

Größenaufgelöste Charakterisierung von PM₁₀ an der Forschungsstation Melpitz – Einfluss von Jahreszeit und Anströmung

Gerald Spindler¹, Achim Grüner¹, Konrad Müller¹, Susan Schlimper²
Yoshiteru Iinuma¹, Hartmut Herrmann¹

¹ Leibniz-Institut für Troposphärenforschung e.V., Permoserstr. 15, 04318 Leipzig (spindler@tropos.de)
² Deutsche Wetterschutz GmbH, Karl-Heine-Str. 99, 04229 Leipzig

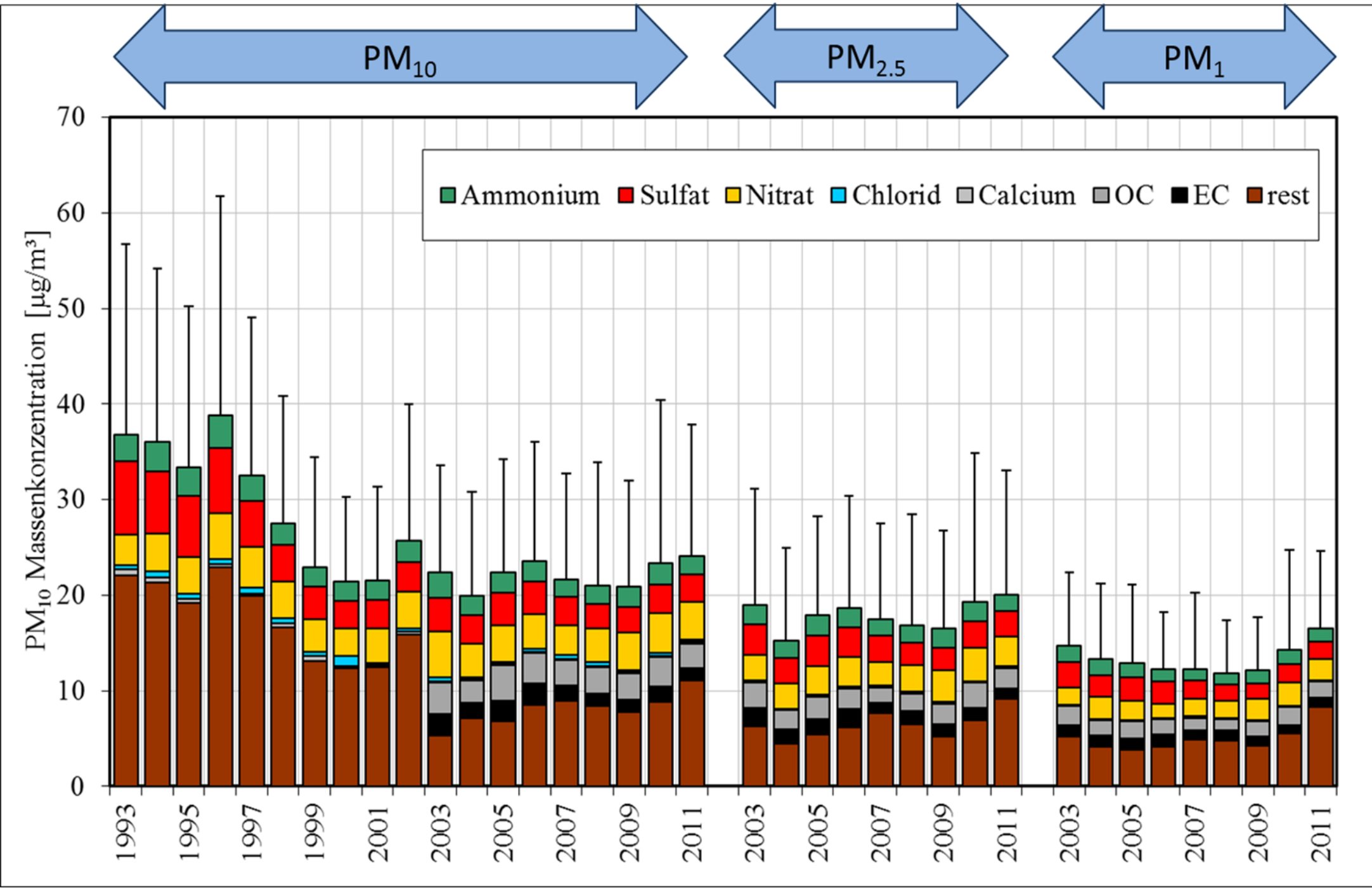
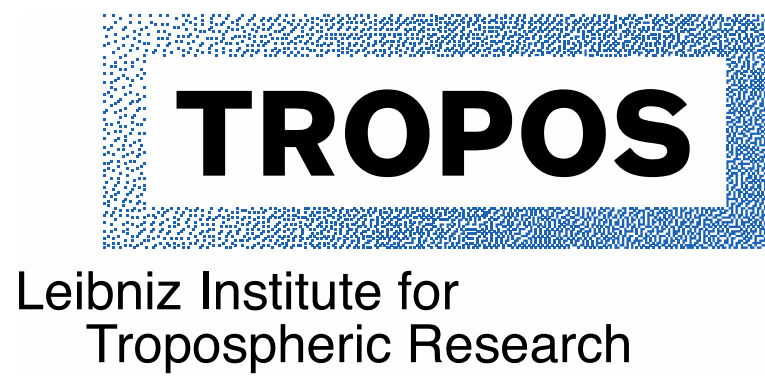


Abb. 1: Jahresmittel der PM Massenkonzentration (PM₁₀ 1993-2002, PM_{2.5} und PM₁, 2003-2011), Gehalt der wasserlöslichen Hauptionen und an OC/EC (nur für 2003-2011). Die Fehlerbalken stellen die positive Standardabweichung der täglichen Konzentrationen dar.

