die Berlin mit Konzentrationen über $52 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Mittel erreichen.

Durch die Bildung der Immissionssummen in Abhängigkeit von Trajektorienbahnen können potentielle Quellregionen und Einflusszonen hervorgehoben werden, da mit der Entfernung vom jeweiligen Messort die Summenwerte nur hoch sein können, wenn entsprechend viele Trajektorienkontakte im Bodenraster gezählt wurden.

Die zugeordneten Konzentrationen in der Nähe der Startorte sind generell hoch, da die Trajektorien im direkten Umkreis des Startpunktes natürlich einen relativ kleinen Areal mit Bodenkontakten durchlaufen. In Stationsnähe muss daher nicht unbedingt eine Quelle existieren.

Quellregionen können entlang der Trajektorien liegen und nur in der gemittelten Betrachtung ist es möglich auf Schwerpunkte zu schließen, da bei einer wiederholt auftretenden Quelle ein entsprechend hoher Summenwert im Laufe der jeweils 3 Monate auftreten muss. Die Betrachtung einmaliger Emissionen ist hier nicht vorrangig und nur möglich, wenn sie in dem entsprechenden Zeitraum nicht überlagert werden. Dissipative Prozesse sind nicht berücksichtigt.

Die individuellen Kontaktmatrizen geben ein genaueres Strömungsmuster wieder, aber nur im Einzelfall, unter Kenntnis der Emissionskataster, eine direkte Quellzuordnung.

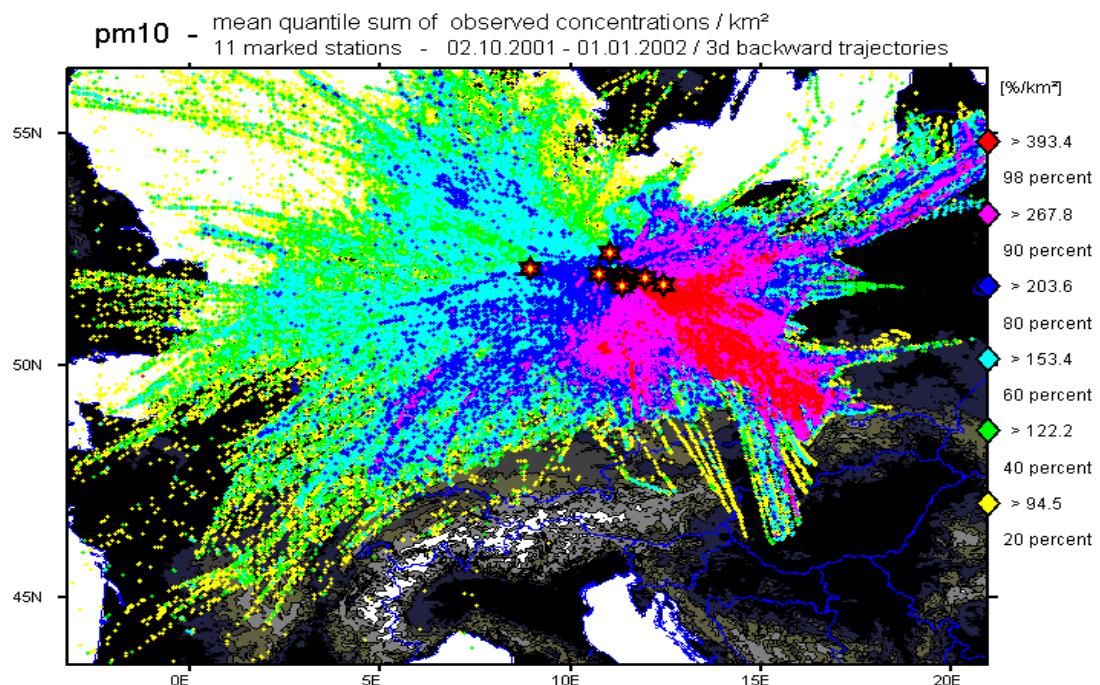


Abb. 3 integraler Kontakt innerhalb 1km²*50m
Einflussmatrix gewichtet mit PM10-Beobachtungen
3d Rückwärtstrajektorien für Okt – Dez 2001.
Verbindet man aber mehrere Stationsmatrizen, so ergeben sich durch Überlagerung

gemeinsame Quellregionen. Um eine Vergleichbarkeit zu gewährleisten, wurden hier nicht die Konzentrationen addiert, sondern die räumlichen Perzentilwerte jeder Konzentrationsmatrix verwendet. Dieser Quantilenvergleich ermöglicht unterschiedlich beeinflusste Stationen miteinander zu verbinden.

Abb. 3 zeigt eine Kombination der Einflussmatrizen der verschiedenen Messstationen. Dabei zeigt sich auch hier, dass im 4. Quartal 2001 eine recht stabile Südostströmung bestand, die alle Stationen beeinflusste. Jedoch zeigen sich hier auch andere gemeinsame Quellregionen südlich und östlich der Stadt, die jedoch zu diesem Zeitabschnitt mit geringeren Konzentrationswerten von PM10 in Neukölln verbunden waren.

Diese Matrizen sind stark witterungs- und ortsabhängig und jede chemische Spezies hat eine eigene Gewichtung. Daher wandelt sich im Jahr die Transportbeeinflussung Berlin zusammen mit der Abfolge von Großwetterlagen.

Als zusätzliches Beispiel ist in Abb. 4 noch die Einflussmatrix für Sulphat gegeben. Die Summendarstellung weist auf Quellen im oberschlesischen Industrievier hin, wobei die Modellrechnungen zeigten, dass Sulphat auch innerhalb Wolkenluft auf dem Transport nach Berlin gebildet wurde.

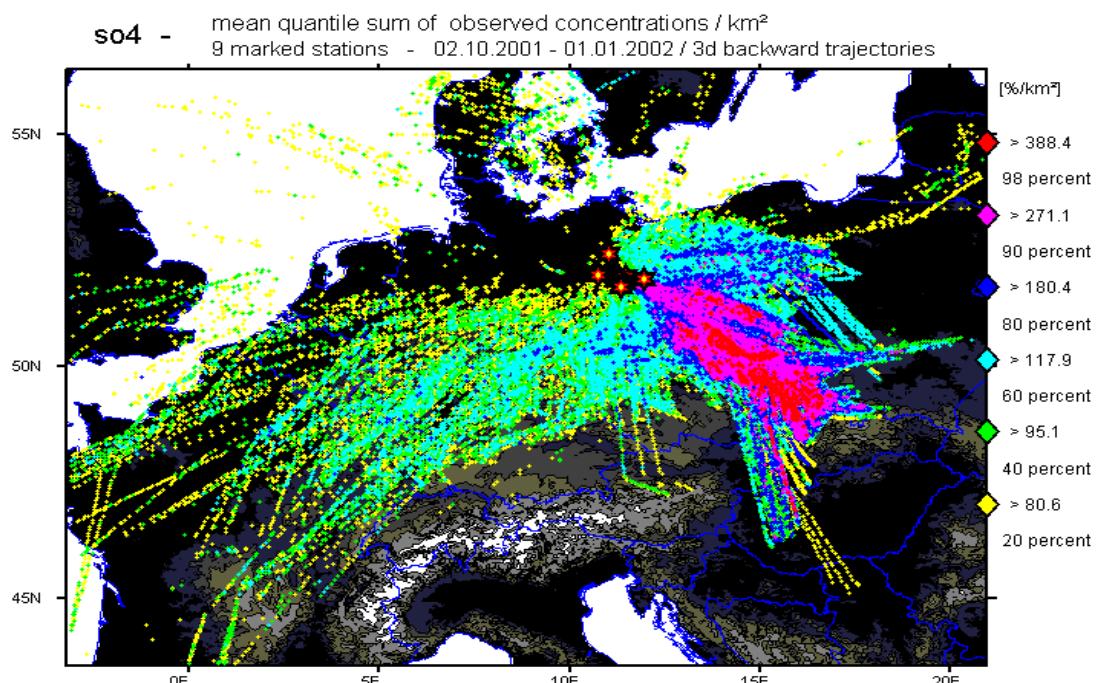


Abb. 4 integraler Kontakt innerhalb 1km²*50m
Einflussmatrix gewichtet mit SO₄-Beobachtungen
3d Rückwärtstrajektorien für Okt – Dez 2001.

Modellvergleich

Ein zusätzlicher Projektpunkt besteht in der Validierung des chemischen Transportmodells REM/Calgrid, das für Bilanzuntersuchungen und Emissionsszenarienrechnungen verwendet wird.

Neben dem lokalen Messvergleich können auch die Einflussmatrizen mit Beobachtungen und mit Pseudobeobachtungen aus den Modellläufen verglichen werden. Dadurch wird neben dem lokalen Vergleich auch das entsprechende Transportmuster abgefragt und die räumliche Beziehung untersucht.

Da die Modellrechnungen mit den meteorologischen Felder angetrieben werden, die auch für die Trajektorienkonstruktion verwendet werden, ist bei diesem Vergleich nur die Immissionsseite unterschiedlich.

Die Modelldateien werden auf die Beobachtungsorte hin interpoliert und die gleiche Prozedur wie bei den Messreihen durchgeführt. Die Differenzen der Matrizen sind überwiegen den chemischen Prozessen und den Emissionen zuzuordnen.

Im Vergleich, hier nicht dargestellt, ergaben sich teilweise Hinweise für Modellverbesserungen. So wurde der oben erwähnte Sulfateneintrag zu gering modelliert, was sich auf die zu generalisierte Wolken- und Feuchtedarstellung in den meteorologischen Feldern zurückführen ließ. Durch eine verfeinerte Wolkenstruktur wurden die modellierten Sulfatkonzentrationen in Neukölln verbessert.

Ein anderer Aspekt ergab sich in der lokalen Gewichtung der Emissionen. Anhand der NO₂-Konzentrationen in Berlin zeigte sich, dass die lokalen NOx-Emissionen in Bodennähe zu stark angereichert wurden, gegenüber dem Transport von Außen. Eine bessere vertikale Diskretisierung führte zu einer Übereinstimmung der Modelldaten mit den Beobachtungen.

Die Erweiterung des Modellvergleich durch die räumliche Dimension erwies sich als sinnvoll.

Zusammenfassung und Ausblick

Mit einer Trajektorienauswertung wurden und werden PM10- und andere Aerosolkonzentrationen im Berliner Raum untersucht.

Die Ursachen für das Schadstoffaufkommen der Region sind vielfältiger Natur. Lokale Emissionen der Primärstoffe, Ferntransport von Vorläuferstoffen oberhalb der Mischungsschichthöhe, horizontale und vertikale Berliner Raum sind von Bedeutung. Mit einem feinen Raster von 1x1km wurden für die 10 Messorte die Transportmuster untersucht.

Aus den Untersuchungen folgt:

- Für die Beobachtungsorte ergeben sich sehr unterschiedliche Einflussgebiete, die stark witterungsabhängig sind.
- Durch den Vergleich der Belastungsmuster der einzelnen Beobachtungsorte und Regionen können Rückschlüsse auf die Beeinflussung durch Ferntransporte gezogen

werden.

- Über die immissionsgewichteten Transportmatrizen können Einflussgebiet mit Herantransport hoher Konzentrationen von Schadstoffen identifiziert werden.
- Die Verbindung von trajektoriengestützter Datenanalyse und dem entsprechenden Vorgehen mit Modellergebnissen eröffnet eine weitere Validierungsmöglichkeit.

Anzustreben wäre eine weitere Verdichtung der meteorologischen Messungen, die auch die vertikale Schichtung besser auflösen sollte. Eine verbesserte Datenlage wäre auch für die Betrachtung dissipativer Prozesse entlang der Trajektorien notwendig.

Eine Zuordnung zu Emissionskatastern ist möglich und durch die Modelanwendung gegeben.

Literatur

Ackermann, I.J. (1998).

MADE: Entwicklung und Anwendung eines Aërosol-Dynamikmodells für dreidimensionale Chemie-Transport-Simulationen in der Troposphäre, Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln, Heft 115, Köln

Carter, W. (1996).

Condensed atmospheric photooxidation mechanisms for isoprene, Atmos. Environ. 30 (1996) 4275-4290.

Hanna S.R. und Paine R.J., 1989:

Hybrid Plume Dispersion Model (HPDM) Development and Evaluation. J. of Appl. Met., Vol.28, pp. 206-224.

Kerschbaumer A. und Reimer E., 2002.

Erstellung der Meteorologischen Daten für Berlin-Brandenburg (F&E-Vorhaben des UBA: Entwicklung eines Modellsystems für das Zusammenspiel von Messung und Rechnung für eine bundeseinheitliche Umsetzung der EU-Rahmenrichtlinie Luftqualität). Bericht Dez. 2002, UBA

Reimer E., 2001.

Ausbreitungsanalyse von Geruchsstoffen und anderen Parametern am Mittleren Erzgebirge mittels Trajektorien, Institut für Meteorologie - Troposphärische Umweltforschung, FU Berlin; Abschlussbericht für Sächsische Landesamt für Umwelt und Geologie.

Reimer E., 2003.

Untersuchung des Transports von Luftschadstoffen und Geruchsstoffen im deutsch-tschechischen Grenzgebiet mittels Trajektorien im Winterhalbjahr 2001/02, Institut für Meteorologie - Troposphärische Umweltforschung, FU Berlin; Abschlussbericht für Sächsische Landesamt für Umwelt und Geologie.

- Reimer E., Kaupp H., 1997:
Source Identification of Odour Compounds using Trajectories.
Interreg II Research Project OMKAS, Proc. Of ECO-INFORMA ,97, 6.-9.October
1997, Eco-Informa Press, Bayreuth, 572-577.
- Reimer E. und Scherer B., 1992:
An operational meteorological diagnostic system for regional air pollution analysis and long-term modelling. Air Poll. Modelling and its Applications IX. Plenum Press
- Scire J., linsley E.M., Yamartino R.,1990b:
Model formulation and user's guide for the CALMET meteorological model.
Sigma Research Corp., Concorde, MA., USA.
- Stern R., (2003).
Entwicklung und Anwendung des chemischen Transportmodells REM/CALGRID,
Abschlußbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 298 41 252 auf dem
Gebiet des Umweltschutzes „Modellierung und Prüfung von Strategien zur
Verminderung der Belastung durch Ozon“, FU-Berlin

C.4 Ausbreitungsberechnungen mit dem EURAD- Modell als Hilfsmittel bei der PMx- Quellenidentifizierung

**M. Memmesheimer, E. Friese, H.J. Jakobs, H. Elbern, H.
Feldmann, A. Ebel, G. Piekorz (RIU Uni Köln)**

Ausbreitungsrechnungen mit dem EURAD-Modell als Hilfsmittel bei der PMx-Quellenidentifizierung

M. Memmesheimer, E. Friese, H.J. Jakobs, H. Elbern, C. Kessler, H. Feldmann, A. Ebel, G. Piekorz

Rheinisches Institut für Umweltforschung an der Universität zu Köln
www.eurad.uni-koeln.de

Einleitung

Die rasante technische Entwicklung der letzten Jahre ermöglicht es, komplexe Modelle, die meteorologische und chemische Prozesse in der Atmosphäre beschreiben, zur Vorhersage der Luftqualität und zur Berechnung der Auswirkung von Emissionsminderungsmaßnahmen einzusetzen. Die Anwendung dieser Modellsysteme umfassen dabei nicht nur Zeiträume von einigen Tagen, sondern eine Zeitspanne von mehreren Jahren. Diese Modelle wurden im Rahmen nationaler und internationaler Forschungsprogramme (AFO2000: Atmosphärenforschungsprogramm 2000 des BMBF; www.ago2000.de; EUROTAC (Builtjes et al., 2003) teilweise seit Jahrzehnten entwickelt und mit Messungen überprüft. In der Vergangenheit wurden diese Modellsysteme bereits erfolgreich zur Berechnung von Ozonepisoden eingesetzt. Sie wurden in den letzten Jahren jedoch auch im Bereich der Aerosoldynamik und –chemie erheblich weiterentwickelt und erfassen neben der Ausbreitung und Deposition primär emittierter Partikel auch die Bildung sekundärer Aerosole aus gasförmigen Vorläufersubstanzen. In diesem Beitrag wird auf das EURAD-Modellsystem („Europäisches Ausbreitungs- und Depositionsmodell“) eingegangen und Anwendungsbeispiele zur Berechnung vom atmosphärischen Partikeln und deren Quellen gezeigt.

Das EURAD-Modell

Das EURAD-Modellsystem behandelt die Bildung, den Transport und die Deposition atmosphärischer Spurenstoffe auf der lokalen, regionalen und hemisphärischen Skala. Eine typische Modellkonfiguration ist in Abbildung 1 gezeigt. Mit dem Modell werden sowohl gas- wie partikelförmige Spurenstoffe. Die chemischen Umwandlungen in der Gasphase werden mit dem RADM2- oder RACM-Mechanismus (Stockwell et al., 1997) behandelt, die Partikeldynamik und Chemie wird mit Aerosolmodul MADE-SORGAM numerisch simuliert (Schell et al., 2001). Damit ist das Modellsystem auch in der Lage die Umwandlung gasförmiger Vorläufersubstanzen in sekundär gebildete Partikelmasse zu beschreiben.

Neben der Konzentration der Schadstoffe in der Luft werden auch trockene und nasse Deposition berechnet. Neben dem chemischen Zustand der Atmosphäre werden auch meteorologische Felder (Strahlung, Feuchte, Niederschlag, Wind und Turbulenzparameter) bereitgestellt. Die Berechnung dieser Felder erfolgt über das mesoskalige meteorologische Modell MM5.

Typische benötigte Eingabeparameter sind Landnutzung und Topographie sowie die Emissionswerte, die flächendeckend für das gesamte behandelte Gebiet mit einer geeigneten zeitlichen (1 Stunde) und stofflichen Auflösung vorhanden sein müssen. Typische Ausgabewerte des Modells sind bei den gasförmigen Stoffen: NO, NO₂, SO₂, NH₃, O₃, HNO₃, H₂O₂, HO₂, OH, NO₃, N₂O₅, PAN, Isopren, α-pinene, β-limonene, Aromaten, Alkane, Alkene, Carbonyle, Formaldehyd, höhere Aldehyde und organische Säuren. Für das

atmosphärische Aerosol steht PM_x (beispielsweise PM_{10} , $\text{PM}_{2.5}$, PM_1), die Teilchenzahldichte, Oberfläche und chemische Zusammensetzung zur Verfügung (Nitrat (NO_3^-); Ammonium (NH_4^+); Sulfat (SO_4^{2-}); sekundär gebildet organische Komponenten). Die Werte liegen in der Regel mit stündlicher Auflösung für alle Höhenschichten vom Boden bis zur Tropopause (ca. 15 km) vor.

Das EURAD-Modellsystem kann sowohl zur kurzfristigen Spurenstoffprognose („chemische Wettervorhersage“, www.eurad.uni-koeln.de) wie zur Luftreinhalteplanung eingesetzt werden. Durch die Erhöhung der Rechengeschwindigkeit (Parallelisierung, Rechnerverbünde) können mittlerweile auch auf PC-Basis Modellrechnungen über die Dauer von einem oder mehreren Jahren durchgeführt werden. Mit geeigneten Emissionsszenarien können damit auch im Sinne der EU-Rahmenrichtlinie 96/62 und ihrer Tochterrichtlinien (beispielsweise 99/30) Beiträge zur Maßnahmenplanung und Quellenidentifizierung geleistet werden. Beispiele für solche Einsatzmöglichkeiten eines komplexen Chemie-Transport-Modells werden vorgestellt. Dabei steht das Bundesland Nordrhein-Westfalen im Mittelpunkt der Untersuchungen, Ferntransporte auf der europäischen Skala werden jedoch durch das so genannte Nestungverfahren berücksichtigt (siehe Abbildung 1 und 2).

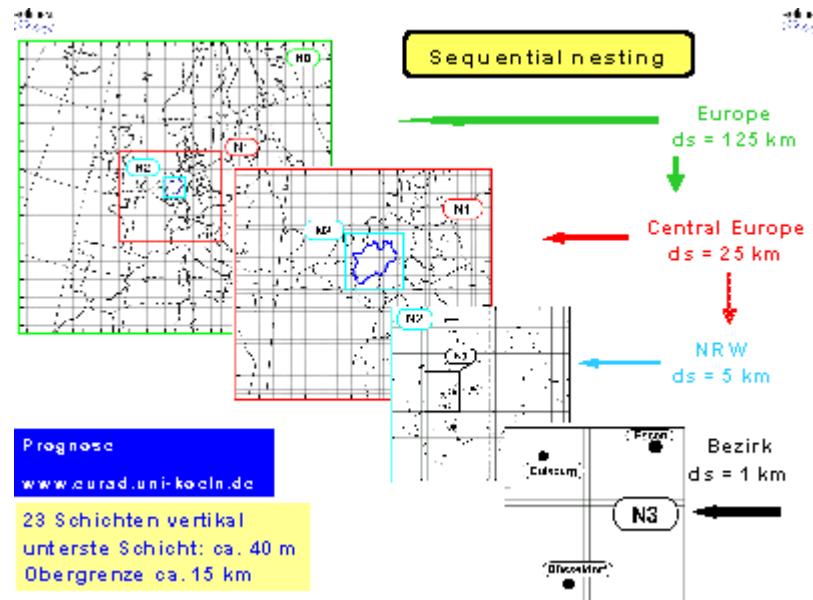


Abbildung 1: Die Nestung-Konfiguration des EURAD-Modellsystems für Anwendungen auf ein ausgewähltes Modellgebiet innerhalb Europas. Die Nestung erlaubt die Berücksichtigung von Ferntransporten von Spurenstoffen durch atmosphärische Windsysteme innerhalb Europas. Damit kann der Einfluss von Ferntransporten auf kleinräumige Regionen erfasst werden. In dem hier dargestellten Beispiel, das für Jahresrechnungen für das Gebiet Nordrhein-Westfalens verwendet wird, erfolgt die Nestung über mehrere Nestebenen. Europaweit beträgt die horizontale Maschenweite 125 km, für NRW 5 km. Für ausgewählte Gebiete (N3) sind auch Rechnungen mit 1 km Maschenweite möglich. In der Vertikalen erstreckt sich das Modellgebiet vom Boden bis zu Tropopause (ca. 15 km Höhe).

Ergebnisse

Als Beispiele für Rechnungen für ein ganzes Jahr werden Ergebnisse für die Jahre 1997 und 2002 gezeigt, die in den vom Landesumweltamt NRW (LUA-NRW) geförderten Vorhaben ANABEL (Friese et al., 2002) und APART (Friese et al., 2003) gewonnen werden konnten. Episoden mit sehr hohen PM-Konzentrationen treten häufig in der Zeit von Ende September bis Mitte März auf. Ein Beispiel dafür zeigt Abbildung 2, die zugleich die Nestung-Konfiguration nochmals illustriert. Typischerweise treten derart hohe PM-Konzentrationen in stabilen Hochdruckgebieten auf. Im Winterhalbjahr begünstigen mehrere Faktoren die

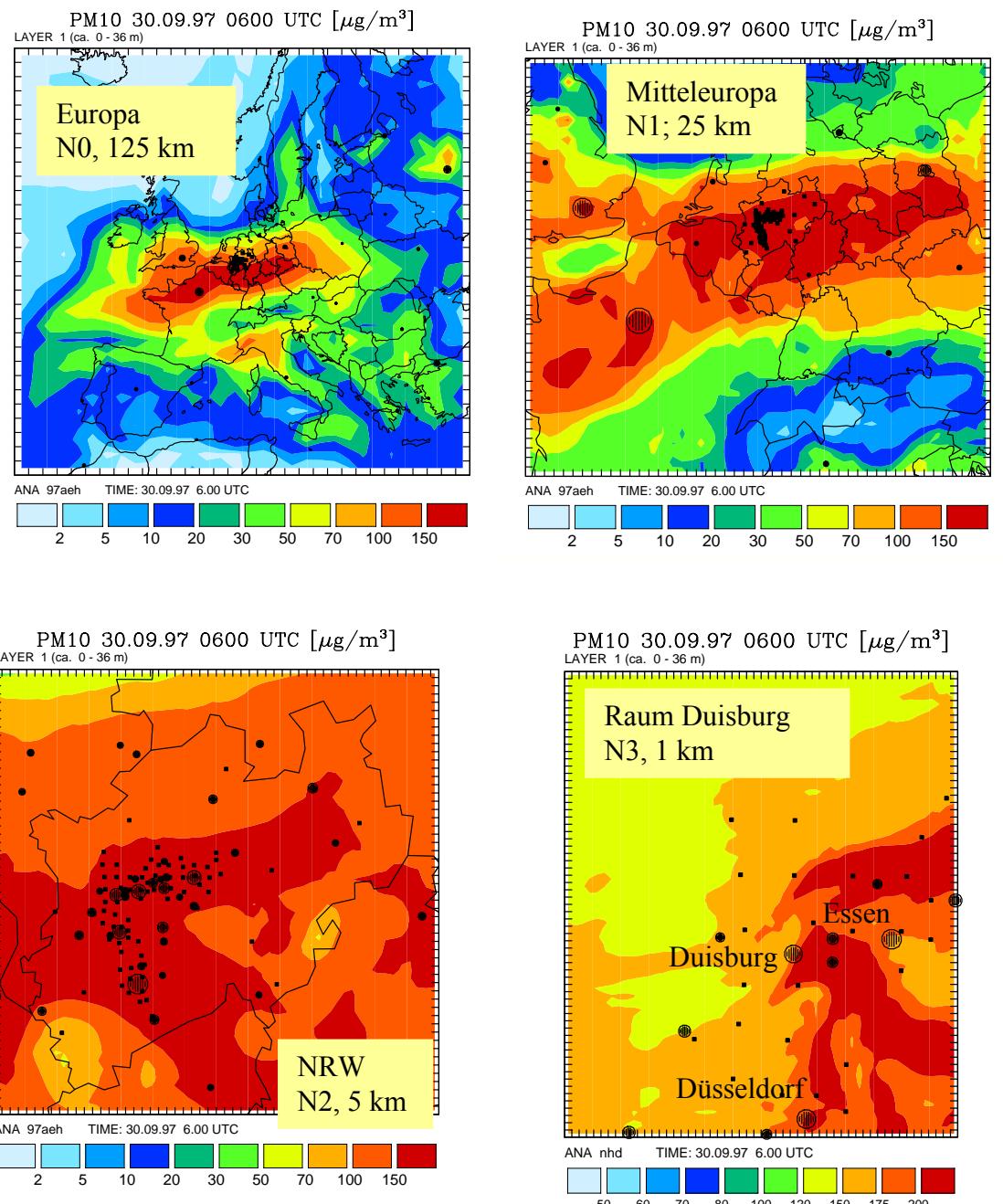


Abbildung 2: Beispiel für sehr hohe PM₁₀-Konzentrationen während eines ausgewählten Zeitpunktes. Europaweit (N0, 125 km) werden großflächig hohe PM₁₀-Konzentrationen erreicht, die im Bereich eines stabilen Hochdruckgebietes über Mitteleuropa auftreten. Auch NRW ist in diesen Bereich mit hohen PM₁₀-Werten eingebettet (nach Friese et al., 2002).

Anreicherung von primär emittierten Partikeln, aber vor allem auch diejenige von gasförmigen Vorläuferstoffen (NH_3 , NO_x , SO_2 , Kohlenwasserstoffe), aus denen sich sekundäre Aerosole bilden können. Im Winterhalbjahr sind die meteorologischen Bedingungen für die Bildung von Nitrat und Ammonium bei niedrigen Temperaturen und hohen relativen Feuchten besonders günstig. Besonders wichtig ist auch die geringe vertikale Durchmischung, die sich bei Hochdrucklagen besonders im Winterhalbjahr einstellt.

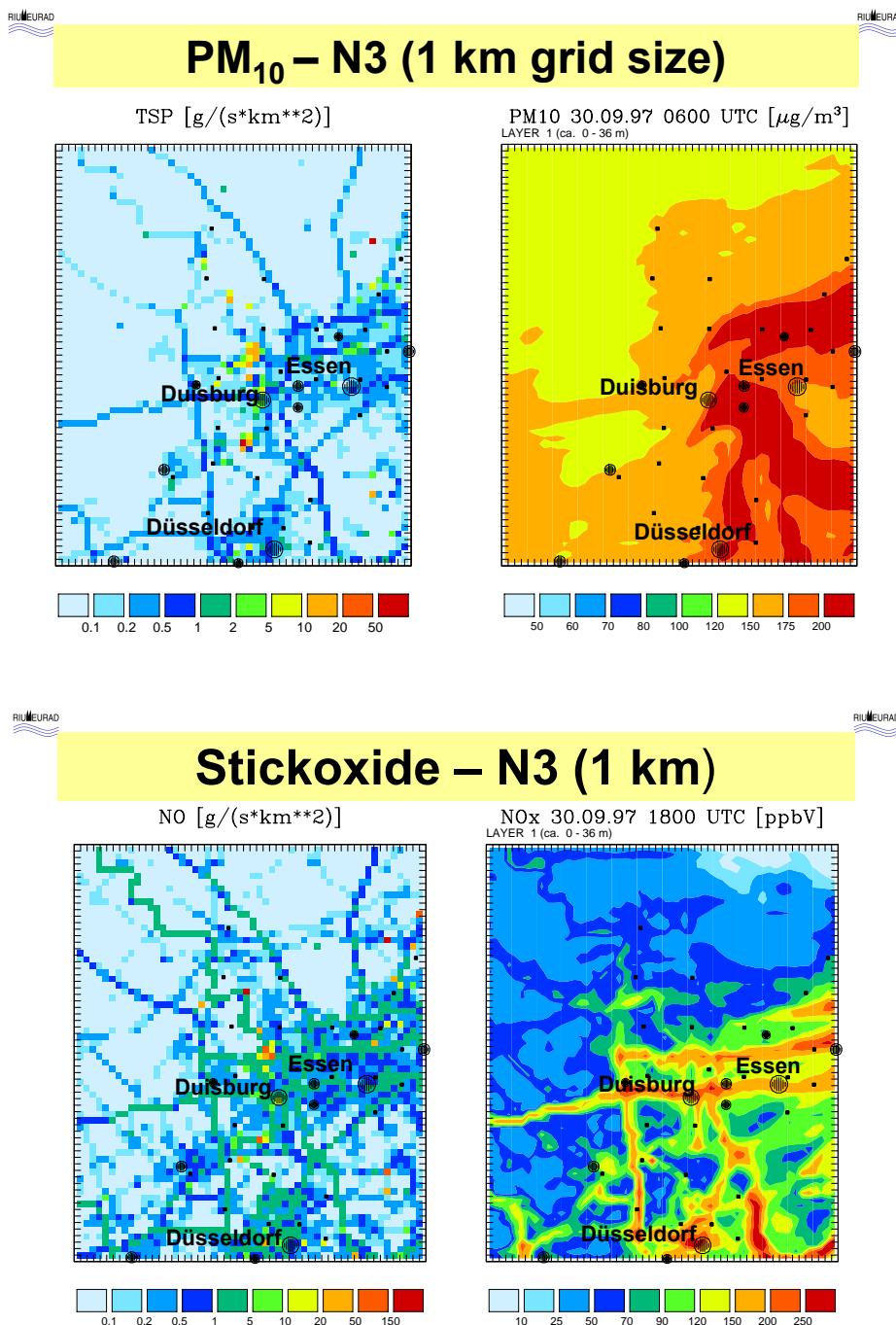


Abbildung 3: Vergleich der Emissionsraten und Konzentrationen von PM₁₀ und NO_x während der Hochdruckepisode Ende September 1997. Die räumliche Struktur der Emissionsraten spiegelt sich bei den Stickoxiden wesentlich deutlicher wieder als bei PM₁₀. Dessen Konzentrationen werden neben primären Quellen durch sekundäre Partikelbildung beeinflusst (nach Friese et al., 2002).

Abbildung 3 zeigt einen Vergleich zwischen den räumlichen Strukturen der Emissionsraten bei Stickoxiden und Partikeln während der Hochdrucklage Ende September 1997. Bei windschwachen, austauscharmen Wetterlagen wird die räumliche Struktur der Stickoxid-Konzentration deutlich von den Emissionsraten (Ballungszentren, Punktquellen, Straßen) geprägt, während sich bei der PM-Konzentration neben dem Einfluss der primären Quellen auch der Beitrag der sekundär aus gasförmigen Vorläufern gebildeten Aerosole zeigt.

Abbildung 4 zeigt die Ergebnisse der Modellrechnung für das Jahr 1997 für das gesamte Jahr. Beispieldhaft sind der berechnete Mittelwert der NO_x-Konzentration und die Anzahl der Tage mit einer Überschreitung des Grenzwertes für das Tagesmittel von 50 µg/m³ dargestellt.

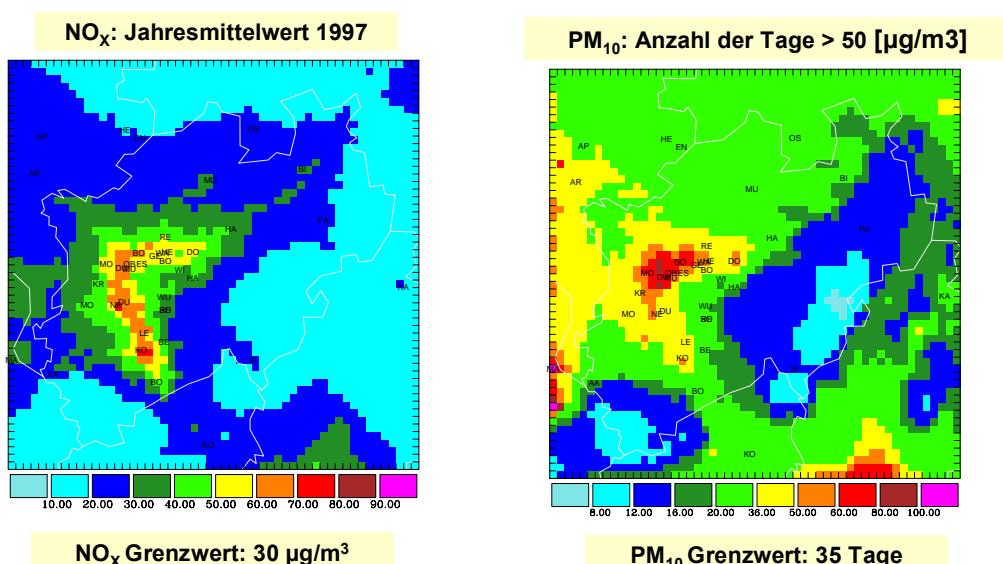


Abbildung 4: Jahresmittelwert der NO_x-Konzentration und Anzahl der Tage mit einer Überschreitung des Grenzwertes bei Tagesmittelwerten für PM10. Ab dem Jahr 2005 darf ein Tagesmittelwert von 50 µg/m³ nicht mehr häufiger als 35mal im Kalenderjahr überschritten werden. Der NO_x-Grenzwert (Jahresmittel) von 30 µg/m³ zum Schutz der Vegetation soll bereits ab dem Jahr 2001 eingehalten werden (nach Friese et al., 2002).

Einen Eindruck der Modellergebnisse mit den Messungen geben die Abbildungen 5a,b. Abbildung 5a zeigt für das dritte Quartal des Jahres 1997 (1.7. – 30.09.) den zeitlichen Verlauf der maximalen PM-Konzentration (auf der Basis stündlicher Werte) gemittelt über alle Stationen des LUQS (TEMES) Mess-Netzes des LUA-NRW. Der Anstieg der PM-Werte Ende September ist sowohl in den Messungen wie in den Ergebnissen der Modellrechnung gut zu erkennen. Generell zeigen die Ergebnisse der Modellrechnungen für das N2-Gebiet (NRW) jedoch eine Unterschätzung der Partikelmasse (Tagesmaximum). Dies mag auf fehlende Quellen im Emissionskataster zurückzuführen sein, die Vergleichbarkeit zwischen Messung und Modellergebnis im Hinblick auf PM_{10} ist jedoch auch dadurch eingeschränkt, dass die PM_{10} -Messungen aus Schwebstaub (TSP)-Messungen über einen standardisierten konstanten Faktor gewonnen wurden ($PM_{10} = 0.83 \cdot TSP$), der nicht immer korrekt sein mag. Außerdem spielt die horizontale und vertikale Auflösung des Modells eine Rolle (5 km bzw. ca. 40 m Dicke der untersten Modellschicht).

