

PM-Langzeitmessung und größen aufgelöste chemisch-physikalische Charakterisierung des Aerosols in Abhängigkeit von Windrichtung und Jahreszeit im urbanen Hintergrund (Forschungsstation Melpitz)

G. Spindler¹, E. Brüggemann¹, T. Gnauk¹, A. Grüner¹, H. Herrmann¹, K. Müller¹, Th. M. Tuch², B. Wehner¹, A. Wiedensohler¹, M. Wallasch³

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

2 Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH, (UFZ)

3 Umweltbundesamt, Dessau (UBA)

Ausgangssituation und Motivation

An der Forschungsstation des Leibniz-Institutes für Troposphärenforschung e.V. (IfT) in Melpitz finden seit 1993 dauerhaft tägliche Messungen für Partikelmassenkonzentration und den Gehalt wasserlöslicher Ionen für PM₁₀ statt (High-Volume). Seit 1995 werden zusätzlich auch für PM_{2,5} und seit 1999 für PM₁ Wochenmittel bestimmt (Low-Volume). Ab Juli 2004 werden PM_{2,5} (täglich) und PM₁ (alle 6 Tage) mit High-Volume Filtersammlern erfasst. Ergänzend dazu fanden zeitweise auch größen aufgelöste Messungen mit BERNER-Impaktoren in Melpitz und Leipzig statt, z.B. 1999 und 2000 (Herrmann u.a. 2006).

Im November und Dezember 2003 fanden umfangreiche Messungen innerhalb eines gemeinsamen Projektes „Feinstaubmessung; Charakterisierung des Aerosols im Messnetz des Umweltbundesamtes“ (Spindler u.a., 2004a) zur physikalisch-chemischen Charakterisierung des Aerosols statt. Es wurden einerseits Methoden auf ihre Einsetzbarkeit im Messnetz getestet und andererseits die Eignung des Messstandortes für eine repräsentative Aerosolcharakterisierung über einen längeren Zeitraum mit großräumiger Quellgebietszuordnung mittels Rückwärtstrajektorien geprüft.

Im Juli 2004 wurde mit der Bearbeitung eines umfangreicheren Messprogramms in einem gemeinsamen Forschungsvorhaben mit dem Umweltbundesamt (Förderkennzeichen 351 01 031) begonnen. Es konnte zwischenzeitlich ein umfangreicher Datensatz aus kontinuierlichen und aus saisonal gezielt vorgenommenen Messungen zur umfassenden chemisch-physikalischen Charakterisierung des Aerosols über das gesamte Größenklassenspektrum in einem urban beeinflussten ländlichen Raum Mitteldeutschlands gewonnen werden (Spindler 2004b, Wiedensohler u.a. 2005, Spindler u.a. 2005). Über eine Klassifizierung der Ergebnisse für Sommer- und Winterhalbjahr und hinsichtlich der beiden Hauptanströmungsrichtungen (maritim und kontinental) können Ursachen für Variationen der Partikelmassenkonzentration, -größenverteilung und -zusammensetzung erkannt werden.

Es wird das Messprogramm des vorerst zweijährigen Forschungsvorhabens vorgestellt und dessen Ergebnisse werden eingeordnet in die Langzeitcharakterisierung von Partikeln an der Station Melpitz (Spindler u.a., 2004c, Putaud, u.a. 2003, Heintzenberg u.a., 1998). Resultate der PM₁₀-Messung werden im Bezug zum Ballungsraum Leipzig diskutiert.

Aerosole sind stabile Suspensionen von festen oder flüssigen Partikeln in der Gasphase. Der Begriff des Aerosols umfasst dabei grundsätzlich sowohl die Partikel und die sie umgebende Gasphase. Partikel werden direkt in die Troposphäre emittiert (Primärpartikel) oder in Folge chemischer Reaktionen gebildet und verändert (Sekundärpartikel).

Größenverteilung und Zusammensetzung atmosphärischer Partikel sind hochvariabel. In der Troposphäre lässt sich eine modale Größenverteilung feststellen.

Partikel entfalten auf Grund ihrer unterschiedlichen physikalisch-chemischen Eigenschaften und ihrer Größenverteilung sehr komplexe Wirkungen. Atmosphärische Partikel beeinflussen direkt (Lichtstreuung oder Absorption) oder indirekt als Wolkenkondensationskerne die Strahlungsbilanz der Erde und somit das Klimasystem (Heintzenberg u.a., 1998). Partikel

wirken auf den menschlichen Organismus und beeinflussen je nach Größe und chemisch-physikalischer Zusammensetzung die menschliche Gesundheit (Kappos, u.a., 2004).