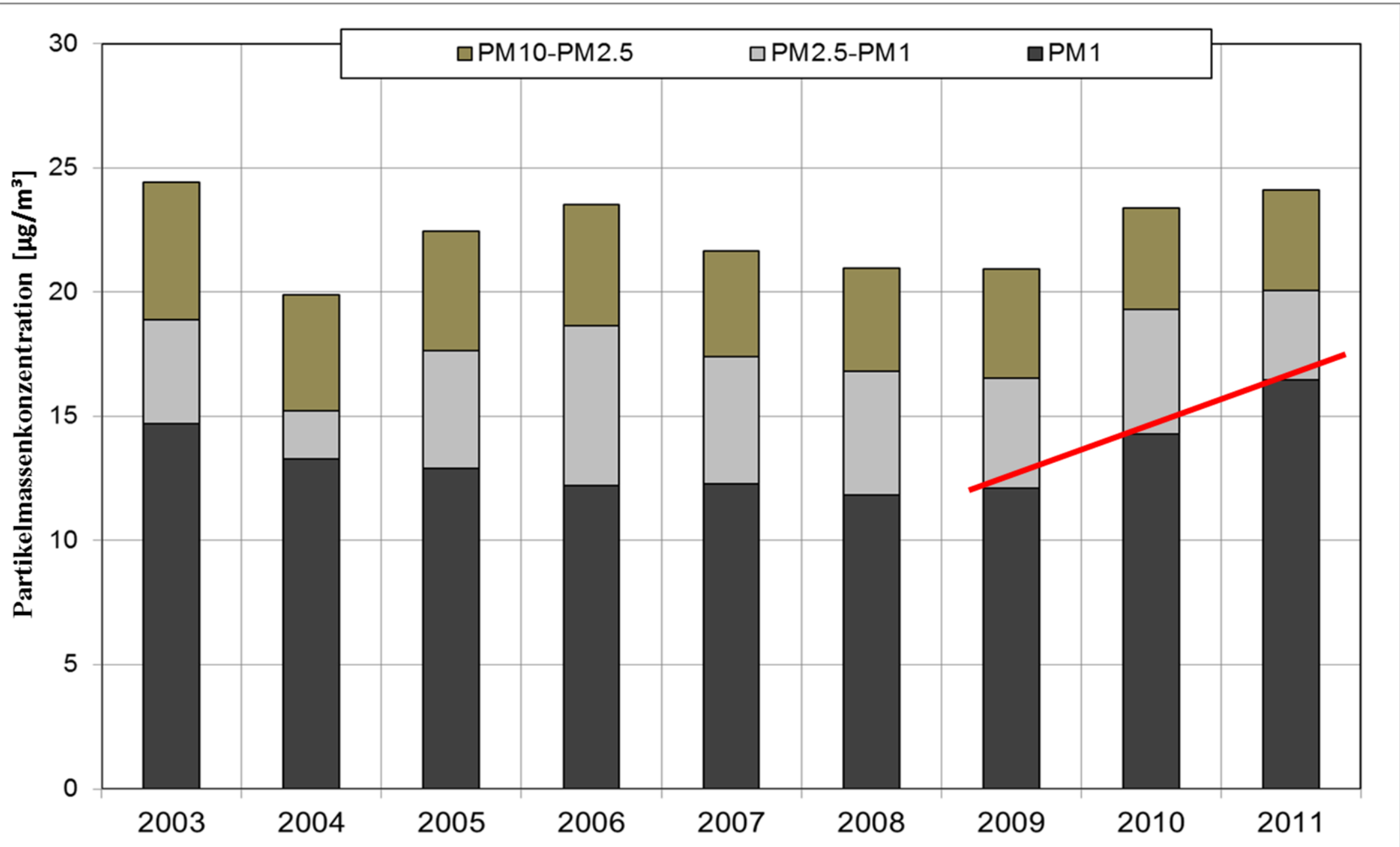


Abb. 2: Jahresmittelwert der Anteile PM₁ und PM_{2.5} am PM₁₀ (2003-2011). Die Zunahme der Partikelmassenkonzentration PM₁₀ wird für 2010 und 2011 hauptsächlich durch die Zunahme des PM₁ verursacht (rote Linie).