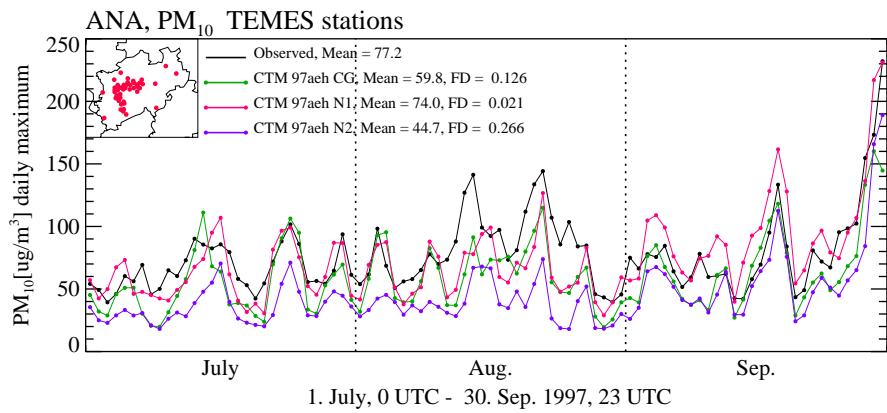


Abbildung 5a: Zeitreihenvergleich beobachteter und gemessener Werte der täglichen maximalen PM-Konzentrationen (auf der Basis von Stundenwerten) im dritten Quartal des Jahres 1997. Die gemessenen Werte sind ein Mittelwert aller LUQS (früher TEMES) Mess-Stationen des LUA-NRW (aus Friese et al., 2002). Die schwarze Kurve zeigt die Beobachtungen, die farbigen Kurven die Modellergebnisse für die verschiedenen Modellgebiete mit unterschiedlicher horizontaler Auflösung: N0 (Europa, 125 km) , N1 Mitteleuropa, 25 km) und N2 (NRW, 5 km).

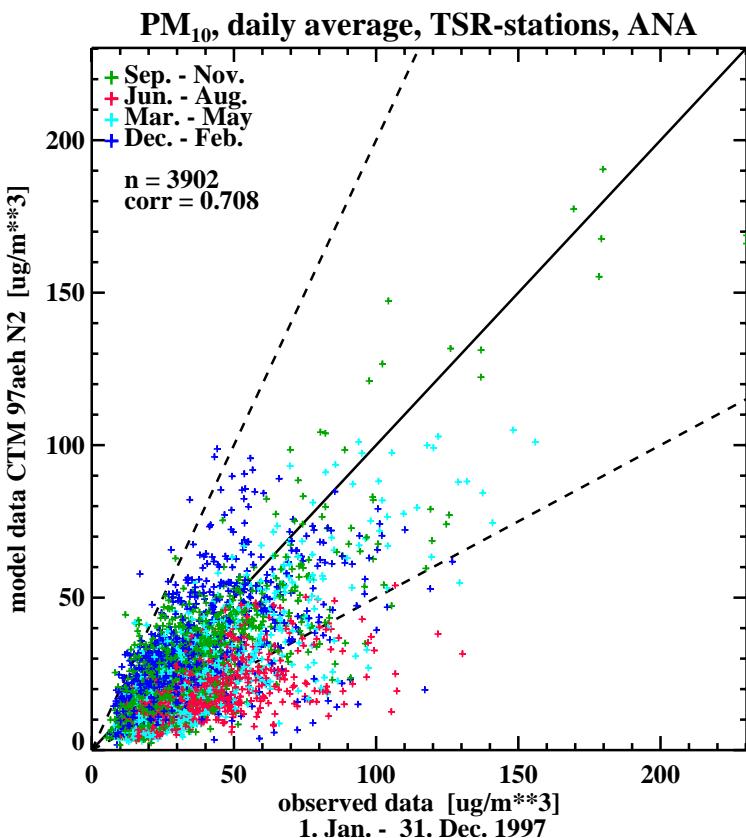


Abbildung 5b: Vergleich von Messungen mit Modellergebnissen der N2-Rechnung für NRW für das Jahr 1997. Gemessene Tagesmittelwerte von LUQS-Stationen des LUA-NRW (aus Friese et al., 2002). Die Farben repräsentieren unterschiedliche Jahreszeiten. Die hohen Werte traten im Herbst (Sep. – Nov.) auf, teilweise während der Episode Ende September 1997. Sie werden durch die Modellrechnung gut wiedergegeben. Es ist zu beachten, dass $PM_{10} = 0.83 \cdot TSP$ angenommen wurde, da lediglich TSP-Messungen vorlagen. Vor allem im Sommer werden die Werte unterschätzt.

Als Streudiagramm werden die Tagesmittelwerte der gemessenen PM-Masse an den LUQS (TEMES)-Stationen des LUA-NRW in Abbildung 5b mit den berechneten Werten für das N2-Gebiet verglichen. Die berechneten Tagesmittelwerte stimmen meist gut mit den gemessenen Werten überein. Im Sommer liegt die berechnete PM-Masse allerdings niedriger als die beobachteten Werte. Mögliche Gründe könnten die windgetriebene Aufwirbelung von Staub oder eine zu niedrige Bildungsrate sekundärer organischer Partikel sein.

Um den Einfluss des Ferntransports besser abschätzen zu können, wurde für die Episode Ende September 1997 in einer Modellrechnung angenommen, dass in NRW keine anthropogenen Emissionen auftreten (noNRW). Die Ergebnisse dieser Rechnung sind beispielhaft in Abbildung 6 gezeigt. Abbildung 7 zeigt die Auswirkungen des Szenarios

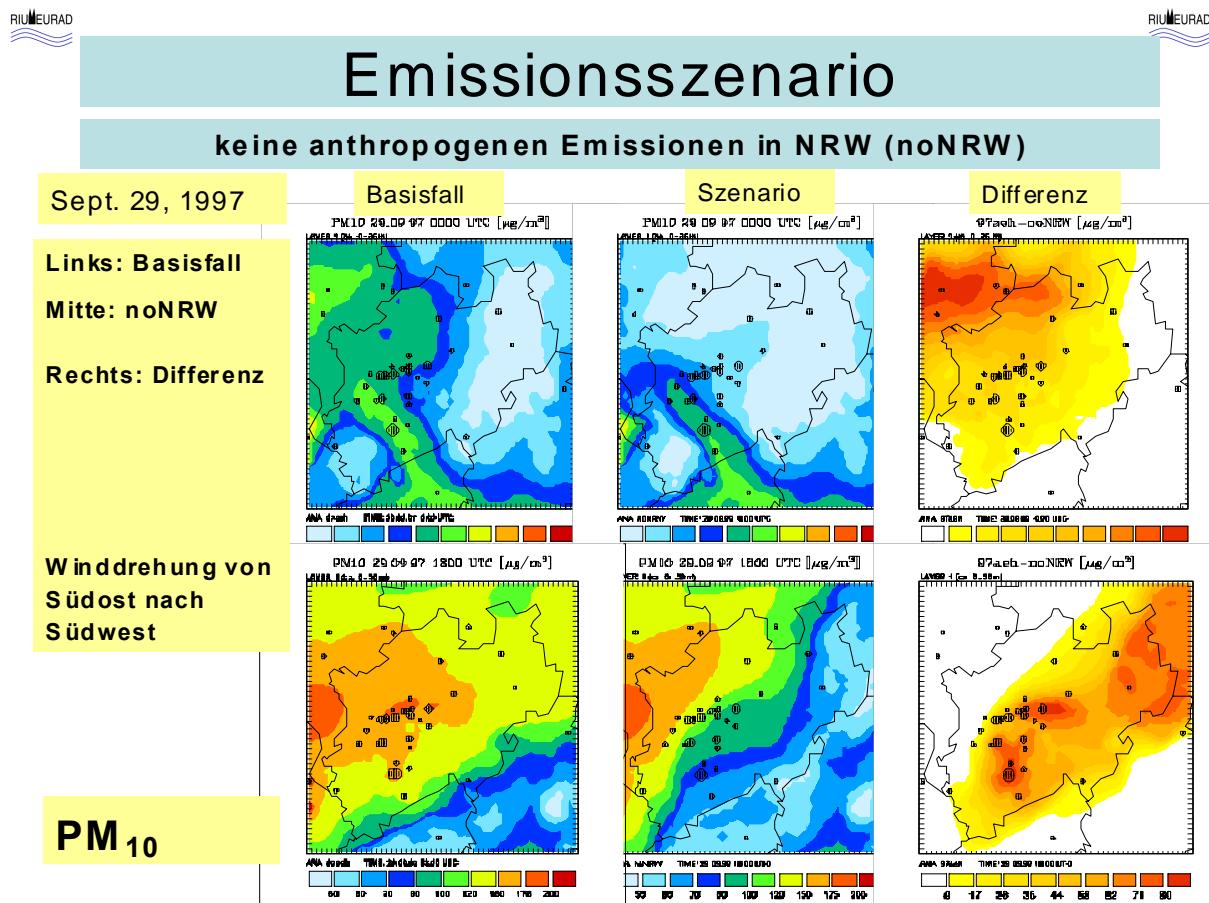


Abbildung 6: Emissionsszenario für NRW. Es wurde angenommen, dass in NRW keine anthropogenen Emissionen auftreten. Die Abbildung zeigt die Ergebnisse dieser Rechnung für PM₁₀ zu Beginn der herbstlichen PM-Episode Ende September 1997. Die Ergebnisse der Modellrechnung für den Basislauf mit unveränderten Emissionen sind links dargestellt, diejenigen für den Szenario-Lauf in der Mitte, die Differenz rechts. Während der Nacht (29.09.97, 00 UTC, oben) ist die vorherrschende Windrichtung noch Südost, das mittlere Bild zeigt, dass im Rheintal auch ohne anthropogene Emissionen in NRW noch erhöhte Konzentrationen auftreten können. Die höchsten Minderungen in der Nacht treten in den Niederlanden, die zu diesem Zeitpunkt in der „Abluftfahne“ von NRW liegen, auf. Bis zum Abend (29.09.1997, 18 UTC) dreht der Wind auf Südwest, in Grenznähe zu den Niederlanden treten auch dann hohe Werte (über 100 µg/m³) auf, wenn angenommen wird, dass es keine anthropogenen Emissionen in NRW gibt. Die höchsten PM-Minderungen treten in der Rhein-Ruhr-Schiene und im Bereich der „NRW-Abluftfahne“ im Grenzbereich NRW,

Niedersachsen und Hessen auf. Dieses Beispiel zeigt, dass Ferntransport einen deutlichen Beitrag zu PM-Werten über $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$, teilweise sogar über $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ liefern können.

An der LUQS-Station Köln-Chorweiler für Stickoxide und PM_{10} . Der Effekt des Emissionsszenarios auf die stark von primären Emissionen geprägte Stickoxid-Konzentration ist wesentlich deutlicher als bei den PM_{10} -Konzentrationen. Die geringe Abnahme von PM_{10} durch die angenommene Emissionsreduktion liegt an dem großen Einfluss von Ferntransportsen und den während des Transportes gebildeten Sekundärpartikeln (Nitrat, Ammonium, Sulfat). PM_{10} , Nitrat und Ammonium sind für eine neuere Modellrechnung für das Jahr 2002 in Abbildung 8 dargestellt (Friese et al., 2003). Dort ist der höchste Tagesmittelwert von PM_{10} , Nitrat und Ammonium für das Jahr 2002 (Modellrechnung für das FuE-Vorhaben APART, Friese et al., 2003) dargestellt. Es zeigt sich deutlich, dass sekundär gebildetes Nitrat und Ammonium während Episoden mit hohen PM-Konzentrationen einen großen Anteil zur PM-Masse liefern kann.

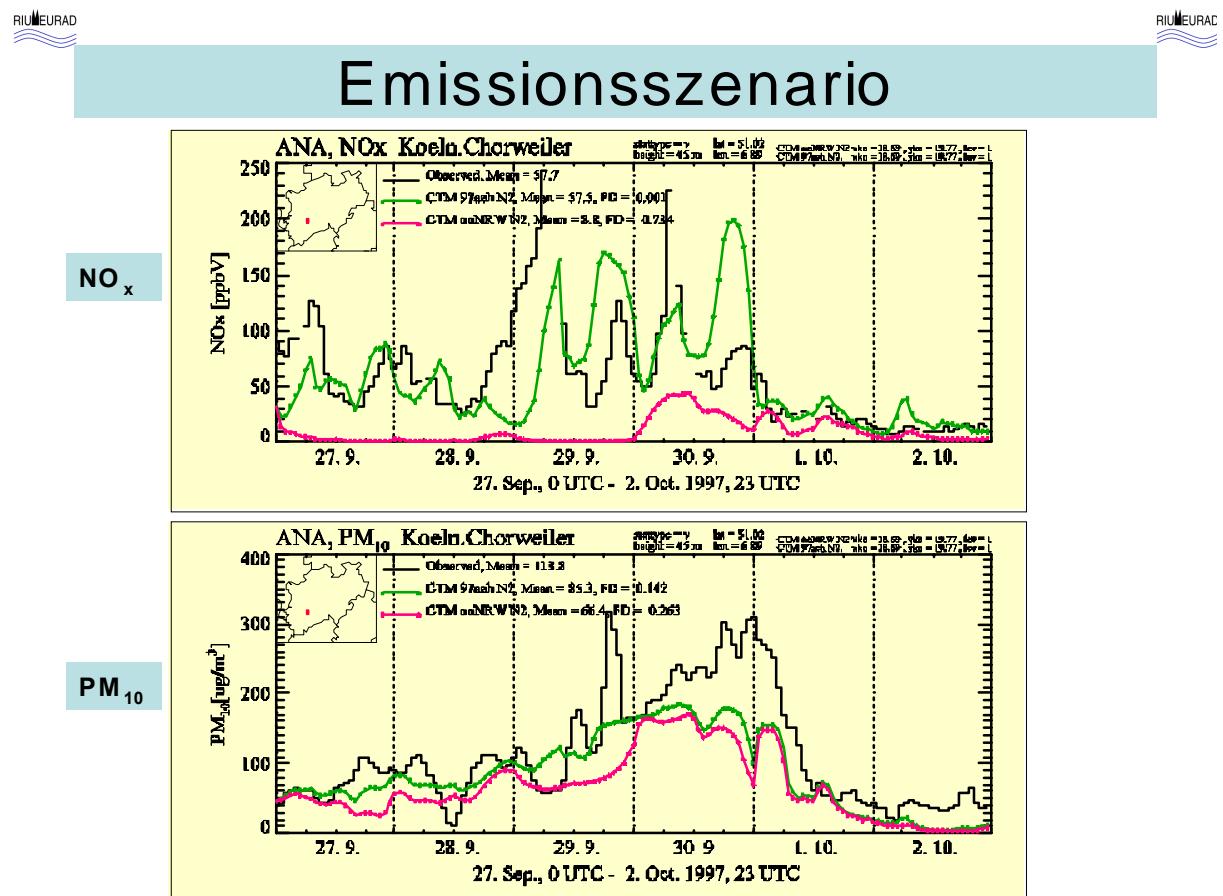


Abbildung 7: Stickoxid- und PM-Konzentration an der LUQS Station Köln-Chorweiler für die Woche vom 27.09. – 02.10.1997. Schwarz: Beobachtete Werte ($\text{PM}_{10} = 0.83 * \text{TSP}$), Grün: Basislauf, Rot: keine anthropogenen Emissionen in NRW (noNRW) (nach Friese et al., 2003). PM reagiert deutlich weniger als die Stickoxide auf die Emissionsminderung. Dies lässt vermuten, dass der Anteil des Ferntransports an der PM-Masse während dieser Episode eine wichtige Rolle spielt. Die dadurch verursachte Partikelbelastung ist vermutlich weitgehend auf sekundär gebildete Partikel zurückzuführen.

Jahreswerte: PM_{10} , NO_3^- , NH_4^+

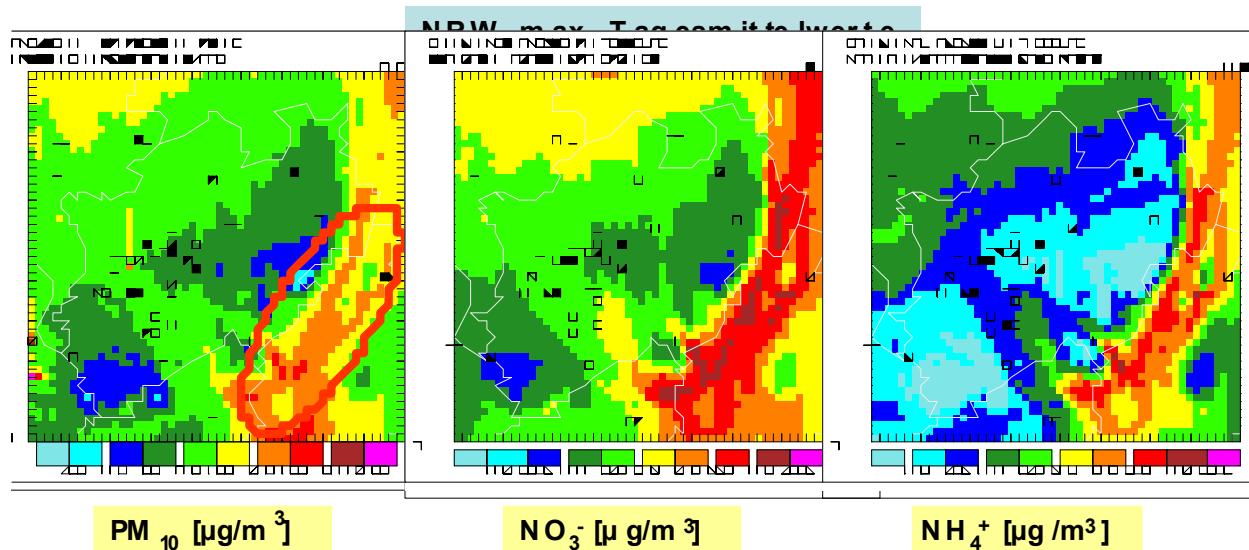


Abbildung 8: Höchster Tagesmittelwert von PM_{10} , Nitrat und Ammonium für eine Modellrechnung für das Jahr 2002. Die höchsten Werte für PM_{10} liegen bei $125 - 150 \mu\text{g}/\text{m}^3$, diejenigen für Nitrat und Ammonium bei $70 - 80 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bzw. $25 - 30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (siehe auch Friese et al., 2003). Dies zeigt, dass bei Episoden mit hoher PM-Belastung häufig ein großer Anteil auf sekundär gebildetes Ammoniumnitrat entfällt (siehe auch Friese et al., 2003; FuE-Vorhaben APART des LUA-NRW).

Zusammenfassung, Schlussfolgerungen und Ausblick

Das EURAD-Modellsystem wurde zur Simulation atmosphärischer Partikel über Europa und Nordrhein-Westfalen angewendet. Die Rechnungen konnten für ein ganzes Jahr mit Nestung nach NRW durchgeführt werden. Die Nestung erlaubt die Berücksichtigung von Ferntransporten atmosphärischer Spurenstoffe. Die Ergebnisse der Modellrechnungen zeigen einen deutlichen Beitrag des Ferntransports zur Partikelmasse in NRW während Episoden mit hoher PM-Konzentration. Neuere Rechnungen und Auswertungen deuten daraufhin, dass ein relativ großer Anteil der PM-Masse in Episoden, in denen hohe PM-Massen auftreten, durch sekundär gebildetes Nitrat, Ammonium und Sulfat zurückzuführen ist. Die meteorologischen Bedingungen, die hohe PM-Konzentrationen und eine hohe Bildungsrate sekundärer anorganischer Partikel begünstigen, sind durch austauscharme Wetterlagen während herbstlicher und winterlicher Hochdrucklagen gekennzeichnet. Die Modellrechnungen lassen sich auch mit einer Auflösung von 1 km in urbane Regionen erweitern. Weitere zukünftige Entwicklungen zielen auf die stärkere Einbindung von Daten aus vorhandenen Mess-Netzen und von Satelliten durch Methoden der variationellen vierdimensionalen Datenassimilation (Elbern und Schmitt, 2001; Elbern, 2002) sowie eine damit Erweiterung auf die hemisphärische Skala um die Hintergrundbelastung noch besser erfassen zu können (Feldmann et al., 2002).

Danksagung

Die hier dargestellten Anwendungen des EURAD-Modellsystems wurden vom LUA-NRW vor allem im Rahmen der FuE-Vorhaben ANABEL, PROVAL und APART unterstützt. Die wissenschaftlichen Forschungs- und Entwicklungsarbeiten am EURAD-Modell wurden im Rahmen von AFO2000 vom BMBF gefördert, die Durchführung von Langzeitsimulationen wurde insbesondere im Rahmen des AFO2000 Vorhabens IDEC (Förderkennzeichen 07ATF02) unterstützt. Die Entwicklung numerischer Methoden wurde durch das EU-Vorhaben ASSET unterstützt. Die Simulationsrechnungen wurden durch das RRZK der Universität zu Köln, das Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln sowie das Forschungszentrum Jülich (ICG2, ZAM, NIC) unterstützt. Emissionsdaten wurden von der TNO, dem Umweltbundesamt und EMEP bereitgestellt. Besonderer Dank gilt bei der Bereitstellung der Emissionsdaten für NRW den damit befassten Kollegen des LUA-NRW. Die Messdaten aus dem LUQS-Messnetz wurden ebenfalls vom LUA-NRW zur Verfügung gestellt. Unser besonderer Dank gilt den zahlreichen Kollegen des LUA, am Forschungszentrum Jülich, am RRZK und am Institut für Geophysik und Meteorologie, die die Arbeiten mit dem EURAD-Modellsystem tatkräftig unterstützt haben.

Literatur

Buitjes, P.J. H., C. Borrego, A.C. Carvalho, A. Ebel, M. Memmesheimer, H. Feichter, A. Münzenberg, E. Schaller, Z. Zlatev: Global and Regional Atmospheric Modeling, Overview of Subproject GLOREAM, In: Towards Cleaner Air for Europe – Science, Tools and Applications, Part2: Overviews from the Final Reports of the EUROTRAC-2 Subprojects, Chapter 8, 140 – 164, Eds.: P. Midgely, M. Reuther, Margraf Publishers, Weikersheim, 2003.

Elbern, H. and H. Schmidt: Ozone episode analysis by four-dimensional variational chemistry data assimilation. *J. Geophys. Res.*, 106, 3569 - 3690, 2001.

Elbern, H., Emission rate estimates by variational assimilation of surface and satellite data, in Sounding the troposphere from space: a new era for atmospheric chemistry, TROPOSAT Final Report, Eds.: P. Borrel, P.M. Borrell, J.P. Burrows, U. Platt, Springer Verlag, Heidelberg, 2002.

Feldmann, H., A. Ebel , H.J. Jakobs, M. Memmesheimer and M.J. Kerschgens: Simulation of intercontinental transport of atmospheric trace constituents with an Eulerian Mesoscale Model. Final report of EXPORT E-2, 2002.

Friese, E., H.J. Jakobs, M. Memmesheimer, H. Feldmann, C. Kessler, G. Piekorz, A. Ebel: Ausbreitungsrechnungen für Nordrhein-Westfalen zur Anwendung im Rahmen der Beurteilung der Luftqualität nach EU-Richtlinien. Abschlußbericht zum FuE-Vorhaben ANABEL, im Auftrag des Landesumweltamtes Nordrhein-Westfalen, Juni 2002.

Friese, E., M. Memmesheimer, H.J. Jakobs, C. Kessler, H. Feldmann, G. Piekorz, A. Ebel: Modellgestützte Untersuchung des Beitrags von Ammoniakemissionen aus Tierhaltungsanlagen eines ausgewählten Landkreises in Nordrhein-Westfalen zur Bildung sekundärer Aerosolpartikel. Abschlußbericht zum FuE-Vorhaben APART, im Auftrag des Landesumweltamtes Nordrhein-Westfalen, November 2003.

Jakobs, H.J., E. Friese, M. Memmesheimer, A. Ebel: A real-time forecast system for air pollution concentrations. Proceedings from the EUROTRAC-2 Symposium 2002, Eds.: P.M. Midgley, M. Reuther, Margraf Verlag, Weikersheim, 2002.

Memmesheimer, M., E. Friese, H.J. Jakobs, H. Feldmann, G. Piekorz, A. Ebel, M.J. Kerschgens: Chemical and dynamical characterization of air pollution episodes using a 3-D Eulerian modeling system. Proceedings of EUROTRAC Symposium 2002, Eds.: P.M. Midgley, M. Reuther, Markgraf Verlag, Weikersheim, 2002.

Schell, B., I.J. Ackermann, H. Hass, F.S. Binkowski, A. Ebel: Modeling the formation of secondary organic aerosol within a comprehensive air quality modeling system. *J. Geophys. Res.*, 106, 28275 - 28293.

Stockwell, W.R., F. Kirchner, M. Kuhn, S. Seefeld: A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling. *J. Geophys. Res.*, 102, 25847-25879, 1997.

C.5 Modellanwendung als Teil der Grundsatzuntersuchungen für die Aufstellung von Luftreinhalte- und Aktionsplänen in Sachsen-Anhalt

V. Diegmann, C. Ehrlich (IVU Umwelt, LAU Sachsen-Anhalt)

Modellanwendung als Teil der Grundsatzuntersuchungen für die Aufstellung von Luftreinhalte- und Aktionsplänen in Sachsen-Anhalt

Volker Diegmann¹, Dr. Christian Ehrlich²¹ IVU Umwelt GmbH, Sexau;

² Landesamt für Umweltschutz Sachsen-Anhalt, Halle

Zusammenfassung

Im Jahre 2001 wurden an drei Stellen in Sachsen-Anhalt Überschreitungen der zugelassenen Anzahl von 35 Tagen für den Tagesgrenzwert von PM10 in einem Fall auch inklusive der gültigen Toleranzmarge gemäß EU-Luftqualitätsrichtlinie gemessen (siehe Abbildung 1). Diese Messpunkte lagen alle im Nahbereich von Straßen mit Bebauung. Eine Analyse des Zustandekommens dieser Überschreitungen bestätigte die Annahme, dass der Straßenverkehr einen nicht zu vernachlässigenden Anteil an den hohen PM10-Konzentrationen hatte. Daraus folgernd bestand die Aufgabe, eine Prognose für den Zustand in 2005 zu erstellen und verkehrliche Maßnahmen anzugeben und deren Wirkung in Hinblick auf eine Reduzierung der Überschreitungen zu berechnen.

Zur Prognose der Schadstoffbelastung im Jahre 2005 wurden das Modellsystem IMMIS^{***} und das Programm LASAT angewendet.

Die Abschätzungen der Verkehrsemissionen von PM10 basiert auf dem aktuellen Handbuch für Verkehrsemissionen (HBEFA Version 1.2) und dem Ansatz von Düring/Lohmeyer zur Bestimmung der Nichtauspuffemissionen des Straßenverkehrs. Die Bestimmung des überregionalen Hintergrunds erfolgte auf der Basis des landesweiten Messnetzes und Emissionskatasters mit dem System FLADIS.

Die Qualität der mit den Modellsystemen bestimmten Ergebnisse konnte anhand der vorliegenden Messungen aus dem Jahre 2001 geprüft werden. Zusätzlich wird ein Vergleich von Modellwerten mit Messungen für die Frankfurter Allee/Berlin präsentiert.

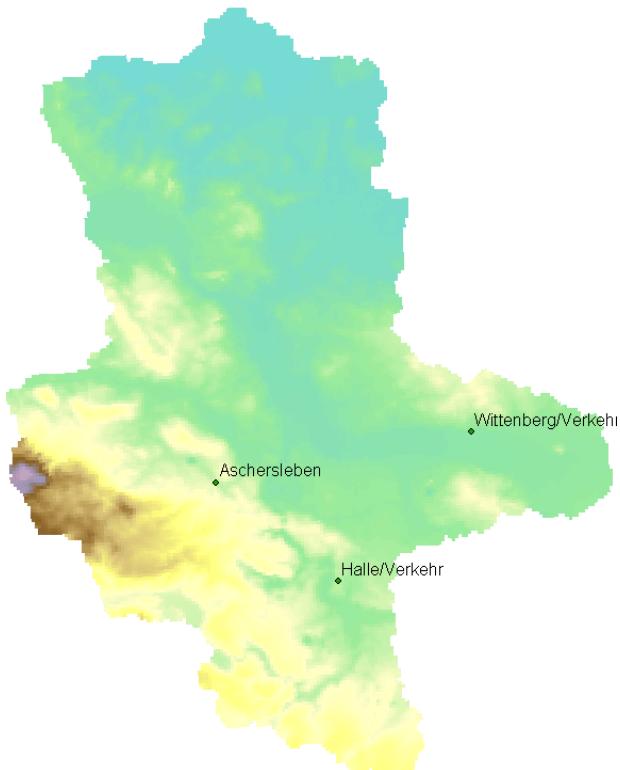


Abbildung 1: Lage der Messorte mit Überschreitungen

Aufgabenstellung

Die im vorliegenden Beitrag beschriebenen Arbeiten und Ergebnisse sind Teil eines Gesamtprojekts mit dem Titel "Durchführung von Grundsatzuntersuchungen für die Aufstellung von Luftreinhalte- und Aktionsplänen nach der EU-Luftqualitätsrahmenrichtlinie 96/62/EG in Verbindung mit der 1. Tochterrichtlinie 99/30/EG" welches von IVU Umwelt GmbH im Auftrag des Ministerium für Landwirtschaft und Umwelt, Sachsen-Anhalt zur Zeit durchgeführt wird.

Die Durchführung der Grundsatzuntersuchungen gliedert sich dabei in drei Hauptaufgaben:

- Analyse des Zustandekommens von Überschreitungen des PM10 Tagesmittelwert von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$
- Prognose der zu erwartenden Belastung im Jahre 2005
- Entwicklung von Maßnahmen und Empfehlungen

Im präsentierten Vortrag wird der Einsatz von Modellen bei der Ursachenanalyse und in der Anwendung bei Prognosen beschrieben.

Modellierung

Im Gesamtprojekt wurden neben den Ausbreitungsrechnungen und Modellierungen der Verkehrsbelastungen zusätzlich noch Trajektorien bestimmt und die räumliche Verteilung der PM₁₀ Konzentrationen in Sachsen-Anhalt mit dem System FLADIS untersucht.

Trajektorien

Für eine Auswahl der Tage an denen der PM₁₀ Konzentrationswert von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ überschritten wird, wurden Rückwärtstrajektorien für die Messorte von der FU-Berlin erstellt. Diese Trajektorien wurden zur einfacheren Interpretation in einem geographischen Informationssystem (GIS ArcView) als quasi 3-dimensionale Objekte dargestellt.

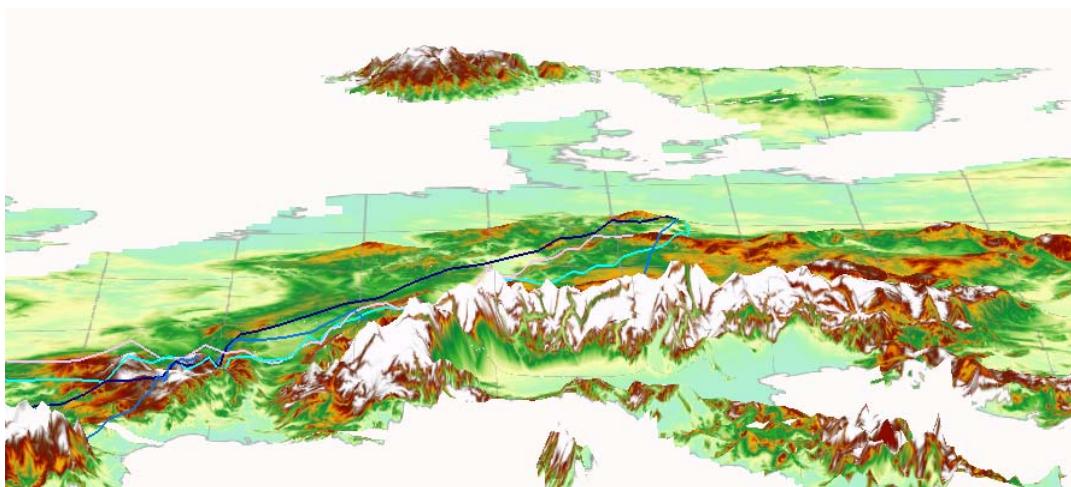


Abbildung 2: Rückwärtstrajektorien für Aschersleben für 6 Uhr (rosa), 12 Uhr, 18 Uhr und 24 Uhr (von hell- nach dunkelblau) für den 5. Januar 2001

Räumliche Analyse mit FLADIS

Die räumliche Analyse wurde mit dem System FLADIS durchgeführt. Dabei wurden für die Tage mit Spitzenwerten der PM10-Belastung an den drei Messorten eine flächenhafte Darstellung für das gesamte Bundesland ermittelt. Bei der räumlichen Analyse fällt auf, dass an einigen Tagen keine großräumigen hohen Belastungen auftreten. Die Grenzwertüberschreitungen müssen also lokale Ursachen haben. An anderen „Spitzentagen“, liegen die hohen Konzentrationen in einem größeren räumlichen Bereich.

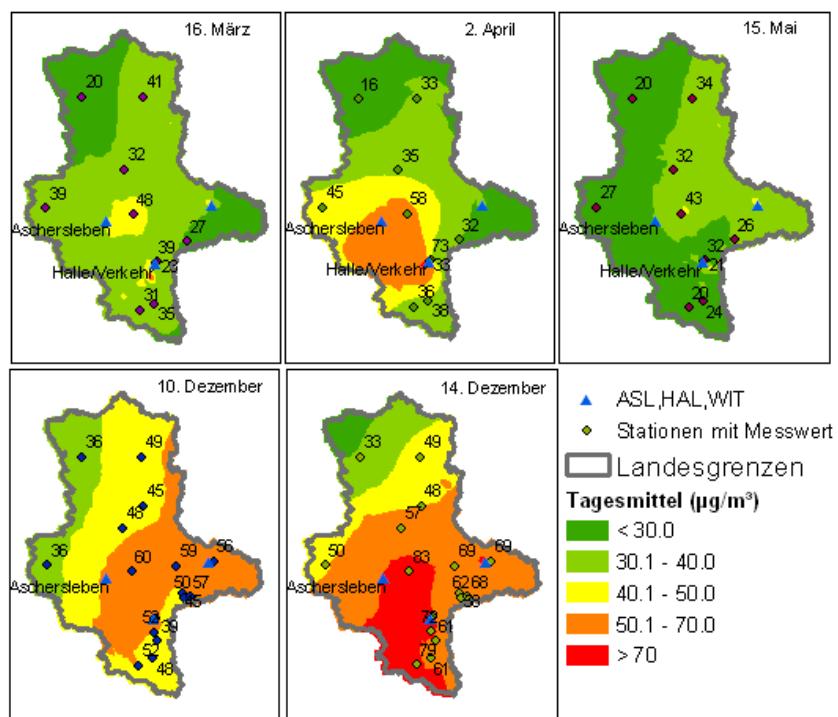


Abbildung 3: Flächenhafte Darstellung der landesweiten PM10-Situation an Tagen, an denen Spitzenkonzentrationen an mindestens einer der drei blau gekennzeichneten Stationen auftraten.

Ausbreitungsmodellierung

Mit Hilfe eines Ausbreitungsmodells (IMMIS oder LASAT) können die einzelnen Verursacher identifiziert und Prognosen erstellt werden. Dazu ist es notwendig, ein möglichst genaues Abbild der Emissionsstruktur im näheren Umfeld des Immissionsortes zu haben. Die Emissionsdaten, die nicht vom Straßenverkehr stammen, wurden aus aktuellen Emissionskatastern übernommen. Für den Straßenverkehr wurden Verkehrsdaten aus Umlegungen und Zähldaten verwendet. Auf dieser Basis wurden mit dem Modell IMMIS^{em} die verkehrsbedingten Emissionen inkl. der "Nicht-Auspuff-PM₁₀" Emissionen berechnet. Als Ausbreitungsmodell kam das System IMMIS^{***} der IVU Umwelt mit den Modulen IMMIS^{net} zur Hintergrundbestimmung und IMMIS^{cpb} als Straßenmodell zum Einsatz.

Zusätzlich wurde das Ausbreitungsmodell LASAT eingesetzt. LASAT ist das Ausgangsmodell des aktuellen TA-Luft-Modells AUSTAL2000. Das Modell LASAT wurde sowohl für den regionalen Bereich wie auch für den Straßenraum eingesetzt.

Für die Modellierung wurden meteorologische Zeitreihen des DWD (AKTerm) verwendet.

Vergleich Modell-Messung

Zu den folgenden Darstellungen der Ist-Situationen in Halle und in Aschersleben ist noch eine analoge Auswertung für eine Untersuchung der Frankfurter Allee in Berlin ergänzend hinzugefügt worden.

Beispiel Berlin, Frankfurter Allee

Im Rahmen des Projekts „Ursachenanalyse PM10“ wurden im Auftrag des Berliner Senats Ausbreitungsrechnungen für die urbane und lokale Skala durchgeführt. Speziell wurden Straßenraumrechnungen für die Frankfurter Allee durchgeführt, an der für den Zeitraum Oktober 2001 bis September 2002 Messungen vorlagen.

