

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

Gerald Spindler, Achim Grüner, Konrad Müller, Yoshiteru Iinuma, Hartmut Herrmann

Leibniz-Institut für Troposphärenforschung e.V. (TROPOS), Permoserstr. 15, 04318 Leipzig (spindler@tropos.de)

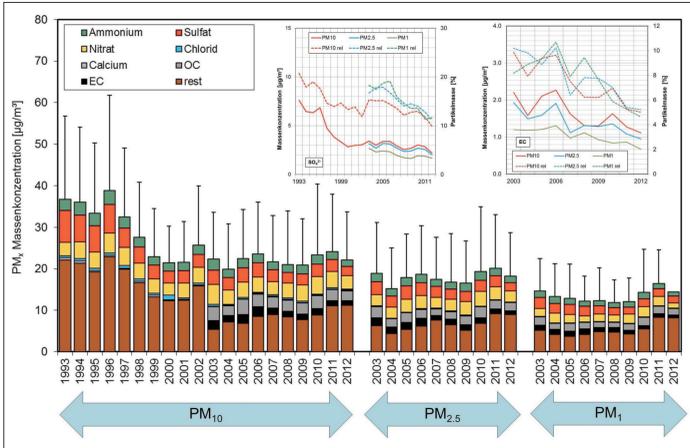


Abb. 1: Jahresmittel der PM Massenkonzentration (PM₁₀ 1993-2012, PM_{2.5} und PM₁ 2003-2012), Gehalt der wasserlöslichen Hauptionen und an OC/EC (nur für 2003-2012). Die Fehlerbalken stellen die positive Standardabweichung der täglichen Konzentrationen dar. Kleine Grafiken: Jahresmittel der Sulfat und EC-Konzentration (absolute und relative Konzentration).

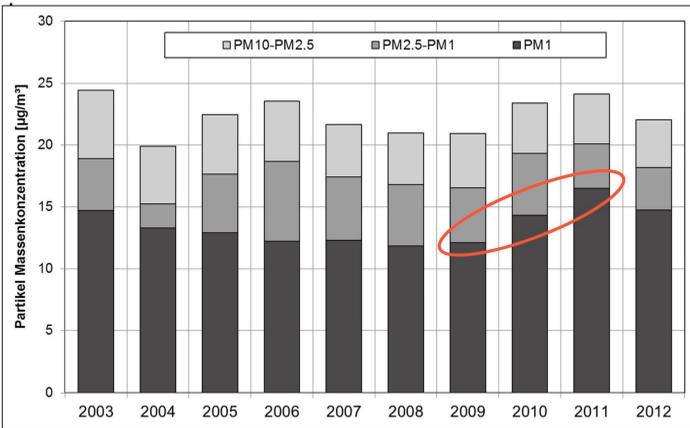


Abb. 2: Jahresmittelwert der Anteile PM₁ und PM_{2.5} am PM₁₀ (2003-2012). Die Zunahme der Partikelkonzentration PM₁₀ wird für 2010 und 2011 hauptsächlich durch die Zunahme des PM₁ verursacht (rote Ellipse).

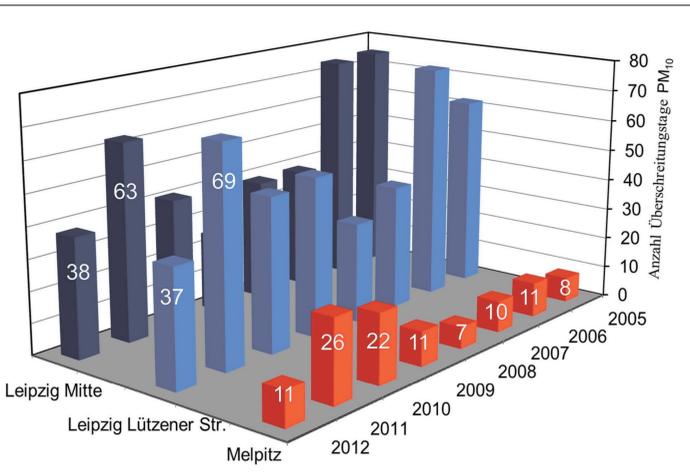


Abb. 3: Anzahl der Tage mit Grenzwertüberschreitung für PM₁₀ in Leipzig und Melpitz. Die Jahre 2010 und 2011 zeigen mit 22 bzw. 26 Tagen in regionalen Hintergrund für Melpitz deutlich höhere Werte als die Jahre 2005 bis 2009 und 2012 mit jeweils 9, 10 oder 11 Tagen.

