

## **Physikalisch-chemische Charakterisierung des Aerosols am UBA-Standort Melpitz**

G. Spindler, E. Brüggemann, T. Gnauk, A. Grüner, H. Herrmann, K. Müller, Th. M. Tuch, B. Wehner, A. Wiedensohler, H. Werner

---

### ***Einleitung***

An der Forschungsstation des Leibniz-Institutes für Troposphärenforschung e.V. (IfT) in Melpitz, die seit 1994 zusätzlich ein Punkt im landesweiten Messnetz des Bundesumweltamtes ist, finden seit 1993 dauerhaft Messungen zur Partikelmassenkonzentration und den Gehalt wasserlöslicher Ionen für PM<sub>10</sub> statt. Seit 1995 werden Messungen zusätzlich auch für PM<sub>2,5</sub> und seit 1999 für PM<sub>1</sub> ausgeführt.

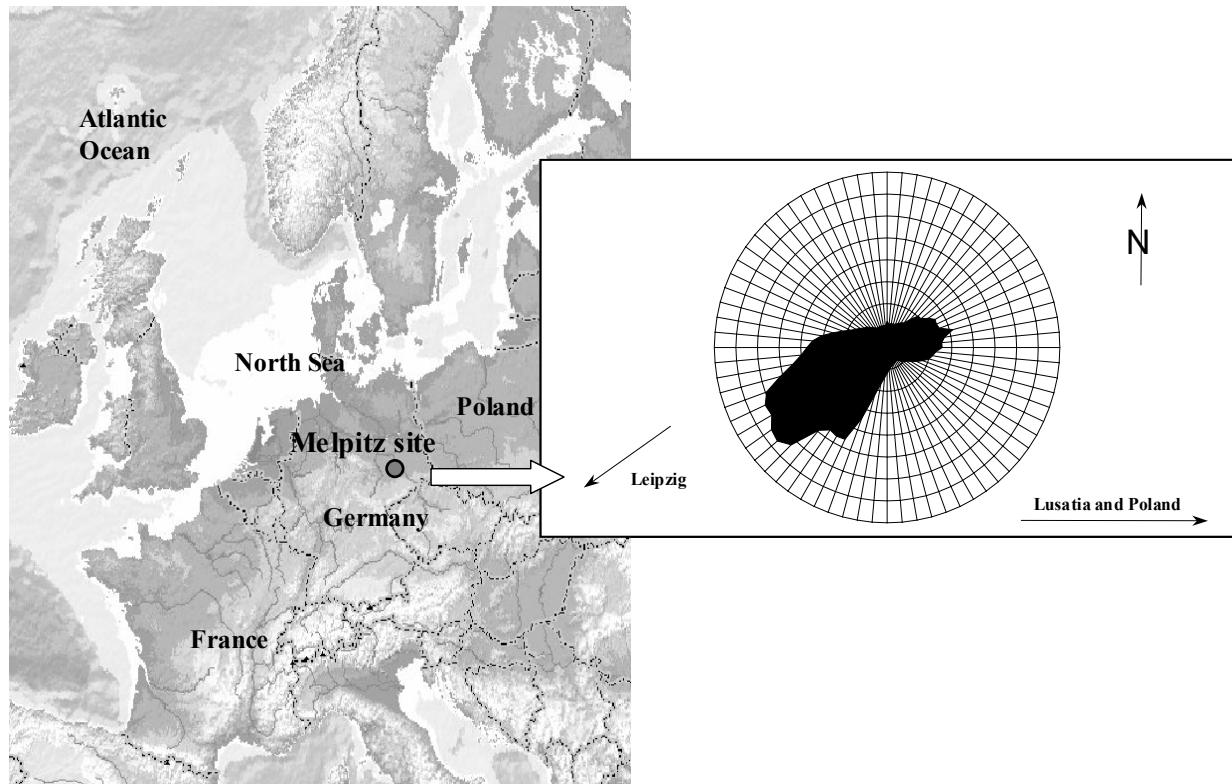
In den Monaten November und Dezember 2003 fanden umfangreiche Messungen innerhalb eines gemeinsamen Projektes zwischen Bundesumweltamt und IfT zur physikalisch-chemischen Charakterisierung des Aerosols mit dem Ziel statt, einerseits Methoden auf ihre Einsetzbarkeit im Messnetz zu testen und andererseits die Eignung des Messstandortes für solche Messungen und eine großflächige Quellgebietszuordnung zu prüfen. Es war innerhalb der kurzen Zeit von zwei Wintermonaten möglich, PM-Messungen im Größenspektrum von 3 nm bis 10 µm aerodynamischer Partikeldurchmesser des troposphärischen Aerosols vorzunehmen und typische Quellgebiete mittels Rückwärtstrajektorien zu selektieren.

### ***IfT-Forschungsstation und UBA-Messnetzstandort Melpitz***

Die Messungen zur physikalisch-chemischen Charakterisierung des Aerosols wurden an der Forschungsstation Melpitz (12°56' OL, 51°32' NB, 86 m über NN), ca. 50 km in nordwestlicher Richtung von Leipzig, bei Torgau gelegen, ausgeführt (Abbildung 1). Der Standort wurde in unterschiedlichen Forschungsvorhaben (Spindler u.a., 1996, Brüggemann und Spindler, 1999, Erisman, u.a. 2001, Marquardt u.a., 2001, Stratmann u.a., 2003) seit 1992 meteorologisch (Klemm u.a. 2002, Arnold u.a. 2004), spurengaschemisch (Gnauk u.a., 1997, Spindler u.a., 2001, Spindler u.a., 2003a) und hinsichtlich der Partikelmission (Heintzenberg u.a., 1998, Spindler, u.a., 1999, Müller, 1999, Neusüss u.a. 2002, Spindler u.a., 2003b, Plewka u.a., 2003, Putaud u a. 2004) charakterisiert. Der Standort eignet sich für die vorgesehenen Messungen besonders, da er über die notwendige Infrastruktur verfügt und auf einer großen, flachen Weide liegt. Melpitz erreichen mit der Hauptwindrichtung Südwest atlantische Luftmassen, die große Teile des Bundesgebietes überströmt haben und Emissionen des Ballungsraumes Halle-Leipzig in sich tragen. Mit der zweithäufigsten Windrichtung Ost werden in meist trockenen Hochdruckwetterlagen stark anthropogen verunreinigte Luftmassen grenzüberschreitend aus Gebieten Osteuropas herantransportiert. Bei nördlichen Anströmungen erreichen polare Luftmassen mit sehr geringer anthropogener Kontamination den Messort. Damit liegt dieser Messort für Mitteleuropa relativ entfernt von großen Emittenten und ist repräsentativ für große Teile Deutschlands.