Die Frankfurter Allee ist eine sechsspurige Straße mit einem DTV von ca. 30000 Kfz/Tag und einem Anteil an schweren Lkw von 3,4 %. Die Straße ist annähernd geschlossen bebaut. Die Modellierung erfolgte mit dem IMMIS[™]-System. Die Hintergrundbelastung wurde an Hand von Messungen am Berliner Stadtrand in Stundenauflösung berechnet.

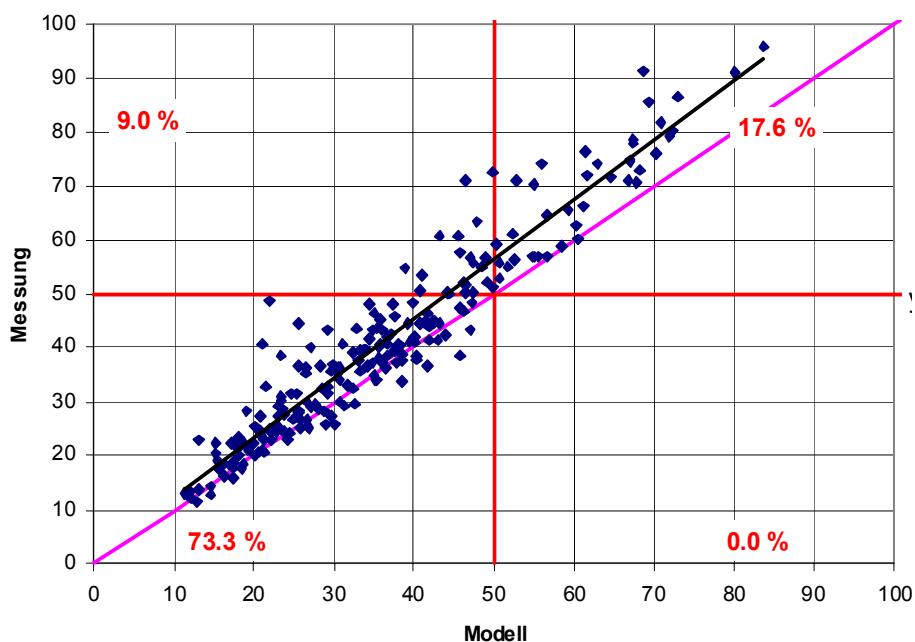


Abbildung 4: Vergleich der gemessenen und modellierten Tagesmittelwerte von PM10 für die Frankfurter Allee im Zeitraum 10/01 bis 09/02

Der Mittelwert der Messung auf der Basis von 221 Tagesmittelwerten betrug $39,8 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Das Modell unterschätzte diesen Wert mit einem Mittelwert von $35,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ um knapp 11 %. Eine Regressionsanalyse ergibt einen sehr guten Erklärungswert von 91 %, wobei man dabei berücksichtigen muss, dass der Anteil des regionalen Hintergrunds von Quellen außerhalb des Stadtgebiets bei 63 % lag und der Anteil der Straße selbst bei 25.5 %.

Bei einem Vergleich der Erklärung der Überschreitungen des Tagesgrenzwertes von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zeigt sich, dass das Modell in 17.6 % der Fälle eine Überschreitung richtig und in 73.3 % der Fälle eine Unterschreitung richtig angibt. Nur in 9 % der Fälle wird keine Überschreitung berechnet, in denen Messungen eine Überschreitung anzeigen.

Ist-Situation Halle

Der Messort der Station Halle/Verkehr liegt an einer Bundesstraße mit einem DTV von knapp 40 000 Kfz/Tag und einem Anteil schweren Lkw von 6.3 %.

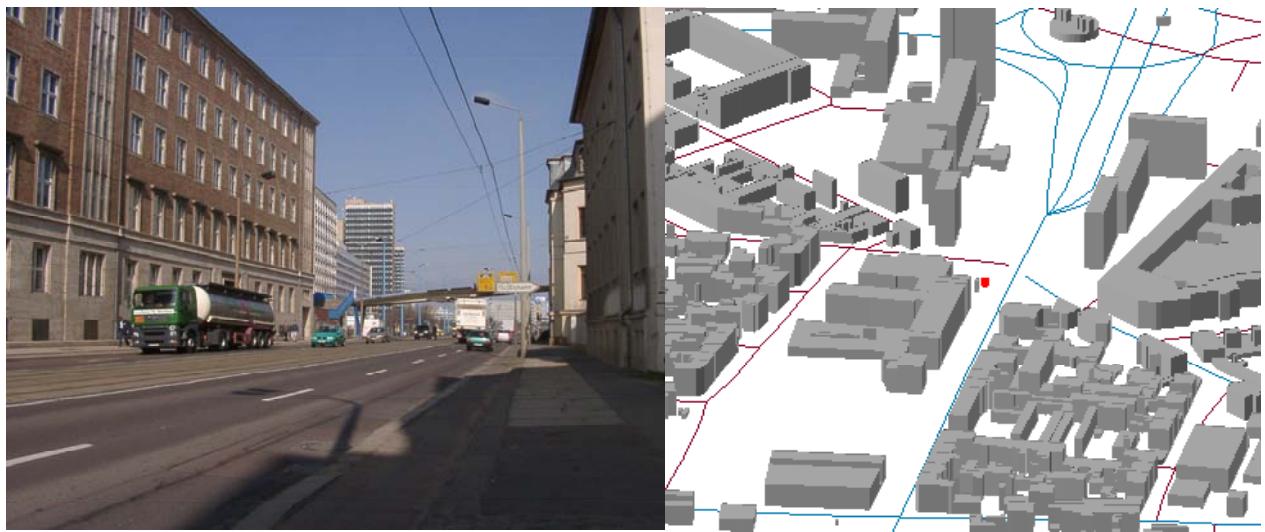


Abbildung 5: Foto (links) und 3D-Stadtmodell (rechts) der Situation um die Messstelle Halle Verkehr

Die Ausbreitungsrechnungen wurden mit dem IMMIS-System durchgeführt. Die Hintergrundbelastung wurde abgeschätzt, in dem die Messungen an einer städtischen Hintergrundstation mit den Modellwerten des regionalen Modells IMMIS^{net} für diese Station stundenweise verglichen wurden.

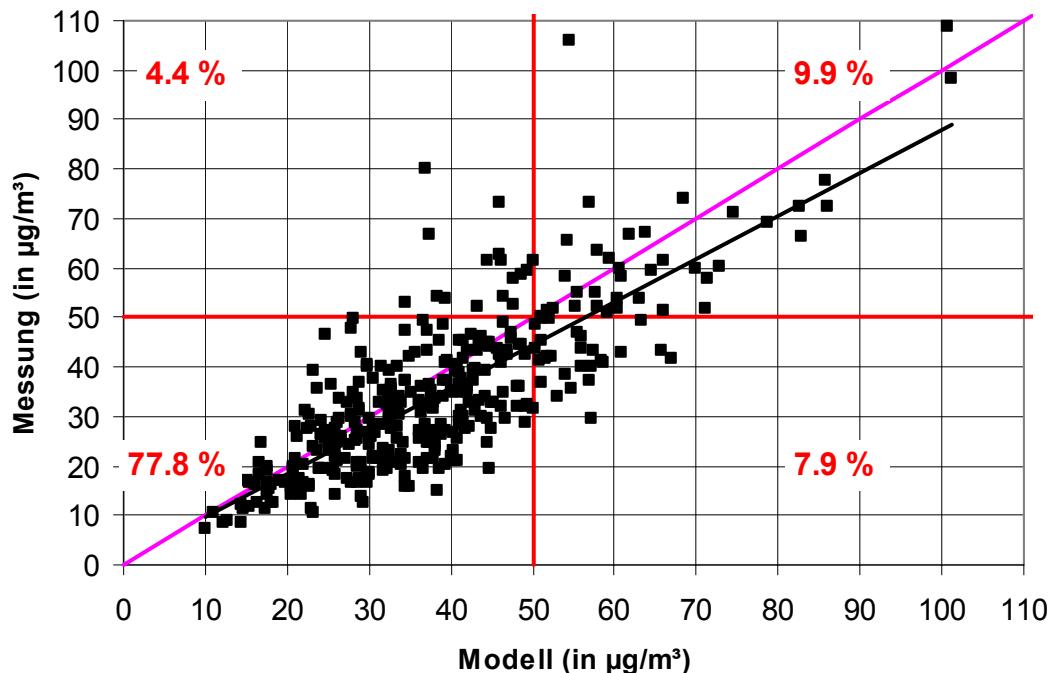


Abbildung 6: Vergleich der gemessenen und modellierten Tagesmittelwerte von PM10 für die Station Halle/Verkehr 2001

Der Mittelwert der Messung auf der Basis von 365 Tagesmittelwerten betrug $34.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Das Modell berechnet einen Mittelwert von $38.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Eine Regressionsanalyse ergibt einen guten Erklärungswert von 63 %. Der Anteil des regionalen Hintergrunds von Quellen außerhalb des Stadtgebiets liegt bei 59 % und der Anteil der Straße selbst bei 32 %.

Bei einem Vergleich der Erklärung der Überschreitungen des Tagesgrenzwertes von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zeigt sich, dass das Modell in 9.9 % der Fälle eine Überschreitung richtig und in 77.8 % der Fälle eine Unterschreitung richtig angibt. Die Anzahl der durch das Modell nicht angezeigten Überschreitungen (4.4 %) zu den falsch angezeigten Überschreitungen (7.9 %) hält sich annähernd die Waage, so dass die Gesamtzahl von angezeigten Überschreitungen mit 62 der Anzahl der gemessen mit 52 sehr ähnlich ist.

Ist-Situation Aschersleben

Aschersleben ist im Gegensatz zu Berlin und Halle eine Kleinstadt. Der zu untersuchende Straßenabschnitt ist verkehrlich mit einem DTV von 13 400 Kfz/Tag eher gering belastet, aber dafür weist der Straßenabschnitt einen sehr hohen Lkw-Anteil von 10 % auf.

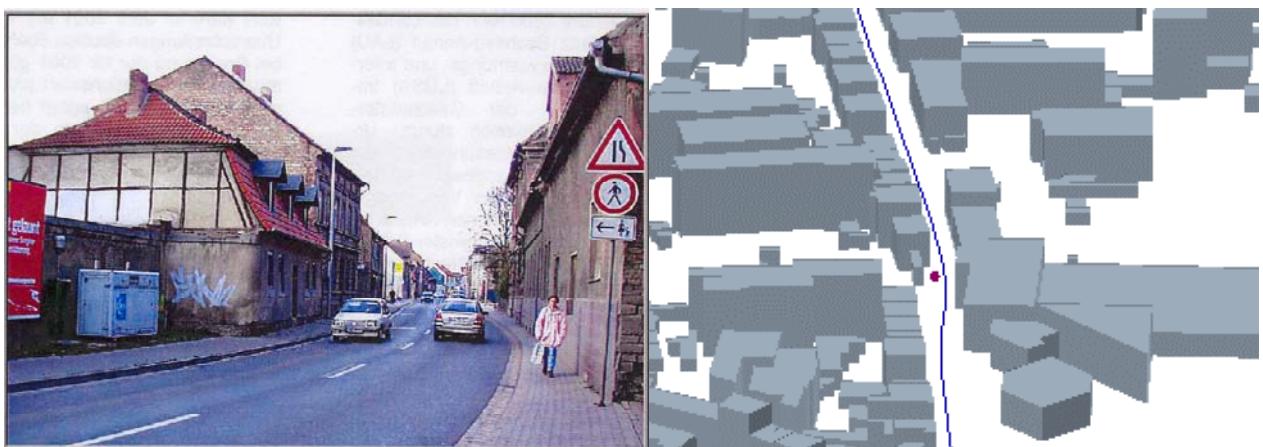


Abbildung 7: Foto (links) und 3D-Stadtmodell (rechts) der Situation um die Messstelle Aschersleben

Für die Station in Aschersleben sind Modellrechnungen mit dem IMMIS-System und mit LASAT durchgeführt worden.

Vergleich IMMIS

Die Anwendung des IMMIS-Systems führt zu folgenden Vergleichsdaten. Der Mittelwert der Messung auf der Basis von 304 Tagesmittelwerten betrug $46.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Das Modell überschätzt diesen Wert mit einem Mittelwert von $55.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ um 21 %. Eine Regressionsanalyse ergibt einen Erklärungswert von 38 %. Der Anteil des regionalen Hintergrunds von Quellen außerhalb des Stadtgebiets liegt bei 52 % und der Anteil der Straße selbst bei 46 %.

Bei einem Vergleich der Erklärung der Überschreitungen des Tagesgrenzwertes von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zeigt sich, dass das Modell in 31.6 % der Fälle eine Überschreitung richtig und in 37.2 % der Fälle eine Unterschreitung richtig angibt. Die Anzahl der durch das Modell nicht angezeigten Überschreitungen (5.9 %) ist kleiner als die falsch angezeigten Überschreitungen (25.3 %), was sich auch in der Gesamtzahl von angezeigten Überschreitungen mit 201 zur Anzahl der gemessen mit 114 widerspiegelt.

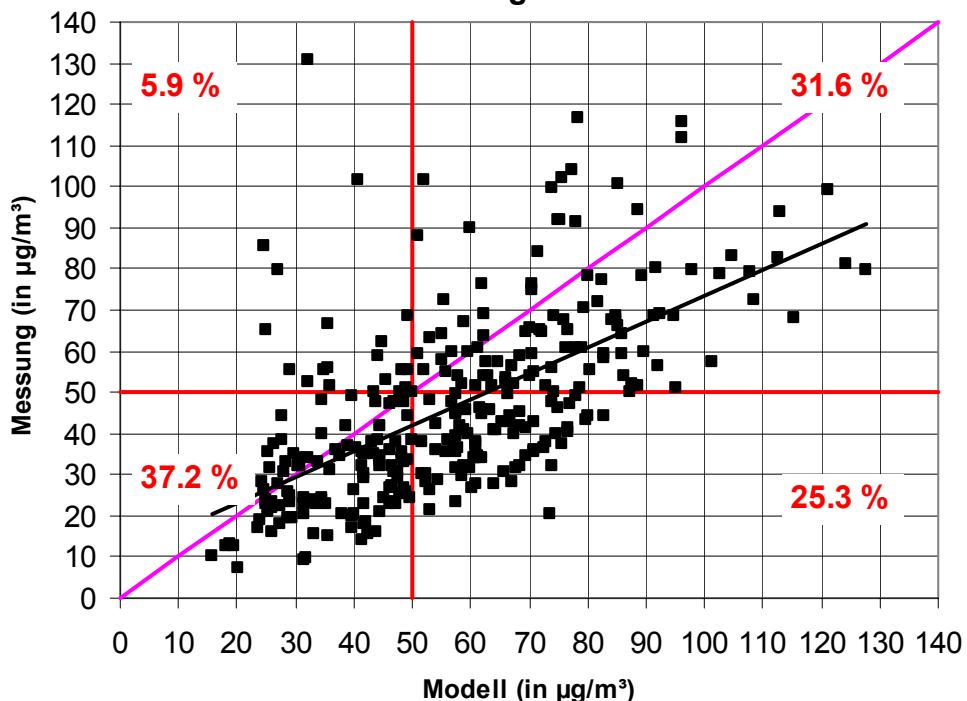


Abbildung 8: Vergleich der mit IMMIS berechneten Tagesmittelwerte von PM10 mit gemessenen Konzentrationen in Aschersleben im Jahr 2001.

Vergleich LASAT

Die Anwendung von LASAT führt zu folgenden Vergleichsdaten. Der Mittelwert der Messung auf der Basis von 304 Tagesmittelwerten betrug $46.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Das Modell überschätzt diesen Wert mit einem Mittelwert von $49.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ um 7 %. Eine Regressionsanalyse ergibt einen Erklärungswert von 35 %. Der Anteil des regionalen Hintergrunds von Quellen außerhalb des Stadtgebiets liegt bei 58 % und der Anteil der Straße selbst bei 37 %.

Bei einem Vergleich der Erklärung der Überschreitungen des Tagesgrenzwertes von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zeigt sich, dass das Modell in 26.3 % der Fälle eine Überschreitung richtig und in 45.1 % der Fälle eine Unterschreitung richtig angibt. Die Anzahl der durch das Modell nicht angezeigten Überschreitungen (11.2 %) ist etwas kleiner als die falsch angezeigten Überschreitungen (17.4 %), was sich auch in der Gesamtzahl von angezeigten Überschreitungen mit 152 zur Anzahl der gemessen mit 114 widerspiegelt.

Ein Vergleich zu den Ergebnissen des IMMIS-Systems zeigt, dass nur kleinere Unterschiede in den angegebenen Parametern auftreten. So liegt der Jahresmittelwert bei LASAT dichter an den Messungen während der Erklärungswert bei einer Regression beim IMMIS-System leicht besser ist als bei LASAT. Auf Grund des deutlich geringeren Aufbereitungs- und Rechenaufwand werden die folgenden Auswertungen nur mit dem IMMIS-System durchgeführt.

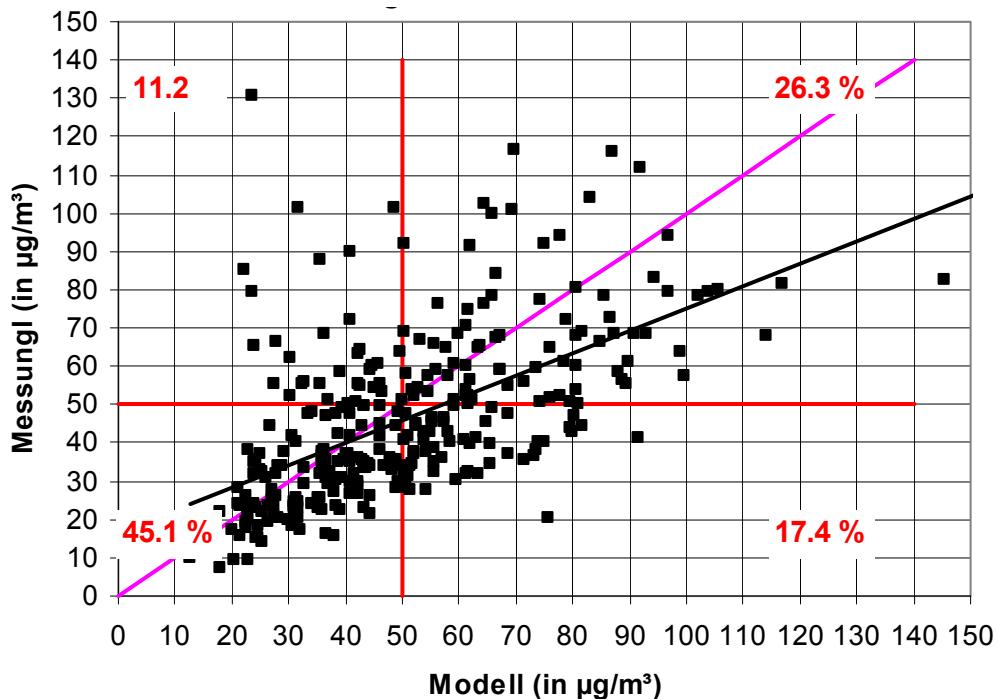


Abbildung 9: Vergleich der mit LASAT berechneten Tagesmittelwerte von PM10 mit gemessenen Konzentrationen in Aschersleben im Jahr 2001.

Teiluntersuchung November 2001

Nach Angaben der Stadt Aschersleben fanden an zwei Tagen Anfang November umfangreiche Abrissarbeiten in der Nähe der Messstelle statt, an die sich länger andauernde Abtransporte von Schutt anschlossen. Modelltechnisch wurde versucht diesen Umstand abzubilden, in dem man für den November die Staubbefallung der Straße von 0.2 g/m^2 auf 0.4 g/m^2 verdoppelt hat. Das Ergebnis dieser Erhöhung ist, dass sich der Modellmittelwert im November von $53.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auf $64.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ erhöht, während die Messungen einen Mittelwert von $61.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ aufweisen. Nach einer Regressionsanalyse bleibt der Erklärungswert dabei aber gleich mit 21 % bzw. 19 %.

Der Anteil der Straßenemissionen an der Gesamtbelastung steigt von 51 % ohne erhöhte Staubbefallung auf 59 % mit der erhöhten Staubbefallung.

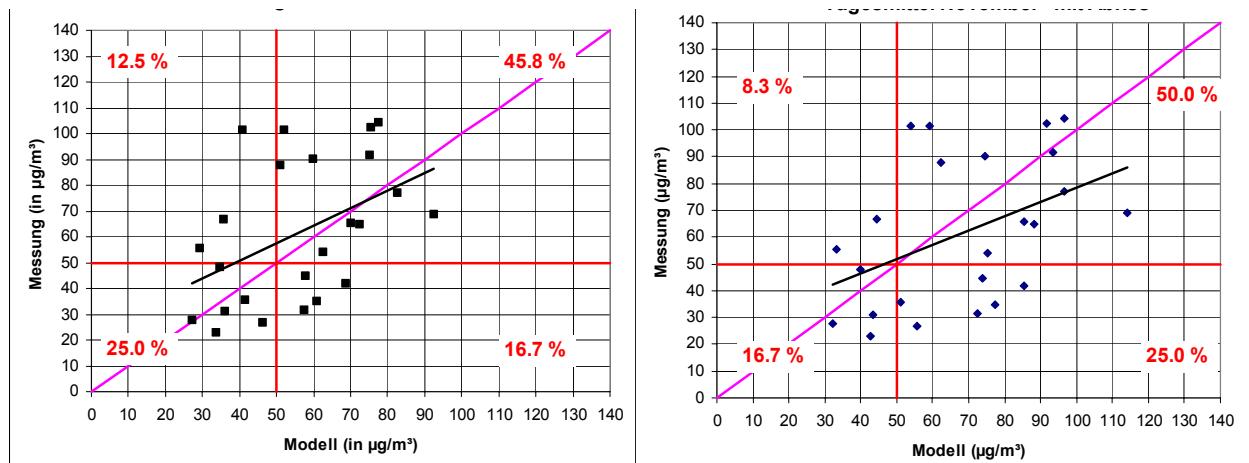


Abbildung 10: Vergleich der mit IMMIS berechneten Tagesmittelwerte von PM10 mit gemessenen Konzentrationen in Aschersleben für den November 2001; links ohne und rechts mit Berücksichtigung von abrissbedingten Emissionen.

Prognosen und Maßnahmenplanung in Aschersleben (vorläufig)

Für das Bezugsjahr 2005 wurden für Aschersleben Prognosen der Verkehrsbelastungen mit dem Verkehrsumlegungsmodell VISUM berechnet. Dabei wurden die verschiedenen bereits genehmigten Straßenbaumaßnahmen nach den geplanten Fertigstellungsterminen getrennt berücksichtigt. In der Planungsstufe 1 wird eine Ortsumgehung bis 2005 fertiggestellt. In der Planungsstufe 2 soll eine Stadtkerntangente entstehen, die in einer weiteren Ausbauplanung noch durch weitere innerstädtische Umbauten ergänzt werden soll. Die Änderungen in der Verkehrsführung führen in allen Fällen zu deutlichen Senkungen der Verkehrsbelastung und des Lkw-Anteils.

Neben diesen baulichen Maßnahmen wurden durch die Emissionsberechnung die Änderungen in der Fahrzeugflotte berücksichtigt, wie sie sich laut HBEFA bis 2005 ergeben sollen.

Als zusätzliche Maßnahmen wurden die Verdrängungseffekte durch die Einführung einer Tempo 30-Zone und eines Lkw-Fahrverbot untersucht.

In der folgenden Tabelle sind die Änderungen in der Verkehrsbelastung und die daraus resultierenden Änderungen in der Immissionsbelastung aufgelistet. In den grau hinterlegten Spalten sind die jeweiligen Werte mit der sich aus der Ist-Situation abgeleiteten Überschätzung korrigiert worden.

Tabelle 1: Ergebnisse der Prognoserechnungen der Verkehrsumlegungen und Ausbreitungsrechnungen für Aschersleben (vorläufig)

	DTV	Anteil schwere Lkw	Anzahl ÜS 50 µg/m³	Anzahl kor. mit Messung	JMW (µg/m³)	JMW kor. m. Mess. (µg/m³)
(Messung 2001)			114	153%	46.3	111%
Ist-Situation 2001	13400	10%	201	114	55.9	46.3
Planungsstufe 1/ Umfahrung 2005	10765	7%	102	58	44.1	36.5
Planungsstufe 1 mit Tempo 30	7052	7%	71	40	39.4	32.6
Planungsstufe 2/ Stadtkerntangente 2007	9105	7%	88	50	42.0	34.8
Weitere Ausbauplanung ab 2007	7936	7%	78	44	40.6	33.6
Weitere Ausbauplanung ab 2007 mit Lkw-Fahrverbot	7936	3%	54	31	36.6	30.3

Schlussbemerkungen

Folgende Schlussbemerkungen lassen sich aus vorhergehenden Ausführungen ableiten:

- Der Vergleich zwischen Modellwerten und Messwerten zeigt, dass Modelle die reale Situation gut abbilden.
- Ein Vergleich der Anwendung von verschiedenen Modellen (IMMIS, LASAT) führt bei gleichen Eingangsdaten zu ähnlichen Ergebnissen.
- Der Anteil der direkten Emissionen einer Straße an den in der Straße gemessenen Immissionen liegt im Jahresmittel zwischen 25% und gut 40% kann aber in speziellen Situation auf bis zu 59 % gehen (starke Straßenverschmutzung).
- Das Zusammenspiel von Verkehrsumlegungsmodellen und Ausbreitungsmodellen erlaubt sachgerechte Prognosen der zukünftigen Belastung.

Literatur

IMMIS^{***}: Stern, R.. (IVU GmbH): Entwicklung eines Modellinstrumentariums zur immissionsseitigen Bewertung von Kfz-Emissionen: IMMIS^{net} und CPB; 438. Seminar des Fortbildungszentrum Gesundheits- und Umweltschutz Berlin e.V., Berlin 19.-20. September 1996

LASAT: Janicke, L, 2000: A random walk model for turbulent diffusion. Berichte zur Umweltphysik Nummer 1, Auflage 1, ISSN 1439-8222; Ingenieurbüro Janicke, Dunum 2000

Düring, I.; Lohmeyer, A.: Validierung von PM10-Immissionsberechnungen im Nahbereich von Strassen und Quantifizierung der Feinstaubbildung von Strassen; 2001

HBEFA: INFRAS AG, Bern/Schweiz: Handbuch Emissionsfaktoren des Straßenverkehrs; Erläuterungen zur CD-ROM; Version 1.2; Jan. 1999

FLADIS: IVU GmbH: Flächenhafte Darstellung der Immissionssituation; In HLfU (Hrsg.): Schriftenreihe der Hessischen Landesanstalt für Umwelt, Umweltplanung, Arbeits- und Umweltschutz, Heft 201; Wiesbaden 1996

IMMISSIONSSCHUTZBERICHT 2001, Berichte des Landesamtes für Umweltschutz Sachsen-Anhalt 2002 - Heft 38, Halle(Saale) 2002

IVU Umwelt GmbH, Ursachenanalyse von Feinstaub(PM10)-Immissionen in Berlin unter Berücksichtigung von Messungen der Staubinhaltsstoffe am Stadtrand, in der Innenstadt und in einer Straßenschlucht, (Ausbreitungsrechnung und Ursachenanalyse für die urbane und lokale Skala), im Auftrag der Senatsverwaltung für Stadtentwicklung Berlin, 2003



D Erfahrungen und Probleme bei der Maßnahmenplanung

D.1 Minderung diffuser Staubemissionen in einem Edelstahlwerk – Auswirkungen auf die Luftbelastung

**K.-J. Geueke, D. Gladtke, W. Küchen,
S. Termath (LUA NRW)**

Minderung diffuser Staubemissionen in einem Edelstahlwerk

Auswirkungen auf die Luftbelastung

Karl-Josef Geueke, Dieter Gladke, Wilfried Küchen, Harmut Niesenhaus, Sylke Termath

Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen, Essen

1. Einleitung

In Edelstahlwerken wird mit flüssigen Metallen in teilweise offenen Apparaturen bei Temperaturen von bis zu 1700°C gearbeitet. Dabei werden Metallrauche freigesetzt, die möglichst vollständig abgesaugt werden müssen, da sie ansonsten in die Produktionshallen entweichen und aus Öffnungen wie Dachreitern, Fenstern und Türen in Freie gelangen. Im Folgenden wird beschrieben, wie in einem Edelstahlwerk durch eine verbesserte Absaugung diffuse Staubemissionen reduziert wurden und wie sich diese Maßnahme auf die Luftqualität in der Umgebung auswirkt.

2. Edelstahlproduktion

Die Edelstahlherstellung erfolgt im Wesentlichen in drei Schritten (Abbildung 1):

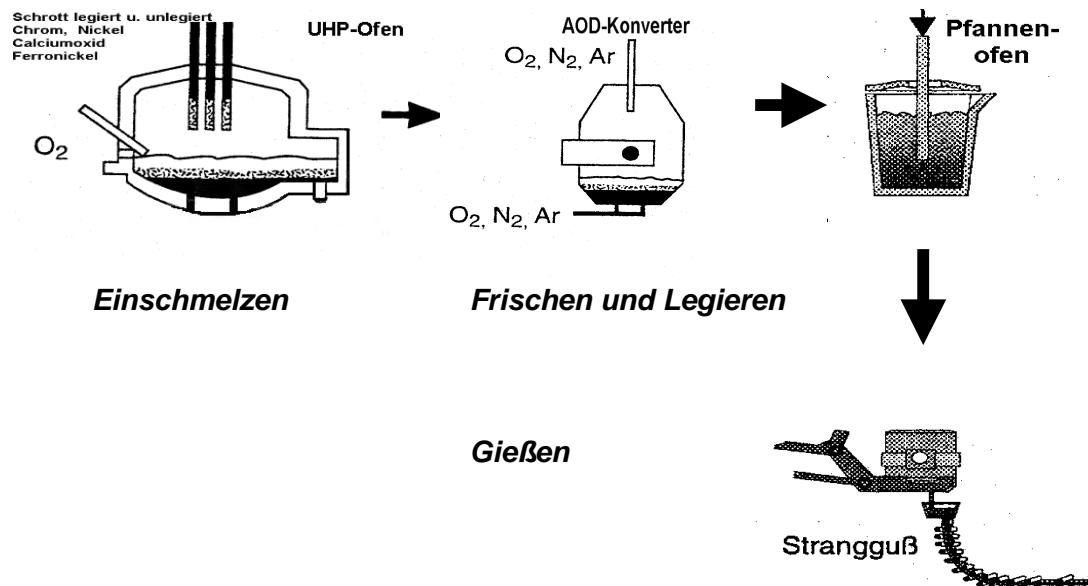


Abb. 1: Edelstahlproduktion.

Einschmelzen. Im Elektrolichtbogenofen, einem UHP-Ofen wird aus Edelstahlschrott, unlegiertem Schrott, Kalk, Reduktionsmitteln und Legierungselementen die Vormetallcharge geschmolzen.

Frischen und Legieren. Das Vormetall wird aus der Abstichpfanne zum Frischen in AOD (Argon-Oxygen-Decarburization)-Konverter umgefüllt. Dann wird eine Sauerstoff-Argon-Mischung in den Konverter eingeblasen. Dadurch wird die Schmelze entkohlt. Zur Feineinstellung der Legierung wird die Schmelze mittels Abstichpfanne in den Pfannenofen überführt. Dort wird das je nach Edelstahlqualität erforderliche Chrom-Nickel-Eisen-Verhältnis durch Zusatz von Legierungszuschlägen eingestellt. Der Nickelgehalt von austenitischem Edelstahl beträgt ca. 8 %, ferritischer Edelstahl enthält deutlich weniger Nickel. Anschließend wird durch Zugabe von Argongas die Schmelze homogenisiert.

Gießen. Die fertige Schmelze wird in die Stranggießanlage befördert und zu Brammen vergossen, die dann im Walzwerk weiterverarbeitet werden.

3. Maßnahmen zur Emissionsminderung

Untersuchungen in Stahlwerken legen den Schluss nahe, dass ein großer Teil der Staubemission aus der diffus entweichenden Hallenabluft herröhrt /1/. Die Emissionen können demnach durch eine intensivierte Absaugung möglichst nahe am Ort der Entstehung und nachfolgender effizienter Reinigung gemindert werden.

Im hier untersuchten Edelstahlwerk wurde die Absaugung im Bereich der AOD-Konverter verbessert. Schließlich entsteht beim Frischen viel Rauch, der aus metallhaltigen Stäuben besteht. Der größte Teil des Rauches wurde zwar von je her mit Absaugeinrichtungen erfasst und in den Hauptabgasstrom geführt, aber beim Umfüllen gelangen Emissionen in die Konverterhalle, die aufgrund der Thermik durch die Dachöffnungen ungereinigt ins Freie entweichen. Deshalb wurden die Ansaughauben über den Konvertern vergrößert und hinsichtlich ihrer Anordnung und Saugleistung optimiert. Damit kann beträchtlich mehr staubbeladene Abluft angesaugt und der Gasreinigung zugeführt werden. Die Nassventuriwäscher, die dafür bislang verwendet wurden, wurden im Zuge der Maßnahme durch ein noch leistungsfähigeres Gewebefilter ersetzt.

4. Messung der diffusen Emissionen aus dem Dach der Konverterhalle vor und nach Durchführung der Maßnahme

Methodisches. Um die Auswirkung der verbesserten Abluftfassung zu quantifizieren, hat das Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen (LUA) den TÜV Süddeutschland mit Messungen an den Dachöffnungen der Konverterhalle vor und nach dem Umbau beauftragt. Ziel war es, jeweils die Gesamtstaubemission und den Feinstaubanteil PM 10, der aus den Dachöffnungen entweicht, zu ermitteln. Die Staubproben, die bei den Untersuchungen gewonnen wurden, sind im LUA auf ihren Chrom- und Nickelgehalt analysiert worden. Ziel dieser Untersuchungen war die Klärung der Frage, ob mit der neuen Abluftfassung insbesondere die mit Chrom- und Nickel belasteten Stäube besser erfasst werden.