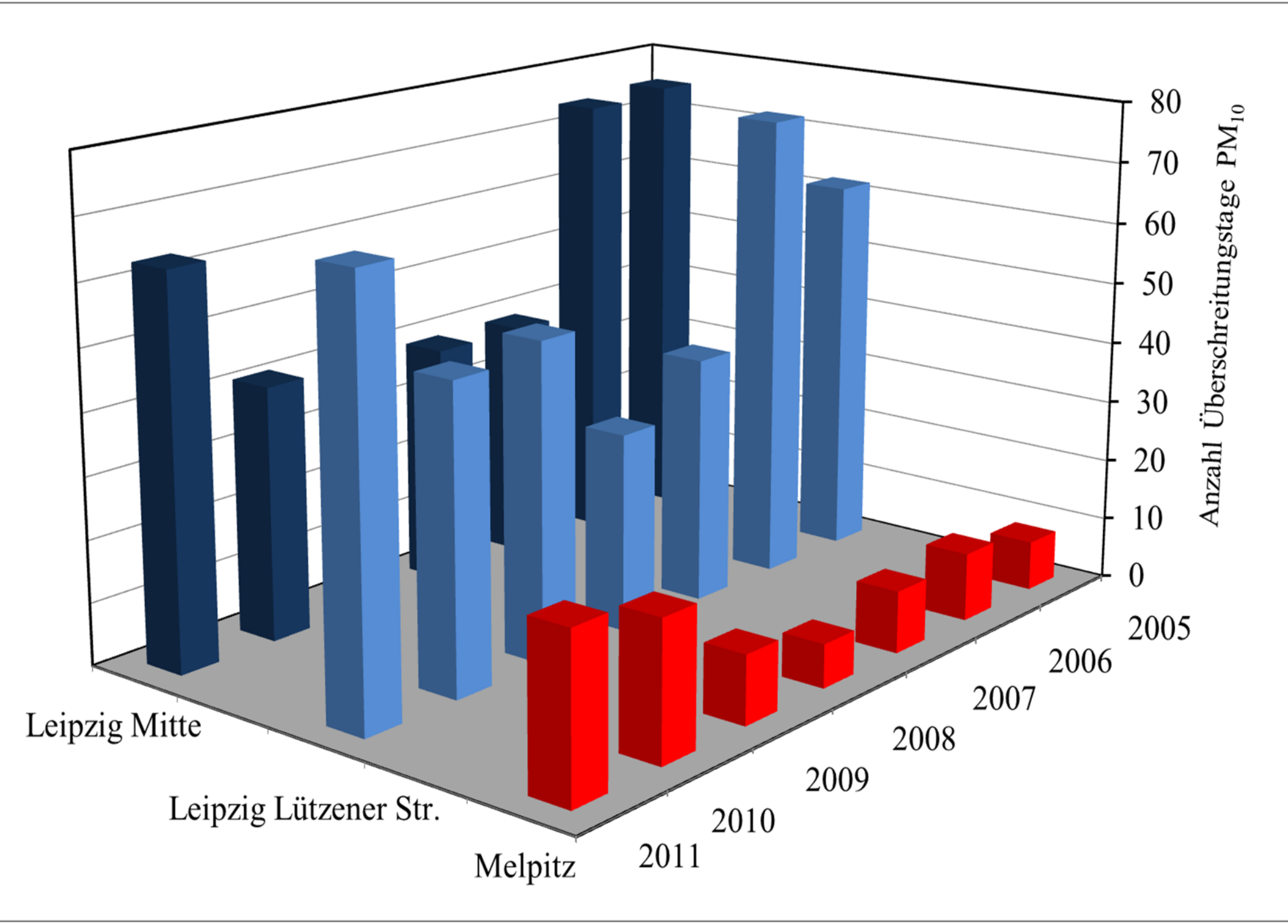


Abb. 3: Anzahl der Tage mit Grenzwertüberschreitung für PM₁₀ in Leipzig und Melpitz. Die Jahre 2010 und 2011 zeigen mit 22 bzw. 26 Tagen im regionalen Hintergrund für Melpitz deutlich höhere Werte als die Jahre 2005 bis 2009 mit jeweils 9 bis 10 Tagen.