### ***Aerosolmesstechnik, Analytik und meteorologische Parameter***

**Filtersammler:** Es wurden Filtersammler unterschiedlicher Bauart eingesetzt. Es sind dies für die tägliche PM<sub>10</sub>-Probenahme von 1993 bis 2002 ein modifizierter Sierra-Andersen-Filtersammler (Andersen Sampler Inc., USA) mit hohem Volumenstrom (Sammelvolumen 1400 m<sup>3</sup> in 24 Stunden), ab 2003 wurde dieser Sammler durch einen DIGITEL-Filtersammler DA-H80 (Riemer Messtechnik, Deutschland) mit einem Volumenstrom von 30 m<sup>3</sup> h<sup>-1</sup> für die tägliche PM<sub>10</sub> Probenahme ersetzt. Mit zwei zusätzlichen DIGITEL-Filtersammlern erfolgt ab 2003 auch eine tägliche Probenahme für PM<sub>2,5</sub> und alle 6 Tage eine tägliche Probenahme für



**Abbildung 1:** Lage der UBA Station- und IFT-Forschungsstation-Melpitz in Europa. Die Windrose ist ein Mittel der Jahre 1992 bis 2001, es wurden 4,2 Millionen 5-Minutenmittel der Windrichtung bei Windgeschwindigkeiten  $> 0,5$  m/s berücksichtigt. Calme herrschte damit in 8,6% des Gesamtzeitraumes.

PM<sub>1</sub>. Als Filtermaterial finden Quarzfaserfilter (Munktell, Schweden) in entsprechender Dimension Verwendung. Seit 1995 erfolgt eine wöchentliche Probenahme für PM<sub>10</sub> und PM<sub>2,5</sub> mit einem „Partisol 2000“ Filtersammler (Rupprecht and Patashnik Co. Inc., USA) mit geringem Volumenstrom (Sammelvolumen in 7 Tagen 84 m<sup>3</sup>). Seit 1999 wird eine zusätzliche Wochenprobe für PM<sub>1</sub> mit diesem Gerät gesammelt. Als Filtermaterial finden Teflon Filter (Millipore, Germany) Verwendung (Spindler u.a. 2003b). Beide Filtersammler mit hohem Volumenstrom zur täglichen Probenahme und mit niedrigem Volumenstrom zur wöchentlichen Probenahme werden permanent betrieben. Es wurden die *Masse*, der *Gehalt an wasserlöslichen Ionen* und teilweise der *Kohlenstoffgehalt* der Partikel bestimmt.

**Impaktor:** Während der Intensivmessungen für das gemeinsame Projekt wurde ein fünfstufiger Niederdruck-Kaskaden-Impaktor nach BERNER (Hillamo und Kauppinen, 1991) mit einem Durchfluss von 4,5 m<sup>3</sup> h<sup>-1</sup> betrieben. Es erfolgte eine 24-stündige Partikelprobenahme an ausgewählten Tagen.

Die Partikel werden Stufe für Stufe nach Beschleunigung beim Durchtritt durch eine Düsenplatte durch Trägheitsimpaktion auf der darunter liegenden mit einer Aluminiumfolie belegten Prallplatte abgeschieden. Damit entstehen fünf analysierbare Größenfraktionen, die Stufen 1 – 5 entsprechend folgender Abscheidengrenze nach aerodynamischem Durchmesser (D<sub>p</sub> in µm): /0,05 bis 0,14/ 0,14 bis 0,42/ 0,42 bis 1,2/ 1,2 bis 3,5/ 3,5 bis 10. Partikel mit D<sub>p</sub> < 50 nm können mit diesem Impaktor nicht erfasst werden. Es erfolgte jeweils eine Probenahme im Zeitraum von 10:00 Uhr bis 9:30 Uhr am Folgetag. Es wurden die *Masse*, der *Gehalt an wasserlöslichen Ionen* und der *Kohlenstoffgehalt* der Partikel bestimmt.

**TDMPS-System in Kombination mit Thermodenuder:** Der twin differential mobility particle sizer (Birmili u.a., 1999) erlaubt die alternierende Messung der wasserfreien Anzahlgrößenverteilung von Partikeln, sowie nach dem Thermodenuder die Messung der Anzahlgrößenverteilung „nichtflüchtiger Partikelkerne“. Das Messsystem wurde in der Intensivmessphase Winter 2003 betrieben. Das TDMPS System besteht aus zwei parallelen

Hauke DMA's (differential mobility analyzer) mit den zugehörigen Kondensationskernzählern (CPC, condensation particle counter). Im ultrafeinen UDMA werden Partikel mit Durchmessern zwischen 3 und 22 nm bei einem Aerosolfluss von  $2 \text{ l min}^{-1}$  und einem Schleierluftfluss von  $20 \text{ l min}^{-1}$  selektiert. Hinter dem UDAMA wird die Anzahlkonzentration der monomobilen Aerosolpartikel mit einem ultrafeinen CPC (UCPC, TSI, Modell 3025A) gemessen. Im zweiten DMA werden bei einem Aerosolfluss von  $0,5 \text{ l min}^{-1}$  und einem Schleierluftfluss von  $5 \text{ l min}^{-1}$  Partikel im Größenbereich zwischen 22 und 800 nm selektiert. Hinter diesem DMA wird die monomobile Anzahlkonzentration mit einem CPC (TSI, Modell 3010) gemessen. Der Messvorgang wird durch ein LabView® Programm gesteuert. Zu Beginn jeder Messung wird von beiden DMPS Systemen die Konzentrationen im Überlappkanal von 22 nm bestimmt. Anschließend messen beide System die Anzahlkonzentration schrittweise mit einer Auflösung von 16 Messkanälen pro Größendekade bis zu ihren jeweiligen Kanalgrenzen. Dieses System misst eine komplette Mobilitätsverteilung im Durchmesserbereich von 3 bis 800 nm mit einer Zeitauflösung von 10 Minuten, so dass in einer Stunde je drei Messungen mit und ohne Thermodenuder durchgeführt werden. Die Umrechnung der gemessenen Mobilitätsverteilung erfolgt offline unter Berücksichtigung der tatsächlichen Transferfunktionen der DMA's (Stratmann und Wiedensohler, 1996). Der verwendete Thermodenuder besteht aus zwei Teilen, durch die der Aerosolstrom nacheinander geleitet wird. Im Ersten werden die Partikel auf die eingestellte Temperatur erhitzt ( $25\text{-}300^\circ\text{C}$ ), im Zweiten werden die abgedampften flüchtigen Bestandteile an Aktivkohle absorbiert und die nichtflüchtigen Kerne können im Anschluss gemessen werden. Bei den nichtflüchtigen Kernen sollte es sich hauptsächlich um Ruß (hochkondensierte Kohlenwasserstoffe) handeln. Eine detaillierte Beschreibung des Geräts sowie der Kalibrierungen wird in Wehner et al. (2002) gegeben.