Messtechnik. Die Hallenöffnungen, die möglicherweise Quellen für diffuse Emissionen sind, wurden vermessen. Dazu wurden jeweils die Austrittsfläche, die Abgastemperatur und -feuchte, sowie die Gesamtstaub- und PM 10-Konzentration bestimmt. Folgende Verfahren kamen zum Einsatz:

Tabelle 1
Übersicht über Messgrößen und Verfahren

Messgröße	Verfahren
Abgasgeschwindigkeit	Flügelrad-Anämometer, Fa. Lambrecht Durchmesser: 110 mm
Abgastemperatur	Ni-CrNi-Elemente
Gesamtstaub	gemäß VDI-Richtlinie 2463 Bl. 7
Staubanteil < 10µm (PM 10)	gemäß VDI-Richtlinie 2465 Bl. 1
Chromgehalt	Druckaufschluss mit Salpetersäure, Chlorsäure und Flusssäure, nachfolgend Flammen-AAS
Nickelgehalt	Druckaufschluss mit Salpetersäure, Chlorsäure und Flusssäure, nachfolgend Flammen- bzw. Graphitrohr-AAS

Repräsentativität und die Aussagekraft der Messwerte. Die Emissionen, die infolge des Konverterbetriebs aus dem Hallendach entweichen, können im Verlaufe eines Tages recht unterschiedlich sein, da der Konverterbetrieb selbst diskontinuierlich erfolgt. Beim Ablauf der

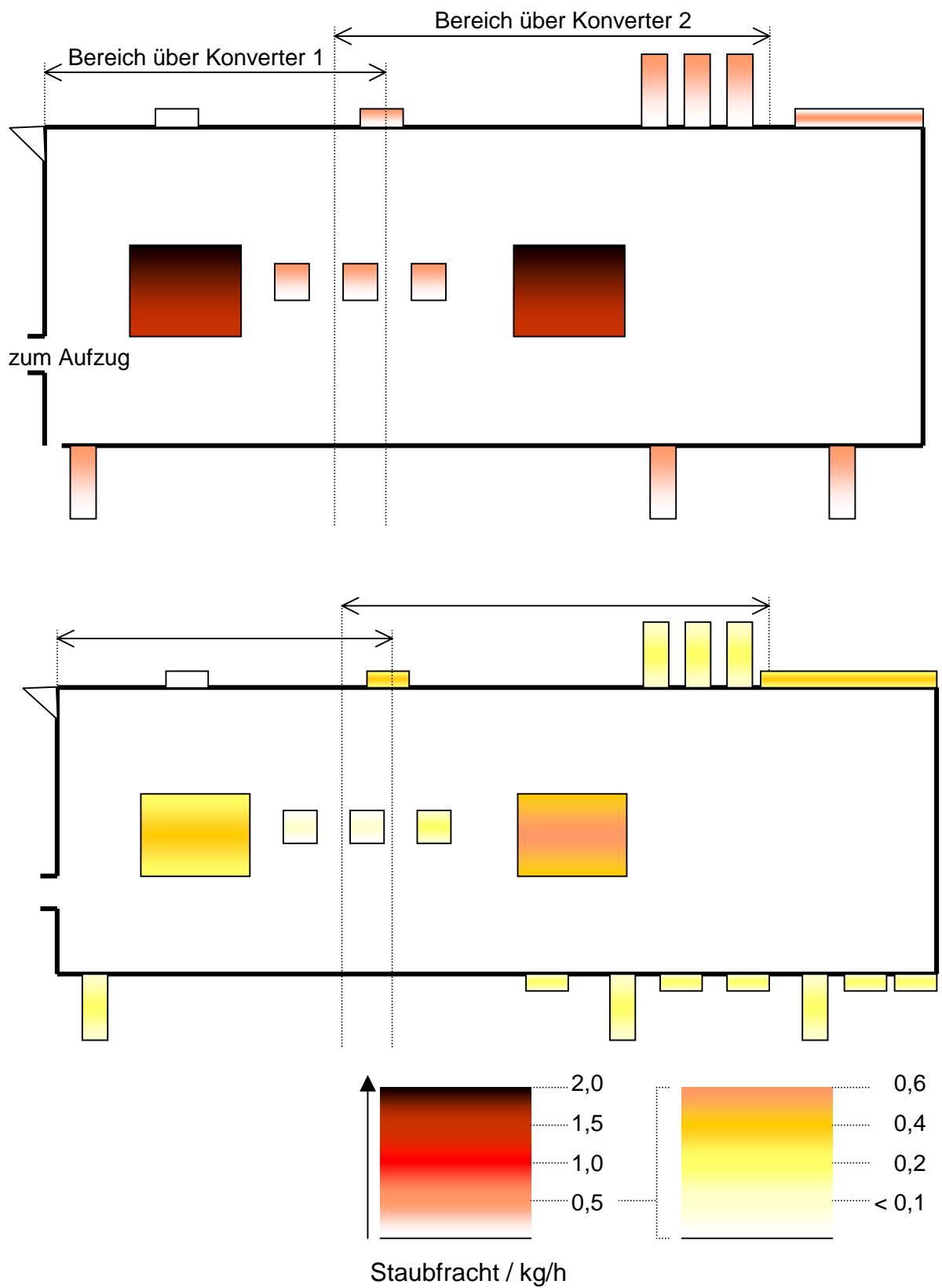


Abb. 2: Schematische Darstellung der Öffnungen im Dach der Konverterhalle (Draufsicht): Ausmaß der Gesamtstaubemissionen vor (oben) und nach Inbetriebnahme der verbesserten Ablufterfassung (unten).

Betriebsvorgänge Umfüllen – Frischen – Umfüllen kommt es zu Emissionsspitzen und weniger emissionsintensiven Zuständen. Um nun einen Überblick über das Ausmaß der Emissionen zu erhalten, wurden im Verlaufe eines Betriebstages je Messpunkt sechs Messungen und Probennahmen durchgeführt. Die dabei erhaltenen Werte bilden die Grundgesamtheit für Mittelwerte, die die Emissionen für einen Betriebstag charakterisieren sollen. Beispielsweise schwanken die Einzelwerte, die an einem Tag an für einen Punkt ermittelt wurden, mit einer Standardabweichung von 15 % im Fall von Gesamtstaub und Chromgehalt bzw. 21 % beim Nickelgehalt um den Mittelwert. Aufgrund der Schwankungen sind die Werte für Abschätzungen und tendenzielle Aussagen eher geeignet, als für exakte Frachtberechnungen.

Ergebnisse. Die Emissionssituation in Bezug auf Gesamtstaub vor und nach dem Umbau ist in der Abbildung 2 dargestellt. Die schematische, halbquantitative Darstellung zeigt das Hallendach aus der Draufsicht und die Öffnungen, aus denen Staub austritt. Das Ausmaß der Staubemission ist farblich gekennzeichnet. Wenn man die Frachten aus den einzelnen Quellen aufsummiert und die Ergebnisse für mehrere Betriebstage heranzieht, ergibt sich das in der Abbildung 3 dargestellte Bild: Im Mittel wurde nach dem Umbau nur noch die Hälfte derjenigen Staubfracht freigesetzt, welche vorher gemessen wurde. Der Anteil an PM10 betrug sowohl vor als auch nach Umbau der Absaugung im Mittel 70 % /2/. Der vor dem Umbau im Bereich der Konverter diffus freigesetzte Staub, enthielt im Mittel 4,3 Gew.-% Chrom und je nach produzierter Edelstahlqualität 0,1-1,3 Gew.-% Nickel. Nach der Inbetriebnahme der verbesserten Abluftfassung enthielt dieser Staub nur noch halb so viel Chrom (ca. 2 Gew.-%) und Nickel (0,1-0,6 Gew.-%). Dieses Messergebnis macht deutlich, dass die höher belasteten Metallrauche mit den neuen Einrichtungen offenbar besser erfasst und abgesaugt werden. Der Staub, der jetzt noch aus den Dachöffnungen entweicht, ist weniger mit Chrom und Nickel belastet als vorher. Möglicherweise stammt er aus anderen betrieblichen Vorgängen, als dem Frischen.

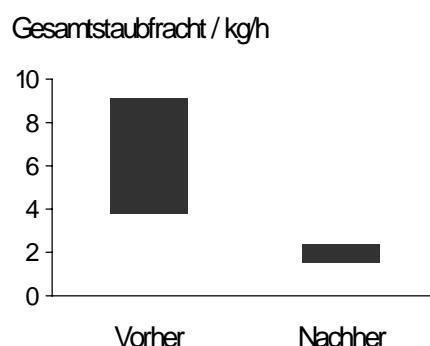


Abb. 3: Auswirkung der verbesserten Abluftfassung auf das Ausmaß der Staubemission aus dem Dach der Konverterhalle - Emissionsniveau für Gesamtstaub vor und nach Durchführung der Maßnahme

5. Effekt der Minderungsmaßnahme auf das Ausmaß der diffusen Emissionen aus dem Dach der Konverterhalle

Durch die verbesserte Ablufterfassung wurden die diffuse Staubemissionen beim Konverterbetrieb deutlich gemindert. Das bestätigen die Messungen. Der Rückgang beläuft sich im vorliegenden Fall auf etwa 50 % der ursprünglichen Fracht. Insbesondere die höher mit Chrom und Nickel belasteten Rauche und Stäube, welche unmittelbar über dem Konverter austreten, werden mit der neuen Erfassungsanlagen besser als vorher abgesaugt. Der über Dach freigesetzte Staub ist unabhängig vom Grad der Ablufterfassung überwiegend Feinstaub der Fraktion PM 10.

6. Auswirkung auf die Emissionsbilanz des Edelstahlwerkes

Um die Auswirkung der Maßnahme auf die Emissionsbilanz des Edelstahlwerkes zu beschreiben, werden im Folgenden die weiteren zum Werk gehörigen Betriebseinheiten UVP-Ofen, Bunker, Pfannenwirtschaft, Brennschneidemaschine und die abgesaugte über den Kamin abgeleitete Abluft aus dem AOD-Konverterbereich mit einbezogen. Die weiteren Emissionsdaten, die dieser Betrachtung zu Grunde liegen, beruhen auf Messungen im Fall der gefassten Quellen und auf Schätzungen im Fall der diffusen Emissionen aus dem UHP-Bereich. Es ergibt sich folgendes Bild (Abbildung 4):

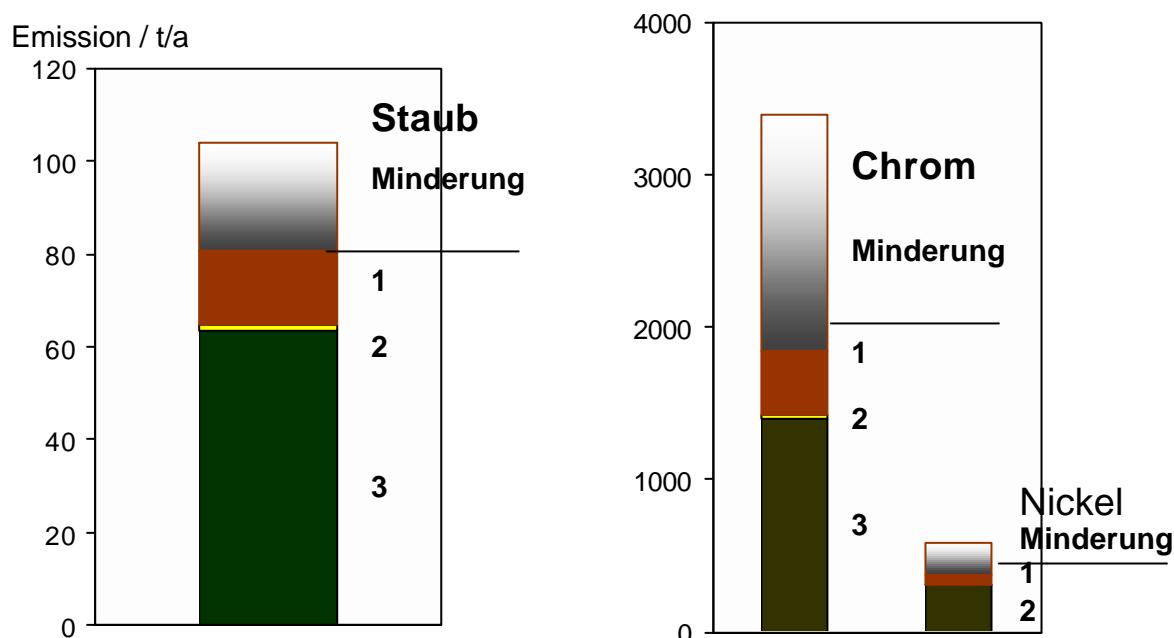


Abb. 4: Emissionsminderung im Edelstahlwerk aufgrund der verbesserten Ablufterfassung im Bereich der AOD-Konverter (1). Die Emissionen aus den Bereichen Bunker, Pfannenofen, Brennschneidemaschine (2) und dem UHP-Ofen (3) blieben unverändert. Die Emissionen aus dem UHP-Ofen (3) sind größtenteils diffus und die angegebenen Massenströme sind geschätzt.

Aus der Abbildung 4 ist abzuleiten, dass mit der verbesserten Ablufterfassung im AOD-Bereich für das gesamte Edelstahlwerk die Staubemissionen um ca. 20 %, die Chromemissionen um ca. 45 % und die Nickelemissionen um ca. 30-40 % zurückgehen. Diese Aussage ergibt sich allerdings aus einer Bilanz, bei der ein großer Anteil der Emissionen nur geschätzt werden konnte. Die diffus freigesetzten chrom- und nickelhaltigen Stäube aus dem UHP-Bereich machen nach Schätzung nahezu die Hälfte der Gesamtemissionen des Werkes vor Durchführung der Minderungsmaßnahme aus. Sollte entgegen der Schätzung sogar noch mehr Staub aus dem UHP-Bereich freigesetzt werden, würde die Verbesserung im Bereich der AOD-Konverter in der Emissionsbilanz weniger stark zu Buche schlagen. Umgekehrt hätte eine Überschätzung der UHP-Emissionen zur Folge, dass mit der Maßnahme eine noch deutlichere relative Emissionsminderung erreicht wurde.

7. Auswirkung der Minderungsmaßnahme auf die Luftbelastung in der Umgebung

In Hauptwindrichtung des Edelstahlwerkes befand sich in ca. 1 km Entfernung eine Immissionsmeßstation des LUA. Dort wurde u.a. die TSP-, PM 10, Chrom- und Nickelkonzentration in der Umgebungsluft gemessen. Messungen liegen für einen Zeitraum von fünf Monaten vor und 17 Monaten nach Inbetriebnahme der neuen Ablufterfassung und Abreinigung vor. Die Immissionswerte zeigen an, ob und in welcher Höhe die Emissionsminderung im Edelstahlwerk Auswirkungen auf die Qualität der Umgebungsluft hat.

Tabelle 2
Konzentrationswerte in der Umgebungsluft,
gemessen in ca. 1 km Entfernung in Hauptwindrichtung des Edelstahlwerks

		Vor Durchführung der Maßnahme				Nach Durchführung der Maßnahme			
		Anzahl Werte	Minimal- wert	Maximal- wert	Mittel- wert	Anzahl Werte	Minimal- wert	Maximal- wert	Mittel- wert
TSP	µg/m³	62	21	110	44	191	6	136	47
PM 10	µg/m³	--	--	--	--	176	8	74	30
Chrom	ng/m³	62	1	544	101	47	1	612	95
Nickel	ng/m³	62	1	252	28	188	0,4	293	28

Die Tagemittelwerte für die einzelnen Komponenten aus beiden Messperioden wurden in der Tabelle 2 zu Mittelwerten zusammengefasst. In der Zeit vor dem Umbau wurde die PM 10-Konzentration in der Umgebungsluft noch nicht gemessen. Deshalb stehen für PM 10 nur Werte für die Zeit nach dem Umbau zur Verfügung. Aus dem Immissionswerten sind zunächst zwei Aussagen abzuleiten:

1. Am Messort wurden bereits vor und auch nach Durchführung der Minderungsmaßnahme TSP- und PM 10-Werte gemessen, die darauf hindeuten, dass die maßgeblichen Immissionswerte der 22. BImSchV /3/ eingehalten sind.
2. In der Umgebungsluft hat sich die TSP-, Chrom- und Nickekonzentration trotz der Emissionsminderung im Edelstahlwerk nahezu nicht verändert.

Diese beiden Befunde sind überraschend. Zunächst einmal ist hervorzuheben, dass in der Umgebung des Edelstahlwerkes vergleichsweise niedrige TSP- und PM 10-Konzentrationen vorherrschen, obwohl allein vom Werk Staub in der Größenordnung von 80 Tonnen jährlich, vermutlich überwiegend PM 10 freigesetzt werden. Wenn man aber dazu eine Ausbreitungsrechnung durchführt, ergibt sich, dass die durch das Edelstahlwerk verursachte Zusatzbelastung am Messort weniger als 1 µg TSP /m³ beträgt /4/. In Bezug auf die stahlwerkstypischen Staubinhaltsstoffe Chrom und Nickel wäre aufgrund der Emissionsminderung zu erwarten gewesen, dass deren Konzentration abnimmt. Ein derartiger Effekt konnte aber anhand der Mittelwerte für die Immissionskonzentration nicht nachvollzogen werden. Deshalb wurden im nächsten Schritt nur Chrom- und Nickelimmissionswerte ausgewertet, die bei Wind aus Richtung des Stahlwerkes gemessen wurden (Abbildung 5).

Immissionskonzentration / ng/m³

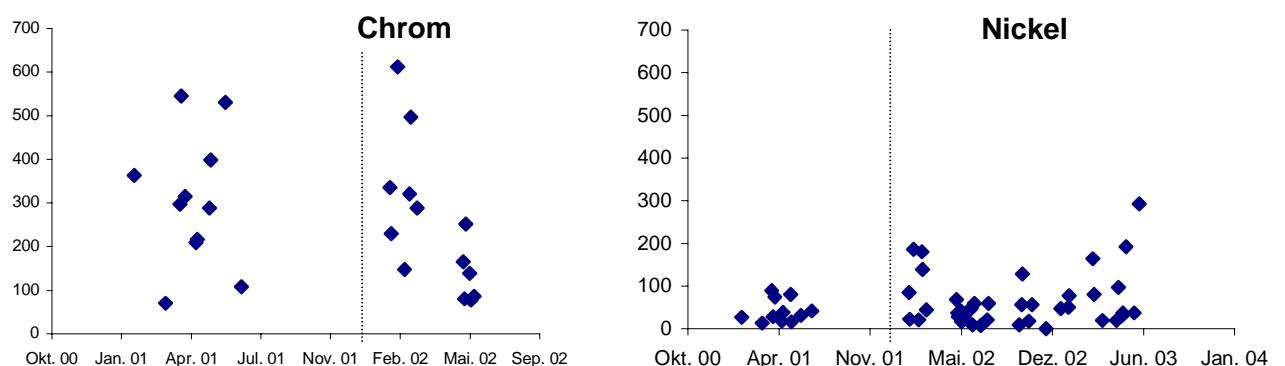


Abb. 5: Immissionskonzentration für die edelstahlwerkstypischen Staubinhaltsstoffe Chrom und Nickel bei Winden aus Richtung des Edelstahlwerkes. Die gestrichelte Linie ---- zeigt den Zeitpunkt des Inkrafttretens der Minderungsmaßnahme an.

Auch aus der windrichtungseingeschränkten Auswertung ist kein Effekt der Minderungsmaßnahme auf die Konzentration von Chrom und Nickel in der Umgebungsluft erkennbar.

8. Schlussfolgerung

Offenbar wird die Immissionssituation am Messpunkt durch andere Emissionsquellen, als den AOD-Bereich geprägt. Würden die Emissionen aus dem Konverterbetrieb eine dominierende Rolle spielen, hätte sich die nachgewiesene Emissionsminderung auf die Luftbelastung in der Umgebung auswirken müssen.

Zitate

- /1/ D. Gladke, H. Hartmann, K. Rauchfuss, S. Termath, M. Thomzik: „Chrom- und Nickelimmissionen in der Umgebung von Stahlwerken“, LUA-Jahresbericht 2001, Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen.
- /2/ Bericht über Messungen TÜV Süddeutschland im Autrag des LUA .
- /3/ Zweiundzwanzigste Verordnung zzur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (Verordnung über Immissionswerte für Schadstoffe in der Luft – 22. BimSchV) vom 11. September 2002 (BGBl. I S. 3626) – (BGBl. III 2129-8-22-1) –
- /4/ U. Hartmann: Persönliche Mitteilung.

D.2 PMx-Quellenidentifizierung Ergebnisse als Grundlage für Maßnahmenpläne - Erfahrungen und Probleme bei der Maßnahmenplanung

W. Volkhausen (ThyssenKrupp Stahl AG)

PMx-Quellenidentifizierung Ergebnisse als Grundlage für Maßnahmenpläne - Erfahrungen und Probleme bei der Maßnahmenplanung

Dr.-Ing. Wolfgang Volkhausen, ThyssenKrupp Stahl AG

Über das EU-Recht wurde mit PM 10 in das deutsche Recht ein neuer Beurteilungsmaßstab eingeführt, der in etwa dem Schwebstaub entspricht. Der Grenzwert zum Schutz der menschlichen Gesundheit wurde dabei im Jahresmittel um den etwa Faktor 3 abgesenkt, im Tagesmittel sogar um den Faktor 5. Den Immissionsgrenzwerten für PM 10 liegen Empfehlungen der WHO zugrunde. Es überrascht nicht, dass ein Wirkungsbezug von PM 10 am ehesten in den Megastädten Asiens und Südamerika hergestellt werden konnte. Hier herrschen heute Bedingungen vor, die zumindest der jüngeren Generation in Deutschland völlig unbekannt ist. In Peking werden z.B. Jahresmittelwerte von um 300 µg PM 10 je m³, mit Tageswerten von z.T. über 1.000 µg/m³ ermittelt. Dass dort Maßnahmenpläne zum Gesundheitsschutz dringend geboten sind, ist unbestritten. Bei uns in Deutschland, wo man zu recht von Luftqualität sprechen kann, ist das von Humanmedizinern unterstellte Gefährdungspotential weniger nachvollziehbar. Maßnahmenpläne sollten sich daher auch, wenn nicht maßgeblich, am Grundsatz der Verhältnismäßigkeit orientieren. Dieser Aspekt sollte nicht unterschätzt werden, wenn man bedenkt, dass im Zuge der Globalisierung Standortentscheidungen nicht an Ländergrenzen halt machen.

Die EU-Richtlinie (1996/62/EG) stellt bei der Maßnahmenplanung richtigerweise einen Gebietsbezug her. Hierbei sind alle relevanten Einflüsse auf die Luftbelastung einzubeziehen. Die Umsetzung in nationales Recht in der 22. BImSchV ist hier EU-konform.

Problematischer gestaltet sich die Umsetzung in der TA Luft, in dem hier ein nicht immer sachgerechter Kausalzusammenhang mit Anlagenemissionen hergestellt wird und darüber hinaus in Überschreitungsgebieten

- die Genehmigung von Neuanlagen oder wesentlichen Änderungen an die Einhaltung von Immissionswerten geknüpft sind oder

- ein Eingriff in bestehende Genehmigungen vorgeschrieben wird.

So fordert die TA Luft, dass bei bestehenden Anlagen Behörden nachträgliche Anordnungen erlassen sollen sofern in Überschreitungsgebieten Anlagen einen relevanten Beitrag leisten. Führen Maßnahmen über den Stand der Technik nicht zu einer Einhaltung der Grenzwerte soll die Behörde sogar den Widerruf der Genehmigung prüfen.

Als Relevanzschwelle wird in der TA Luft an anderer Stelle bei Überschreitung des Immissionswertes ein Immissionsbeitrag von 3% genannt. Dies würde in letzter Konsequenz dazu führen, dass die Genehmigung jeder größeren Anlage auf dem Prüfstand steht und zwar unabhängig davon, ob Minderungen an der Anlage die Einhaltung der Immissionswerte möglich erscheinen lassen oder nicht. Im Folgenden wird diese Problematik untersucht

Über die Emissionen aus geführten Quellen liegen inzwischen gesicherte Erkenntnisse vor. In einem Messprogramm des Landesumweltamtes mit einem eigens hierfür entwickelten Emissionsmessgerät¹⁾ wurden in der Vergangenheit u.a. repräsentative Anlagen der Eisen- und Stahlindustrie in Nordrhein-Westfalen untersucht. Die Messungen wurden im gereinigten Abgas durchgeführt. Es besteht inzwischen Einigkeit, dass bei entstaubten Quellen trotz sehr hoher PM 10-Anteile kein großes Minderungspotential mehr besteht. Außerdem werden an Anlagen der Eisen- und Stahlindustrie bereits heute die Anforderungen an die Emissionsbegrenzung der neuen TA Luft in hohem Maße erfüllt. Technische Quantensprünge wird es in der Entstaubungstechnik ebenfalls nicht mehr geben.

Es ist bei den großen Abluftvolumenströmen der Entstaubungsanlagen von z.T. über 1 Mio. m³ je Stunde unstrittig, dass die Eisen und Stahlindustrie trotz geringer Staubkonzentrationen in der Gruppe der genehmigungsbedürftigen Anlagen zu den größten PM-10 **Emittenten** gehört. Diese Erkenntnis ist bei der Frage der Ursachen für Überschreitungen von PM 10 Grenzwerten jedoch kaum hilfreich, wie am Beispiel des Standortes der ThyssenKrupp Stahl AG in Duisburg erläutert werden soll.

Als größtes zusammenhängendes Hüttenwerk der Welt nach Posco in Pohang, Korea weist das Werk der ThyssenKrupp Stahl AG in Duisburg eine extrem geringe Entfernung zur Wohnnachbarschaft auf. Wenngleich bei der Planung von Neuanlagen eine größtmögliche Entfernung zur Werksgrenze angestrebt wird, ist die Gemengelage eine anspruchsvolle Herausforderung an die Luftreinhaltung. Ähnlich wie in jüngerer Vergangenheit bei Posco wurde auch das Werk von Thyssen ursprünglich auf grüner Wiese in nahezu unbewohntem Gebiet errichtet.

Einzigartig zumindest in Deutschland ist eine PM 10-Messtation des Landesumweltamtes in einem Abstand von nur ca. 300 m von einem Industriekomplex solchen Ausmaßes. Es ist davon auszugehen, dass kein Industriestandort in Europa hinsichtlich der PM-10 Immissionen besser untersucht ist.

Die Messung in Bruckhausen zeigt im Jahresgang 2003 höhere PM 10-Werte als das Mittel über alle Meßstationen im Rhein/Ruhrgebiet. Auffällig ist der parallele Verlauf der Kurven mit in der Regel zeitgleichen Spitzenwerten. Der Tagesgrenzwert wurde 2003 in Bruckhausen 69 mal überschritten, im Rhein/Ruhrgebiet 15 mal. Weiterhin ist erkennbar, dass im ersten Drittel des Jahres 2003 sowohl in Bruckhausen als auch im Großraum Rhein/Ruhr deutlich höhere Werte festgestellt wurden. In dieser Periode wird auf eine bereits hohe großräumige Grundbelastung eine weitere lokale Belastung aufgesetzt. Der Jahresmittelwert wird in beiden Fällen eingehalten. Für Maßnahmenpläne heißt das, dass diese den Jahresmittelwert unberücksichtigt lassen können.

Ziel der Maßnahmenpläne ist hier vielmehr die Einhaltung der Überschreitungshäufigkeit. Die Frage an den Anlagenbetreiber muss folgerichtig lauten:

Wie hoch sind die Beiträge von Anlagen, die **kausal** dazu führen, dass der Tagesmittelwert mehr als 35 Mal pro Jahr überschritten wird?

Durch langfristige Beobachtung oder durch Modellierung ist ein Beitrag von Emittentengruppen zum *Jahresmittelwert* durchaus abschätzbar. Eine differenzierte Aussage zu einzelnen Anlagen oder Quellen ist bei ähnlichem Emissionsverhalten bedeutend schwieriger. Diese Erkenntnisse sind aber – da die Einhaltung des Jahresgrenzwertes nicht in Frage steht – unerheblich. Überschreitung von Tagesmittelwerten sind unter Berücksichtigung der großräumigen Hintergrundbelastung zu sehen, die keineswegs konstant ist, sondern im Jahresgang erheblichen Schwankungen unterworfen ist. Bei der Bewertung der lokalen Situation ist es, da allein die Anzahl von Überschreitungen festgelegt ist, im Falle einer großräumig bedingten Überschreitung des PM 10-Tagesgrenzwertes unerheblich, welcher Zusatzbeitrag durch lokale Quellen verursacht wird. Die Problematik wird umso komplexer, wenn lokal nicht nur eine Quelle oder Quellgruppe zur Immissionsbelastung beiträgt, sondern mehrere Emittentengruppen die lokale Situation überlagern.

Eine Maßnahmenplanung hat folgerichtig *diejenigen* lokalen Immissionsbeiträge zu berücksichtigen, die für eine Überschreitung von mehr als 35 Tageswerten verantwortlich sind. Diese Aufgabe stellt sich gleichfalls im Genehmigungsverfahren. Eine Beurteilung ist prinzipiell möglich durch

- Ausbreitungsrechnung
oder
- Beurteilung der Immissionssituation
 - aufgrund der Windrichtung
 - aufgrund der Zusammensetzung der Stäube

Das innerhalb von Genehmigungsverfahren durch die TA Luft vorgeschriebene Prognosemodell liefert plausible Ergebnisse bei der Ermittlung der Immissionsbeitrags im Jahresmittel. Eine *Prognose* der Überschreitungshäufigkeit ist mit diesem Modell nicht möglich, weil die zukünftige Meteorologie nicht bekannt sein kann. Es können nur in einer *Betrachtung der Vergangenheit* Aussagen zu Immissionsbeiträgen in Abhängigkeit zur *gemessenen* PM 10-Konzentration und der *korrespondierenden* Meteorologie geliefert werden.

Eine sachgerechte Aussage zu Immissionsbeiträgen von Emittenten und Emittentengruppen ist nur auf Basis der Analyse der Immissionsmessungen möglich. Eine Auswertung der Meßdaten allein auf Basis der Tagesmittelwerte ist nicht zielführend, da Windrichtungen im Verlauf eines Tages deutlichen Schwankungen unterworfen sein können. Um für einen bestimmten Punkt eine vernünftige Auflösung der Beiträge von lokalen Emittenten zu erhalten, ist außerdem ein möglichst großes Wertekollektiv mit einer hohen zeitlichen Auflösung erforderlich.

Für die Meßstation Bruckhausen wurden die im Internet verfügbaren und vom Landesumweltamt ermittelten stündlich gleitenden 24-h-Mittelwerten in Abhängigkeit von der Windrichtung untersucht. Es ist zu berücksichtigen, dass eine Gegenüberstellung von stündlich gleitenden 24-h-Mittelwerten mit 1h-Werten der Windrichtung zu Unschärfe führt.

Bei einer Betrachtung der lokalen Verhältnisse am Standort Bruckhausen ist erkennbar:

- Bei den Windrichtungssektoren, aus denen der Wind von Hüttenwerk kommt (270-360° und 0-60°) ist das Grundniveau angehoben.
- Eine Abhängigkeit der gleitenden 24-h-Werten > 50 mg/m³ von der Windrichtung ist hingegen nicht abzulesen. Sie treten über alle Windrichtung und in etwa der gleichen Häufigkeit auf.

Bei einer näheren Untersuchung des Standortes der Meßstation ist festzustellen, dass zwischen dem Hüttenwerk im Westen und Norden und der Station eine stark befahrene Hauptverkehrsstraße verläuft.

Südlich und östlich befindet sich im Abstand von im Minimum von 200 m und ca. 6 m oberhalb des Straßenniveaus die Autobahn 42.

Da die Herkunft der Stäube aus Industrieanlagen und aus dem Verkehrsbereich sich deutlich unterscheidet, ist davon auszugehen, dass der Fingerprint der Stäube eine weitere Differenzierung ermöglichen sollte. Die erforderlichen Probenmengen stehen jedoch nicht in der geforderten zeitlichen Auflösung zur Verfügung. Über diesen Weg sind somit wiederum nur Aussagen über eine größere Zeitspanne möglich. Auch dann wäre zumindest für das hier betrachtete Hüttenwerk eine Zuordnung auf einzelne Anlagen nicht möglich, da sich die Emissionsstoffe der in Frage kommenden Anlagen extrem ähneln.

Fazit:

Selbst in direkter Nähe von Industrieanlagen wird die PM 10 Konzentration zu einem sehr hohen Anteil durch die Hintergrundbelastung bestimmt.

Eine Zuordnung zu einzelnen Quellen ist aufgrund der Beurteilung der Immissions-Konzentrationen bei komplexen Anlagenstrukturen und Gemengelagen nicht möglich. Eine Windrichtungsbezogene Auflösung ermöglicht allenfalls die Abschätzung des *Jahresbeitrags* für Monitorpunkte, wobei eine Zuordnung zu Emittentengruppen nicht eindeutig möglich ist. Aussagen zum Beitrag von Anlagen oder Standorte hinsichtlich ihres Beitrags zur *Überschreitungshäufigkeit* sind weder durch Auswertung von Immissionsdaten noch durch Immissionsprognosen möglich.

Die Aufgabenstellung des Gesetzgebers zur Umsetzung von Maßnahmenplänen ist nur unter Beteiligung aller Gruppen und unter besonderer Berücksichtigung der beschriebenen naturwissenschaftlichen Zusammenhänge lösbar. Problematisch wird sich der Eingriff in bestehende Genehmigungen beim zum Vollzug der TA Luft gestalten.

ⁱ Jahresbericht des Landesumweltamtes NRW, Essen 1999



D.3 Modellprojekt zur Erstellung von Maßnahmenplänen nach Art. 8 Luftqualitätsrahmenrichtlinie

F. Weber (Stadt Hagen)

Stadt Hagen

Modellprojekt zur Erstellung von

Maßnahmenplänen nach Art. 8

Luftqualitätsrahmenrichtlinie

(Umweltabhängige Verkehrsbeeinflussung)

Maßnahmenbewertung

Zusammenfassung

1. Ausgangslage

Im Rahmen der Umsetzung der Luftqualitätsrahmenrichtlinie (Richtlinie 96/62/EG des Rates vom 27. September 1996 über die Beurteilung und Kontrolle der Luftqualität; LQ-RL) und der 1. Tochterrichtlinie (Richtlinie 1999/30/EG vom 22. April 1999) ergibt sich die Notwendigkeit, für Gebiete mit Überschreitungen der jeweils festgelegten Grenzwerte unter Berücksichtigung der festgelegten Toleranzmargen EU-Luftreinhaltepläne aufzustellen.

Als Modellgebiet wurde die Stadt Hagen ausgewählt, da hier aufgrund einer hohen Verkehrsbelastung und hoher gemessener Immissionskonzentrationen, insbesondere für Stickstoffdioxid (NO_2) und Feinstaub (PM_{10}), ein dringender Handlungsbedarf besteht. Als Hauptverursacher der hohen Schadstoffkonzentrationen wurde der Lkw-Verkehr ermittelt¹⁾.

Auf der Grundlage der vorliegenden Untersuchungsergebnisse zum Luftreinhalteplan Hagen hat die Stadt Hagen in Zusammenarbeit mit dem Land Nordrhein-Westfalen einen Prototyp zur umweltabhängigen Verkehrsbeeinflussung entwickeln lassen, der – als ein onlinefähiges Managementsystem eingesetzt – die kurzfristigen Überschreitungen von Grenzwerten im Luftschatstoffsektor verhindern soll. Mit dem Abschlussbericht vom November 2002²⁾ wurde die grundsätzliche Funktionsfähigkeit dieses Managementsystems vorgestellt und hinsichtlich der modelltechnischen Qualität dokumentiert.

Mit der nun vorliegenden Untersuchung³⁾ sollte vor allem die Wirkung der bislang ausgewählten Maßnahmen genauer untersucht werden, damit für den Rat der Stadt eine bessere Entscheidungsgrundlage bezüglich der Maßnahmenauswahl zur Verfügung gestellt werden kann. Es wurden der Maßnahmenbewertung folgende drei Maßnahmenbündel im Lkw-Verkehrsbereich zu Grunde gelegt, die hier speziell auf den Märkischen Ring (Finanzamt) zugeschnitten wurden:

1. Statische Wegweisung für Lkw zu den fünf Gewerbeschwerpunkten der Stadt, basierend auf dem Lkw-Routenkonzept für Hagen (Stand November 1999).
2. Unterstützung der statischen Wegweisung durch dynamische, und damit zeitlich begrenzbare, Hinweise, ausgelöst bei hohen Luftschatstoffkonzentrationen am Märkischen Ring, welche die Akzeptanz der statischen Wegweiser erhöhen sollen.

¹⁾ **Landesumweltamt NRW**, Modellprojekt zur Erstellung von Luftreinhalteplänen nach Art. 8 der Richtlinie 96/62/EG des Rates über die Beurteilung und Kontrolle der Luftqualität, Abschlussbericht, 1.10.2002.

²⁾ **ARTec/ simuPlan**, Bericht über eine neu entwickelte Methode zur dynamischen immissionsabhängigen Verkehrsbeeinflussung für den Märkischen Ring, 18.11.2002.
MODUS CONSULT, Umweltabhängige Verkehrsbeeinflussung, Prototyp für ein online-fähiges Managementsystem, Abschlussbericht, November 2002.

³⁾ **MODUS CONSULT**, Umweltabhängige Verkehrsbeeinflussung, Maßnahmenbewertung, Karlsruhe, Juni 2003

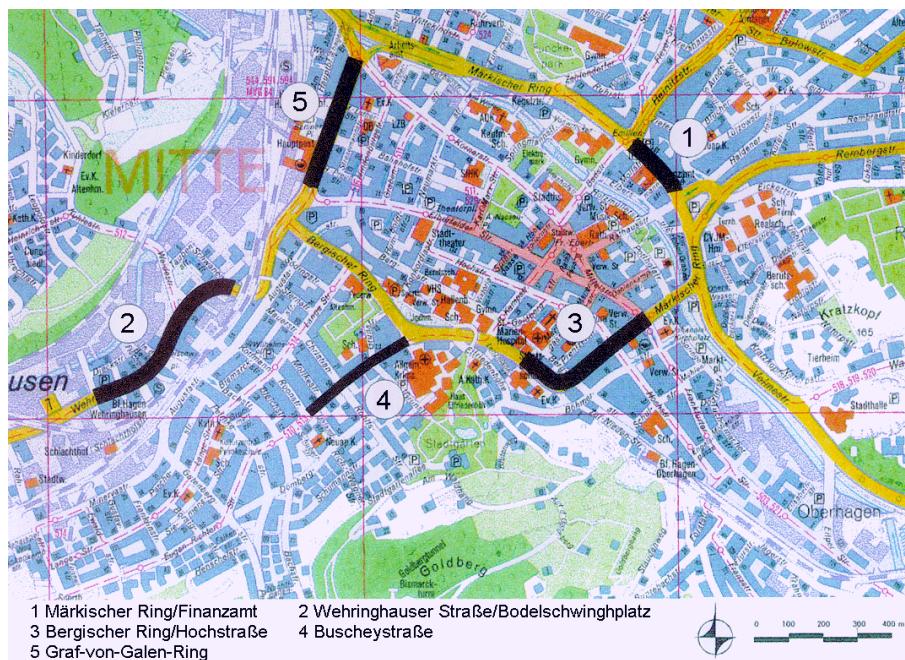
3. Dynamisch geregelte, kurzzeitige Verbote für Lkw, den Märkischen Ring am Finanzamt zu befahren, um die Luftschatstoffkonzentrationsspitzen abzubauen, wobei die statische Wegweisung als vorhanden unterstellt ist.