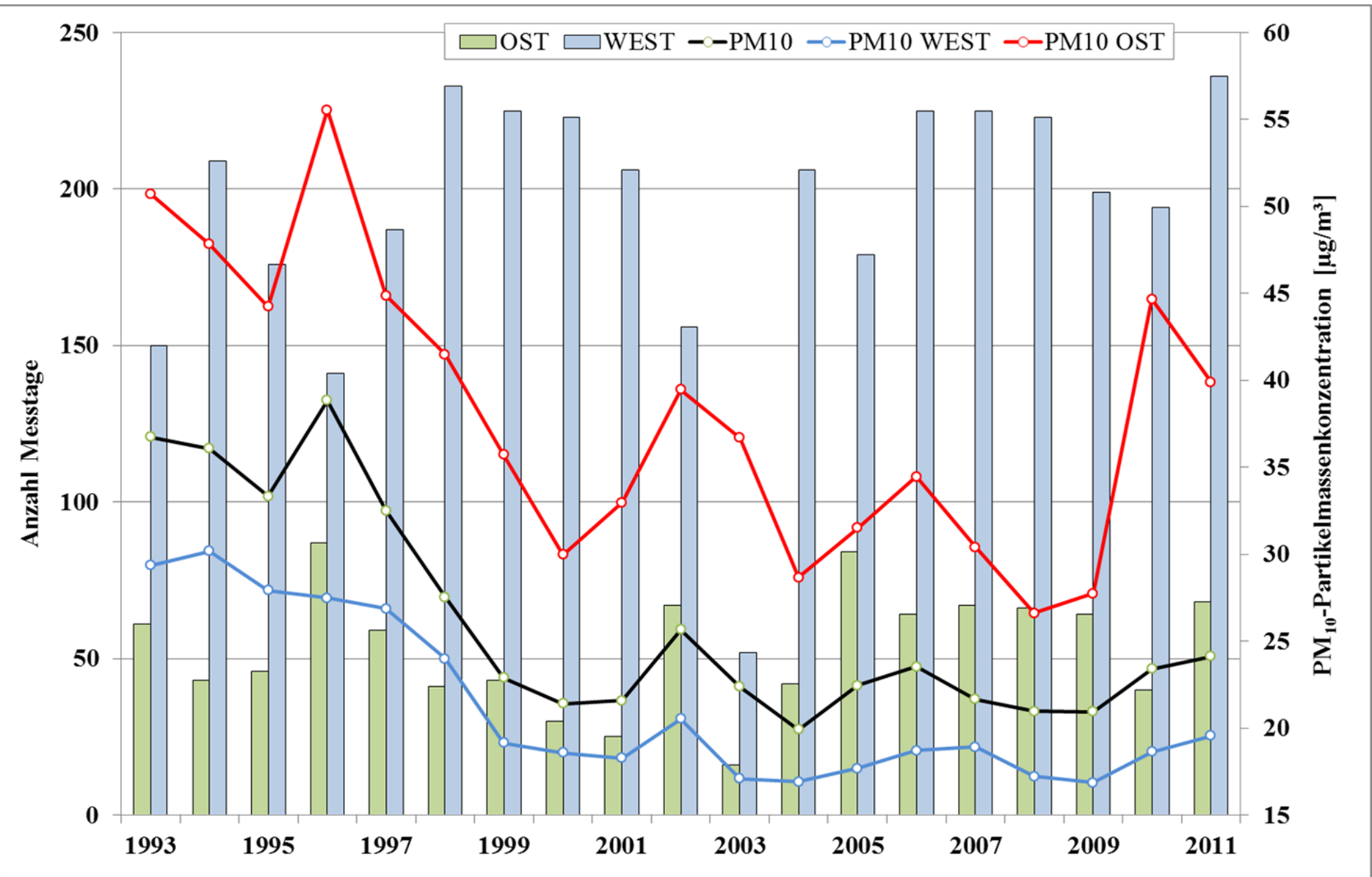


Abb. 4: Verteilung der jährlichen Anzahl von Messtagen mit östlicher und westlicher Anströmung und PM₁₀-Jahresmittelwerte für alle Messtage und die Tage mit östlicher und westlicher Anströmung.

Motivation

Jahreszeitlich und räumlich unterschiedlich verteilte Emissionen können durch meteorologische Einflüsse zusammen mit Langstreckentransport eine erhebliche Variabilität von Partikelgröße und -zusammensetzung bedingen. Dieser Effekt konnte an zwei unterschiedlichen komplexen Langzeitmessreihen der Forschungsstation Melpitz des Leibniz-Institutes für Troposphärenforschung (TROPOS) untersucht werden. Es wurden hierfür Beprobungen aus unterschiedlichen Forschungsvorhaben zu einem Gesamtergebnis zusammengeführt.

Experimentelles

Die Station Melpitz liegt im regionalen Hintergrund in der Nähe der Stadt Torgau im Urstromtal der Elbe auf 87 m NN bei 51° 32' nB und 12° 54' öL. Die Hauptwindrichtung ist West-Süd-West (WSW, Leipzig, maritime und kontinentale Luftmassen), die zweithäufigste Windrichtung ist Ost (O, Lausitz, kontinentale Luftmassen). Partikel werden in Melpitz seit 1993 mit High-Volume Sammlern als tägliche Proben auf Quarzfilter gesammelt, von 1993 täglich für PM₁₀ und ab 2003 zusätzlich auch für PM_{2.5} und jeden 6. Tag für PM₁ (Spindler et al., 2010). Im Zeitraum 2004 bis 2009 wurde an 169 Tagen zusätzlich mit einem fünfstufigen BERNER-Impaktor (Stufen 1-5: 0,05-0,14-0,42-1,2-10 µm aerodynamischer Partikeldurchmesser) auf Al-Folien gesammelt. Es erfolgten für alle Proben eine gravimetrische Massenbestimmung, die Analyse auf wasserlösliche Ionen und auf organischen (OC) und elementaren Kohlenstoff (EC). Auf den Al-Folien des BERNER-Impaktors wurden zusätzlich PAK und n-Alkane quantifiziert (Spindler et al. 2012; Gnauk et al. 2011). Es erfolgte ebenfalls eine Berechnung des Wassergehaltes (Extended Aerosol Thermodynamics Model, E-AIM, Wexler und Clegg 2002). Die täglichen Ergebnisse werden hier sowohl in der Abfolge der einzelnen Jahre als auch saisonal nach Sommer- und Winterhalbjahren (Mai bis Oktober bzw. November bis Mai) und nach Hauptanströmung aus einem breiten Sektor West (210-320°) oder Ost (30-140°) betrachtet (Zuordnung über 96-Stunden-Rückwärtstrajektorien). Etwa 70-75% der Probenlage lassen sich in die Kategorien Sommer und Winter bei westlicher und östlicher Anströmung (SW, SO, WW, WO) einordnen (vgl. Spindler et al., 2012, Schlimper, 2010).