**Gravimetrische Messebestimmung und Ionenanalyse:** Alle Wägungen erfolgen in einem klimatisierten und luftfeuchte-kontrollierten Wägeraum mit Präzisionswaagen der Firma Mettler-Toledo (UMT-2) mit einer Ablesegenauigkeit von  $0,1 \mu\text{g}$  nach mindestens 24 h Äquilibration bis zur Gewichtskonstanz bei 50 % relativer Luftfeuchte und  $20^\circ\text{C}$ .

Die Anionen und Kationen werden nach 2 stündiger Extraktion in deionisiertem Wasser mittels Ionenchromatographie (Metrohm) quantifiziert.

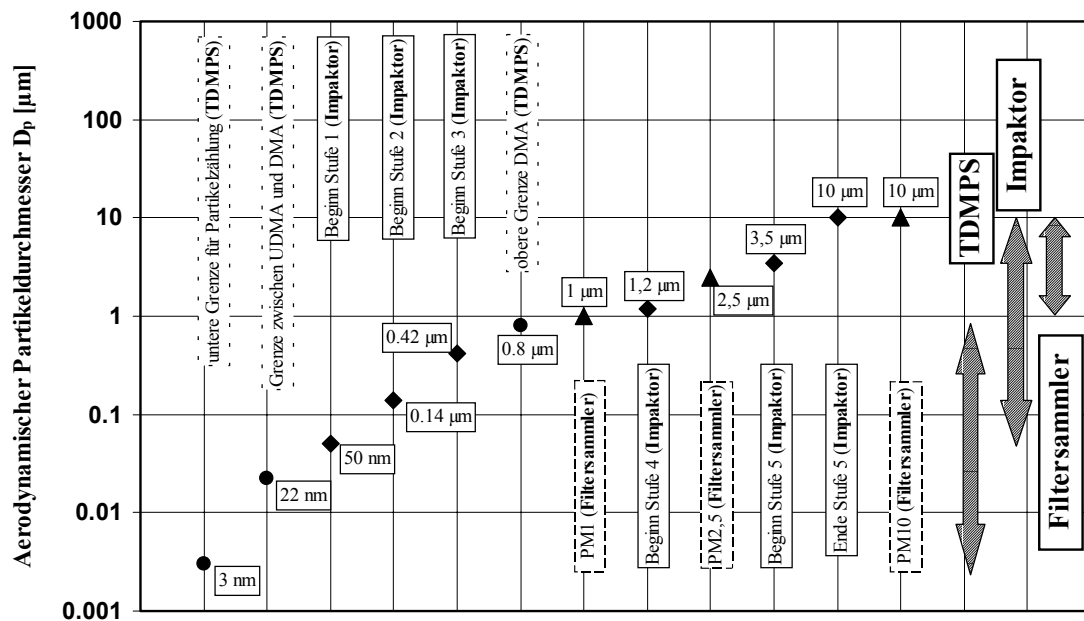
**Quantifizierung von Kohlenstoff:** Die Bestimmung von partikulärem Kohlenstoff wurde mit einer thermographischen Zweischritt-Methode in Anlehnung an die VDI-Richtlinie VDI 2465, Blatt 2 (Messen von Ruß [Immission] - Thermographische Bestimmung des elementaren Kohlenstoffs nach Thermodesorption des organischen Kohlenstoffs) durchgeführt. Dabei kommt ein Kohlenstoff-Analysator C-mat 5500 (Ströhlein) zum Einsatz. Im ersten Schritt wird die gesammelte Impaktor Probe unter Stickstoffatmosphäre auf  $650^\circ\text{C}$  erhitzt. Die unter diesen Bedingungen volatisierten Kohlenstoffanteile werden als organischer Kohlenstoff (OC) definiert. Der Nachweis erfolgt nach vollständiger Oxidation zu  $\text{CO}_2$  an einem CuO-Katalysator bei  $850^\circ\text{C}$  in einem NDIR - Detektor. Im zweiten Schritt wird der verbliebene nicht flüchtige Kohlenstoff unter Sauerstoffatmosphäre ebenfalls bei  $650^\circ\text{C}$  zu  $\text{CO}_2$  verbrannt und analog detektiert. Dieser Kohlenstoffanteil wird als elementarer Kohlenstoff (EC) bezeichnet. Die Summe aus OC und EC bildet den Gesamtkohlenstoff (TC). Carbonatkohlenstoff wird bei Temperaturen von  $650^\circ\text{C}$  nicht angegriffen. Das erhaltene OC/EC-Verhältnis hängt von den angewandten Bedingungen für die OC/EC-Trennung ab.

Es existieren zahlreiche Verfahren mit unterschiedlichsten Bedingungen, die veröffentlichte Messwerte schwer vergleichbar machen. Bisher hat sich kein allgemein anerkanntes Verfahren durchgesetzt. In internationalen Ringversuchen (unter Teilnahme des IfT) konnte gezeigt werden, dass die gefundenen TC-Werte meist gut vergleichbar waren, für OC bzw. EC jedoch Abweichungen zwischen den verschiedenen Methoden auftreten (Schmid u.a., 2001).

**Meteorologische Parameter:** Zur begleitenden Charakterisierung der meteorologischen Situation direkt an der Forschungsstation in Melpitz wurden folgende Parameter aufgezeichnet: Temperatur, Bodentemperatur, Windgeschwindigkeit und -richtung, Globalstrahlung, Niederschlag und Luftdruck.

Für eine Charakterisierung der Herkunft der Luftmassen im Zeitraum der Intensivmessphase Winter 2003 wurden 96-Stunden-Rückwärtstrajektorien für zwei Zeitpunkte im Probenahmezeitraum (18:00 Uhr und 2:00 Uhr MEZ) verwendet. Es wurden jeweils die Trajektorien für 200 m, 500 m und 1500 m ausgewertet (Quelle: <http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.htm>).

In der Intensivmessphase Winter 2003 wurden Messungen in der Zeit vom 27. Oktober bis 04. Dezember 2003 an der Forschungsstation in Melpitz (Station Melpitz im UBA-Messnetz) durch Mitarbeiter des IFT ausgeführt. Diese physikalisch-chemischen Messungen erfassten das troposphärische Partikelgrößenspektrum von 3 nm bis 10 µm aerodynamischer Partikeldurchmesser und überlappen sich hinsichtlich des aerodynamischen Durchmessers der erfassten Partikel teilweise. Die quasi parallele physikalische Zählung trockener Partikel und bis 300 °C nichtflüchtiger Partikelkerne (unter Vorsatz des Thermodenuders) beginnt mit dem UDMA (3-22 nm) und wird mit dem DMA (22nm bis 800) fortgesetzt. Die beiden DMA's sind Bestandteile des TDMPS-Systems. Mit dem BERNER-Impaktor (Stufen 1 bis 5) wird das Partikelgrößenspektrum im Bereich 0,05 µm bis 10 µm erfasst). Die drei DIGITEL-Filtertensammler erfassen PM<sub>10</sub>, PM<sub>2,5</sub> und PM<sub>1</sub>, Abbildung 2 veranschaulicht die jeweiligen Abschnitte des Partikelspektrums aus denen TDMPS, BERNER-Impaktor und DIGITEL-Filtertensammler physikalische bzw. physikalisch-chemische Informationen liefern.