Als Voraussetzung zur Berechnung und Bewertung der hier genannten Maßnahmen mussten die Standorte, die Beschriftungen und die angestrebten Routen für die Verlagerung der Lkw größer 3,5t im Stadtgebiet von Hagen mit dem Stadtplanungsamt abgestimmt werden.

Neben dem Märkischen Ring (Bereich Finanzamt) wurden in der Untersuchung folgende weitere Straßenabschnitte detailliert berücksichtigt (siehe Abb. 1):

1. Bergischer Ring (Bereich Hochstraße)
2. Buscheystraße (Bereich südl. Bergischer Ring)
3. Wehringhauser Straße (Bereich Weidestraße)
4. Graf-von-Galen-Ring (nördl. und südl. Bahnhofsplatz).

Abb.1: Lage der untersuchten Straßenabschnitte im Stadtgebiet von Hagen



Die fünf Abschnitte wurden im Zuge eines Screening-Verfahrens durch das Umweltamt als Abschnitte mit kritisch hohen Luftschatstoffbelastungen ermittelt. Für den Märkischen Ring, die Wehringhauser Straße und den Graf-von-Galen-Ring konnte mittlerweile anhand von Luftschatstoffmessungen nachgewiesen werden, dass hier Grenzwertüberschreitungen tatsächlich vorliegen (siehe Folie 5 in der Anlage).

2. Maßnahmen

Die Maßnahmen wurden so entwickelt, dass sie einerseits auf einander aufbauen, also stufenweise angewendet werden können. Andererseits wurden die Maßnahmen so ausgewählt, dass sie eine maximale Wirkung auf dem Abschnitt des Märkischen Ringes vor dem Finanzamt entfalten, wobei die Maßnahmenwirkung ausschließlich in Bezug auf den Lkw-Verkehr ausgerichtet ist.

2.1 Statische Beschilderung zur Lkw-Führung

Auf Basis der Untersuchungsergebnisse zum Hagen-Routing von November 1999 wurden die fünf damals definierten Gebiete mit Gewerbezonen als Grundlage für die Entwicklung der statischen Beschilderung gewählt (siehe Folie 9 in der Anlage). Die in der Folie 10 dokumentierte LKW-Route zeigt beispielhaft den Ausschnitt aus den umfassend geplanten Überlegungen zum Hagen-Routing, der erforderlich ist, um die Fahrt, die über den Märkischen Ring (Finanzamt) führt, frühzeitig auf eine alternative Route zu führen (siehe Folie 10 in der Anlage). Aus den zuvor festgelegten Routen wurden die Knotenpunkte abgeleitet, an denen wegweisende Beschilderungen erforderlich sind; sie sind in der Anlage gelb dargestellt und zeigen mit Pfeilen die jeweils empfohlene Abbiegerichtung (siehe Folie 11 in der Anlage).

2.2 Dynamische Beschilderungen/ zeitlich befristete Durchfahrtsverbote

Mit der dynamische Beschilderung wird die Bitte durch eine Aufforderung ersetzt, da es nun keine Alternative mehr gibt. Dabei spielt neben der Hagen-Routing Information nun vor allem die wegweisende Beschilderung auf den klassifizierten Straßen die maßgebliche Rolle, denn die Umleitung für ein Durchfahrtsverbot sollte so rechtzeitig und deutlich wie möglich erfolgen. Die Verkehrsregelung bei Durchfahrtsverboten erfolgt durch das Zeichen StVO 250 oder alternativ Z 253, dass deutlich sichtbar einen Unterschied zu der oben beschriebenen statischen Beschilderung setzen soll. Für die dynamischen Beschilderung werden Hinweistafeln an den Standorten eins bis elf benötigt (siehe Folie 11 in der Anlage).

3. Wirkung der Maßnahmen

Das Ziel der Untersuchung bestand darin, die Wirkung von Maßnahmen, die zur Reduzierung der Luftschadstoffbelastung am Märkischen Ring beitragen, in einem Betrachtungszeitraum von 2 Wochen zu untersuchen und dabei insbesondere Wechselwirkungen auf die weiteren fünf kritischen Straßenabschnitte in Hagen zu benennen.

Die Ergebnisse der Modellberechnungen zeigen eindeutig auf, dass die hohen Luftschadstoffkonzentrationen am Märkischen Ring vor dem Finanzamt insbesondere durch die Maßnahme 3, einer Kombination aus dynamischen Beschilderungen zur Lkw-Führung in Hagen sowie mit frühzeitigem Hinweis auf die Durchfahrtssperre für Lkw ab 3,5t am Märkischen Ring, reduziert werden können. Mit dieser Maßnahme werden nicht nur die kurzzeitigen Spitzenwerte reduziert, es kann durch die Maßnahmen im Betrachtungszeitraum von 05:00 bis

21:00 Uhr insgesamt eine deutliche Reduzierung der Luftschatstoffbelastung um ca. 25% erreicht werden.

Die nachfolgende Tabelle 2 ermöglicht einen Überblick über die möglichen Minderungspotentiale der jeweiligen Maßnahmen. Da der 17. Juni aus Sicht der Luftschatstoffimmissionen ein besonders problematischer Tag, wird in der Tabelle 2 die Maßnahmenwirkung für einen etwas typischeren Tag, den 27. Juni 2002 aufgezeigt.

Tab. 2: Einfluss der Maßnahme auf Tagesmittelwerte am Märkischen Ring

Maßnahmen	Tagesmittelwert 17. Juni 2002		Tagesmittelwert 27. Juni 2002	
	µg NO ₂ /m ³	Reduzierung	µg NO ₂ /m ³	Reduzierung
Ohne Maßnahme	81,1		84,4	
1) Statische Beschilderung	80,5	- 0,7 %	83,8	-0,7 %
2) Dynamische Beschilderung	78,8	-2,9 %	81,9	-3,0 %
3) Zeitlich befristete Sperrung	66,1	-18,5 %	67,2	-20,4 %

Da die Maßnahmenschaltung in den Nachstunden nicht erfolgt, ist die Reduzierung der Luftschatstoffbelastung bezogen auf den Tagesmittelwert etwas geringer, sie liegt bei Maßnahme 1 unter 1%, bei Maßnahme 2 bei ca. 3% und bei Maßnahme 3 dann noch bei knapp 20% (siehe Tabelle 2).

In diesem Zusammenhang ist festzustellen, dass generell die Überschreitung von Spitzenwerten (Prüfwert der 23. BlmSchV bzw. Grenzwert 22. BlmschV) nicht mehr das vordringliche Problem darstellt. Man hat vielmehr in den vergangenen Jahren festgestellt, dass der Grenzwert für den Jahresmittelwert ein viel größeres Problem ist. Insofern müssen auch die Maßnahmenwirkungen am Märkischen Ring vor diesem Hintergrund bewertet werden. Dabei konnte aufgezeigt werden, dass durch Maßnahme 3 nicht allein die Spitzenwerte (Tagesdurchschnitt zwischen 05:00 und 21:00 Uhr ca. – 25%), sondern auch die Tagesmittelwerte deutlich reduziert werden konnten. Somit kann durch eine zeitlich befristete Sperrung des Lkw-Verkehrs > 3,5 t auch maßgeblich zur Reduzierung der Jahresmittelwerte beitragen.

4. Empfehlung

Vor dem Hintergrund der nun maßgeblichen Reduzierung der Jahresmittelwerte, ist beabsichtigt, die Schaltung der Maßnahmen nicht mehr, wie ursprünglich gedacht, nur sehr kurzfristig zur Reduzierung der Spitzenwerte vorzunehmen, sondern durchaus über einen längeren Zeitabschnitt von 4 oder 8 Stunden an einem Tag vorzusehen. Damit kann eine höhere Akzeptanz der Maßnahme und eine Verringerung von Fehlverhalten erzielt werden. Zur frühzeitigen Information der Verkehrsteilnehmer ist es geplant etwa einen Tag im Vorfeld, im Radio oder

in den Tageszeitungen auf die bevorstehenden Maßnahmen hinzuweisen.

In Bezug auf die festgestellten Wechselwirkungen zu den anderen kritischen Streckenabschnitten in Hagen wird deutlich, dass Maßnahmen am Märkischen Ring teilweise geringfügige Verschlechterungen hervorrufen werden (siehe Folie 20 in der Anlage). Zukünftig müssen deshalb die Wirkungen auf allen kritischen Streckenabschnitten weiter beobachtet werden und eventuell Lösungen aufgrund von anderen Verkehrsprojekten der Stadt Hagen gefunden werden, so z.B. durch eine Netzergänzung (Bahnhofshinterfahrung) für den Abschnitt am Graf-von-Galen-Ring oder der Wehringhauser Straße. Grundsätzlich bietet sich aber auf Grundlage der hier vorgelegten Daten und Erkenntnisse die Chance zur Erstellung eines Luftreinhalteplanes für die Stadt Hagen, der alle Luftschaadstoffgruppen und Verursacher betrachtet und integrierte Maßnahmen entwickeln kann. Insofern bilden die hier untersuchten Maßnahmen am Märkischen Ring mit dynamischer Verkehrslenkung nur einen Teil eines umfassend erforderlichen Maßnahmenplanes, der zur Unterschreitung des maßgeblichen Grenzwertes von 40 µg/m³ (NO₂ - Jahresmittelwert) führen kann.

Übersicht Anhang

Folie 1:	Übersicht
Folie 2:	PM ₁₀ - Emissionen in Hagen aus wichtigen Emittentengruppen
Folie 3:	Simulation der PM ₁₀ Jahresmittelwerte (flächendeckend)
Folie 4:	Lage der Untersuchungsabschnitte im Stadtgebiet
Folie 5:	Messergebnisse
Folie 6:	Zusatzbelastung durch den Kfz-Verkehr
Folie 7:	Minderungspotentiale (Ruß)
Folie 8:	Städtische Maßnahmen
Folie 9:	Gewerbeschwerpunkte
Folie 10:	LKW-Zielführung GE-West
Folie 11:	LKW-Zielführung Schilderstandorte
Folie: 12	Netzwirkung Maßnahme 1
Folie: 13	Netzwirkung Maßnahme 3
Folie: 14	Maßnahmenbewertung
Folie: 15	Immissionsbelastung Märkischer Ring (Maßnahme 0 – 3)
Folie: 16	NO ₂ Messung Märkischer Ring
Folie: 17	Immissionsbelastung Märkischer Ring bei Maßnahme 3 (LKW-Sperrung)
Folie: 18	Maßnahmenwirkung
Folie: 19	Einfluss auf Tagesmittelwerte
Folie: 20	Empfehlung

Modellprojekt

zur Erstellung von Maßnahmenplänen nach Artikel 8 der EU- Rahmenrichtlinie zur Luftqualität (LQ-RL)

Ausgangslage

Minderungspotentiale

Maßnahmen

Empfehlungen



Fred Weber

23. Januar 2004

■ Emissionen

PM₁₀-Emissionen in Hagen aus wichtigen Emissionsgruppen

	Gesamtstaub	PM ₁₀
Industrie	154 t/a	144 t/a
Kleinfeuerungen	28,5 t/a	24,1 t/a
Verkehr	722 t/a	536 t/a

	Gesamtstaub	PM ₁₀
Straße	694 t/a	508 t/a
Schiene	4,5 t/a	4,5 t/a
Offroad	23,1 t/a	23,1 t/a

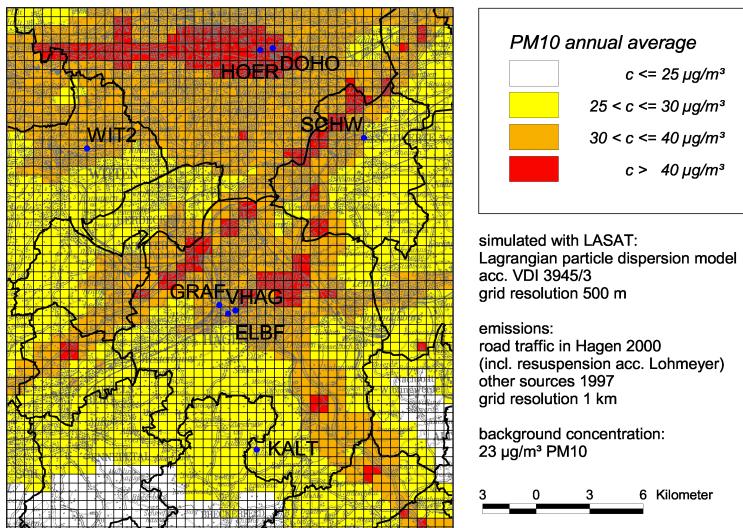
Quelle: LUA NRW



Fred Weber

23. Januar 2004

■ Simulation von PM₁₀ Jahresmittelwerte 2000



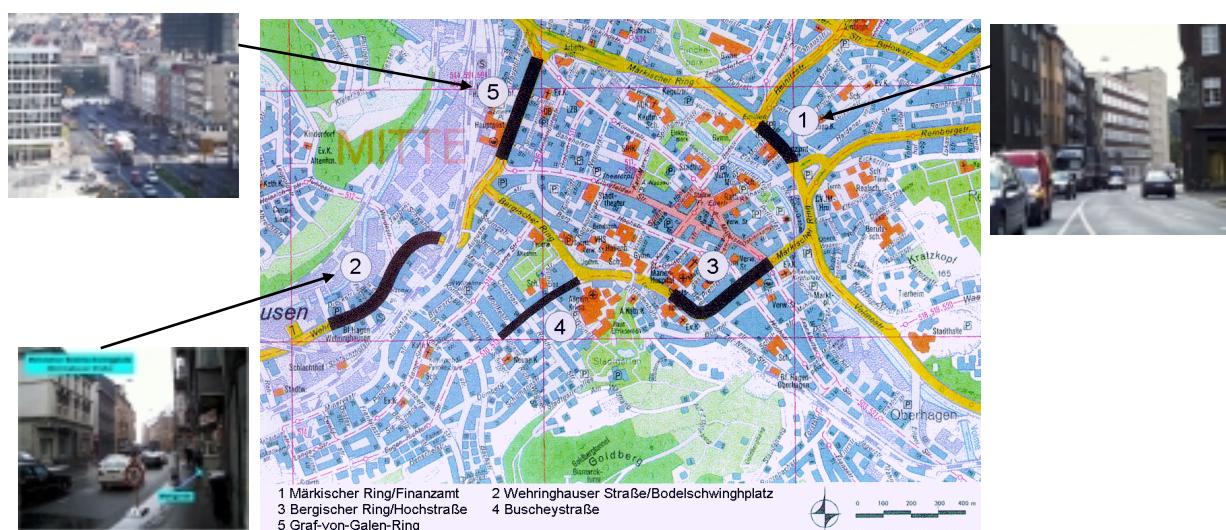
Quelle: LUA NRW



Fred Weber

23. Januar 2004

■ Untersuchungsstandorte Innenstadt



Fred Weber

23. Januar 2004

■ Messergebnisse

Standort	Verkehrsdaten	Ergebnisse; Jahresmittelwerte [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	
		PM ₁₀	NO ₂
Wehringhauser Str. (1999)	21.800 DTV 16,5 % sNfz	85	115
Märkischer Ring (1998)	41.200 DTV 10,6 % sNfz	87	74
Graf-v.-Galen-Ring (2003; 40 Wochen)	30.100 DTV 12,9 % sNfz	36 (47,4) ¹	67 (58) ¹
Fußgängerzone (2001)	gering	37,8	-
regionaler Hintergrund Kalthausen(2001)	gering	20,4	14

¹ Jahresmittelwerte 2002

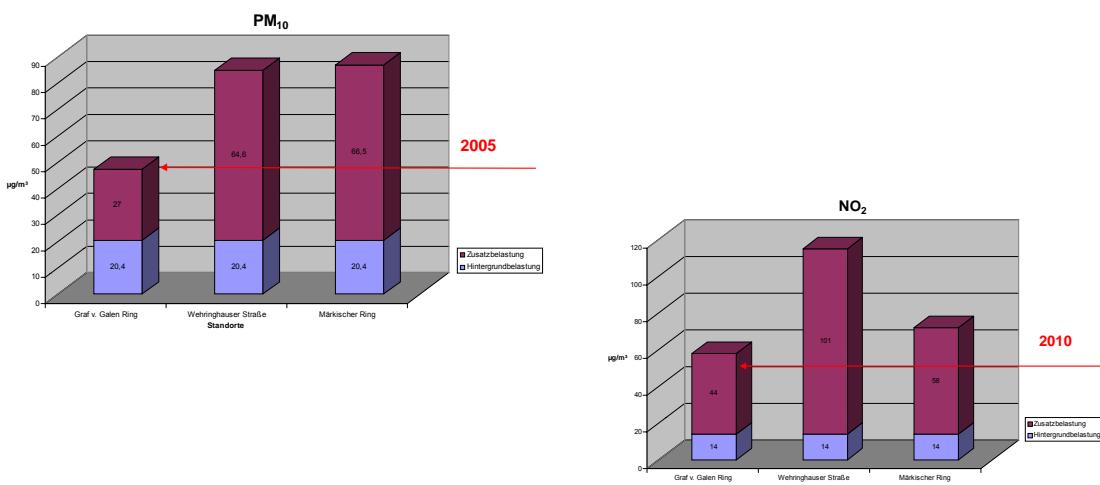
Quellen: RW -TÜV/ LUA NRW



Fred Weber

23. Januar 2004

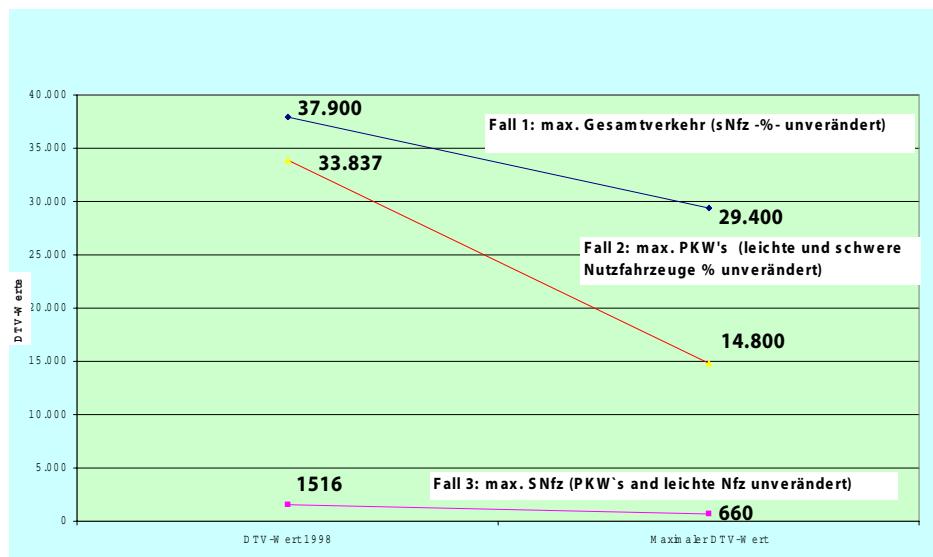
■ Zusatzbelastung durch den Kfz.-Verkehr



Fred Weber

23. Januar 2004

■ Minderungspotentiale (Ruß)



Quelle: simuPlan



Fred Weber

23. Januar 2004

■ städtische Maßnahmen

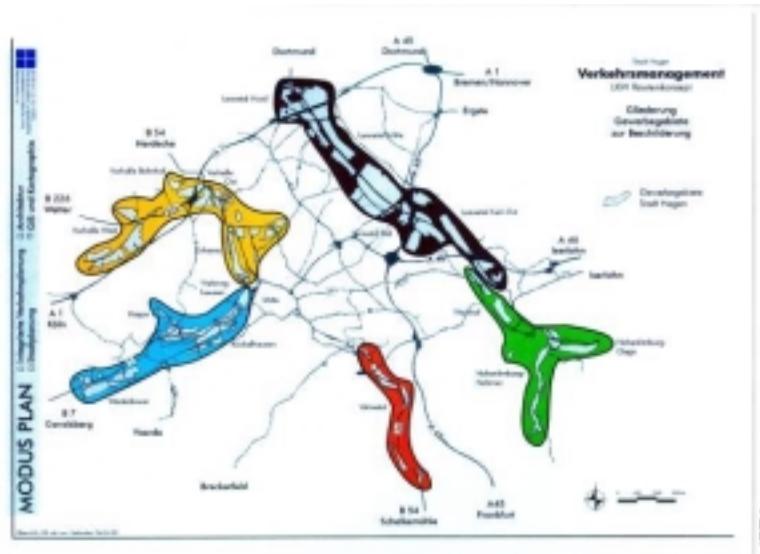
- ⇒ Güterverkehrs routenkonzept
(Angebotsnetz)
- ⇒ Immissionsabhängige Verkehrssteuerung
(zeitlich befristete Verkehrssperrungen)
- ⇒ Ausbau der City-Logistik
(Belieferung mit erdgasbetriebenen Fahrzeugen)
- ⇒ ÖPNV Umweltstandards
(Dieselsubstitution (RME) und Einsatz von Partikelfiltern)



Fred Weber

23. Januar 2004

■ Gewerbe-Schwerpunkte

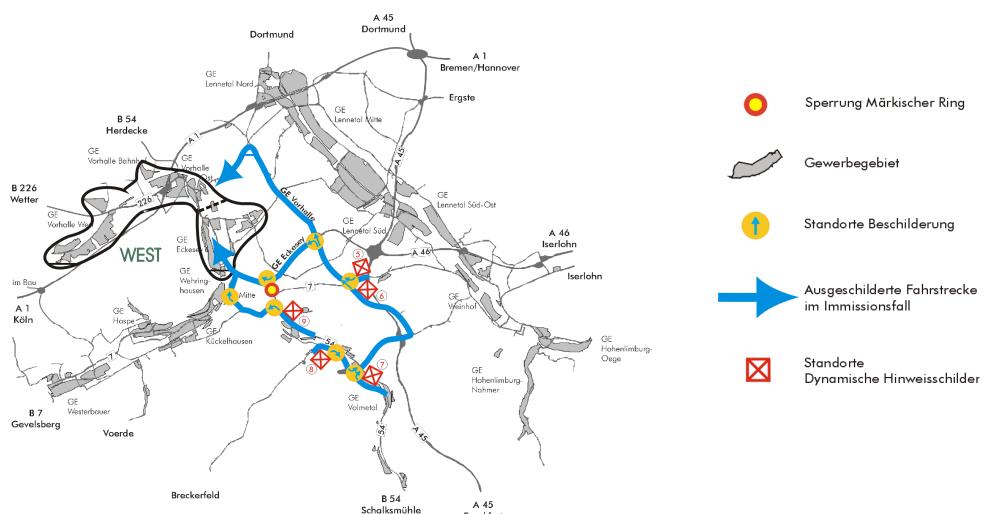


Fred Weber

23. Januar 2004

■ LKW-Zielführung

GE West



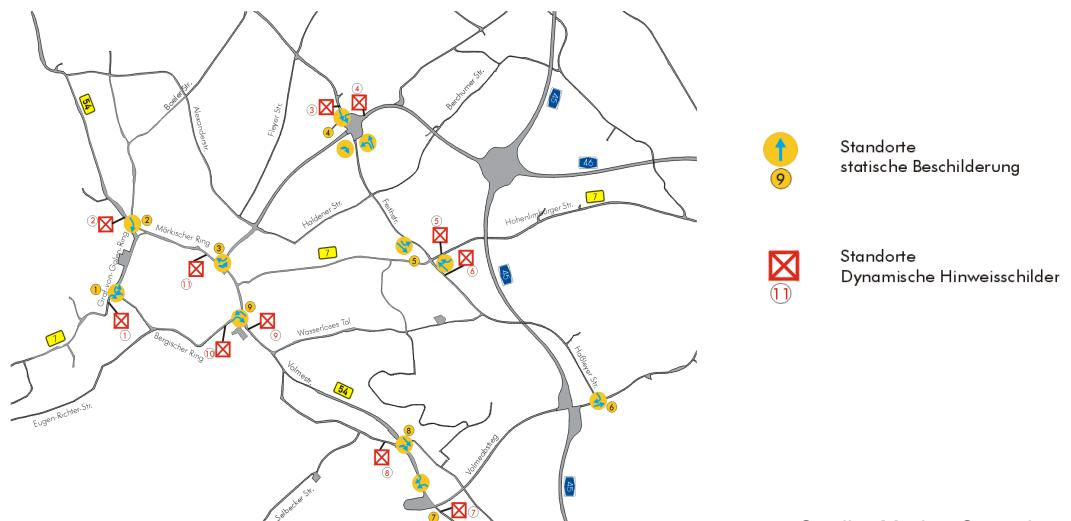
Quelle: Modus Consult



Fred Weber

23. Januar 2004

■ LKW-Zielführung Schilderstandorte



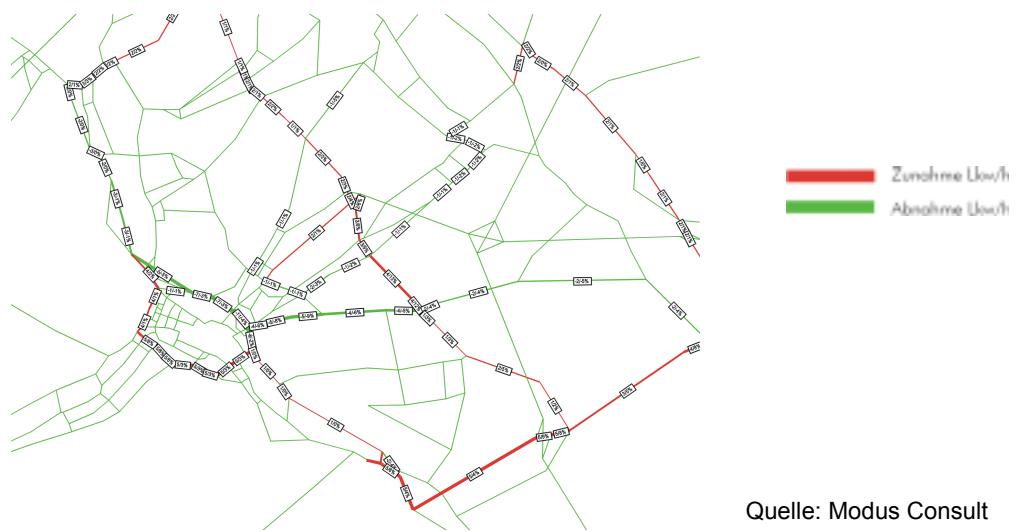
Quelle: Modus Consult



Fred Weber

23. Januar 2004

■ Netzirkung Maßnahme 1: Lkw/h (Empfehlung)



Quelle: Modus Consult

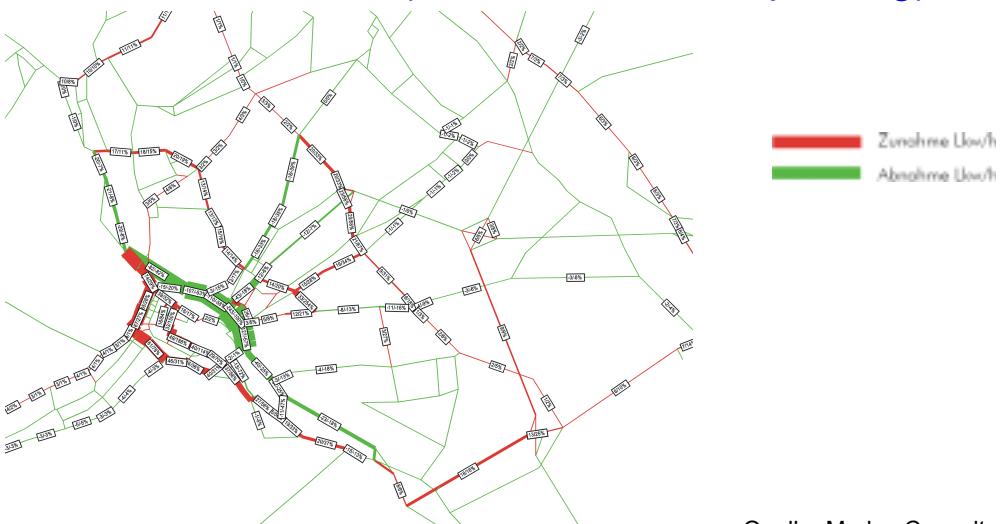


Fred Weber

23. Januar 2004

■ Netzwirkung

Maßnahme 3: Lkw/h (zeitlich befristete Sperrung)



Quelle: Modus Consult



Fred Weber

23. Januar 2004

■ Maßnahmenbewertung

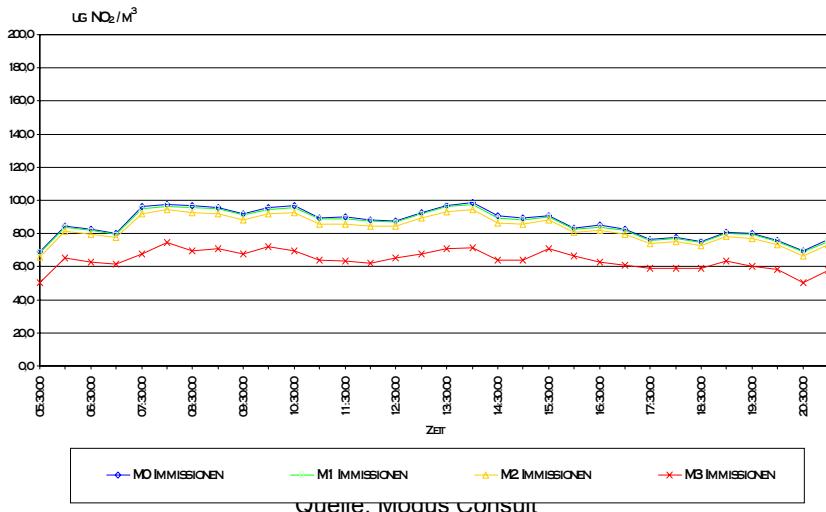
- ⇒ M0: Status quo
- ⇒ M1: statische Verkehrslenkung (statische Beschilderung)
- ⇒ M2: dynamische Verkehrslenkung (Hinweistafeln)
- ⇒ M3: zeitlich befristete Verkehrssperrung
(Kombination M2 und M3)



Fred Weber

23. Januar 2004

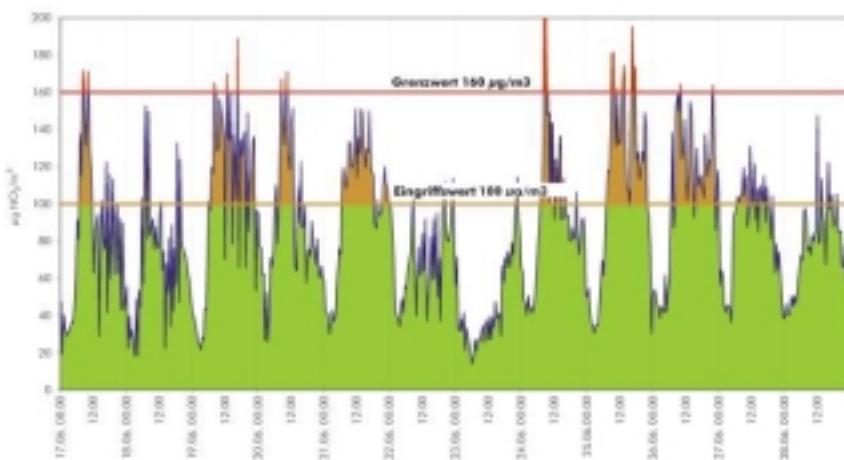
■ Immissionsbelastung Märkischer Ring Maßnahme 0 - Maßnahme 3



Fred Weber

23. Januar 2004

■ NO_2 - Messung Märkischer Ring



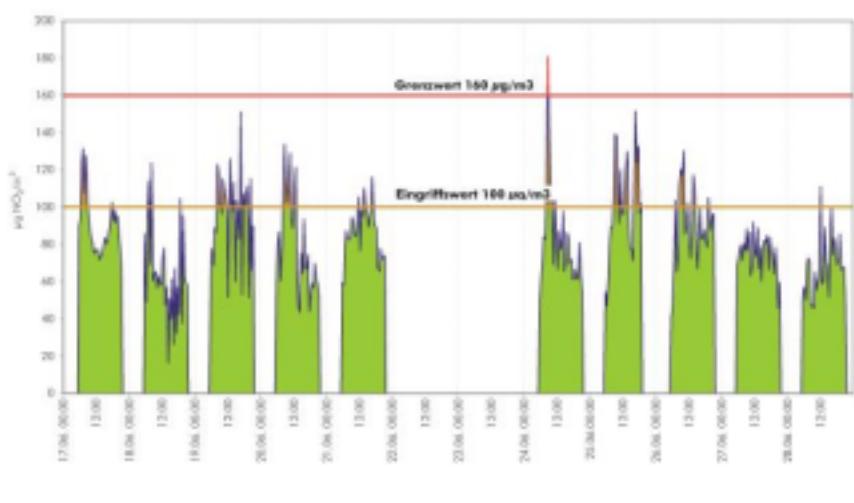
Quelle: Modus Consult



Fred Weber

23. Januar 2004

■ Immissionsbelastung Märkischer Ring bei Maßnahme 3: Lkw Sperrung



Fred Weber

23. Januar 2004

■ Einfluss der Maßnahme

Maßnahmen	Tagesmittelwert 17. Juni 2002		Tagesmittelwert 27. Juni 2002	
	µg NO ₂ /m ³	Reduzierung	µg NO ₂ /m ³	Reduzierung
M0: Ohne Maßnahme	81,1	0%	84,4	0%
M1: Statische Beschilderung	80,5	- 0,7%	83,8	- 0,7%
M2:Dynamische Beschilderung	78,8	-2,9%	81,9	-3,0%
M3: Zeitlich befristete Sperrung	66,1	-18,5%	67,2	-20,4%

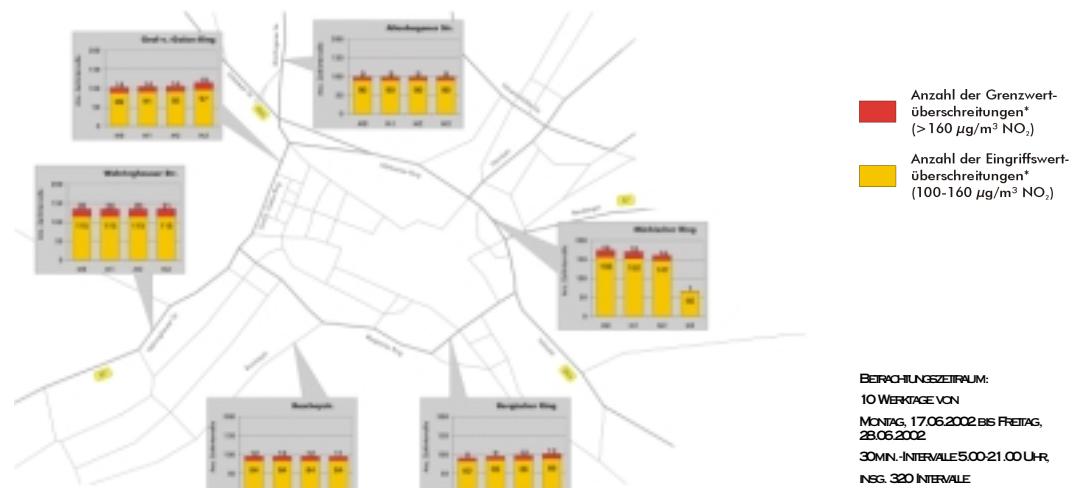
Quelle: Modus Consult



Fred Weber

23. Januar 2004

■ Maßnahmenwirkung



Quelle: Modus Consult



Fred Weber

23. Januar 2004

■ Empfehlungen

- ⇒ die immissionsabhängige Verkehrssteuerung ist geeignet,
 - ⇒ Spitzen-, Tages- und Jahresmittelwerte deutlich zu senken;
 - ⇒ die Schaltung der Maßnahme sollte deshalb nicht nur sehr kurzfristig zu Senkung der Spitzenwerte erfolgen, sondern über einen längeren Zeitabschnitt (4 oder 8 Stunden am Tag);
- ⇒ ergänzende Maßnahmen sind erforderlich, z.B.
 - ⇒ Netzerweiterung (Bahnhofshinterfahrung)
 - ⇒ weiterer Ausbau der Citylogistik
 - ⇒ Förderung des Erdgaseinsatzes



Fred Weber

23. Januar 2004

D.4 PM10-Immissionsminderung durch die Ortsumfahrung einer Kleinstadt

U. Friedrich, I. Düring
(LUA Brandenburg, Ingenieurbüro Lohmeyer)

PMx-Quellenidentifizierung:
Ergebnisse als Grundlage für Maßnahmenpläne

PM10-Immissionsminderung durch die Ortsumfahrung einer Kleinstadt

U. Friedrich Landesumweltamt Brandenburg
Dr. I. Düring Ingenieurbüro Lohmeyer GmbH & Co. KG

1. Ziel der Untersuchungen

Das Ministerium für Landwirtschaft, Umweltschutz und Raumordnung des Landes Brandenburg sucht nach Möglichkeiten, eine Bewertung planerischer, verkehrstechnischer und administrativer Möglichkeiten für Luftreinhaltemaßnahmen gemäß der 22. BlmSchV in Verbindung mit Maßnahmen der Lärmminderung nach § 47a Bundes-Immissionsschutzgesetz durchführen zu können. Dazu wurde bereits eine Machbarkeitsstudie erarbeitet.