Ergebnisse

Abb. 1 zeigt, dass die PM Massenkonzentration PM₁₀ bis etwa 2000 ab-nahm. In den Jahren 1993 bis 1997 sank das Verhältnis von Sulfat zu Nitrat durch veränderte Emissionen (weniger Kohleverbrennung, mehr Kfz-Verkehr). Von 1999 an liegt die mittlere PM₁₀-Konzentration bei 22,1, die für PM_{2.5} und PM₁ bei 17,9 bzw. 13,4 µg/m³ und schwankt zwischen den Jahren um etwa 15%. Aus Abb. 2 wird ersichtlich, dass der Anstieg von PM₁₀ in den Jahren 2010 und 2011 hauptsächlich vom enthaltenem PM₁, dass eine lange Verweilzeit in der Atmosphäre hat und über weite Strecken transportiert wird verursacht ist. Das wirkt sich auf die Anzahl der Überschreitungen des Tagesmittelgrenzwertes für PM₁₀ von 50 µg/m³ aus (EU-Commission 1999). Dieser Effekt zeigt sich sowohl in Melpitz, als um den Einfluss lokaler Quellen erhöht auch in der Stadt Leipzig (Abb. 3). Abb.4 zeigt die durchweg bei östlicher Anströmung höhere PM₁₀-Konzentration im Vergleich zu der bei westlicher Anströmung und den Einfluss der jährlich stark schwankenden Verteilung von Tagen mit Ost- und Westanströmung. Die Tagesproben des BERNER-Impaktors zeigen für die Massenschließung (Abb. 5) relativ hohe Gehalte an EC insbesondere auf den Stufen 2-3 (typisch für Langstreckentransport anthropogener Emissionen). Bei WW (niedrige Temperaturen) ist der Nitratgehalt hoch (Quelle Kfz-Verkehr). Bei östlicher Anströmung wird mehr Sulfat (Stufen 2-3) gefunden. Ein hoher Na⁺-Gehalt bei westlicher Anströmung auf Stufe 4 und 5 entstammt dem Meersalz. Die Massenschließung gelingt im Sommer schlechter, dafür kann ein größerer Anteil wasserunlöslichen Krustenmaterials, dass von trockenen Oberflächen reemittiert wird ursächlich sein. Den starken Einfluss des Ferntransports von Emissionen anthropogener Verbrennungsprozesse besonders bei WO zeigt Abb. 6. Vergleicht man hier die PM-Massenkonzentration im Verhältnis zur Konzentration der PAK (Stufe 3) so nimmt diese bei WO überproportional zu. Auch die Konzentration der n-Alkane (Abb. 7) ist bei WO auf Stufe 3 stark erhöht und lässt auf anthropogene Quellen schließen. Allerdings zeigt der Sommer hohe Anteile von n-Alkan mit ungerader C-Atomanzahl aus Emissionen der Vegetation, besonders bei SO zu erkennen am hohen Wert des CPI (Carbon Präferenz Index: Verhältnis der Summe von n-Alkanen mit ungerader C-Atomanzahl zu denen mit gerader C-Atomanzahl). Abbildung 8 zeigt die PAK Konzentrationen auf Stufe 1 für alle Kategorien. Auch hier treten hohe Konzentrationen im Winter auf. Die höchsten in der Kategorie WO verursacht durch eine Kombination von lokalen Emissionen und Ferntransport.

Zusammenfassung

Die jährliche PM₁₀ Konzentration nahm bis zum Jahr 2000 ab und bleibt danach mit einer Schwankungsbreite von ca. 19% konstant. In Jahren mit einem höheren Anteil östlicher Anströmung ist eine höhere Zahl von Tagen mit PM₁₀ Tagesgrenzwertüberschreitung auch im regionalen Hintergrund festzustellen. Größenaufgelöste Messungen zeigen im Winter besonders bei östlicher Anströmung einen höheren Anteil PM₁, bzw. die höchsten Massekonzentrationen auf Stufe 3 des Impaktors. Diese Partikel können über weite Strecken transportiert werden. Die Analyse der Inhaltsstoffe zeigt überproportional zur westlichen Anströmung erhöhte Konzentrationen für typische Tracer anthropogener Verbrennungsprozesse. Rückwärtstrajektorien lassen auf die Verfrachtung von Emissionen innerhalb der EU aber auch auf grenzüberschreitenden Eintrag schließen.

Literatur

EU-Commission, Council Directive 1999/30/EC.
Gnauk, T., Müller, K., Brüggemann, E., Birmili, W., Weinhold, K., van Pinxteren, D., Löschau, G., Spindler, G., Herrmann, H., 2011. A study to discriminate local, urban and regional source contributions to the particulate matter concentrations in the city of Dresden, Germany. J. Atmos. Chem., 68, 199-231.
Herrmann, H., Brüggemann, E., Franck, U., Gnauk, T., Löschau, G., Müller, K., Plewka, A., Spindler, G., 2006. A source study of PM in Saxony by size-segregated characterisation. J. Atmos. Chem., 55, 103-130.
Schlimper, S., 2010. Meteorologische und statistische Auswertung von Langzeitmessungen zur Charakterisierung des Aerosols an der Forschungsstation Melpitz., Diplomarbeit, Universität Leipzig.
Spindler, G., Brüggemann, E., Gnauk, T., Grüner, A., Müller, K., Herrmann, H., 2010. A four-year size-segregated characterization study of particles PM₁₀, PM_{2.5} and PM₁ depending on air mass origin at Melpitz. Atmos. Environ., 44, 164-173.
Spindler, G., Gnauk, T., Grüner, A., Iinuma, Y., Müller, K., Scheinhardt, S., Herrmann, H., 2012. Size-segregated characterization of PM₁₀ at the EMEP site Melpitz (Germany) using a five-stage impactor: a six year study. J. Atmos. Chem., 69, 127-157.
Wexler, A.S., Clegg, S.L., 2002. Atmospheric aerosol models for systems including the ions H⁺, NH₄⁺, Na⁺, SO₄²⁻, NO₃⁻, Cl⁻, Br⁻ and H₂O. J. Geophys. Res. 107D (2002) DOI: 10.1029/2001JD000451.