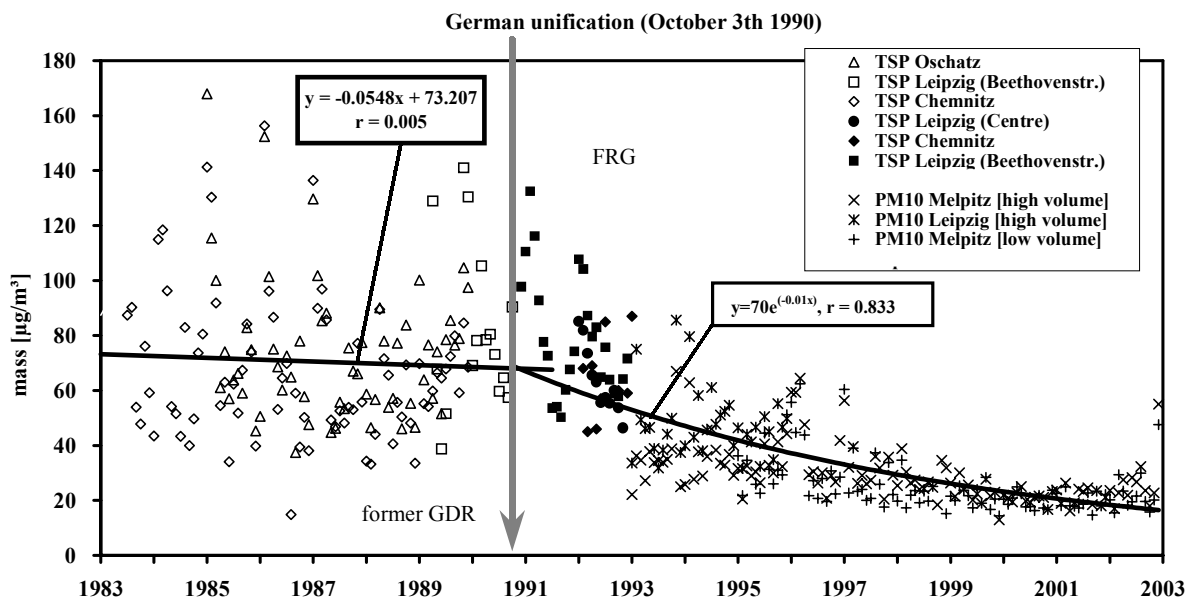


**Abbildung 2:** Veranschaulichung der mit unterschiedlichen Instrumenten beprobten Abschnitte des Partikelspektrums

### Ergebnisse aus den Langzeitmessungen der Partikelmassenkonzentration

In der Region um Leipzig wurde in der früheren DDR Strom auf der Basis von Braunkohle produziert. Hinzu kamen Emissionen aus veralteten Anlagen der chemischen- und Schwerindustrie. Mehr als 90 % der Haushalte wurden mit Braunkohlebriketts, meist durch Verbrennung in Einzelöfen, beheizt, wodurch eine sehr hohe Luftkonzentration von Spurengasen und Partikeln resultierte (Friedrich, 1997). In den 80er Jahren waren Flugaschen

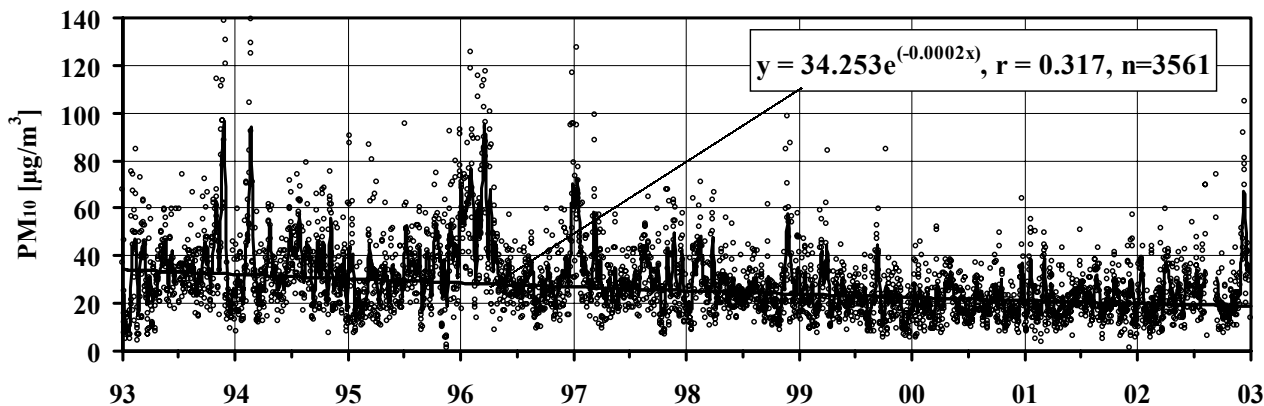
von Braunkohlekraftwerken, Industrieanlagen und individueller Heizung mit enthaltenen Metalloxiden, Salzen und Ruß der Hauptmassenbestandteil der Partikelgesamtkonzentration (TSP, total suspended particles), Möller und Lux, 1992. Seit 1983 wurden tägliche Messungen zur Gesamtpartikelmassenkonzentration vom damaligen Meteorologischen Dienst in der DDR vorgenommen (Zier, 1986). Von diesen Daten konnte eine mittlere TSP-Massenkonzentration für das südwestliche Sachsen abgeschätzt werden. Diese historischen Daten aus der Umgebung von Melpitz und Leipzig sind in Abbildung 3 in Zusammenhang mit eigenen Messungen aus Leipzig und Melpitz dargestellt.



**Abbildung 3:** Zeitreihe der monatlichen mittleren Partikelmassenkonzentration 1983 bis 2002 für Westsachsen. Die Daten basieren auf Mitteln 1983 bis 1992 für TSP von unterschiedlichen Orten im jetzigen Sachsen (Quelle: Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie) und eigenen PM<sub>10</sub>-Messungen aus Leipzig und Melpitz

Unterscheidet man in Abbildung 3 die Zeitreihe in die Abschnitte vor (1983 bis September 1990) und nach der Vereinigung beider deutschen Staaten (Oktober 1990 bis 2002), zeigt sich im ersten Abschnitt eine starke Streuung der Einzelwerte ohne einen signifikanten Trend mit einer mittleren Partikelmassenkonzentration von  $75 \mu\text{g m}^{-3}$ . Nach der Vereinigung fällt im zweiten Abschnitt die Partikelmassenkonzentration von 1990 bis 2002 auf einen mittleren Wert von  $23 \mu\text{g m}^{-3}$ . Ungeachtet des Wechsels auf eine PM<sub>10</sub>-Messung nach der Vereinigung (vor der Vereinigung TSP), ist ein exponentieller Konzentrationsabfall zu erkennen. Dieser wurde hauptsächlich verursacht durch abnehmende Emissionen der Industrie, bedingt durch großräumigen Produktionsabbau verbunden mit der Modernisierung einiger Industrieanlagen, den Neubau und die Sanierung von Kraftwerken und einen umfangreichen Ersatz von Einzelfeuerstätten durch moderne Heizungsanlagen. Dieser Effekt wird teilweise überlagert durch eine starke Zunahme des Straßenverkehrs mit einer absolut steigenden Anzahl von Fahrzeugen bei zunehmender Fahrleistung.