Mit Hilfe des hier vorgestellten Projektes soll in Fortführung der Machbarkeitsstudie eine quantitative Bewertung von PM10-Immissions-Minderungsmaßnahmen an einer Beispielstadt erfolgen. Vor allem von Interesse sind die Auswirkungen von verkehrsplanerischen Maßnahmen und hier wiederum die Auswirkungen durch den Bau einer Umgehungsstraße. Eine große Bedeutung erlangt dieses Projekt vor dem Hintergrund, dass derzeitig davon ausgegangen werden muss, dass es in 35 Städten des Landes Brandenburg im Jahr 2005 zu Grenzwertüberschreitungen von PM10-Schwebstaub kommen kann. In einer überwiegenden Anzahl dieser Städte sollen mittelfristig Ortsumfahrungen gebaut werden.

Als Beispiel für derartige Untersuchungen bietet sich die Stadt Nauen an. Hier wurde eine Umgehungsstraße für die vom Verkehr stark frequentierte Bundesstraße B 5 im September 2002 fertiggestellt. Umfangreiche Messdatensätze von Verkehrs- und Immissionsdaten liegen sowohl für die Zeit vor als auch nach Inbetriebnahme dieser Ortsumfahrung (OU) vor.

Es wurde zuerst die Analyse der Situation ohne Umgehungsstraße (Ist-Situation) vorgenommen. Danach erfolgte nach Fertigstellung der Ortsumfahrung die Analyse der Situation mit Umgehungsstraße. Begleitet wurden die Immissionsmessungen und -rechnungen durch umfassende Verkehrserhebungen auf dem gesamten Hauptstraßennetz der Stadt.

Zusätzlich wurde anhand der vorliegenden Messdaten abgeleitet, welchen Einfluss ein Mitte bis Ende September 1999 teilweise stattgefunder Fahrbahnbelagswechsel (von Kleinpflaster auf Asphalt) auf die PM10 Emission und -Immission hatte.

2. Örtliche Verhältnisse

Die Stadt Nauen mit ihren 11200 Einwohnern liegt 18 km westlich von Berlin und 24 km nordwestlich von Potsdam. Das Umland um Nauen herum ist durch landwirtschaftliche Nutzung geprägt. **Abb. 1** zeigt eine Darstellung der Ortslage einschließlich des betrachteten Hauptstraßennetzes.

Zusätzlich eingezeichnet ist die Lage des detailliert betrachteten Bereiches um die Berliner Straße. Die Berliner Straße liegt im Ortszentrum von Nauen. Sie ist eine im Wesentlichen zweistreifige Straße, die an den Knotenpunkten bzgl. Abbiegespuren aufgeweitet ist. Ihre Lage ist Ost-West orientiert. Durch die kompakte und hohe Bebauung liegt hier ein Straßenschluchtcharakter vor. Bis zum Jahr 1999 war bereits ein Fahrbahnbereich vom Knotenpunkt Berliner Straße/Rathausplatz bis etwa zur Mitte der Berliner Straße in Richtung Knoten Berliner Straße/Mittelstraße mit einer Asphaltdecke saniert (**Abb. 2**). Die andere Hälfte dieses Straßenabschnittes hatte als Fahrbahnoberfläche noch Kleinpflaster, welches teilweise mit Asphalt geflickt war. Die Gehwege waren auf der gesamten Länge in einem guten Zustand.

Mitte bis Ende September 1999 fand ein teilweiser Fahrbahnbelaagswechsel statt. Zwischen der Kreuzung Berliner Straße/Mittelstraße und dem bereits sanierten Bereich wurde auf das Kleinpflaster eine Asphaltsschicht aufgetragen. Weitere Veränderungen wurden nicht vorgenommen. Derzeit sind der Fahrbahnbelaag (Asphalt) und die Gehwegbereiche in einem guten Zustand.

3. Verkehrsuntersuchungen

Es wurde die Verkehrsbelastung in der Stadt Nauen vor bzw. nach dem Bau der Ortsumfahrung der B 5 ermittelt. Die Untersuchungen erfolgten im gesamten Hauptstraßennetz. Vertiefende Betrachtungen wurden am Verkehrsimmissionsmesspunkt in der Berliner Straße durchgeführt. Vor Freigabe der Ortsumfahrung fuhren über 10000 Kfz/Tag sowohl im Bereich der B 5 als auch auf der B 273. Diese Straßenabschnitte waren auch durch mehr als 500 schwere Nutzfahrzeuge(SNfz) pro Tag belastet. Den Bereich der Berliner Straße in Höhe des Verkehrsimmissionsmesspunktes passierten täglich 18000 Kfz (davon 1200 schwere Lkw und Busse).

Durch die Ortsumfahrung erfuhr die Berliner Straße eine Entlastung um 6000 Kfz bzw. 600 - 700 Schwerverkehrsfahrzeuge pro Tag. Das entspricht einer Entlastung um ein Drittel im gesamten Kfz-Verkehr bzw. um die Hälfte im Schwerverkehr (**Abb. 3**). Im gesamten innerörtlichen Hauptstraßennetz wurde nach Inbetriebnahme der Ortsumfahrung eine um 21 % geringere Fahrleistung des Kfz-Verkehrs bzw. 36 % geringere Schwerverkehrsfahrleistung beobachtet. Im gesamten Untersuchungsgebiet unter Einbeziehung der Ortsumfahrung blieb die Fahrleistung auf annähernd gleichem Niveau.

4. Immissionsuntersuchungen

Es wurden zunächst umfangreiche Auswertungen von Messdaten aus der Berliner Straße in Nauen, aus dem städtischen Hintergrund (repräsentiert durch die Messstationen Nauen-Stadt, Premnitz und Neuruppin) sowie aus dem großräumigen und regionalen Hintergrund (repräsentiert durch die Stationen Neuglobsow und Paulinenau) vorgenommen. Ziel war das Ableiten von Immissionsanteilen differenziert nach außerstädtischer Vorbelastung, städtischem Beitrag und Straßenschluchtbeitrag.

Weiterhin wurden Modellrechnungen mit den Screeningmodell SELMA^{GIS} einschließlich der Module PROKAS/PROKAS_B und TALBO durchgeführt, um

- für das gesamte Hauptstraßennetz von Nauen die Straßenrandkonzessionen PM10 und NO₂ für die Situation vor und nach Inbetriebnahme der Ortsumfahrung auszuweisen, um die „Hot Spots“ zu bestimmen sowie die PM10- und NO₂-Belastungsunterschiede zwischen den beiden Varianten für das gesamte Hauptstraßennetz aufzuzeigen ,
- die flächenhafte Grundbelastung infolge des Straßenverkehrs in Nauen zu bestimmen und
- die Anteile städtischer Hausbrand und anlagenbedingter Immissionen abzuschätzen.

Die Emissionsmodellierung für PM10 erfolgte nach dem in [1] vorgestellten Verfahren. Für den in Nauen am stärksten belasteten Straßenabschnitt Berliner Straße zwischen Mittelstraße und Rathausplatz wurden anschließend Detailberechnungen mit dem mikroskaligen Windfeld und Ausbreitungsmodell MISKAM durchgeführt, um

- die Schadstoffkonzentrationen innerhalb dieses Straßenabschnittes sowohl horizontal als auch vertikal zu differenzieren und
- diese Modellergebnisse mit den Messwerten vergleichen zu können.

5. Ergebnisse

Die Auswertung der Messdaten zeigte, dass sich die PM10-Gesamtbelastung am Messpunkt Berliner Straße in Nauen im Jahr 2001/2002 (ein Jahr vor OU) zu ca. 45 % aus der großräumigen Vorbelastung, zu ca. 15 % aus regionalen und städtischen Quellen einschließlich Verkehr des umliegenden Straßennetzes und zu ca. 40 % aus den Zusatzbelastungen infolge des Verkehrs auf der Berliner Straße im betrachteten Abschnitt zusammensetzte (**Abb. 4**). Die Einträge aus städtischem Hausbrand und genehmigungsbedürftigen Anlagen waren sehr gering (kleiner 1 %).

Nach Inbetriebnahme der Ortsumfahrung Nauen reduzierte sich die PM10-Zusatzbelastung im Jahresmittel um ca. 40 %. Im Wesentlichen trat das infolge der veränderten Verkehrsströme in der Berliner Straße (Rückgang des DTV um ein Drittel auf 12000 Kfz/d bzw. des DTV-Schwerverkehr um die Hälfte auf 600 Kfz/d) auf. Aufgrund des unverändert hohen Anteils der Vorbelastung von 45 % führte dies zu einer Reduktion der PM10-Gesamtbelastung in der Berliner Straße um ca. 15 %. Diese Konzentrationsabnahme reichte aus, um den ab dem Jahr 2005 einzuhaltenden PM10-Jahresmittelgrenzwert von 40 µg/m³ zu unterschreiten (35.4 µg/m³). Allerdings ist weiterhin mit einer Überschreitung des 24h-Grenzwertes zu rechnen. Da kein voll-

ständiges Messdatenkollektiv von 365 Tageswerten vorlag, konnte dies aber nicht geprüft werden.

Die NO₂-Gesamtbelastung in der Berliner Straße reduzierte sich nach Inbetriebnahme der Ortsumfahrung im Wesentlichen infolge der geringeren Verkehrsmengen insbesondere des Schwerverkehrs um ca. 35 %, in der Zusatzbelastung gar um ca. 50 % (**Abb. 5**). Damit verbunden ist mit Ortsumfahrung eine deutliche Unterschreitung des ab dem Jahr 2010 geltenden Grenzwertes von 40 µg/m³ im Jahresmittel eingetreten.

Für NO₂ trug die Vorbelastung (großräumig, regional und innerstädtisch) zu einem Anteil von 30 % zur Gesamtbelastung bei. Ca. 70 % lieferte somit der Verkehr auf der Berliner Straße selbst. Auch hier waren die Einträge aus Hausbrand und Gewerbequellen sehr gering.

Der Vergleich der Messdaten mit den durchgeföhrten Ausbreitungsberechnungen zeigte eine gute Übereinstimmung. Die Abweichungen in der Gesamtbelastung lagen für die Situationen vor und nach Inbetriebnahme der Ortsumfahrung bei ca. 10 %. Die mit den Ausbreitungsberechnungen prognostizierte Abnahme der PM10- und der NO₂-Belastung stimmt mit den gemessenen Reduzierungen gut überein.

Aus der Auswertung der Messdaten und den durchgeföhrten Ausbreitungsberechnungen kann begründet geschlussfolgert werden, dass die im September 1999 durchgeföhrte Fahrbahnsanierung in der Berliner Straße von mehrfach mit Asphalt geflicktem Kleinpflaster zu einer durchgängig guten Asphaltdecke unter den dort vorliegenden Bedingungen zu einer Reduktion der PM10-Zusatzbelastung von ca. 50 % bzw. der PM10-Gesamtbelastung von ca. 38 % geföhrt hatte (**Abb. 6**). Unter Berücksichtigung der längenmäßigen Anteile des sanierten Abschnittes sowie der Lage dieser Bereiche innerhalb der Straßenschlucht kann weiterhin geschlussfolgert werden, dass die PM10-Emission auf dem sanierten Stück um ca. 70 % zurückgegangen sein müsste.

- Emissionsfaktoren

Mittels der Auswertung der Messdaten und der Ausbreitungsberechnungen mit MISKAM konnten mit Hilfe zweier voneinander unabhängigen Methoden (NO_x als Tracer und Rückrechnung mit MISKAM) PM10-Emissionsfaktoren für die Berliner Straße bestimmt werden. Der flottenmittlere PM10-Gesamtemissionsfaktor wurde für die Situation vor Inbetriebnahme der Ortsumfahrung (6.7 % Schwerverkehrsanteil) mit 0.18 bis 0.23 g/(km · Fzg), für die Situation mit Ortsumfahrung (5 % Schwerverkehr) mit 0.15 bis 0.24 g/(km · Fzg) ermittelt. Durch den Vergleich der Variationen zwischen Montag - Freitag und Wochenende bzw. der Situation vor und nach Inbetriebnahme der Ortsumfahrung konnten die Emissionsfaktoren getrennt für PKW inkl. leichte Nutzfahrzeuge und Schwerverkehr abgeschätzt werden. Die Subtraktion der Auspuffemissionen entsprechend Handbuch für Emissionsfaktoren ermöglichte dann die Ermittlung der Emissionsfaktoren für Abriebe und Aufwirbelung. Diese lagen für PKW inkl. Leichter Nutzfahrzeuge zwischen 0.11 und 0.19 g/(km · Fzg) sowie für den Schwerverkehr zwischen 0.49 und 1.83 g/(km · Fzg).

Zusammenfassung

Es wurden die Auswirkungen der Ortsumfahrung einer Stadt mit ca. 10000 Einwohnern vorgestellt. Gemessen wurden die Verkehrsbelastung und die Immissionen ein Jahr vor bzw. nach Freigabe der Ortsumfahrung sowohl an einer vom Verkehr hochbelasteten Straße als auch im regionalen Hintergrund. Begleitend erfolgte die Immissionsberechnung verschiedener Quellgruppen mit einem Screening-Modell bzw. mit dem prognostischen Modell MISKAM. Abgeleitet wurden aus den Immissionsunterschieden bei unterschiedlichen Verkehrsbelastungen Emissionsfaktoren differenziert nach Pkw und Schwerverkehr.

Die Immissionsminderung infolge der Inbetriebnahme der Ortsumfahrung konnte an der entlasteten Straße messtechnisch nachgewiesen werden. Immissionsrechnungen kommen zu ähnlichen Ergebnissen. Der vorangegangene Belagswechsel in der Straße führte zu einer noch größeren Immissionsreduzierung für PM10 als durch die Verringerung der Verkehrsströme durch die Ortsumfahrung erreicht wurde.

Literatur

[1] Lohmeyer, A., Düring, I. (2001): Validierung von PM10-Immissionsberechnungen im Nahbereich von Straßen und Quantifizierung der Feinstaubbildung von Straßen. Auftraggeber: Senatsverwaltung für Stadtentwicklung Umweltschutz und Technologie, Berlin und Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Dresden, Juni 2001.

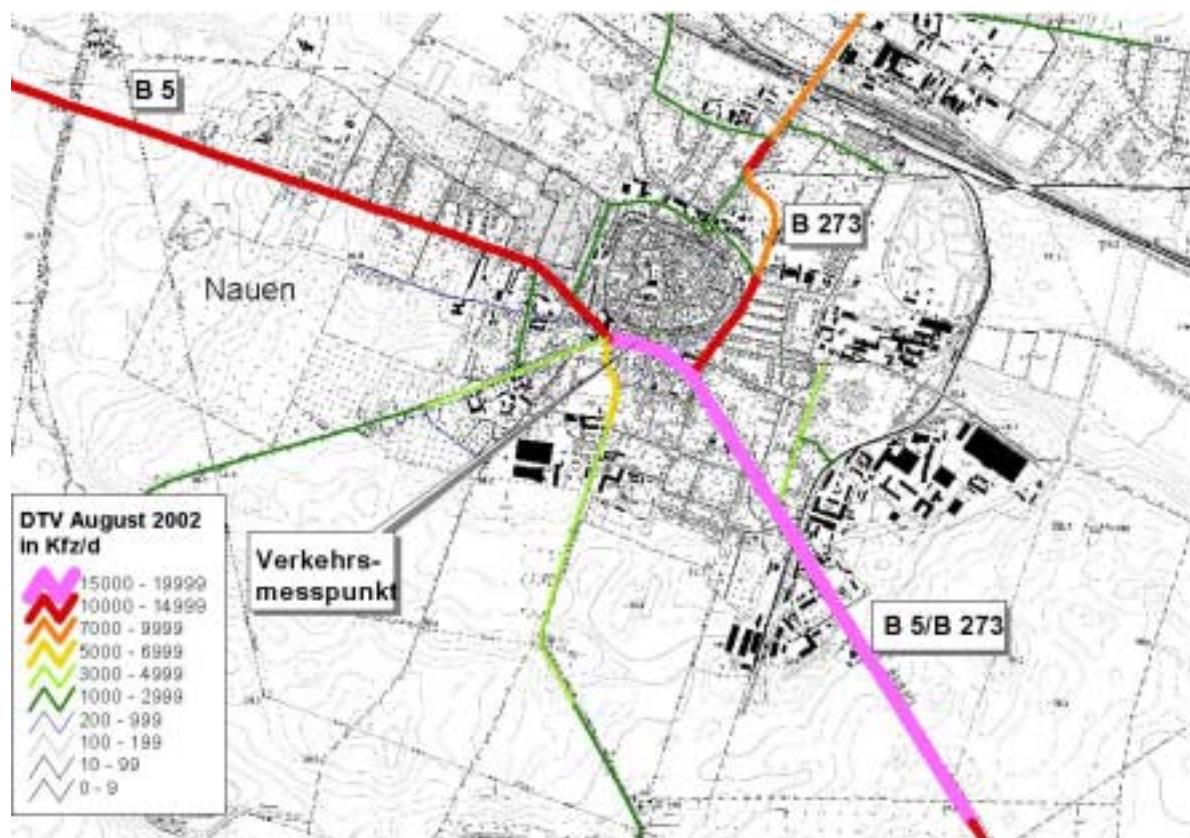


Abbildung 1: Verkehrsbelastung des Hauptstraßennetzes der Stadt Nauen



Abbildung 2: Situation am Verkehrsimmesspunkt vor der Fahrbahnsanierung

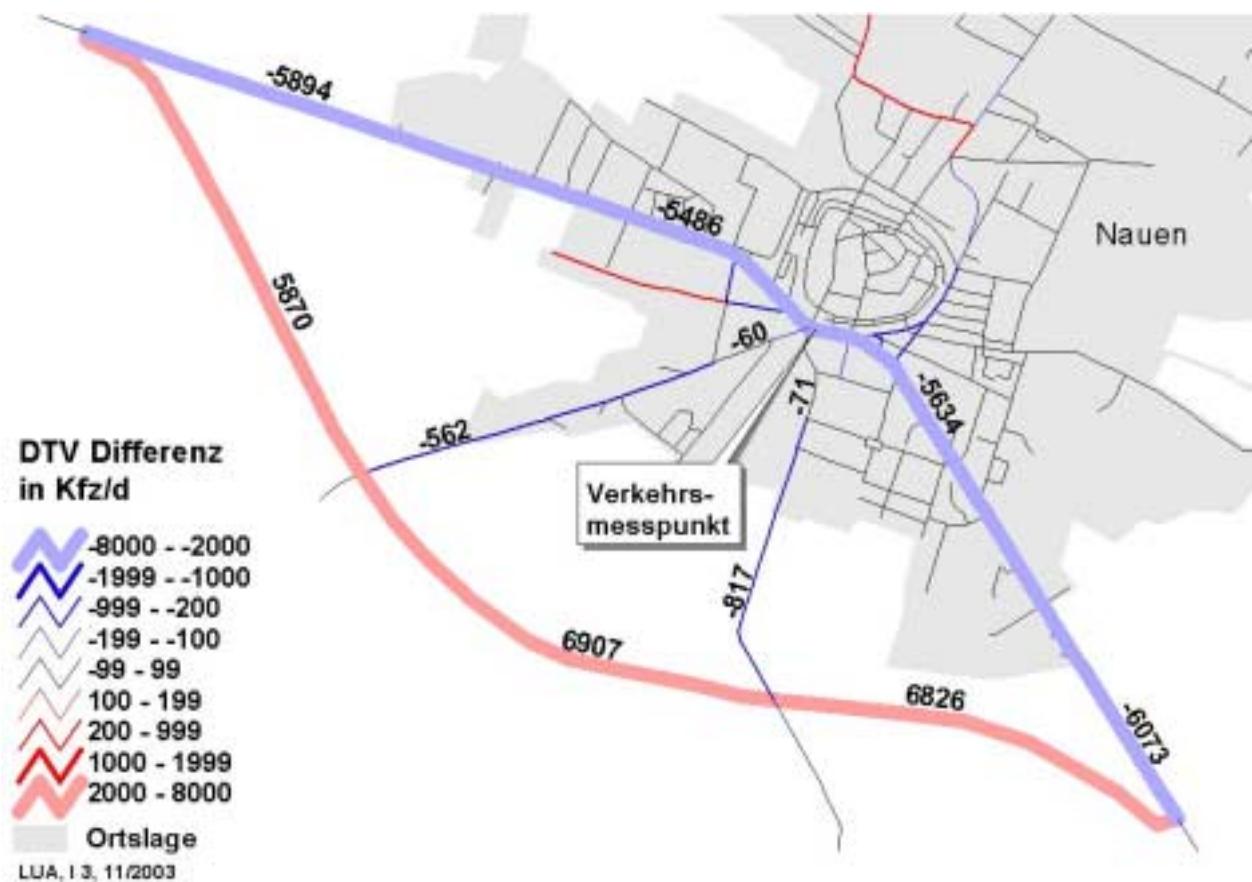


Abbildung 3: Entlastungswirkung durch die Ortsumfahrung

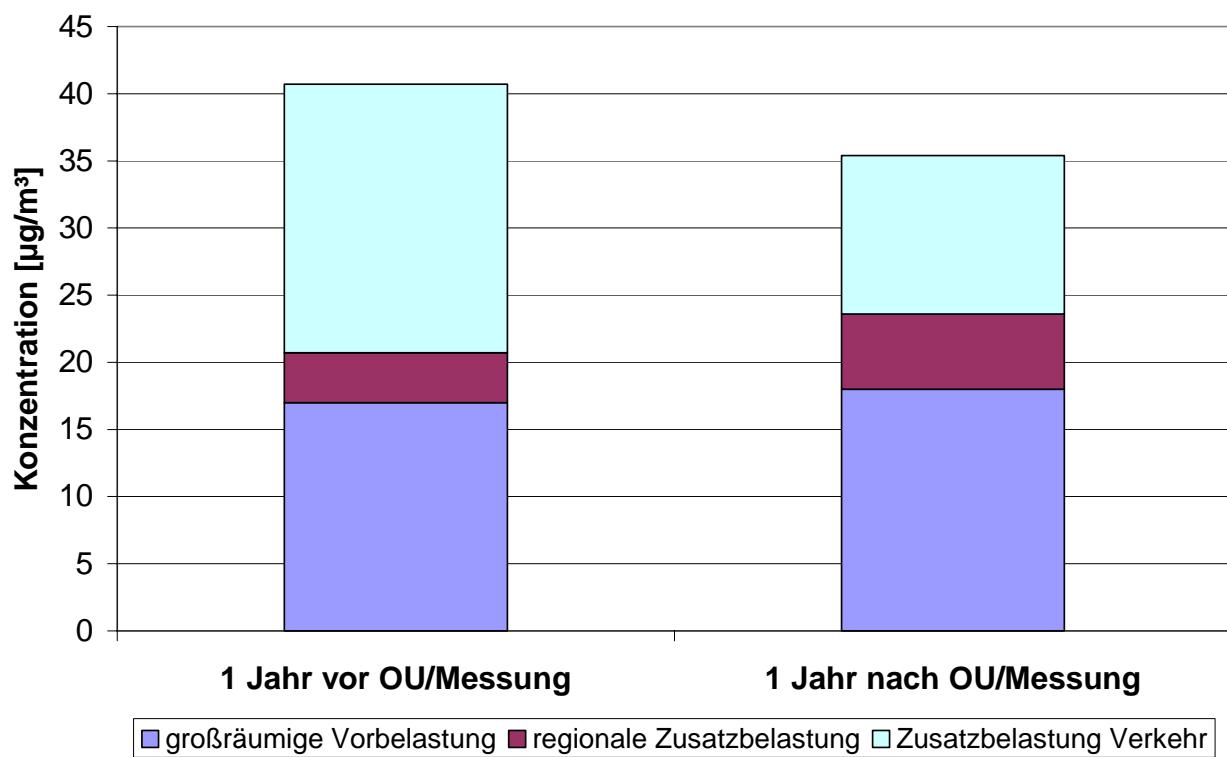


Abbildung 4: PM10-Konzentrationsanteile vor und nach Inbetriebnahme der Ortsumfahrung an der Messstelle Berliner Straße

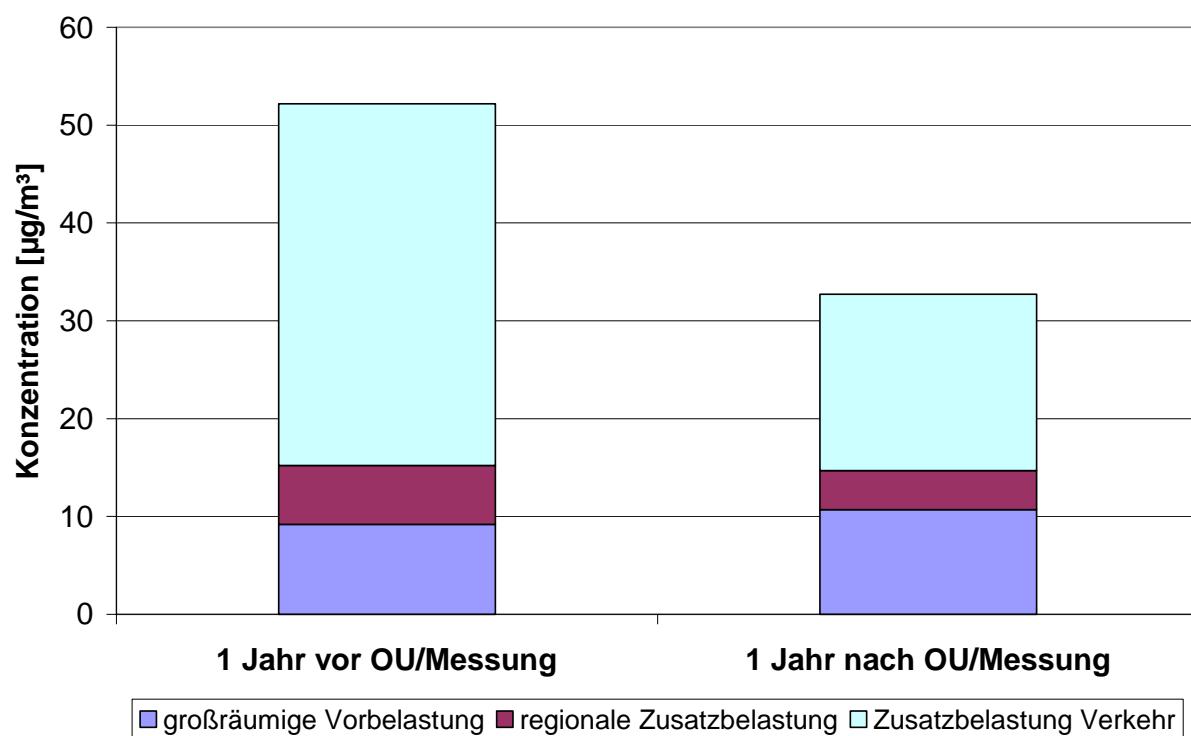


Abbildung 5: NO₂-Konzentrationsanteile vor und nach Inbetriebnahme der Ortsumfahrung an der Messstelle Berliner Straße

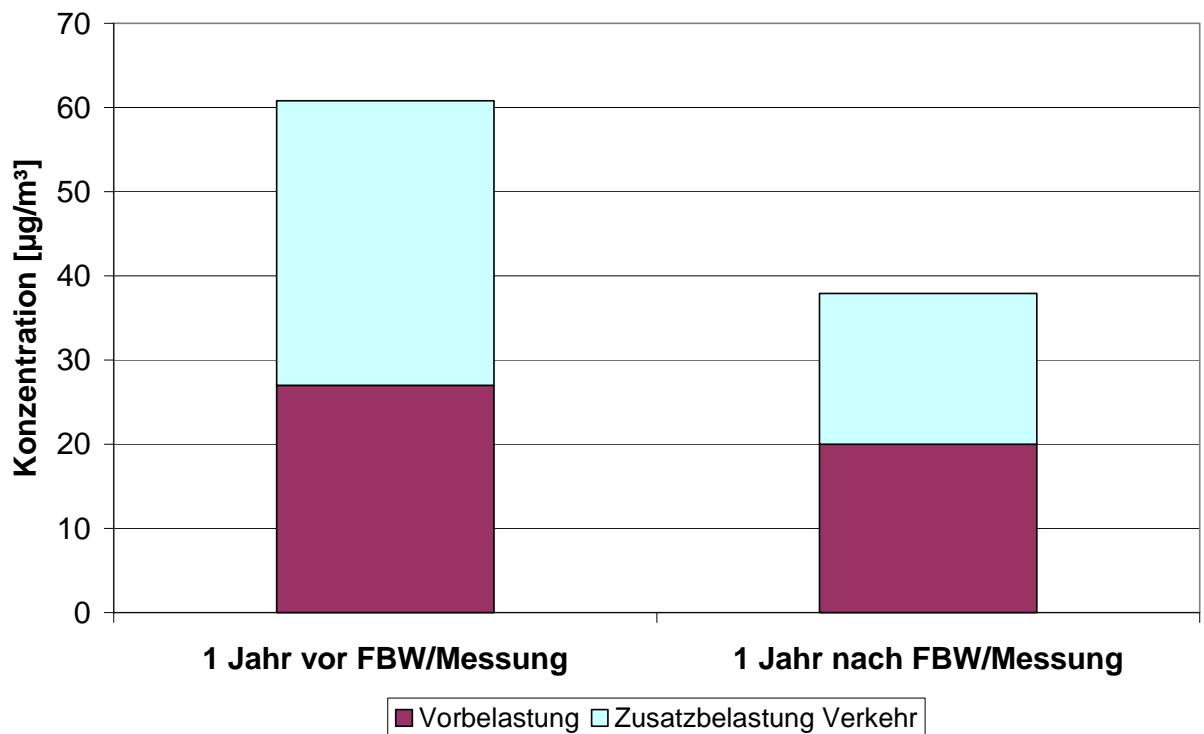


Abbildung 6: PM10-Konzentrationsanteile für die Jahre 1998 vor Fahrbahnbelagswechsel (FBW) und 2000 nach Belagswechsel

D.5 Luftreinhalteplanung im Ballungsraum Rhein-Main

L. Kacsóh, M. Büchen, M. Weiß (HMULV, HLUG)

Luftreinhalteplanung im Ballungsraum Rhein-Main

Dr. László Kacsóh (HMULV)¹, Dr. Matthias Büchen, Dipl.-Ing. Matthias Weiß (HLUG)²

1. Einleitung

Luftreinhaltepläne nach dem Bundes-Immissionsschutzgesetz (BImSchG a.F., vor der 7. Novelle 2001) gehörten zu den traditionellen Instrumenten einer emissionszentrierten Immissionsschutzpolitik. Sie wurde im Ballungsgebiet Rhein-Main in den beiden Belastungs- bzw. Untersuchungsgebieten „Rhein-Main“ und „Untermain“ – im Zusammenhang mit den ordnungsrechtlichen Vorgaben des BImSchG, v. a. der TA Luft, für Anlagen – Jahrzehntelang (1974–1999) mit spürbarem Erfolg praktiziert.

Seit dem von der EU eingeführten Paradigmenwechsel hin zu einer immissionszentrierten Luftreinhaltepolitik werden Immissionsgrenzwerte auch dann eingehalten werden müssen, wenn kein direkter Nachweis von dem Immissionsmessort bis hin zur Emissionsquelle – zum „Ursprung der Verschmutzung“ – geführt werden kann. Darin – und in den dahinter stehenden Fragen der politischen Durchsetzbarkeit und der Kostentragung – liegt die Grundproblematik der heutigen Luftreinhalteplanung. Ein arbeitsintensiver Abstimmungsprozess mit ungleich viel mehr und größeren Akteurengruppen als früher bleibt auch mittelfristig erhalten. Diese Verursachergruppen können zudem als Einzelverursacher nur begrenzt in Anspruch genommen werden.

Die Umsetzung der EG-Luftqualitätsrahmenrichtlinie und ihrer 1. und 2. Tochterrichtlinien hat darüber hinaus zu einer Neuorientierung der Immissionsüberwachung geführt. In Hessen wurden zwei Ballungsräume und drei sonstige Gebiete ausgewiesen; das Messnetz wird deren örtlichen Gegebenheiten schrittweise angepasst (s. Abb. 1).

Die folgenden Ausführungen konzentrieren sich auf die Immissionssituation im Ballungsraum Rhein-Main und die Fragen der Quellenzuordnung. Es wird untersucht, welche Auswertungen zur emittentenbezogenen Ursachenanalyse beitragen sowie welche Maßnahmen diese Auswertungen für das zu erstellende Handlungskonzept begründen können.

2. Immissionsbelastung durch PM₁₀ im Ballungsraum Rhein-Main und ihre Bewertung

Kurzbeschreibung des Ballungsraums Rhein-Main

Die Rhein-Main-Ebene ist in Hessen der Bereich der höchsten Dichte von Betrieben aus den Bereichen Industrie und Gewerbe sowie von Dienstleistungsunternehmen. Auf Grund der hohen Bevölkerungsdichte und der Bündelung von Verkehrswegen in der Region resultiert ebenfalls ein beachtlicher Emissionsbeitrag. Zu erhöhten Immissionsbelastungen kommt es in der Region aber nicht nur wegen der im Vergleich zu anderen Regionen des Landes hohen Emissionsdichte, sondern insbesondere auch, weil durch die die Rhein-Main-Ebene begrenzenden Höhenzüge die Windgeschwindigkeit und damit der Luftaustausch in dieser Beckenlage deutlich schlechter ist als z. B. an der Nordseeküste.

Der Ballungsraum Rhein-Main (Abb. 2) erstreckt sich von West nach Ost von Wiesbaden über Frankfurt bis Hanau und von Nord nach Süd vom Taunushang bis Darmstadt. Die ehemaligen Untersuchungsgebiete Untermain (Frankfurt bis Hanau) und Wiesbaden sowie der Flughafen Rhein-Main sind Bestandteil des Ballungsraums. Das Konzept bei dieser Ausweisung war und ist, dass nicht nur der Kernbereich der großen Städte mit ihren erhöhten

¹ Hessisches Ministerium für Umwelt, ländlichen Raum und Verbraucherschutz, Wiesbaden.

² Hessisches Landesamt für Umwelt und Geologie, Wiesbaden.

Immissionsbelastungen in den Hauptverkehrsstraßen, sondern auch das Umland als Quell- und Zielgebiet der Pendlerströme zumindest teilweise in die Ursachenanalyse und das Maßnahmenkonzept mit einbezogen werden. Allerdings gehören mittlerweile große Mittel- und Oberzentren wie Gießen und Kassel selbst zum Einzugsgebiet Frankfurts, so dass hier aus Gründen der Praktikabilität ein Kompromiss zur Abgrenzung gefunden werden musste.

Abbildung 1: Gebietseinteilung (aktuell) und Luftmessnetz (Planung, 2004) in Hessen



Im Rahmen der allgemeinen Immissionsüberwachung werden im Ballungsraum Rhein-Main derzeit sieben Stationen betrieben, die die städtische Hintergrundbelastung erfassen, sowie in den Städten Frankfurt, Darmstadt und Wiesbaden je eine verkehrsbezogene Immissionsmessstation. Alle zehn Immissionsmessstationen sind mit Analysatoren zur kontinuierlichen PM₁₀-Messung ausgestattet. Die drei verkehrsbezogenen Messstationen sind allerdings erst seit 2000/2001 mit PM₁₀-Staubkonzentrationsmessgeräten ausgerüstet, so dass für diese Stationen noch keine Aussagen über den langfristigen Trend der Immissionsbelastung möglich sind. Als Vergleichsstation wird die südlich des Ballungsraums in ländlich geprägter Umgebung gelegene Station Riedstadt in die Bewertung einbezogen.