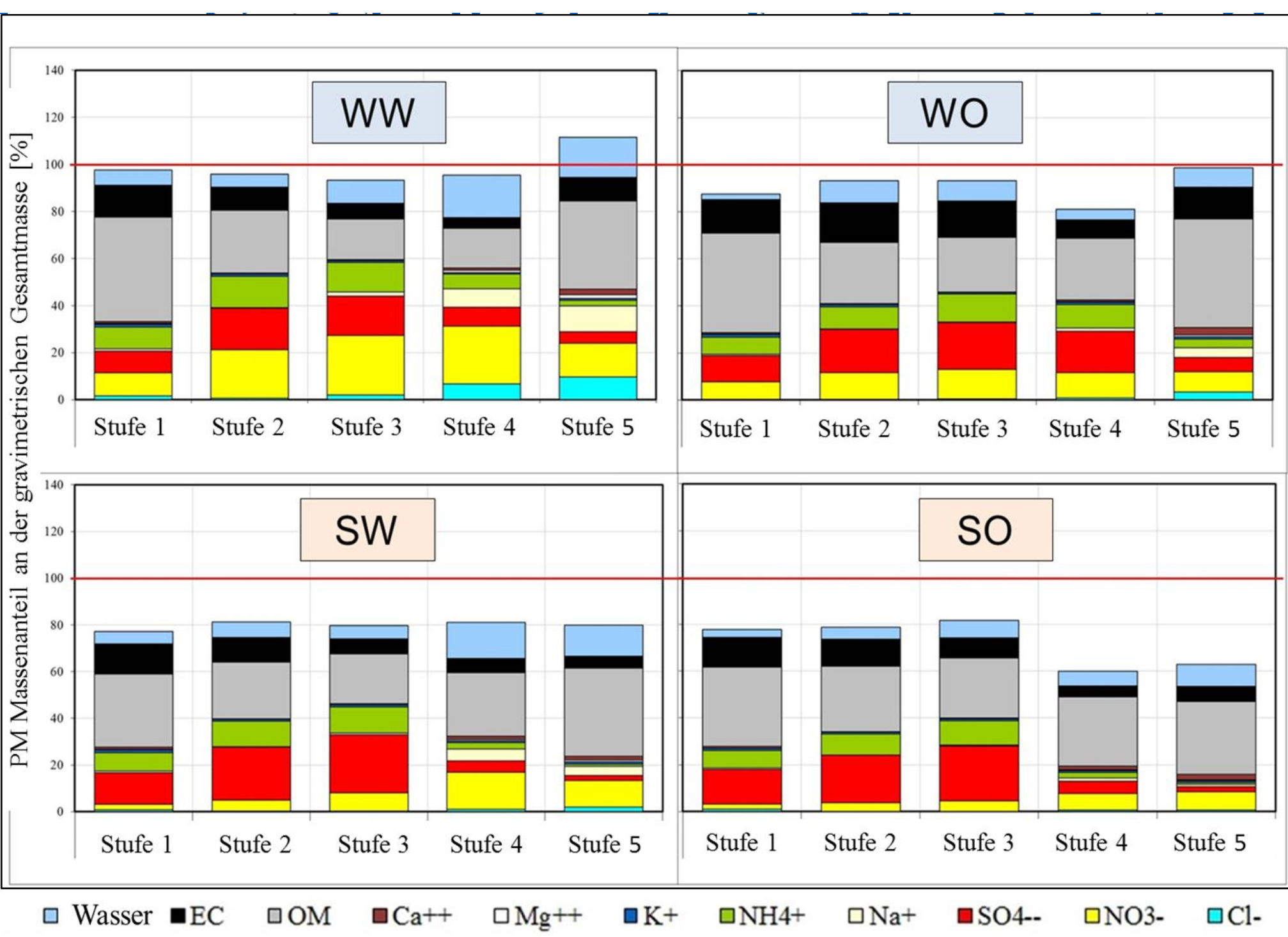


Abb. 5: Relative Massenschließung für alle Messtage des fünfstufigen BERNER-Impaktors in Melpitz (wasserlösliche Ionen, OC/EC und berechneter Wassergehalt). Mittelwerte für die Kategorien WW, WO, SW und SO.