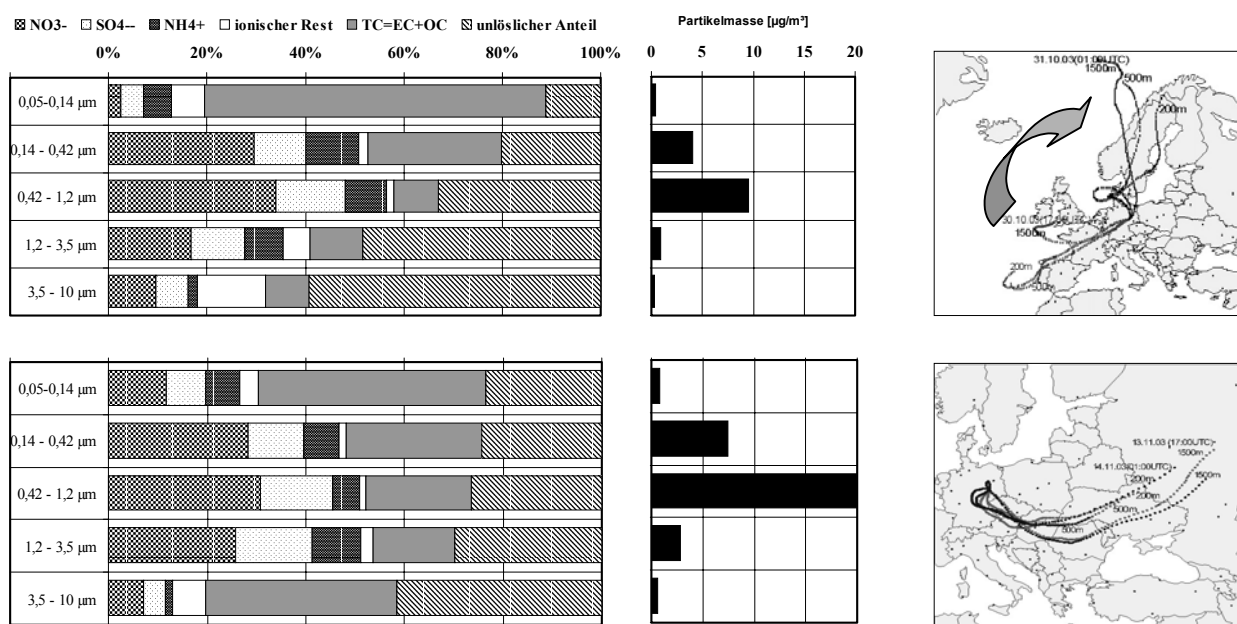
Abbildung 4 zeigt die PM<sub>10</sub>-Partikelmassenkonzentration an der Station Melpitz über 10 Jahre (1993 bis 2002). Es sind bei einem allgemein fallenden Trend ausgeprägte saisonale Variationen zu beobachten. Die höchste Jahreskonzentration wurde 1996 mit  $39 \mu\text{g m}^{-3}$  beobachtet, die niedrigste Jahreskonzentration wurde 2000 mit  $21 \mu\text{g m}^{-3}$  ermittelt. Besonders in den Wintern 93/94, 95/96 und 96/97 zeigen sich erhöhte Konzentrationen. Ursachen dafür sind einerseits meteorologischer Art, es herrschten Hochdruckwetterlagen mit niedrigen Temperaturen oft mit östlicher Anströmung und geringen Mischungsschichthöhe, andererseits wurden zu dieser Zeit auch noch mehr individuelle Kohleheizungen betrieben als jetzt.



**Abbildung 4:** Zehnjährige Zeitreihe der täglichen PM<sub>10</sub>-Konzentration an der Station Melpitz (kleine Kreise) mit gleitendem zentrierten 10-Tagesmittel (schwarze Linie) und exponentiellem Trend

### Größenfraktionierte physikalische und chemische Charakterisierung des Aerosols (Winter 2003) und Quellgebietszuordnung

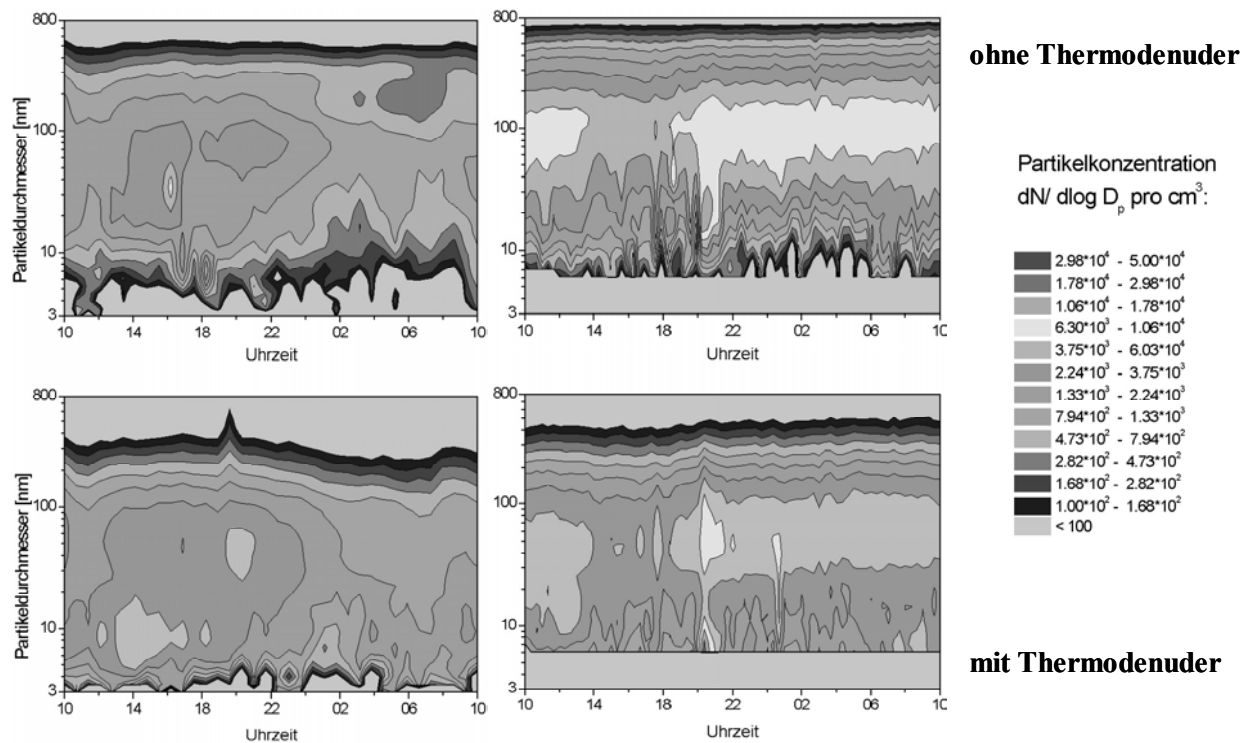
Abbildung 5 und 6 zeigen ein Beispiel für die physikalisch-chemische Partikelcharakterisierung im Winter 2003 an Tagen mit unterschiedlicher Anströmung. Die Probe mit Luftmassen vom Atlantischen Ozean (30. Oktober 2003) zeigt eine wesentlich geringere Partikelmassenkonzentration als die Probe mit Luftmassen, die von Russland über die Ukraine und die Tschechische Republik transportiert wurden (13. November 2003). Der Pfeil zeigt die Änderung der Quellregion am 30.10. im Atlantik (96 Stunden-Rückwärtstrajektorien für 18:00 und 02:00 MEZ in 200, 500 und 1500 m über Grund).