Abbildung 2: Der Ballungsraum Rhein-Main



Räumliche Verteilung der PM_{10} -Immissionskenngrößen im Ballungsraum

Abbildung 3: Karte des Ballungsraums mit den Immissionskenngrößen von PM_{10} für das Messjahr 2002

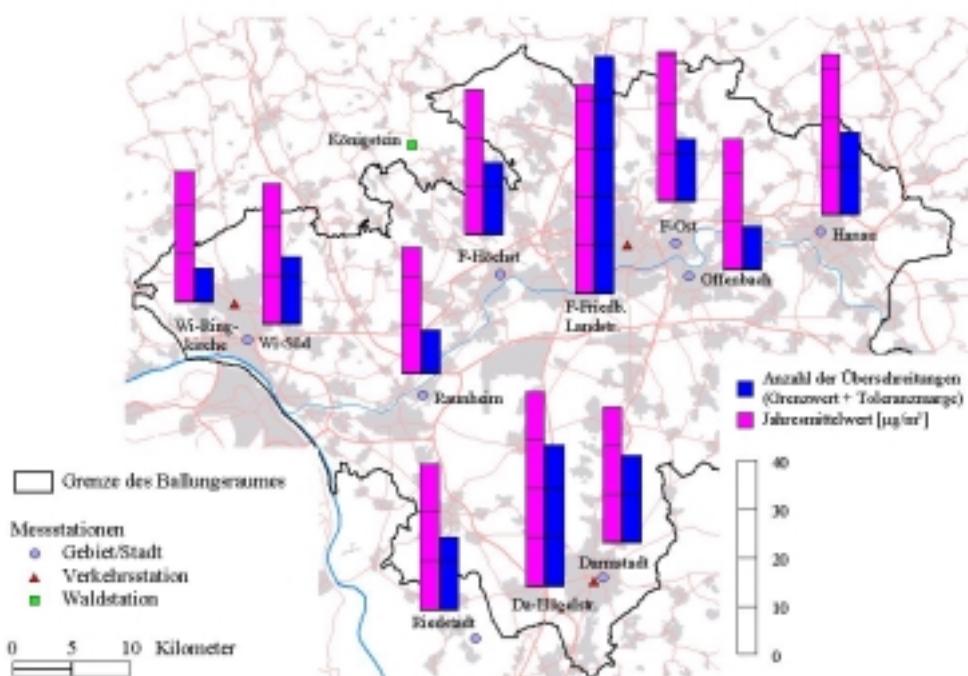


Abbildung 4: Immissionskenngrößen von PM₁₀ für das Messjahr 2002 im Ballungsraum Rhein-Main

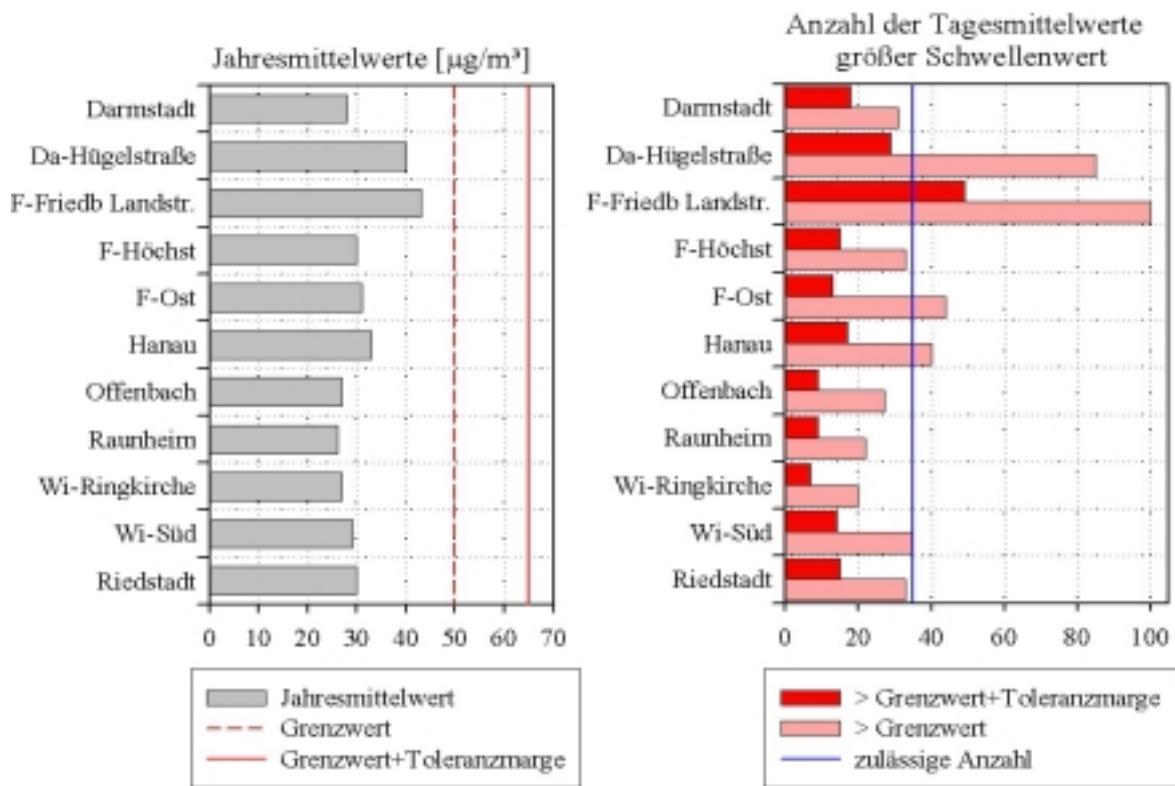


Abbildung 3 zeigt die räumliche Verteilung der PM₁₀-Immissionsbelastung an den sieben städtischen sowie drei Verkehrsmessstationen im Ballungsraum im Jahre 2002. Die an der ländlichen Hintergrundstation Riedstadt bestimmten Werte sind ebenfalls eingezeichnet. In Abb. 4 sind die errechneten Immissionskenngrößen mit den entsprechenden Grenzwerten verglichen.

Bewertung der Immissionsbelastung: Notwendigkeit des Luftreinhalteplanes

1. An der verkehrsbezogenen Station Frankfurt-Friedberger Landstraße war der Immissionswert plus Toleranzmarge für den Kurzzeitwert von PM₁₀ im Messjahr 2002 überschritten; an den übrigen Stationen waren die PM₁₀-Immissionswerte unter Berücksichtigung der Toleranzmarge eingehalten.
2. Im Jahr 2003 erhöhte sich an der Verkehrsstation Darmstadt-Hügelstraße die PM₁₀-Belastung, so dass außer dem Kurzzeitwert an der Station Frankfurt-Friedberger Landstraße auch an der Station Darmstadt-Hügelstraße sowohl der Langzeitwert (Jahresmittelwert) als auch der Jahreskurzzeitwert den Grenzwert mit Berücksichtigung der Toleranzmarge überschritt.
3. Die räumliche Verteilung der PM₁₀-Immissionskenngrößen an den Stationsstandorten im Ballungsraum (s. Abb. 3) führt zu der Arbeitshypothese, dass die Luft im gesamten Ballungsraum einen relativ einheitlichen mittleren Grundpegel um 30 μg PM₁₀/m³ im Jahresmittel aufweist, dem dann in den verkehrsreichen Straßenschluchten noch Konzentrationsspitzen aufgesetzt sind.

Bereits die eine gemessene Immissionswertüberschreitung beim Kurzzeitwert für PM₁₀ an der Station Frankfurt-Friedberger Landstraße für das Messjahr 2002 macht die Erstellung eines Luftreinhalteplanes entsprechend den Anforderungen der 22. BImSchV notwendig.

3. Emittentenbezogene Ursachenanalyse („Ursprung der Verschmutzung“)

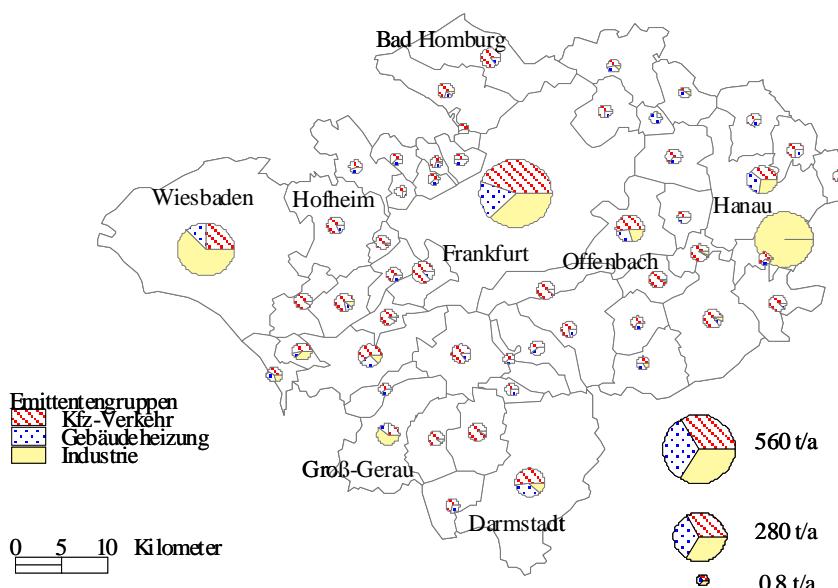
Auswertung des Emissionskatasters 2000

Aus der Emissionserhebung 2000 für die Emittentengruppen Industrie, Gebäudeheizung und Kfz-Verkehr ergibt sich für den Ballungsraum Rhein-Main eine Gesamtmenge von 2 470 t Staub pro Jahr. Über 50 % stammen aus der Gruppe Industrie, etwa 12 % aus der Gebäudeheizung und rund 34 % aus den auspuffbedingten Emissionen des Kfz-Verkehrs. Der Beitrag des in der Region bedeutsamen Flugverkehrs liegt unter 1 %.

Hier muß darauf hingewiesen werden, daß im Kataster bestimmte Phänomene wie Staubaufwirbelung, Abwitterung der Oberflächen von Bauwerken sowie atmosphärische Sekundäraerosolbildung nicht erfasst sind. Die Emissionsbilanz liefert daher nur eine erste orientierende Aussage für die Ursachenanalyse. Es ist jedoch klar ersichtlich, dass die Staubkonzentration im Ballungsraum nicht so eindeutig von den Kfz-Emissionen dominiert wird wie die NO₂-Konzentration.

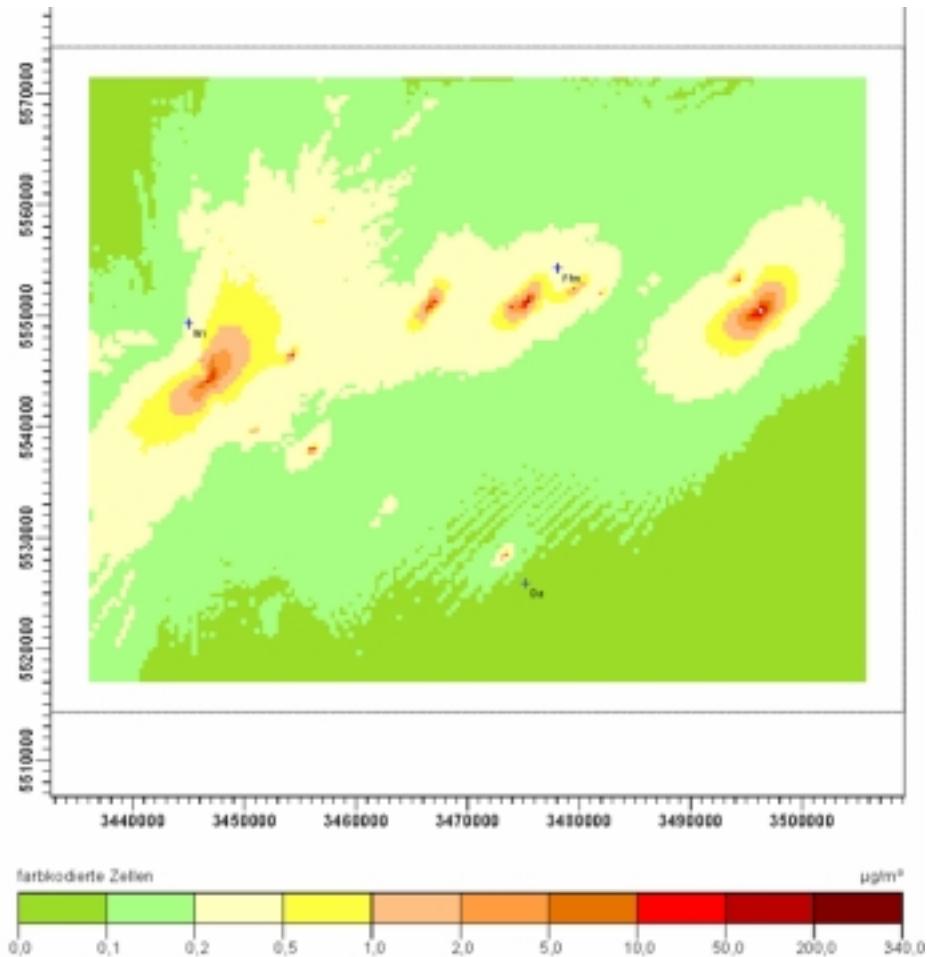
Abbildung 5 zeigt die nach den Hauptemittentengruppen aufgegliederten gemeindebezogenen Emissionsbilanzen. Mit einem hohen Industrianteil fallen die Gemeinden Großkrotzenburg (Standort eines Kraftwerk) und Wiesbaden (Standort eines Zementwerkes) auf. Ihr Immissionsbeitrag an den Verkehrsmessstationen ist jedoch – infolge der Emissionshöhen dieser Großemittenten – mit einigen Prozentpunkten recht gering (Abb. 6).

Abbildung 5: Emissionen von PM₁₀, aufgeschlüsselt nach Gemeinden für das Bezugsjahr 2000



**Abbildung 6: PM₁₀-Immissionsbeiträge der Quellengruppe Industrie für 2000
(gem. 11. BImSchV), berechnet mit AUSTAL 2000 aus den 90 größten Emittenten**

(+ = Standorte der Verkehrsmessstationen Darmstadt, Frankfurt und Wiesbaden)



Analyse der Jahresgänge der Tagesmittelwerte von PM₁₀: Gleichzeitigkeit von Ereignissen an verschiedenen Messstationen („Episoden“)

Die Darstellung des Jahresgangs der PM₁₀-Konzentration für vier Stationen aus dem Ballungsraum Rhein-Main und eine Vergleichsstation aus einem ländlich geprägten Bereich (Rheinebene) liefert weitere wertvolle Hinweise (Abb. 7). Auffällig ist die Gleichzeitigkeit von Episoden in den unterschiedlich geprägten Räumen: Die Episoden mit erhöhter Staubbelastung – abgesehen von statistisch gestreuten Einzelereignissen an einzelnen Stationen – treten zeitgleich an allen Stationen auf. Als Ursache wird zunächst angenommen, dass bei windschwachen Wetterlagen ohne Niederschlagsereignisse – dies sind im Allgemeinen Hochdruckwetterlagen – die Selbstreinigungskraft der Atmosphäre für Staub deutlich schlechter ist als bei Regenwetter, und daher kommt es während dieser Hochdruckwetterlagen zu erhöhten Staubkonzentrationen. Die Höhe der sich einstellenden Staubkonzentration wird wesentlich durch die Emissionsverhältnisse im Umfeld der Station bestimmt, aber natürlich auch durch die Vorbelastung der in den Ballungsraum einströmenden Luft.

Wochengänge der PM₁₀-Belastung und des Verkehrsaufkommens

Die PM₁₀-Konzentrationsverläufe (tageszeitliche Auflösung) zeigen systematische Belastungsunterschiede im Tagesverlauf, einen Sommer/Winter-Höhenunterschied sowie charakteristische Standortunterschiede (Abb. 8).

Die Wochengänge für PM₁₀ zeigen, dass es durchaus Unterschiede zwischen Werktagen und Sonntagen in der Immissionsbelastung bei PM₁₀ gibt. Diese Unterschiede sind allerdings weniger deutlich als bei NO₂ und im Sommer auch ausgeprägter als im Winter.

Die an Wochentagen im Vergleich zu Samstagen und Sonntagen unterschiedlichen Ströme des Kfz-Verkehrs (z. B. am 1. Ring in Wiesbaden, nahe der Verkehrsmessstation Wiesbaden-Ringkirche, s. Abb. 9) und die daraus resultierenden unterschiedlichen Emissionsraten können als Großversuch verstanden werden, um die aus unterschiedlichen Emissionsverhältnissen resultierenden Immissionskonzentrationen zu untersuchen. Vorteil ist, dass es – statistisch gesehen – keine Unterschiede zwischen den mittleren Wetterbedingungen an Werk- und Sonntagen gibt. Unterschiede in der über eine längere Beobachtungszeit gemittelten Immissionsbelastung zwischen Werktagen und Sonntagen sind daher durch unterschiedliche Emissionsverhältnisse zu erklären. Industrielle Großemittenten und die Gebäudeheizungsemisionen weisen im Allgemeinen keine relevanten Wochengänge auf, so dass – insbesondere an den Stationen in verkehrsreichen Straßenschluchten – der Kfz-Verkehr die Wochengänge der Immissionskonzentration prägt.

Dass bei Mittelwerten auf Grund der Belastungsunterschiede zwischen Werktagen und Sonntagen ein Einfluss der Kfz-Emissionen nachgewiesen werden kann, bedeutet allerdings noch nicht, dass dieser Einfluss für die Ausprägung der Kurzzeitkenngröße von Bedeutung ist. Daher wurde die Zahl der Tage mit PM₁₀-Tagesmittelwerten größer als 50 µg/m³ nach Wochentagen aufgeschlüsselt (siehe Tabelle). An den beiden Verkehrsstationen Frankfurt-Friedberger Landstraße und Darmstadt-Hügelstraße gibt es einen deutlichen Belastungsunterschied zwischen Werktagen und Sonntag. Am Sonntag ist die Wahrscheinlichkeit, dass der Schwellenwert von 50 µg PM₁₀/m³ überschritten wird, um ca. 50 % kleiner als an einem Werktag.

Abbildung 7: Tagesmittelwerte von PM₁₀ für das Messjahr 2002

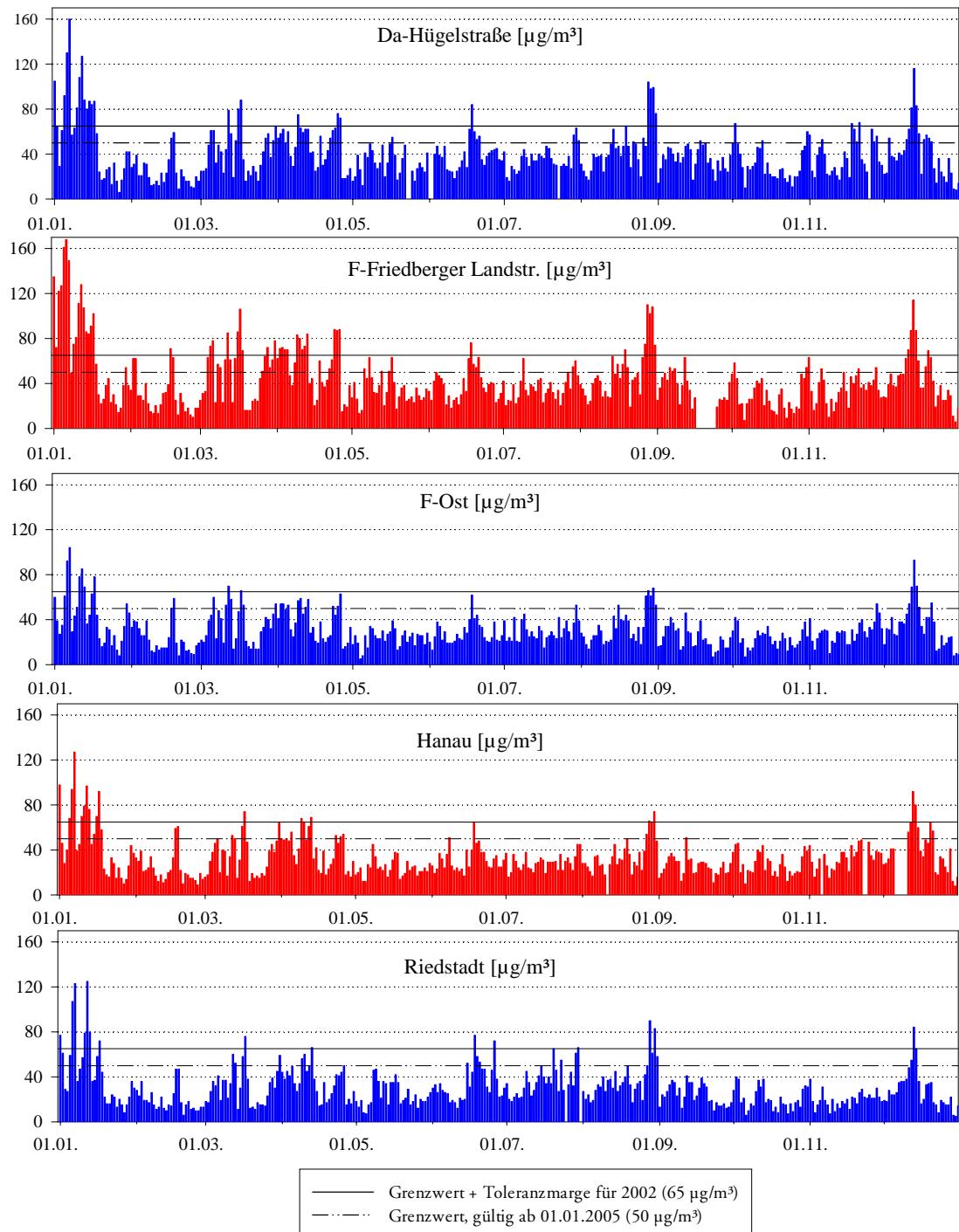


Abbildung 8: Mittlerer Wochengang von PM₁₀ für den Auswertezeitraum von 2000 bis 2002 (bei F-Friedberger Landstr.: 2001 – 2002)

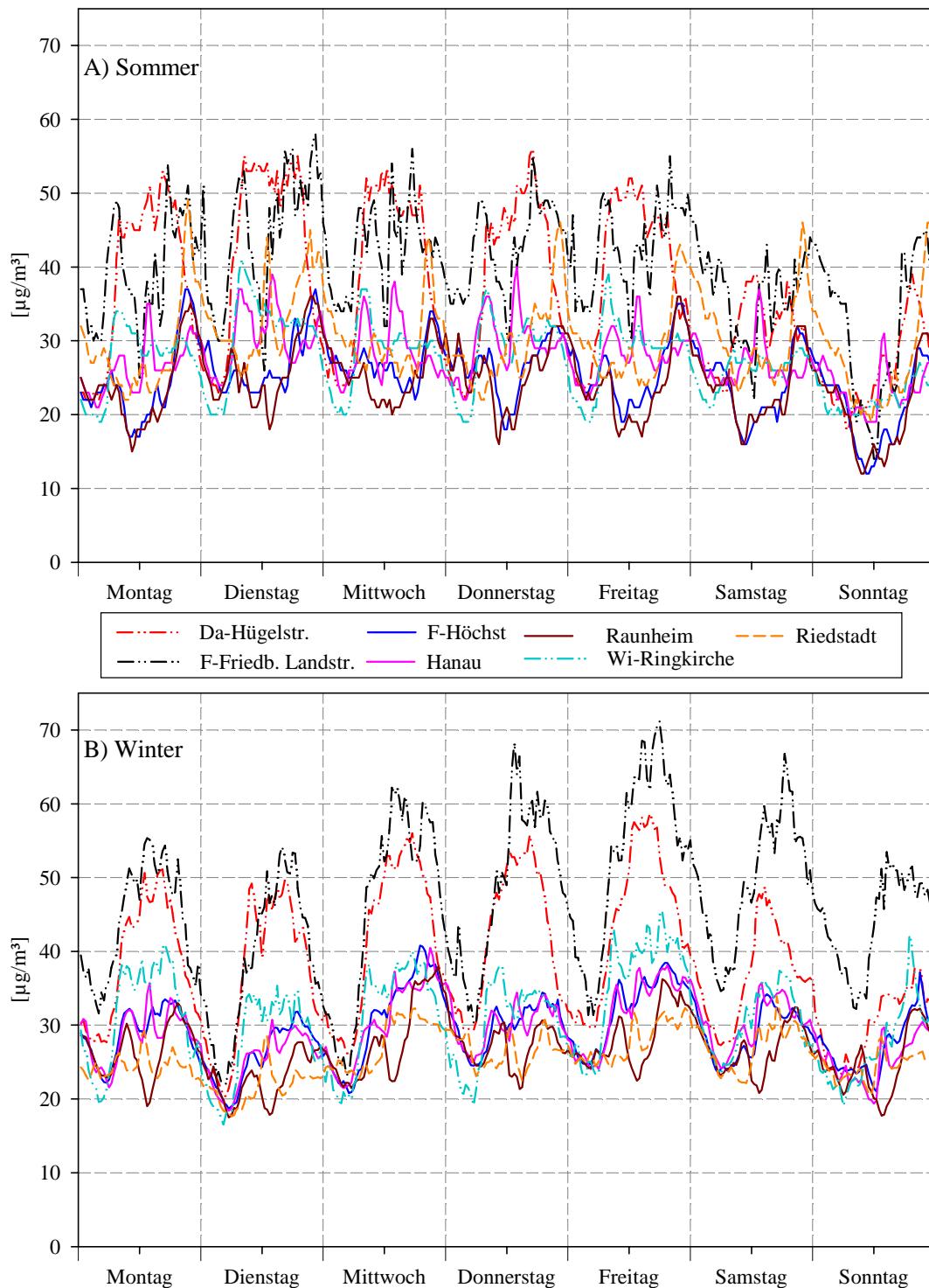


Abbildung 9: Beispiele für den Wochengang des Verkehrsaufkommens in Wiesbaden, 1. Ring (korrespondiert mit der Messstation WI.-Ringkirche)

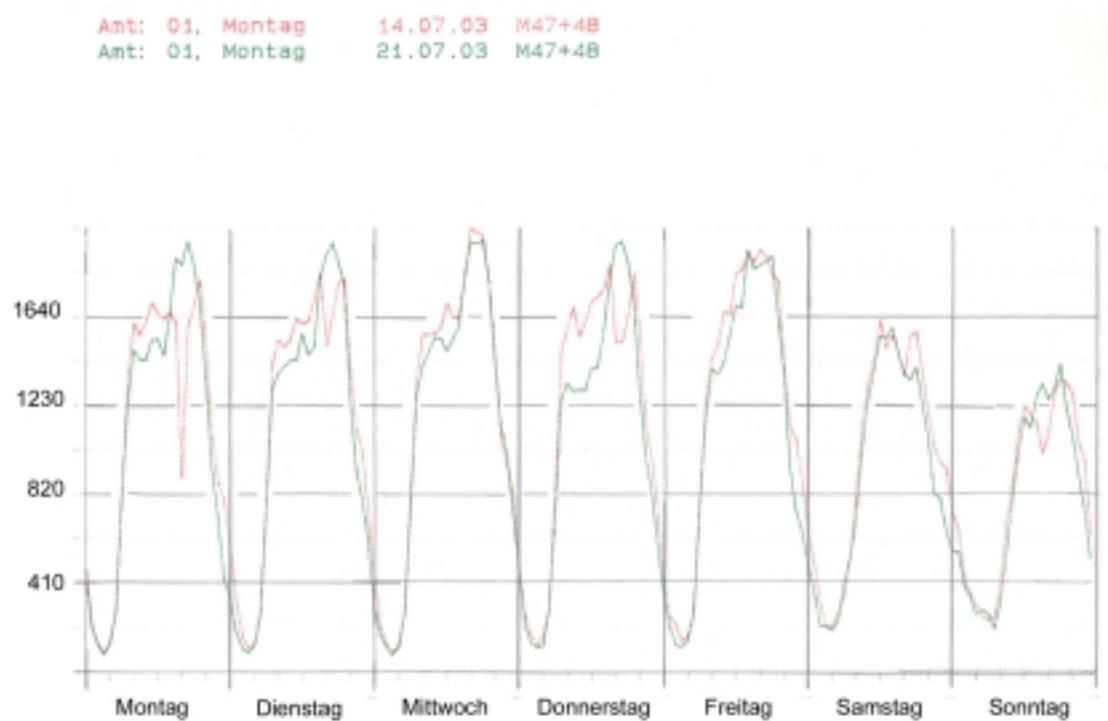


Tabelle: Anzahl der Tage mit einem Tagesmittelwert größer als 50 µg PM₁₀/m³ für den Auswertzeitraum von 2001 bis 2002 im Ballungsraum Rhein-Main

Station:	Montag	Dienstag	Mittwoch	Donnerstag	Freitag	Samstag	Sonntag
Verkehrsstation:							
Da-Hügelstraße	25	29	31	23	24	11	9
F-Friedb. Landstr.	24	27	30	25	30	20	14
Wi-Ringkirche	3	2	5	5	8	6	5
Stadtstation:							
Darmstadt	4	6	8	5	8	9	6
Ffm.-Höchst	2	5	8	6	9	7	6
Ffm.-Ost	8	18	18	12	17	8	5
Hanau	3	10	6	9	12	10	7
Offenbach	6	5	5	6	9	7	5
Raunheim	1	5	4	6	5	5	4
Wiesbaden-Süd	6	8	8	6	10	6	6
Vergleichsstation:							
Riedstadt	4	9	10	7	7	12	6

4. Diskussion der Auswertungsergebnisse

Die Immissionskonzentration von PM₁₀ hat auch an emittentenfernen Standorten einen Grundpegel von im Mittel um die 15 µg/m³, im Ballungsraum Rhein-Main um 30 µg/m³. Regionale Maßnahmen zur Minderung der PM₁₀-Konzentration können nur die auf diesen Grundpegel aufgesetzte regionale Zusatzbelastung reduzieren.

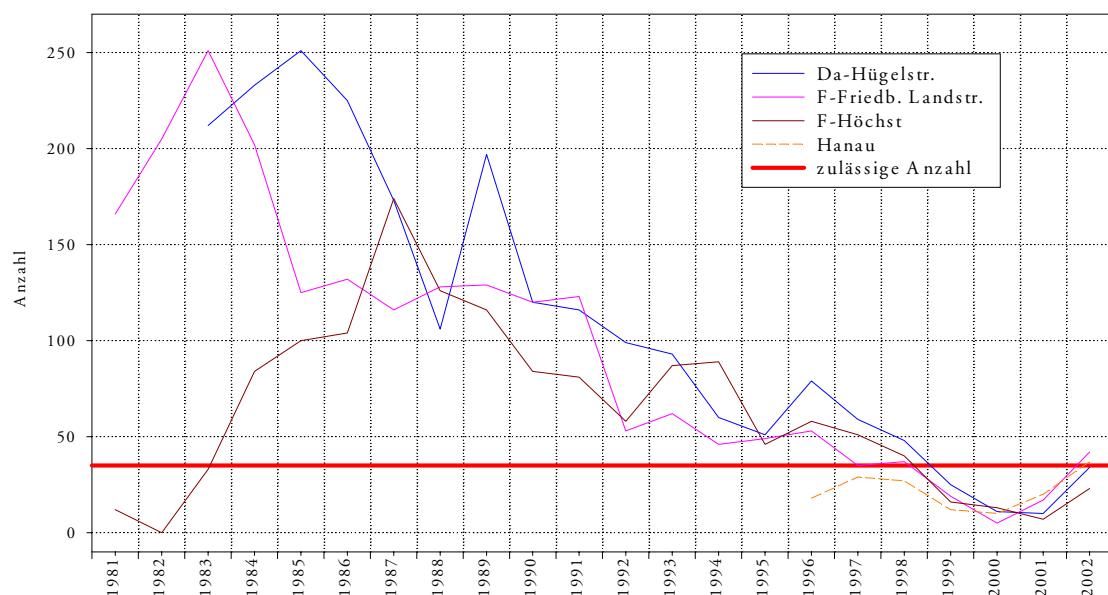
Die Auswertungen der Wochengänge der PM₁₀-Konzentration und insbesondere die nach Wochentagen aufgeschlüsselte Überschreitungshäufigkeit des Tagesmittels von 50 µg/m³ (s. Tab. 3) bestätigen die aus verschiedenen Untersuchungen resultierende Erkenntnis, dass der Anteil der durch den Kfz-Verkehr verursachten Emissionen mit nur auspuffbedingten Emissionen deutlich zu niedrig abgeschätzt wird. Damit haben die Staubemissionen durch den Kfz-Verkehr eine deutliche größere Relevanz, als es bisher auf Basis der konventionell erhobenen Emissionskataster und darauf aufbauender Ausbreitungsrechnungen zu vermuten war.

Dass sich die allgemeinen Maßnahmen zur Emissionsminderung, die in den letzten zehn Jahren umgesetzt wurden, durchaus positiv auf die PM₁₀-Kurzzeitbelastung ausgewirkt haben, zeigt die Trendkurve für die PM₁₀-Kurzzeitbelastung (Abb. 10) an den allgemeinen Stadtstationen; hierbei wurden Gesamtstaubkonzentrationen mit konstantem Faktor in PM₁₀-Werte umgerechnet. Für die Verkehrsstationen reichen die vorliegenden PM₁₀-Messreihen noch nicht aus, um Trendaussagen vorlegen zu können.

Maßnahmenseitig wird ein Politik-Mix aus Überzeugen, Anreizen, planerischen Maßnahmen und Ordnungsrecht als integrierte Stadt/Gebiets- und Verkehrsplanung angestrebt, wobei ein hierarchisches Vorgehen als angezeigt erscheint [Freiwilligkeit, Schulung, Anreize – Vermeiden – Substituieren (Verlagern) – Beschränken – Lenken, Interessenkonflikte steuern].

Es wird im Übrigen davon ausgegangen, dass alle planerischen – d. h., gemäß dem Luftreinhalteplan geplanten – Maßnahmen zur Minderung der durch den Kfz-Verkehr bedingten NO_x-Emissionen auch eine Minderung der PM₁₀-Konzentration bewirken werden.

Abbildung 10: Entwicklung der Überschreitungshäufigkeit des Tagesmittelwertes von 50 µg/m³ bei PM₁₀



5. Zusammenfassung

1. Mit dem Paradigmenwechsel der Luftreinhaltepolitik erfährt die Ursachenanalyse als Grundlage für jegliche Maßnahmen nach einem Luftreinhalteplan zwangsläufig eine neue Ausformung. Die Quellenzuordnung zu den Einzelemittenten einer Verursachergruppe ist nur bei Großemittenten unproblematisch; in der Quellengruppe Kfz-Verkehr wird sie sehr aufwändig.
2. Die Emissionsbilanz für Staub liefert nur eine erste orientierende Aussage für die Ursachenanalyse. Klar ist bereits, dass die Staubkonzentration im Ballungsraum Rhein-Main nicht ganz so eindeutig von den Kfz-Emissionen dominiert wird wie die NO₂-Konzentration. Vielmehr haben die Industrieemissionen einen Anteil von etwa 50 % an der erfassten Staubemission, während die Emissionen des Kfz-Verkehrs – nur Emissionen aus dem Auspuff berücksichtigt – bei etwa 34 % liegen.
3. Wenn sich bestätigt, dass die aus dem Auspuff der Kraftfahrzeuge freigesetzten Emissionen nur etwa ein Drittel der durch den Kfz-Verkehr verursachten Gesamt-Staubemissionen (Staubaufwirbelung, Abrieb von Straßenbelag und Reifen, sekundäre Staubbildung in der Atmosphäre aus gasförmig emittierten Komponenten usw.) ausmachen, verschiebt sich auch in der Emissionsbilanz der Schwerpunkt zu den Kfz-Emissionen als dominierende Emittentengruppe. Diese Frage lässt sich mit den bisher für den Ballungsraum Rhein-Main vorliegenden Emissionsuntersuchungen nicht abschließend beantworten.
4. Der PM₁₀-Gehalt der Luft im gesamten Ballungsraum weist einen relativ einheitlichen mittleren Grundpegel um 30 µg/m³ im Jahresmittel auf, dem in den verkehrsreichen Gebieten, v. a. in Straßenschluchten noch zyklisch schwankende Konzentrationsverläufe sowie Spitzenwerte aufgesetzt sind. Hinzu kommen Episoden, die zum Teil als regionales Ereignis anzusehen sind. Der vergleichsweise hohe städtische Hintergrundwert an PM₁₀-Konzentration lässt sich mit kurzfristigen Maßnahmen allein nicht merklich beeinflussen.
5. Für die Luftreinhalteplanung in Hessen wurde eine Interministerielle Arbeitsgruppe aus Vertretern der für Umwelt und Verkehr zuständigen Ministerien (HMULV bzw. HMWVL) sowie ihren nachgeordneten Behörden berufen. In Frage kommende Maßnahmen werden mit den betroffenen Kommunen sowie den Verbänden der Verursachergruppen diskutiert. Diese Maßnahmenvorschläge werden zunächst auf ihre Wirksamkeit hin überprüft und anschließend in den Abstimmungsprozess gegeben.