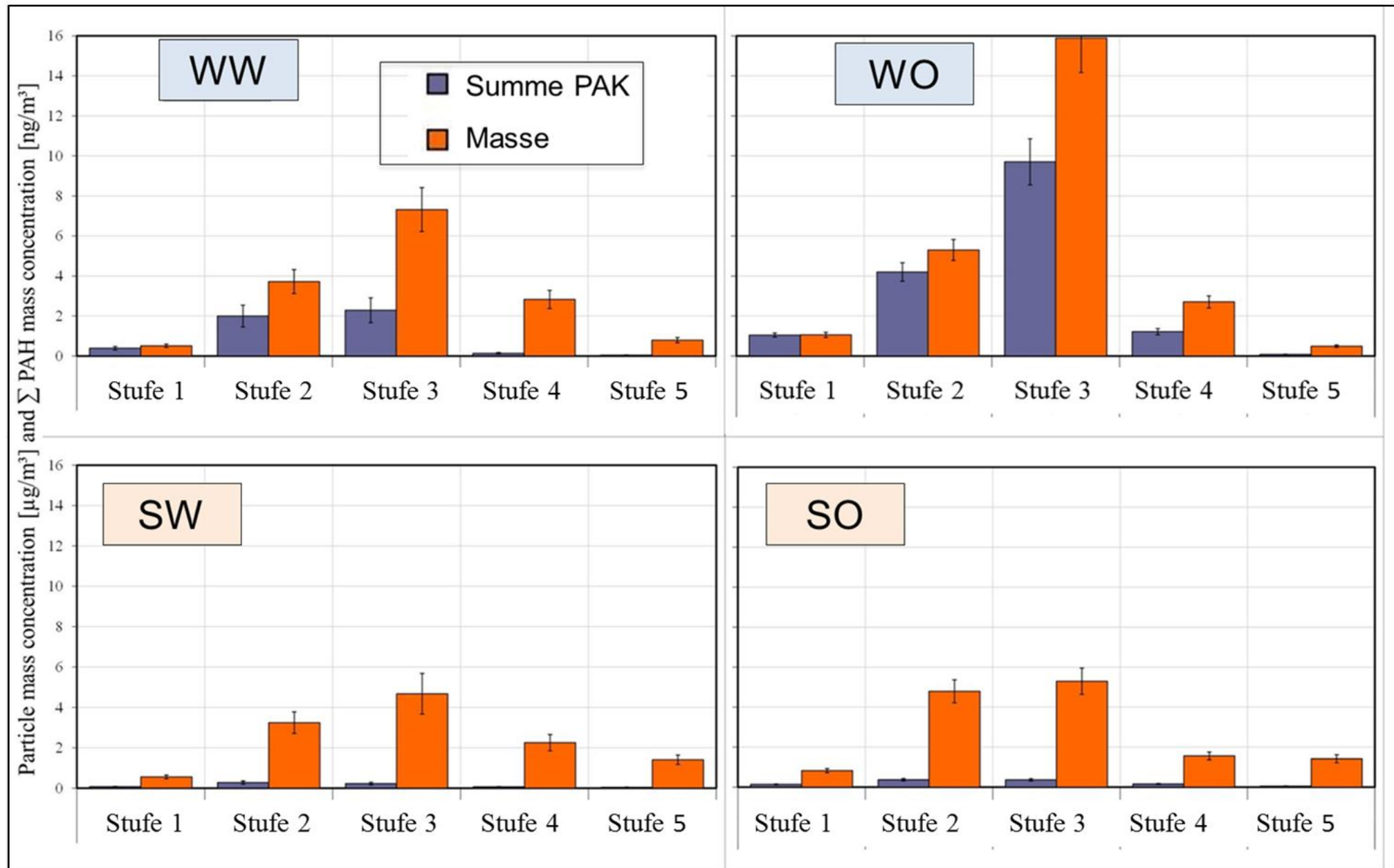


Abb. 6: Summe der einzelnen analysierten PAK Massenkonzentrationen (vgl. Abb. 8) und der PM Massenkonzentration auf den 5 Stufen des BERNER-Impaktors in Melpitz. Mittelwerte für die Kategorien WW, WO, SW und SO. Die Fehlerbalken zeigen die Standardabweichung der Mittelwerte.