**Abbildung 5:** Beispiel für die Verteilung der wasserlöslichen Ionen, TC und Partikelmasse auf die 5 Stufen des BERNER-Impaktors (24 Stundenprobe, gestartet 10:00 Uhr MEZ am 30.10.03 oben und 13.11.03 unten) Die Trajektorien rechts zeigen die unterschiedlichen Quellregionen.

Der Sulfat- und Ammoniumgehalt ist in den aus kontinentalen Quellgebieten stammenden Partikeln mit einem aerodynamischer Durchmesser 0,14 bis 3,5 µm (diese Partikel mit relativ geringer Depositionsgeschwindigkeit unterliegen dem Ferntransport) in Anbetracht der absolut höheren Massekonzentration im Vergleich zur Probe mit atlantischer Anströmung durch anthropogene Einflüsse stark erhöht. Der relativ höhere TC-Gehalt bei kontinentaler Anströmung (13.11.) im Größenbereich aerodynamischer Durchmesser zwischen 3,5 und

10 µm (diese Partikel besitzen bereits eine relativ hohe Depositionsgeschwindigkeit) resultiert wahrscheinlich von anthropogenen Emissionen bei vergleichsweise niedrigen Temperaturen in der Umgebung. Die Probe enthält auch flüchtiges Material im Bereich aerodynamischer Partikeldurchmesser 0,05 bis 0,14 µm (kleinste Stufe BERNER-Impaktor) und darunter. Die absolute Massenkonzentration auf der Impaktorstufe 0,05 bis 0,14 µm ist etwa doppelt so hoch wie bei der Probe mit atlantischer Anströmung, in der kaum verdampfbare Material identifiziert wurde. Zum Gehalt an verdampfbaren Material gibt das TDMPS mit Thermodenuder Auskunft, vergleiche Abbildung 6.



**Abbildung 6:** TDMPS-Messungen für den 30.10. (links) und 13.11. (rechts) oben Größenverteilung ohne Thermodenuder für die gesammelten trockenen Partikel, unten Größenverteilung der nichtflüchtigen Kerne nach dem Thermodenuder.

Es ist möglich, die Ergebnisse der größenfraktionierten Partikelcharakterisierung für typische Hauptanströmungen zusammenzufassen. Für das Projekt aus dem Winter 2003 konnten jeweils drei Probenahmen mit dem BERNER-Impaktor für folgende Hauptanströmungen zusammengefasst werden:

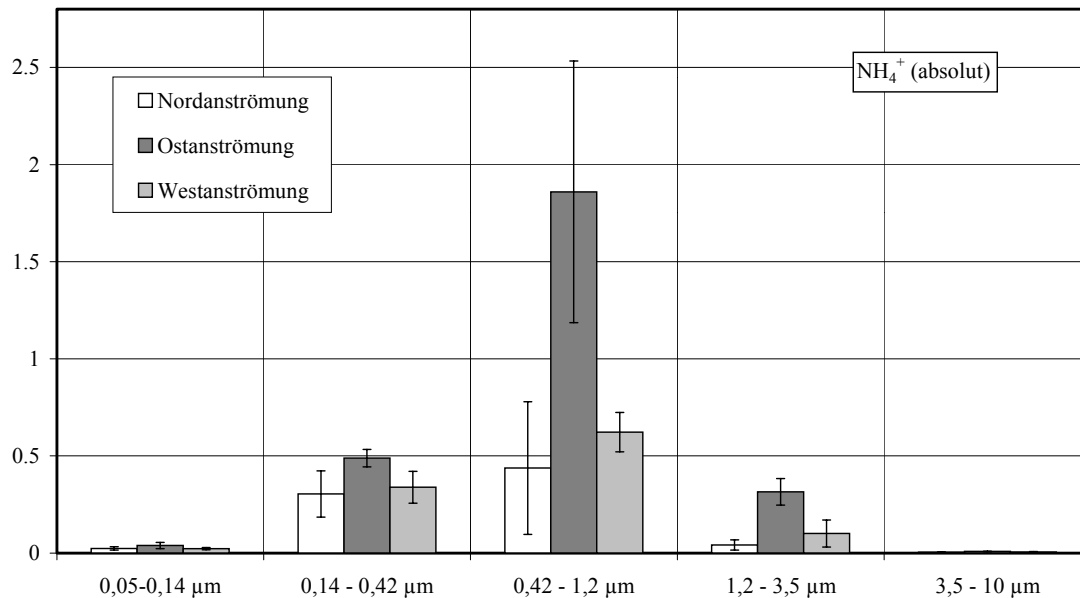
Hauptanströmung nördlicher Atlantik (*Nordanströmung*) 27.10., 30.10. und 03.11.03

Hauptanströmung westlicher Atlantik und Westeuropa (*Westanströmung*) 17.11., 20.11. und 24.11.03

Hauptanströmung Osteuropa, Festland (*Ostanströmung*) 08.11., 09.11. und 13.11.03

Abbildung 7 zeigt als Beispiel den Ammoniumgehalt für die unterschiedlichen Hauptanströmungen. Deutlich erhöhte Werte im Vergleich zur Nord- und Westanströmung zeigen sich bei einem Luftmassentransport mit Ostanströmung für Partikel, die am ausgeprägtesten dem Ferntransport unterliegen (mittlere drei Größenklassen). Die Ursache sind Emissionen von Ammoniak aus Landwirtschaft, Industrie und Verkehr (Misselbrook u.a. 2000, Sutton u.a. 2000, Perrino u.a. 2002). Ammoniak als einziges basisches Gas in der Troposphäre wird hauptsächlich durch Schwefeldioxid und Salpetersäure neutralisiert, die

sich bildenden Ammoniums Salze ergeben einen Zuwachs an Partikelmasse. Der Unterschied zwischen Nordanströmung und Westanströmung ist gering, die Westanströmung verursacht etwas höhere Konzentrationen, da die Luftmassen längere Zeit über Land transportiert wurden. Die Nordanströmung liefert die Hintergrundkonzentration für Melpitz. Für eine grundsätzliche Klassifizierung sind zwei Hauptanströmungen Südwest- und Ostanströmung zukünftig ausreichend.