Insgesamt wird ein Politik-Mix aus Überzeugen, Anreizen, planerischen Maßnahmen und Ordnungsrecht als integrierte Stadt/Gebiets- und Verkehrsplanung angestrebt.

D.6 Luftreinhalteplanung in einer Großstadt wie Berlin: Untersuchung der Wirkung und Umsetzbarkeit von konkreten Maßnahmen

M. Lutz (SenStadt Berlin)

"Lufltreinhalteplanung in einer Großstadt wie Berlin: Untersuchung der Wirkungen und Umsetzbarkeit von konkreten Maßnahmen

Martin Lutz, Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Berlin
martin.lutz@senstadt.verwalt-berlin.de

EINLEITUNG

Wie viele deutsche und europäische Großstädte steht auch Berlin bezüglich der Einhaltung der neuen EU-Grenzwerte vor einer Herausforderung.

In 2001 wurde erstmals die Summe aus Grenzwert und Toleranzmarge für NO₂ (Jahremittel) überschritten, in 2002 auch für PM10 (Tagesmittel). Aufgrund von Rechnungen basierend auf der KFZ-Flotte des Jahres 2002 wird der PM10-Grenzwert und NO₂-Grenzwert in etwa 200 km Hauptverkehrstraßen nicht eingehalten. Daraus erwächst die Verpflichtung einen Lufltreinhalteplan für PM10 und NO₂ aufzustellen.

In 2003 ist die PM- Belastung nochmals angestiegen. Überschreitungen werden nicht mehr ausschließlich an verkehrsnahen Messstellen beobachtet, wo bis zu 100 Überschreitungen des Tagesmittelwertes von 50 µg/m³ auftraten. Auch in Wohngebieten der Innenstadt, und sogar an einer Station am Stadtrand, sind mehr als die erlaubten 35 Überschreitungen festgestellt worden. Diese Zunahme ist ausschließlich großräumiger Natur, weil der Anstieg in gleicher Weise am Stadtrand, in ruhigen Wohngebietslagen und an verkehrsnahen Standorten festzustellen ist.

Ohne deutliche Emissionsminderungen in Berlin und außerhalb wird es sehr schwierig werden, die Grenzwerte bis 2005 bzw. 2010 einhalten zu können.

HERKUNFT UND VERURSACHER DER PM10 BELASTUNG

Auf der Grundlage von Messungen der Staubinhaltsstoffe an Messstellen, die für den regionalen und städtischen PM-Hintergrund, sowie für die lokale PM Belastung repräsentativ sind, wurde versucht, die Beiträge der wichtigsten Verursachergruppen an den o.g. räumlichen Anteilen der PM10-Gesamtbelastung an einer Verkehrsmessstation quantitativ abzuschätzen.

Die Abbildung zeigt in graphischer Form die Anteile an der PM10- Belastung an einer verkehrsreichen Hauptverkehrsstraße. Eine detaillierte Darstellung der Ergebnisse erfolgt in [1]

Zusammenfassend lässt sich festhalten,

- dass knapp 50% der Feinstaubbelastung an verkehrsnahen Standorten in der Berliner Innenstadt aus Quellen außerhalb des Ballungsraumes stammt
- dass der Verkehr der dominierende Verursacher für Feinstaub ist, dessen Anteil - bei Beschränkung auf die im Rahmen einer lokalen Maßnahmenstrategie beeinflussbaren Quellen - jeweils fast 80% ausmacht.

Eine weitere Erkenntnis dieser und weiterer Studien [2, 3] ist die Tatsache, dass unter den in Berlin herrschenden Bedingung etwa 60% der lokal durch den Verkehr erzeugten PM10-Belastung nicht aus dem Auspuff stammt, sondern durch Aufwirbelung von Straßenstaub, Abrieb von Reifen, Fahrbahnoberfläche und Bremsen erzeugt wird. Dadurch wird die

Möglichkeit, die PM10-Werte mit technischen Maßnahmen am Fahrzeug zu mindern, eingeschränkt und Strategien zur Senkung des Verkehrsaufkommens gewinnen an Bedeutung. Anhand der Emissionsfaktoren für LKW und PKW lässt sich außerdem der Großteil der durch den lokalen Verkehr in einer Hauptverkehrsstraße verursachten PM-Belastung auf LKW zurückführen (s. Abb).

WIRKUNG BEREITS EINGELEITETER MAßNAHMEN ZUR EINHALTUNG DER GRENZWERTE

Im Hinblick auf die anfangs hervorgehobene Bedeutung des überregionalen Ferntransports von PM wird es für die Maßnahmenplanung für PM10 erforderlich sein, die zukünftige Entwicklung dieses, durch die lokalen Maßnahmenplanung nicht beeinflussbaren Beitrages zu quantifizieren.

Im Rahmen der Erstellung des Berliner Luftreinhalteplanes wird das in einem F&E-Vorhaben des UBA verwendete Modellsystem [4] für die Simulation eines „*Current legislation*“-Szenarios (CLE) für den Großraum Berlin - Brandenburg angewandt. Dieses Szenario berücksichtigt auch europaweite Fortschritte u.a. durch die (teilweise) Umsetzung der NEC-Richtlinie [5] und der EU-Normen für Kfz-Emissionen und Kraftstoffqualität. Erste vorläufige Ergebnisse decken sich mit eigenen, groben Abschätzungen, die darauf hin deuten zeigen, dass die zu erwartende Senkung des großräumigen PM10-Pegels bis 2005 relativ zu 1999 nur etwa 8% betragen wird. Zusammen mit der positiven Wirkung umgesetzter lokaler Maßnahmen, wie z.B. die emissionsseitige Verbesserung der Fahrzeugflotte und der Kraftstoffqualität, die nahezu vollständige Ausrüstung der ÖPNV-Busflotte mit Rußfiltern und der weitgehende Ersatz von kohlegefeuerten Einzelfeuerungen durch Gasheizungen und Fernwärme, könnte dies bis 2005 zu einer Senkung der PM10-Konzentration um 12% führen. Um den Grenzwert einzuhalten, ist aber eine Minderung von 30% notwendig.

Im Rahmen eines derzeit begonnenen Vorhabens soll ein lokales, auf den Verkehrs fokussiertes CLE-Szenario entworfen und simuliert werden.

ABSCHÄTZUNG ZUSÄTZLICH NOTWENDIGER MAßNAHMEN UND IHRER WIRKUNG IM HINBLICK AUF DIE EINHALTUNG DER GRENZWERTE

Dieses Element des Kriterienkatalogs ist das Kernstück eines Luftreinhalteplanes. In einem soeben begonnenen Vorhaben werden die in Berlin noch vorhandenen Potentiale für weitere Emissionsminderungen von Staub und NOx im Industrie-, Kleingewerbe- und Heizungssektor untersucht. Auch die Staubemissionen im Zusammenhang mit Bautätigkeit verdienen weitere Beachtung. Aus den Ursachenanalysen in vorigen ist jedoch klar geworden, dass davon eher geringe Beiträge zur Einhaltung der Grenzwerte erwartet werden können. Sehr viel ausschlaggebender wird sein,

- eine weitere Absenkung des überregionalen PM10-Niveaus zu erreichen, was natürlich Anstrengungen auf nationaler und europäischer Ebene erfordert. Die im den vorigen Abschnitten beschriebenen Erkenntnisse müssen genutzt werden, um bei der Bundesregierung und in Brüssel den notwendigen Handlungsdruck zu belegen und zu erzeugen. Worauf sich dieser Handlungsdruck konzentrieren sollte, wird im letzten Abschnitt kurz beleuchtet.
- in Großraum Berlin die Planung zusätzlicher Maßnahmen auf den Straßenverkehr konzentrieren, da sich dieser Sektor als weitaus größter Verursacher erwiesen hat.

Der bisherige Stand der Untersuchung möglicher Maßnahmen im Verkehrssektor in Berlin bezieht sich auf die folgenden drei Handlungsfelder

(1) Emissionsminderung durch emissionsmindernde Fahrzeugtechnik und Kraftstoffe

Natürlich werden die Normen für die Emission von Kraftfahrzeugen und der Kraftstoffqualität europaweit festgelegt. Die lokal mit der Luftreinhalteplanung befasste Politik- und Verwaltungsebene hat darauf keinen direkten Einfluss.

Sie muss sich also darauf konzentrieren, die Veränderung der Fahrzeugflotte hin zu umweltfreundlicheren Fahrzeugen, -techniken und Kraftstoffen mit den ihr zur Verfügung stehenden Mitteln zu beschleunigen. Bezogen auf die Probleme in Berlin mit zu hoher Partikel und NO₂-Belastung liegt es nahe, sich auf die Dieselfahrzeugflotte zu konzentrieren. Eine Auswertung der Emissionscharakteristik der in Berlin zugelassenen Nutzfahrzeuge hat ergeben, dass etwa die Hälfte aller kleinen LKW unter 7.5 to, insbesondere leichte Nutzfahrzeuge unter 3.5 to Altfahrzeuge sind, die keine der vier europäischen Abgasnormen einhalten.

Hier ist eine nicht erschöpfende Liste von Optionen, die im Rahmen der Entwicklung eines Luftreinhalteplanes relevant sind und je nach Eignung auf ihre Wirkung und Umsetzbarkeit untersucht werden:

(i) Finanzielle Anreize für Nutzer umweltfreundlicher Fahrzeuge

Während dieses Instrument im PKW-Sektor schon seit langem zum Einsatz kommt, ist die steuerliche Bevorzugung abgasreduzierter LKW noch unterentwickelt. Die im Zusammenhang mit der Einführung der LKW-Maut auf Autobahnen eingeführte emissionsabhängige Kfz-Steuer ist zwar zu begrüßen, sie betrifft aber kaum die in luft- und lärmseitigen Problemgebieten, also vorwiegend in Städten operierenden leichten Nutzfahrzeuge. Diese Fahrzeugklasse wird bislang nicht emissionsabhängig besteuert.

Eine abgaben- und steuerseitige Förderung bestimmter Fahrzeuggruppen übersteigt die rechtlichen und administrativen Möglichkeiten lokaler Behörden. Auch weil Überschreitungen der Luftqualitätsstandards ein Problem fast aller größeren Städte sind, kann eine wirksame finanzielle steuerliche Förderung nur bundesweit sinnvoll sein.

Eine weitere Variante wirtschaftlicher Anreize, die auch lokal sinnvoll initiiert werden kann, sind

(ii) Förderung neuer umweltfreundliche Antriebe und Kraftstoffe

Inzwischen gibt es zahlreiche Programme, die den Aufbau einer Infrastruktur für Erdgas als Kraftstoff und die stärkere Verbreitung leiser und abgasarmer Erdgasfahrzeuge zum Ziel haben¹.

In Berlin konnte das von der Bundesregierung und der deutschen Gaswirtschaft mit 11 Mio. Euro geförderte Modellprojekt 'TUT' - Tausend Umwelt-Taxis² ins Leben gerufen

¹ Weitere Information zu Erdgasfahrzeugen unter <http://www.erdgasfahrzeuge.de/>

² weitere Informationen unter <http://www.tut-berlin.de/>

werden. Die Zahl der Erdgas-Tankstellen wurde seit Anfang 2001 auf zwölf Tankstellen erhöht. Dafür hat die Berliner Gasversorger GASAG bisher rund 2,5 Millionen Euro investiert. Die Anschaffung von 1000 Taxis, sowie 100 Fahrschulfahrzeugen mit Erdgasantrieb werden pro Fahrzeug mit bis zu 3000 Euro subventioniert, ergänzt durch eine Senkung des ohnehin im Vergleich zu Diesel günstigeren Erdgaspreises im Wert von bis zu 1600 Euro.

Im Rahmen eines EU-Projektes, an dem Berlin mit anderen europäischen Großstädten beteiligt ist, wird die Anschaffung von bis zu 100 LKW im privaten Gewerbe gefördert werden.

Berlin wird zukünftig mit den Betreibern größerer regional begrenzter Flotten von LKW und leichten Nutzfahrzeugen in Gespräche eintreten, wie der Einsatz von Erdgasfahrzeugen gesteigert werden kann. Bislang hat sich - wie anfänglich auch beim TuT-Programm - das begrenzte Marktangebot an Erdgasfahrzeugen als hemmender Faktor erwiesen. Um die Nachfrage so zu erhöhen, dass die Automobilindustrie ihr Angebot an Gasfahrzeugen ausweitet, und der Einsatz von Ergasnutzfahrzeugen attraktiver wird, bedarf es einer finanziellen Förderung in größerem Maßstab. Am wirkungsvollsten wäre ein bundesweites Förderprogramm für erdgasbetriebene Nutzfahrzeuge, da der Bedarf, alte hochemittierende Fahrzeuge zu ersetzen nicht nur in Berlin besteht. Ein lokales Programm ist nicht nur aufgrund der finanziellen Probleme Berlins, sondern wegen der begrenzten Anreizwirkung auf die Hersteller sehr viel schwerer umsetzbar.

Berlin bemüht sich darüber hinaus, die kommunale Fahrzeugflotte mit mehr Gasfahrzeugen auszustatten. Bei der Berliner Stadtreinigung fahren inzwischen ein Viertel der Müllfahrzeuge mit Erdgas. Weitere Gespräche mit der BSR und privaten Entsorgungsbetrieben über Möglichkeiten des beschleunigten Umstiegs auf Erdgasfahrzeuge oder E, der Nachrüstung oder partikelarme

(iii) Emissionsseitige Standards bei der Vergabe von Buslinien im ÖPNV

Bei der künftig obligatorischen Ausschreibung von Verkehrsleistung im ÖPNV wird zukünftig die Einhaltung strengerer Emissionsstandards zum Maßstab. Schon bei denn jetzt notwendigen Ersatzbeschaffungen von Bussen wird die BVG nur noch umweltfreundliche Dieselbusse anschaffen, die Dieselrußfilter und Katalysator zur Senkung der NOx-Emissionen der modernsten Abgasstufe EURO V entsprechen. Dieselben Anforderungen werden künftig an die privaten Busunternehmer gestellt, die bestimmte Linien im Auftrage der BVG betreiben. Seitens eines Betreibers wurde Interesse bekundet in eine mit Erdgas betriebene Busflotte zu investieren.

(iv) „Benutzervorteile“: Verkehrseinschränkungen mit Ausnahmen für moderne schadstoffarme Fahrzeuge

Die nach der 7. Novelle des BImSchG verbesserte Rechtgrundlage ermöglicht die Ausweisung von Gebieten, in denen Verkehrseinschränkung mit Benutzervorteilen für schadstoffarme Fahrzeuge eingeführt werden können - ein Konzept, das in Berlin schon vor Einführung der 23. BImschV verfolgt wurde, dessen Umsetzung aber an der unzureichenden rechtlichen Grundlage scheiterte.

Im Rahmen des EU-Projektes HEAVEN wurde das immissionsmindernde Potential eines solchen Umweltzonenkonzepts mit Benutzervorteilen für abgasarme

Dieselfahrzeuge mit Hilfe des zur Verfügung stehenden StraßenschluchtmodeLLs grob abgeschätzt.

In einem illustrativen Szenario wurde unterstellt, dass innerhalb des S-Bahn und Stadtautobahnringes ab 2005 nur noch Dieselfahrzeuge der Abgasstufe EURO III und besser, und ab 2010 nur noch EURO IV Fahrzeuge fahren.

Neben einer inzwischen als zu optimistisch anzusehenden Annahme eines 15%-igen Rückgangs der großräumigen Hintergrundbelastung bis 2005 wurde außerdem angenommen, dass der Verkehr im Innenstadtbereich durch Ausweitung der Parkraumbewirtschaftung und Zuflussbegrenzung durch Lichtsignalanlagen abnimmt (siehe auch Abschnitt (3))

Das Ergebnis der Simulation zeigt einen drastischen Rückgang der Länge der Straßenabschnitte des Berliner Hauptverkehrsstraßennetz, in denen der PM10-Grenzwert (24h-Mittel nicht öfter als 36 Tage über $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$) und der NO₂-Grenzwert (Jahresmittel nicht größer als $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$) überschritten ist. Sie würde sich von fast 200 km auf etwa 30 km vermindern.

Der im Rahmen der Ursachenanalyse erwähnte Umstand, dass mehr als die Hälfte der verkehrserzeugten Partikel nicht aus dem Auspuff der Fahrzeuge stammen, wirft die Frage auf, ob verstärkte Straßenreinigung zu einer Verminderung der Staubaufwirbelung führen kann. Ein jüngster Versuch zusammen mit der Berliner Stadtreinigung, die in der Frankfurter Allee im Herbst 2003 zwei mal täglich Straßenspülungen vornahm ergab eine sehr geringe Minderung um ca 5%, die jedoch aufgrund verschiedener Störfaktoren³ als nicht signifikant angesehen werden kann.

Trotz des Einsatzes moderner Fahrzeuge würden in 2005 Brennpunkte übrig bleiben, wo die Immissionsbelastung die Grenzwerte übersteigt. Es verdeutlicht, dass Anstrengungen zur Minderung der Kfz-Emissionen mittels Abgasminderungstechnik oder Partikelfilter zwar unverzichtbar, aber vermutlich nicht ausreichen werden.

So verstärkt sich die Notwendigkeit, über weitere Handlungsfelder nachzudenken, die eine weitere Senkung der Verkehrsbelastung erlauben.

(2) Optimiertes Verkehrsmanagement zur Senkung der Luft- und Lärmbelastung

Ein potentielles Handlungsfeld, nämlich durch Optimierung und Lenkung von Verkehrsströmen punktuell Entlastungen der Luft- und Lärmelastung zu erzielen, wurde im Rahmen des EU-Forschungsvorhabens HEAVEN⁴ näher untersucht.

Im Rahmen eines Praxisversuchs wurde beispielhaft die umweltseitige Wirkung eines Tempolimits auf 30 km/h und eines LKW-Durchfahrverbotes in einer durch hohen LKW-Anteil geprägten Hauptverkehrsstraße untersucht. Während des LKW-Verbotes wurden Ausweichstrecken empfohlen, die den Verkehrs teilweise über die Stadtautobahn leitete, wo kaum Anwohner betroffen sind.

³ zeitweise verstärkter Busverkehr wegen gesperrter U-Bahnlinie

⁴ "Healthier Environment through abatement of vehicle emissions and noise. Mehr Informationen unter <http://heaven.rec.org/>

Die deutlichste Verbesserung (siehe nebenstehende Tabelle) ergab sich erwartungsgemäß während des LKW-Verbotes, obwohl die Anzahl schwerer Fahrzeuge aufgrund der Anliegerregelung und einer Nichtbefolgsrate von etwa 50% nur um ein Drittel zurückging. Die Minderung während des Tempolimit fiel deutlich bescheidener aus. Allerdings konnte nur während sichtbarer Polizeikontrollen eine deutliche Verlangsamung des Verkehrs um 10 km/h beobachtet werden. Ansonsten sank die mittlere Fahrzeuggeschwindigkeit nur um weniger als 5 km/h. Vor diesem Hintergrund sind die Minderungen

		L k w V e r b o t	T e m p o 3 0
R u ß		- 7 ± 3 %	- 3 ± 3 %
F e i n s t a u b (P M 1 0)		- 7 ± 5 %	- 2 ± 3 %
S t i c k o x i d e		- 2 0 ± 1 0 %	- 3 ± 2 %
L ä r m	T a g	- 1 . 3 d B(A)	- 2 . 0 d B(A)
	N a c h t	- 1 . 0 d B(A)	- 1 . 2 d B(A)

durchaus beachtlich.

Der Ausbau von Verkehrsdetections- und Steuerungstechnik an Hauptverkehrsstraßen in Berlin eröffnet die Möglichkeit, mit einer optimierten, auf zeitliche Veränderungen der Verkehrs- und Immissionssituation reagierenden Verkehrslenkung Gebiete mit höher Schadstoffbelastung temporär zu entlasten, ohne anderswo die Situation gravierend zu verschlechtern. Der Praxisversuch im Rahmen von HEAVEN hat gezeigt, dass Verkehrslenkung ein Potential zur Immissionsentlastung besitzt, das als ergänzend zur Nutzung aller technischen Möglichkeiten am Fahrzeug zur Verbesserung an Belastungsschwerpunkten eingesetzt werden kann.

(3) Minderung der Schadstoffbelastung aus dem Verkehrs durch eine nachhaltige Verkehrs- und Stadtplanung

Berlin hat sich im Zuge der Erstellung eines neuen Stadtentwicklungsplans Verkehr vorgenommen, bis 2015 u. a. die europaweit gültigen Grenzwerte für die Luftverschmutzung deutlich zu unterbieten, die Zahl der lärmgeplagten Anwohner deutlich zu mindern und die klimaschädlichen Abgase aus dem Verkehr gegenüber heute um ein Viertel zu senken.

Zum Beispiel soll innerhalb des zentralen Bereichs der Anteil der Fahrten im öffentlichen Nahverkehr 80 Prozent des Gesamtaufkommens im motorisierten Personenverkehr betragen und das Straßenbahnnetz im Ostteil der Stadt erweitert werden. Schon jetzt ist ein Programm zur Beschleunigung des Bus- und Straßenbahnverkehrs an Kreuzungen in der Umsetzung.

Auch wenn die darin verfolgten planerischen Ansätze kurzfristig nur begrenzt zur Senkung der Partikelwerte beitragen können, kann zumindest eine Koordination der Verkehrsplanung mit den Zielen der Luftreinhalteplanung gewährleistet werden. Angesichts der Schlüsselrolle des Verkehrs bei der Bekämpfung der Luftverschmutzung ist dies eine wichtige Voraussetzung für künftige Erfolge bei der Luftreinhaltung.

Eines der für die Luftreinhalteplanung unmittelbar nutzbaren Vorhaben ist die Dämpfung des Durchgangsverkehrs innerhalb des S- und Autobahn-Ringes. Durch veränderte Ampelschaltungen und Ausweitung der Parkraumbewirtschaftung soll zunehmend mehr Verkehrs tangential um die Innenstadt herum geleitet werden, um dort

eine merkliche Verminderung des Durchgangsverkehrs zu erreichen. Untersuchungen haben ergeben, dass die Verbesserung in bestimmten Straßen bis zu 30% erreichen kann.

Im Rahmen der Luftreinhalteplanung wird untersucht, wie die Umsetzung dieses Konzeptes zeitliche so abgestimmt und auf Schwerpunkte konzentriert werden kann, dass die PM – Belastung an den trotz Einsatz moderner Fahrzeugtechnik verbliebenen Hot Spots in der Innenstadt vermindert werden kann.

3. AUSBLICK

Berlin wird Ende des Jahres 2004 einen Luftreinhalteplan vorlegen, der Maßnahmen zur Einhaltung der PM10 und NO₂-Grenzwerte beinhaltet wird.

Die im Zuge der Planerstellung durchgeführte Ursachenanalyse hat gezeigt, dass der lokale Handlungsrahmen zur Senkung insbesondere der Partikelbelastung begrenzt ist.

Viele Werkzeuge und Randbedingungen für lokales Handeln werden auf nationaler und europäischer Ebene bestimmt. Hinzu kommt das Problem der weiträumigen Verfrachtung und Bildung von Feinstaub, Ozon, versauernder und eutrophierender Substanzen, das eine abgestimmte über Grenzen von Regionen und Ländern hinausreichende Vorgehensweise erfordert. Das Ziel der Einhaltung der europäischen Luftqualitätsstandards kann deshalb nur mit einer fairen Arbeitsteilung aller politischen Ebenen erreicht werden.

An vorderster Stelle steht die Fortschreibung der europäischen Fahrzeugemissionsstandards. Schon heute existiert das technische Potential um beispielsweise den Euro IV-Standard für Partikelemissionen um ein Vielfaches zu unterbieten. Im Hinblick auf die langwierigen Entscheidungsprozesse in Brüssel ist die EU-Kommission aufgefordert, schnellstmöglich aktiv zu werden. Flankierend sollte die Bundesregierung, wie Mitte der 80-ziger Jahre, im Vorgriff auf strengere europäische Abgasnormen Fahrzeuge schon jetzt steuerlich stärker fördern, die solche strengen Kriterien erfüllen.

Ziel muss es sein, die großräumige PM10-Belastung soweit zu mindern **und** das Potential zur Reduktion des lokalen PM10 Beitrag so zu erweitern, dass die Einhaltung der Immissionsgrenzwerte für PM10 auch in urbanen Ballungsräumen gewährleistet werden kann.

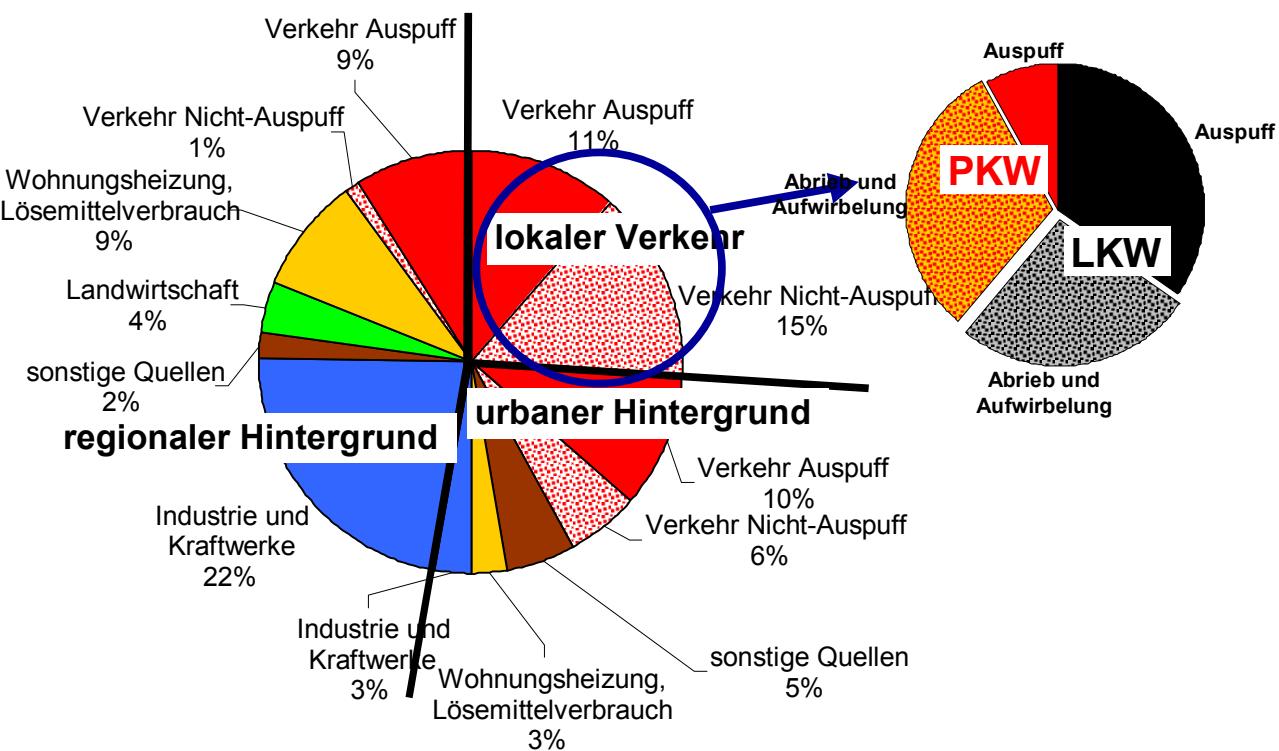
Eine etwa gleichlautende Forderung finden sich in einer Resolution wieder, die die politischen Vertreter von acht europäischen Metropolen (London, Paris, Prag, Rom, Stockholm, Stuttgart, Warschau und Berlin) auf einer Konferenz in Berlin unter dem Motto "*Neue Herausforderungen für europäische Metropolen: Die Umsetzung der EU-Richtlinien zur Luftqualität und zum Umgebungslärm auf städtischer Ebene*" unterzeichnet haben. Neben der Forderung an den europäischen Gesetzgeber die EU-weiten Emissionsstandards für Fahrzeuge und Anlagen dem technischen Fortschritt anzupassen, wird auch auf die dringend notwendige Verbesserung der finanziellen Unterstützung der Kommunen hingewiesen, ohne die eine wirksame Umsetzung der europäischen Richtlinien zur Luftqualität kaum möglich ist.

LITERATURANGABEN:

- [1] John, A., T. Kuhlbusch, M. Lutz (2003): Quellenzuordnung anhand aktueller Immissions- und Emissionsdaten in Berlin. Workshop PMx-Quellidentifizierung: Ergebnisse als Grundlage für Maßnahmenpläne, Duisburg, 22/23.1.2004
- [2] Rauterberg-Wulff, A.: Beitrag des Reifen- und Bremsenabriebs zur Rußimmission an Straßen. Fortschritt Berichte, VDI Reihe 15, Nr. 202, 178 S. VDI Verlag, Düsseldorf.
- [3] Lohmeyer, A. und I. Düring (2001): Validierung von PM10-Immissionsberechnungen im Nahbereich von Straßen und Quantifizierung der Feinstaubbildung von Straßen. Bericht des Ingenieurbüros Lohmeyer im Auftrag der Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Berlin und des Sächsischen Landesamtes für Umwelt und Geologie; verfügbar unter http://www.stadtentwicklung.berlin.de/umwelt/luftqualitaet/de/werkstatt_feinstaub/abgeschlossen.shtml
- [4] Rainer Stern, A.Kerschbaumer, J.Fath (2003): Anwendung des chemischen Transportmodells REM/CALGRID auf die Region Berlin-Brandenburg. Abschlussbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 29943 246 des Umweltbundesamtes "Entwicklung eines Modellsystems für das Zusammenspiel von Messung und Rechnung für die bundeseinheitliche Umsetzung der EU-Rahmenrichtlinie Luftqualität"
- [5] Richtlinie 2001/81/EG über nationale Emissionshöchstmengen für bestimmte Luftschaadstoffe. ABl. der EG vom 27.11.2001 Nr. L 309 Seite 22.

ABBILDUNGEN:

Anteil der Quellsektoren an der PM10-Gesamtbelastung an einer Verkehrsmessstelle in Berlin [1]



Appendix

PMx-Quellenidentifizierung - Ergebnisse als Grundlage für Maßnahmenpläne

Donnerstag, 22/01/04

09:30 Begrüßung

Ergebnisse von messtechnischen Untersuchungen in
Deutschland zur Quellenidentifizierung

Vorsitzender: K. G. Schmidt

09:45 PM und Gesundheit - Auswirkungen spezifischer
PM-Quellen
Jürgen Schneider (WHO)

10:15 Rechtliche Grundlagen für nationale Maßnahmen
Harald Keiter (UBA)

10:30 Aktueller Stand der Diskussion in der CAFE-
Arbeitsgruppe PM
Peter Bruckmann (LUA NRW)

10:45 KAFFEEPAUSE

Vorsitzender: H. Fissan

11:00 Aerosolpartikel in ländlichen und urbanen Gebie-
ten: Quellenidentifizierung durch Einzelpartikel-
analyse
Stephan Weinbruch, M. Ebert, B. Vester (TU
Darmstadt)

11:30 Anteil einzelner Emittenten an der Belastung
durch PM10 in Duisburg
Dieter Gladtke (LUA NRW)

11:45 Quellenidentifizierung im urbanen Ballungsraum
des westlichen Ruhrgebiets
Ulrich Quass, Thomas Kuhlbusch, Matthias Koch,
S. Top, O. Romazanowa, K. G. Schmidt,
H. Fissan, P. Bruckmann (IUTA e.V., ECOFYS,
LUA NRW)

12:30 DISKUSSION

12:45 MITTAGSPAUSE

Vorsitzender: M. Lutz

13:30 Messkampagnen zur Aufklärung der Quellenzu-
ordnung für großenaufgelöste Feinstaub-
komponenten in Sachsen
Thomas Gnauk, E. Brüggemann, K. Müller, A.
Plewka, U. Franck, H. Gerwig, H. Herrmann (IfT
Leipzig et al.)

13:45 Feinstaubbelastung PM10 im ländlichen Raum
Niedersachsens
W. Bächlin, K.-P. Giesen, B. Heits, E.
Klasmeier, W.J. Müller, T. Kuhlbusch,
M. Memmesheimer (NLÖ et al.)

14:05 Feinstaubbelastung PM10 in der Straßenschlucht
der Göttinger Straße, Hannover
Wolfgang Bächlin, K.-P. Giesen, B. Heits, W.J.
Müller (Ingenieurbüro Lohmeyer, NLÖ)

14:25 Submikrone Partikel und PMx an einem Hot Spot:
Stadtautobahn Berlin
Dieter Bake (UBA)

14:40 Quellenzuordnung anhand aktueller Immissions-
und Emissionsdaten in Berlin
Astrid John, T. Kuhlbusch, M. Lutz (IUTA e.V.,
SenStadt Berlin)

15:10 DISKUSSION

15:20 KAFFEEPAUSE

Vorsitzende: A. John

15:40 Feinstaubquellen in Rheinland-Pfalz
Thomas Kuhlbusch, A. John, O. Romazanowa,
S. Top, M. Weissenmayer (IUTA e.V., LfUG Mainz)

16:10 Korngrößen und Inhaltsstoffe von urbanen Stäu-
ben – Einflüsse von Kfz-Emissionen
Frank Palme (LfU Bayern)

16:25 Untersuchung der PM10-Zusammensetzung zur
Identifizierung des Hauptverursachers
Elisabeth Danninger (Amt der Oberöstererr.
Landesregierung)

16:40 Ostdeutschland 1990 bis heute: Veränderung der
Schadstoffbelastung, ihrer Quellen und Wirkung
auf die Gesundheit
Josef Cyrys (GSF)

16:55 PM-Quellenidentifizierung mittels
Impaktormessungen
Jürgen Müller (UBA)

17:10 DISKUSSION

19:00 Gelegenheit zum gemütlichen Treff

Freitag, 23/01/04

Ergebnisse von Modellsimulationen zu Quellenidentifizie-
rung und Maßnahmeszenarien

Vorsitzender: T. Kuhlbusch

09:00 Einflüsse direkter und indirekter Quellen auf
die Verteilungen von Feinstäuben auf der re-
gionalen Skala
Bernhard Vogel, H. Vogel (FZ/Uni Karlsruhe)

09:20 Modellgestützte Bilanzierung von Eintrag und
Export von Aerosolen im Berliner Raum
Andreas Kerschbaumer (FU Berlin)

09:40 Source/Receptor-Analyse für Aerosolmess-
reihen und Modelloutput auf der Basis von
Trajektorien
Eberhard Reimer (FU Berlin)

10:00 Ausbreitungsrechnungen mit dem EURAD-
Modell als Hilfsmittel bei der PMx-Quellen-
identifizierung
Michael Memmesheimer, E. Friese, H.J.
Jakobs, H. Elbern, H. Feldmann, A. Ebel, G.
Piekorz (RIU Uni Köln)

10:20 Modellanwendung als Teil der Untersuchungen
für die Aufstellung von Luftreinhalte- und
Aktionsplänen in Sachsen-Anhalt
Volker Diegmann, C. Ehrlich (IVU Umwelt,
LAU Sachsen-Anhalt)

10:35 DISKUSSION

10:50 KAFFEEPAUSE

Erfahrungen und Probleme bei der Maßnahmenplanung

Vorsitzender: K. G. Schmidt

11:05 Minderung diffuser Staubemissionen in einem
Edelstahlwerk - Auswirkungen auf die Luft-
belastung
Sylke Termath (LUA NRW)

11:25 Erfahrungen und Probleme bei der Maß-
nahmenplanung
Wolfgang Volkhausen (ThyssenKrupp)

11:45 Modellprojekt zur Erstellung von Maßnahmen-
plänen nach Art. 8 der EU-Rahmenrichtlinie
Fred Weber (Stadt Hagen)

12:00 DISKUSSION

12:15 MITTAGSPAUSE

Vorsitzender: P. Bruckmann

13:00 PM10-Immissionsminderung durch die Orts-
umfahrung einer Kleinstadt
Uwe Friedrich, I. Düring (LUA Brandenburg,
Ingenieurbüro Lohmeyer)

13:20 Luftreinhalteplanung im Ballungsraum Rhein-
Main
László Kacsóh (HMULV)

13:40 Luftreinhalteplanung in einer Großstadt wie
Berlin: Untersuchung der Wirkung und Um-
setzbarkeit von konkreten Maßnahmen
Martin Lutz (SenStadt Berlin)

14:00 ABSCHLUSSDISKUSSION / KURZBEITRÄGE
à 3 min / ZUSAMMENFASSUNG
15:30 ENDE



Kontakt

IUTA

Institut für Energie- und Umwelttechnik e. V.

Bereich "Luftgetragene Partikel / Luftreinhaltung"

Dr. Thomas Kuhlbusch

Tel.: +49 (0)2065 418-267

E-Mail: tky@iuta.de

Dr. Astrid John

Tel.: +49 (0)2065 418-209

E-Mail: johnas@iuta.de