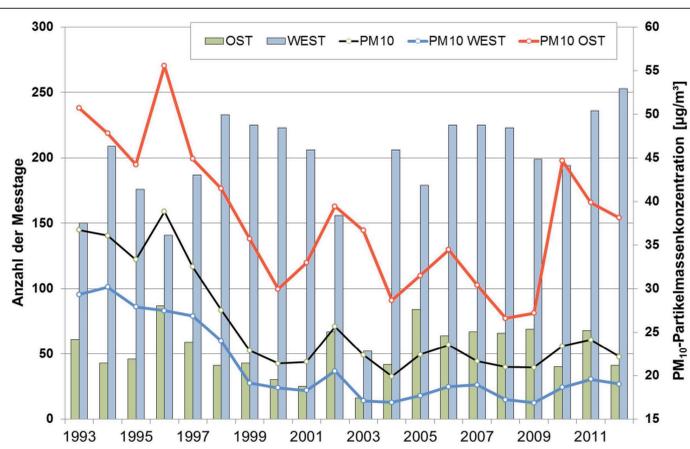


Abb. 4: Verteilung der jährlichen Anzahl von Messtagen mit östlicher und westlicher Anströmung und PM₁₀-Jahresmittelwerte für alle Messtage und die Tage mit östlicher und westlicher Anströmung.

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, die bis zu 20 Jahre zurückgehen, der Forschungsstation Melpitz des Leibniz-Institutes für Troposphärenforschung 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, und ab 2003 auch täglich für PM_{2.5} und jeden 6. Tag für PM₁ (Spindler et al., 2010). Es wurden zusätzlich 169 tägliche Proben im Zeitraum 2004 bis 2009 mit einem fünfstufigen BERNER-Impaktor (Stufen 1-5: 0,05-0,14-0,42-1,2-10 µm aerodynamischer Partikeldurchmesser), auf Al-folien gesammelt und ausgewertet. 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 gesammelt wurden zusätzlich PAK und n-Alkane quantifiziert (Spindler et al. 2012; Gnauk et al. 2011). Die 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). Es lassen sich so 70% der Tage (55% für WW und SW und 15% für SO und WO einordnen (Spindler et al., 2012, Spindler et al., 2013). Als weiteres Zuordnungskriterium wurden die resultierenden Anströmungen der objektiven Wetterlagenklassifikation des DWD verwendet (Bissolli und Dittmann 2001).