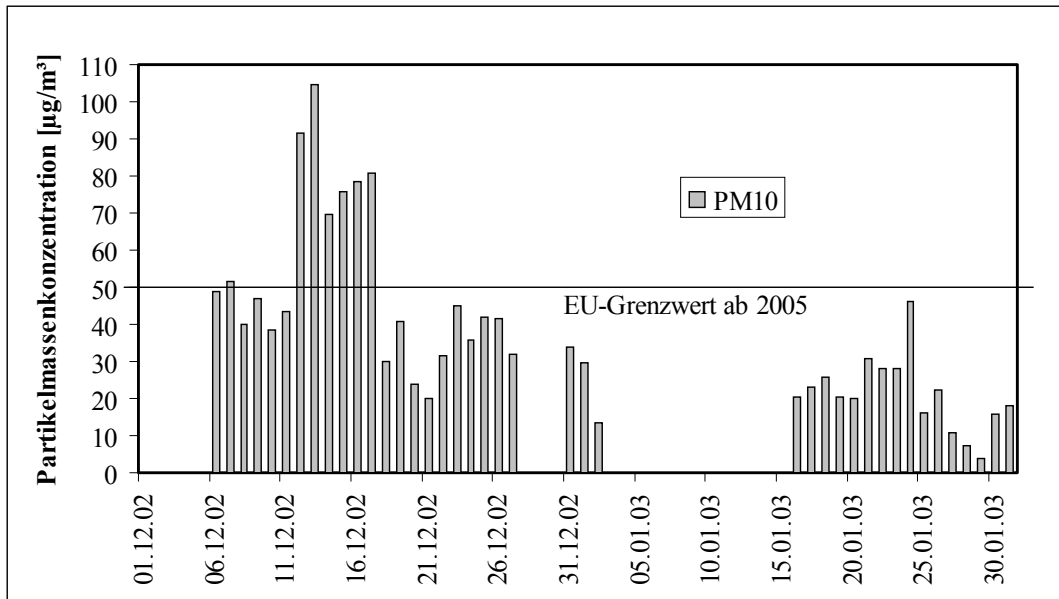
**Abbildung 7:** Absoluter Massegehalt Ammonium (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>) auf den Stufen des BERNER-Impaktors (jeweils gemittelt über drei Tage einer ähnlichen Anströmung). Dargestellt ist zusätzlich die Standardabweichung der Einzelwerte.

### Zusammenfassung und Ausblick

Die Partikelmassenkonzentration für PM<sub>10</sub> ist seit 1992 von durchschnittlich etwa 40 µg m<sup>-3</sup> auf etwa die Hälfte durch Wegfall anthropogener Emissionen gesunken und bleibt etwa seit dem Jahr 2000 konstant. Variationen werden heute hauptsächlich durch die Jahreszeiten und die Anströmrichtung bestimmt. Der Einfluss von Quellregionen auf die Partikelzusammensetzung konnte in einem gemeinsamen Forschungsvorhaben zwischen Umweltbundesamt und dem Leibniz-Institut für Troposphärenforschung im Winter 2003 gezeigt werden. Die UBA-Station und Forschungsstation des IfT in Melpitz eignet sich aufgrund ihrer geographischen Lage und infrastrukturellen Ausstattung zur größenfraktionierten physikalische-chemische Charakterisierung des Aerosols.

Auch heute kann der Grenzwert von 50 µg m<sup>-3</sup> für eine 24-Stundenprobe PM<sub>10</sub> in Deutschland in einem ländlichen Gebiet wie der Umgebung von Melpitz noch überschritten werden, vgl. Abbildung 8. In Phase 1 (verbindlich ab 2005) für die Qualitätsstandards für Partikel in der Troposphäre (EU-Commission, 1999) wird gefordert, dass dies bei einem Jahresmittel von 40 µg m<sup>-3</sup> nicht öfter als 35 mal im Jahr passieren darf. Inzwischen dürfte das geforderte Jahresmittel Phase 1 in der Melpitzer Region eingehalten werden. In Phase 2 wahrscheinlich verbindlich ab 2010 darf eine Überschreitung von 50 µg m<sup>-3</sup> nur noch 7-mal im Jahr passieren und ein Jahresmittelwert von 20 µg m<sup>-3</sup> ist, wahrscheinlich auch in der ländlichen Umgebung von Melpitz aus heutiger Sicht nicht immer einzuhalten.





**Abbildung 8:** PM<sub>10</sub>-Partikelmassenkonzentrationsmessung in Melpitz (Tagesproben, DIGITEL-Sammler). Der an 2005 geltende Tagesgrenzwert von 50 µg m<sup>-3</sup> wurde in 2 Monaten 7-mal überschritten.

Es ist deshalb notwendig, durch ein gezieltes Messprogramm zu analysieren, welche Massenanteile in Partikeln durch welche Quellen verursacht werden. Diese sind:

1. Beiträge durch primär emittierte Partikel (Partikelemission): Zunahme der Partikelmasse
2. Beiträge durch sekundär in der Folge chemischer Reaktionen und physiko-chemischer Vorgänge gebildeten Teilchen (Nukleation): Zunahme der Partikelmasse
3. Beiträge, die auf den Phasenübergang von Substanzen aus der Gasphase zurückzuführen sind (Kondensation): Zunahme der Partikelmasse.
4. Beiträge durch Verlust flüchtiger Partikelbestandteile: Abnahme der Partikelmasse

In den kommenden Jahren sollen deshalb am Standort Melpitz weitere gezielte Messungen zur gröÑenselektiven physikalisch-chemischen Partikelcharakterisierung erfolgen, die Teile der Anforderungen der „World Meteorological Organization/ Global Atmosphere Watch (WMO/GAW)“; vgl. WMO/GAW, 2003, erfüllen (Level 3 Station).