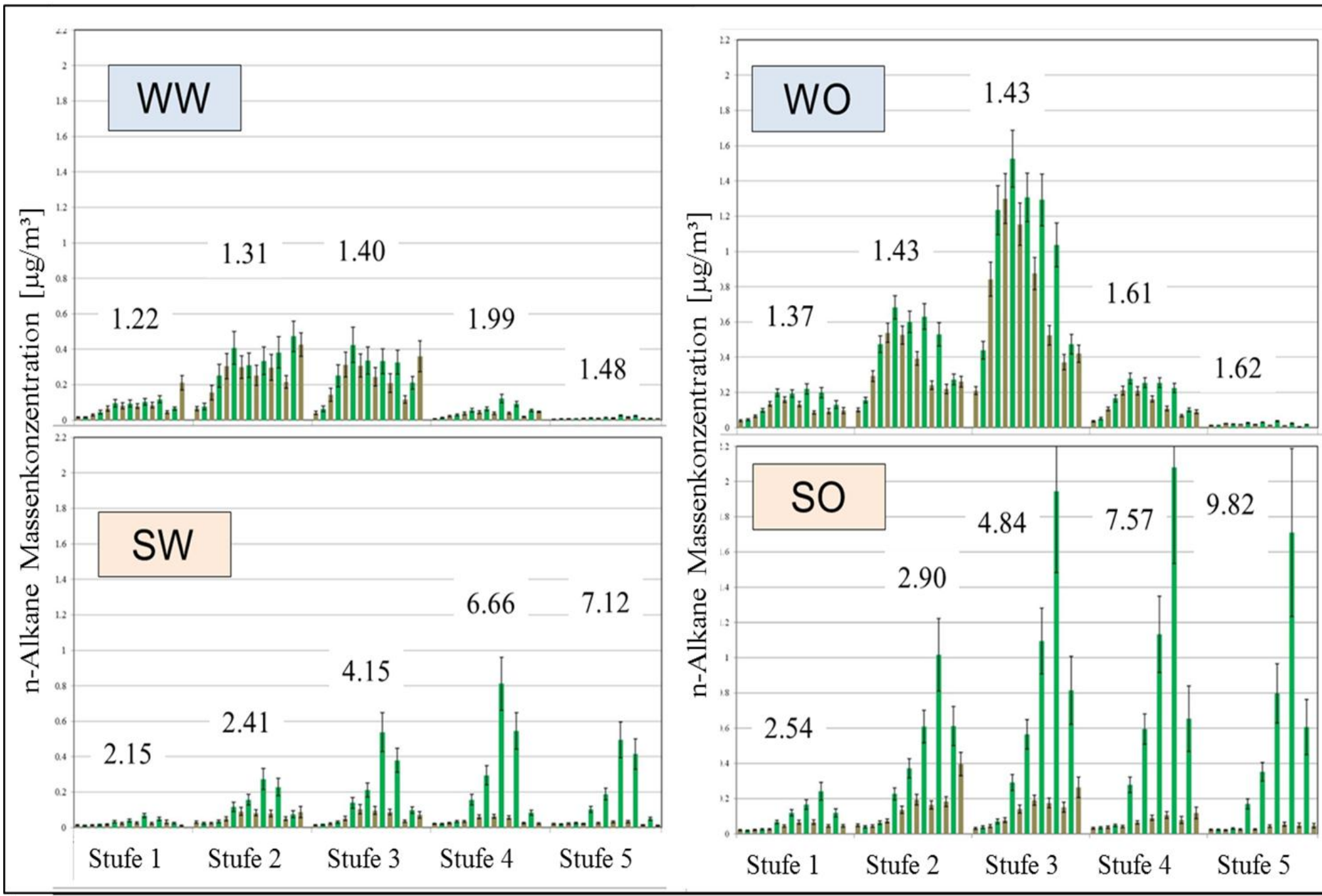


Abb. 7: PM Massenkonzentration der n-Alkane mit 20 bis 34 C-Atomen auf den 5 Stufen des BERNER-Impaktors in Melpitz. Mittelwerte für die Kategorien WW, WO, SW und SO. Die Fehlerbalken zeigen die Standardabweichung der Mittelwerte

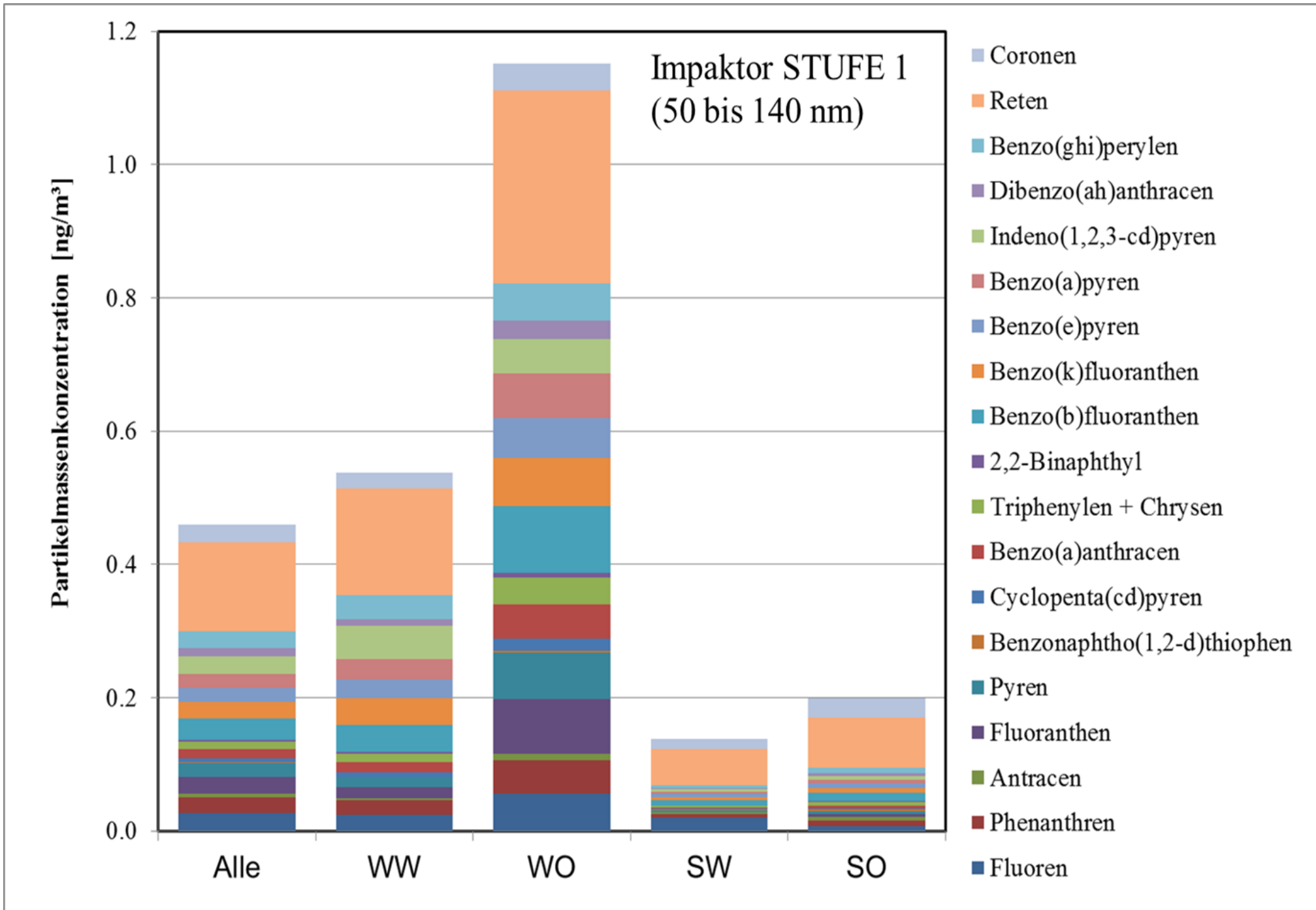


Abb. 8: Analyisierte PAK auf Stufe 1 (50 bis 140 nm aerodynamischer Partikeldurchmesser) als Mittel aller Messungen und für die Kategorien WW, WO, SW und SO.