Ergebnisse

Abb. 1 zeigt, dass die PM Massenkonzentration PM₁₀ bis etwa 2000 abnahm. Von 1999 an liegt die mittlere PM₁₀-Konzentration bei etwa 22,1 µg/m³ und schwankt zwischen den Jahren um etwa 15%. In den Jahren 1993 bis 1997 sank das Verhältnis von Sulfat zu Nitrat durch veränderte Emissionen (weniger Kohleverbrennung, mehr Kfz-Verkehr). Insbesondere die Komponenten Sulfat und EC zeigen bis heute einen fallenden Trend in der Konzentration. 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 Tagesmittelwertes 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 mittleren Werte der PM₁₀-Massenkonzentration, mit dem Gehalt an wasserlöslichen Ionen, OC und EC (nur für 2003-2011) für die resultierende Anströmung der objektiven Wetterlagenklassifikation des DWD sind in Abb. 5 gezeigt. Eine Gegenüberstellung der Mittelwerte der PM₁₀-Massenkonzentration für den Zeitraum 1993-2002 und 2003-2011 für westliche Anströmungen (SW, NW) und östliche Anströmungen (SO, NO) aus den objektiven Wetterlagen zeigt höhere Konzentrationen für Partikelmasse und Sulfat bei östlicher Anströmung. Der relative Rückgang der PM₁₀-Konzentration ist für westliche größer als für östliche Anströmung (26-28 gegenüber 21 %). Abb. 6 zeigt den Verlauf jährlicher Mittel des Konzentrationsverhältnisses PM_{2.5}/PM₁₀. Das Verhältnis PM_{2.5}/PM₁₀ steigt im Zeitraum 1995 bis 2012 besonders im Sommer an, was auf eine sinkende Konzentration von Grobstaub (PM₁₀-PM_{2.5}) im Hintergrund zurück geführt werden kann. Emissionen aus anthropogenen Verbrennungsprozessen sind besonders im Winter bei östlicher Anströmung (WO), vgl. Abb. 7, Ursache für erhöhte PM-Konzentrationen. 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. 8) ist bei WO auf Stufe 3 stark erhöht und lässt auf anthropogene Quellen schließen. Allerdings zeigt der Sommer hohe Anteile von n-Alkanen mit ungerader C-Atomanzahl aus Emissionen der Vegetation, besonders bei SO am hohen Wert des CPI (Carbon Präferenz Index: Verhältnis der Summe von n-Alkane mit ungerader C-Atomanzahl zu denen mit gerader C-Atomanzahl) zu erkennen. Die mittlere jährliche PM₁₀ Konzentration betrug in Melpitz für 1993 bis 1997 ca. 35 µg/m³ und lag in den letzten 11 Jahren bei 22 bis 23 µg/m³. In diesem Zeitraum liegt die mittlere PM₁₀-Jahreskonzentration für Tage mit westlicher Anströmung bei etwa 18 µg/m³ und für Tage mit östlicher Anströmung bei 34 µg/m³. Die Variation der täglichen PM-Konzentrationen ist in den Wintermonaten bevorzugt bei östlicher Anströmung mit folgender stabiler Hochdruckwetterlage am größten und führt im Extremfall auch an der Melpitzer Station im regionalen Hintergrund zu Überschreitungen des täglichen Grenzwertes von 50 µg/m³ für PM₁₀ (EU-Commission 1999).

Literatur

Bissolli, P., Dittmann, E., 2001, The objective weather type classification of the German Weather Service and its possibilities of application to environmental and meteorological investigations. Meteorol Z 10, 253-260.
 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.
 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.
 Spindler, G., Grüner, A., Müller, K., Schlimper, S., Herrmann, H., 2013, Long-term size-segregated particle (PM₁₀, PM_{2.5}, PM₁) characterization study at Melpitz – influence of air mass inflow, weather conditions and season. J. Atmos. Chem., 70, 165-195.

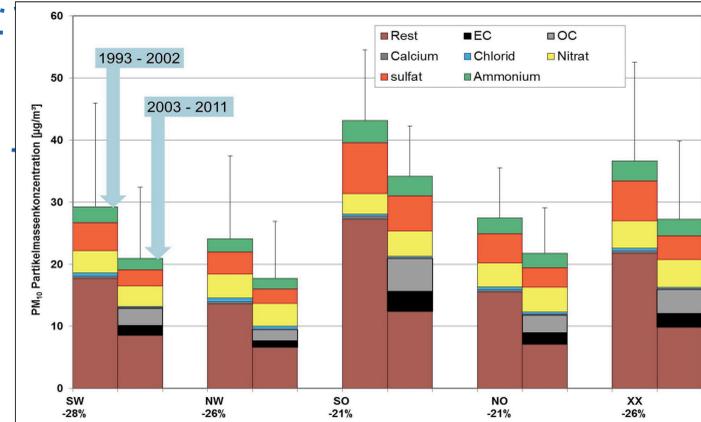


Abb. 5: Mittlere Werte der PM₁₀-Massenkonzentration, mit dem Gehalt an wasserlöslichen Ionen, OC und EC (nur für 2003-2011) für die resultierende Anströmung der objektiven Wetterlagenklassifikation des DWD. Die jeweils erste Säule steht für den Zeitraum 1993 bis 2002 und die zweite für 2003-2011. Die Fehlerbalken zeigen die Standardabweichung der Mittelwerte. Die Prozentzahlen unter der x-Achse geben den relativen Konzentrationsrückgang im zweiten Zeitraum an. XX, Anströmung nicht zu zuordnen.