### Literatur

- Arnold, K., Ziemann, A., Raabe, A., Spindler, G. (2004) Acoustic Tomography and Conventional Meteorological Measurements over Heterogeneous Surfaces. *Meteorology and Atmospheric Physics*, 85, 175-186.
- Birmili, W., Stratmann, F. and Wiedensohler, A. (1999). Design of a DMA-based size spectrometer for a large particle size range and stable operation. *J. Aerosol Sci.* 30(4), 549-553.
- Brüggemann, E., Spindler, G. (1999) Wet and Dry Deposition of Sulphur at the Site Melpitz in East Germany. *Water, Air, and Soil Pollut.* 109, 81-99.
- Erismann, J.W., Hensen, a., Fowler, d., Flechard, C.R., Grüner, A., Spindler, G., Duyzer, J.H., Westrate, H., Römer, F., Vonk, A.W., Jaarsveld, H.V. (2001) Dry Deposition Monitoring in Europe. *Water, Air, and Soil Pollution: Focus* 1: 17-27, 2001.
- EU-Commission, 1999. Council Directive 1999/30/EC of 22 April 1999 relating to limit values for sulphur dioxide, nitrogen dioxide and oxides of nitrogen, particulate

- Friedrich, R., (1997). Ermittlung von Luftschadstoffemissionen in den neuen Bundesländern. In: Wissenschaftliches Begleitprogramm zur Sanierung der Atmosphäre über den neuen Bundesländern (SANA) Abschlussbericht, Band 1, Editor: BMBF/GSF – Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Garmisch-Partenkirchen, 37 Seiten.
- Heintzenberg, J., Müller, K., Birmilli, W., Spindler, G., Wiedensohler, A. (1998) Mass-related aerosol properties over the Leipzig Basin. *J. Geophys. Res.* 103D, 13.125- 13135.
- Hillamo, R.E., Kauppinen, E.I. (1991) On the Performance of the Berner Low Pressure Impaktor. *J. Aerosol Science and Technology*, 14, 33-47.
- Klemm, O., Millford, C., Spindler, G., van Putten, E. (2002) A climatology of leaf surface wetness. *Theoretical and Applied Climatology* 71, 107-117.
- Marquardt, W., Brüggemann, E., Auel, R., Herrmann, H., Möller, D. (2001) Trends of pollution in rain over East Germany caused by changing emissions. *Tellus*, 53B, 529-545.
- Misselbrook, T. H., Van der Weerden, T. J., Pain, B. F., Jarvis, S. C., Chambers, B. J., Smith, K. A., Phillips, V. R. and Demmers, T. G. M. (2000) Ammonia emission factors for UK agriculture. *Atmos. Environ.*, 34, 871-880.
- Möller, D., Lux, H., (1992). Deposition Atmosphärischer Spurenstoffe in der ehemaligen DDR bis 1990., Kommission Reinhaltung der Luft im VDI und DIN, Düsseldorf, Germany, Band 18 308 Seiten.
- Müller, K. (1999) A 3-year study of the aerosol in Northwest Saxony (Germany) *Atmos. Environ.* 33, 1679-1685.
- Neusüss, C., Wex, H., Birmilli, W., Wiedensohler, A., Koziar, C., Busch, B., Brüggemann, E., Gnauk, T., Ebert, M., Covert, D.S. (2002) Characterization and parameterization of atmospheric particle number, mass-, and chemical-size distribution in central Europe during LACE 98 and MINT. *J. Geophys. Res.*, doi:10.1029/2001JD000327.
- Perrino, C., Catrambone, M., Di Menno Di Bucchianico, A., Allegroni, I. (2002) Gaseous ammonia in the urban area of Rome, Italy and its relationship with traffic emissions. *Atmos. Environ.* 36, 5385-5394.
- Plewka, A., Gnauk, T., Brüggemann, E., Neusüss, C., Herrmann, H. (2003) Size resolved aerosol characterization for a polluted episode in autumn 1997 at the IfT research station Melpitz. *J. of Atmospheric Chemistry* (eingereicht).
- Putaud, J.-P., Raes, F., Van Dingenen, R., Brüggemann, E., Facchini, M.-C., Decesari, S., Fuzzi, S., Gehrig, R., Hüglin, C., Laj, P., Lorbeer, G., Maenhaut, W., Mihalopoulos, N., Müller, K., Querol, X., Rodriguez, S., Schneider, J., Spindler, G., ten Brink, H., Tørseth, K., Wiedensohler, A. (2004) A European aerosol phenomenology – 2: chemical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and background sites in Europe. *Atmos. Environ.*, 38, 2579-2595.
- Schmid, H., Laskus, L., Abraham, H.J., Baltensperger, U., Lavanchy, V., Bizjak, M., Burba, P., Cachier, H., Crow, D., Chow, J., Gnauk, Th., Even, A., ten Brink, H.M., Giesen, K.-P., Hitzinger, R., Hueglin, C., Maenhaut, W., Pio, C., Carvalho, A., Putaud, J.-P., Toom-Sauntry, D., Puxbaum, H. (2001) Results of the “carbon conference” international aerosol carbon round robin test stage I. *Atmos. Environ.* 35, 2111-2121.
- Stratmann, E., Siebert, H., Spindler, G., Wehner, B., Althausen, D., Heintzenberg, J., Hellmuth, O., Rinke, R., Schmieder, U., Seidel, C., Tuch, T., Urner, U., Wiedensohler, A., Wandinger, U., Wendisch, M., Schell, D., Stohl, A. (2003) New-particle formation events in a continental boundary layer: First results from the SATURN experiment. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* 3, 1445-1459.
- Spindler, G., Hesper, J., Brüggemann, E., Dubois, R., Müller, Th., Herrmann, H. (2003a) Wet annular Denuder Measurements of nitrous acid: Laboratory study of the artefact reaction of NO<sub>2</sub> with S(IV) in aqueous solution and comparison with field measurements. *Atmos. Environ.*, 37, 2643-2662.
- Spindler, G., Müller, K., Brüggemann, E., Gnauk, T., Herrmann, H. (2003b) Long-term size-segregated characterization of PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>1</sub> at the IfT research station Melpitz downwind of Leipzig (Germany). *Atmos. Environ.* (im Druck).
- Spindler, K., Müller, H., Herrmann (1999) Main particulate matter components in Saxony (Germany) - Trends and sampling aspects. *ESPR - Environ. Sci. & Pollut. Res.* 6, 89-94.
- Spindler, G., Mölders, N., Hansz, J., Beier, N., Kramm, G. (1996) Determining the dry deposition of SO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, NO, and NO<sub>2</sub> at the SANA core station Melpitz. *Meteorol. Zeitschrift*, N.F. 5, 205-220.
- Sutton, M. A., Dragosits, U., Tang, Y. S. and Fowler, D. (2000) Ammonia emissions from non-agricultural sources in the UK. *Atmos. Environ.*, 34, 855-869.
- Wehner, B., Philippin, S., Wiedensohler, A. (2002) Design and calibration of a thermodenuder with an improved heating unit to measure the size-dependent volatile fraction of aerosol particles. *Aerosol Sci.* 33, 1087-1093.
- WMO/GAW Aerosol Measurement Procedures, Guidelines and Recommendations (2003), Nr. 153 (WMO TD No. 1178), 67 Seiten (<http://www.wmo.ch/web/arep/reports/gow133.pdf>).
- Zier, M., (1986). Der Staubgehalt der Luft in wenig verstaubten Gebieten der DDR. *Zeitschrift für die gesamte Hygiene und ihre Grenzgebiete.* 14, 95-100.