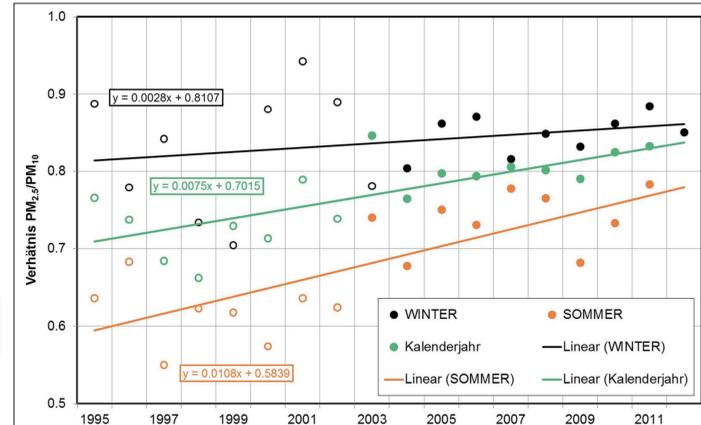


Abb. 6: Konzentrationsverhältnis PM_{2.5}/PM₁₀ (jährliche Mittel und Mittel für Sommer- und Winterhalbjahr, Winter: November bis April). Von 1995-2002 wurden Wochenmittel eines Low-Volume Sammlers verwendet (offene Symbole), von 2003 Ergebnisse täglicher High-Volume Messungen.

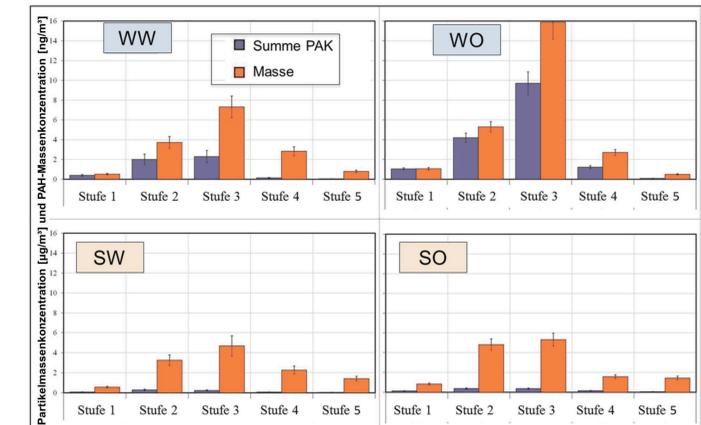


Abb. 7: Summe der einzelnen analysierten PAK Massenkonzentrationen und der PM Massenkonzentration auf den 5 Stufen des BERNER-Impaktors in Melpitz. Mittelwerte für die Kategorien WW, WO, SW und SO. Die Fehlerbalken zeigen die Standardabweichung der Mittelwerte.

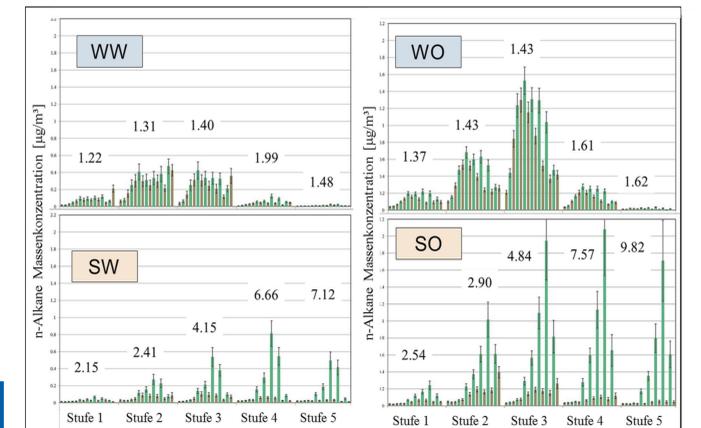


Abb. 8: PM Massenkonzentration der n-Alkane mit 20 bis 34 C-Atomen auf den 5 Stufen des BERNER-Impaktors in Melpitz. Mittelwerte für die Kategorien WW, WO, SW und SO. Die Fehlerbalken zeigen die Standardabweichung der Mittelwerte