Der PM_{10} -Grenzwert von $50 \mu\text{g m}^{-3}$ für eine 24-Stundenprobe kann in Deutschland bereits in einem ländlichen Gebiet wie der Umgebung von Melpitz heute noch überschritten werden, vgl. Abbildung 5. In Phase 1 (verbindlich ab 2005) wird für die Qualitätsstandards der Partikel in der Troposphäre (EU-Commission, 1999) wird gefordert, dass diese bei einem Jahresmittel von $40 \mu\text{g m}^{-3}$ nicht öfter als 35 mal im Jahr überschritten werden dürfen. In Ballungsräumen kommen in Situationen einer großflächigen PM_{10} -Grenzwertüberschreitung darüber hinaus die dort ohnehin vorhandenen Partikelemissionen (Verkehr, Bautätigkeit, Heizung usw.), die ihrerseits Grenzwertüberschreitungen verursachen können, noch hinzu. Zur Benennung von Ursachen für großräumige PM_{10} -Grenzwertüberschreitungen werden deshalb am Standort Melpitz gezielte Messungen zur gröbenselektiven physikalisch-chemischen Partikelcharakterisierung ausgeführt. Diese orientieren sich an den Anforderungen der „World Meteorological Organization/ Global Atmosphere Watch (WMO/GAW)“, vgl. WMO/GAW, 2003).

Zukünftige Grenzwerte werden sich ohnehin zunehmend auch auf $PM_{2.5}$ konzentrieren müssen, da diese Partikel mit kleinerem aerodynamischen Durchmesser wesentlich länger in der Atmosphäre verweilen, weit transportiert werden und z.B. einen höheren Anteil an toxikologisch relevanten organischen Verbindungen enthalten (Bundesrat, 2005, Mills u.a., 2005, Jerrett u.a., 2005).

IJT-Forschungsstation Melpitz Aerosolmesstechnik, Analytik und meteorologische Parameter

Die Messungen zur physikalisch-chemischen Charakterisierung des Aerosols werden an der Forschungsstation Melpitz ($12^{\circ}56'$ OL, $51^{\circ}32'$ NB, 86 m über NN), ca. 50 km in nordwestlicher Richtung von Leipzig, bei Torgau auf einer großen, flachen Weide gelegen, ausgeführt. Der Standort wurde in unterschiedlichen Forschungsvorhaben ausführlich mikrometeorologisch und hinsichtlich der großräumigen Anströmung charakterisiert (vgl. Spindler u.a. 2004c und Referenzen darin).

Der Standort eignet sich für die vorgesehenen Messungen besonders, da er über die notwendige Infrastruktur verfügt. In unmittelbarer Umgebung befinden sich keine größeren Emittenten, die die gemessenen Parameter lokal wesentlich beeinflussen könnten (vgl. Abbildung 1). 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 sollte repräsentativ für große Teile Deutschlands sein. Die bisherigen Ergebnisse des Forschungsvorhabens 351 01 031 (Spindler u.a. 2005) zeigen, dass der ausgewählte Standort für die auszuführenden Messungen sehr gut geeignet ist und eine unterschiedliche Zusammensetzung der untersuchten Partikel hauptsächlich von unterschiedlichen großräumigen Anströmungen abhängt.

Es kommen im laufenden Forschungsvorhaben in kontinuierlichen Messungen moderne Techniken zum Einsatz, sie ermöglichen eine Charakterisierung des Aerosols über das gesamte troposphärische Größenspektrum (3 nm bis $10 \mu\text{m}$). In Intensivmessphasen werden Sammeltechniken eingesetzt, die zusätzliche chemische Analysen an den gröbenselektiv gesammelten Partikeln erlauben.

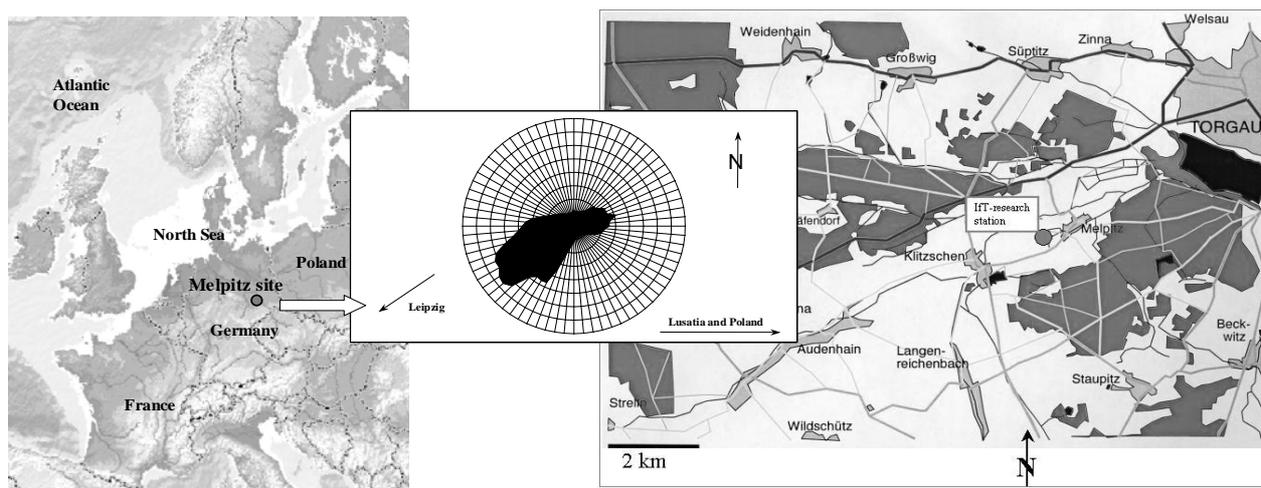


Abbildung 1: Umgebung der IFT-Forschungsstation Melpitz (bei Torgau). Die Windrose ist ein Mittel der Jahre 1992 bis 2001, es wurden 4,2 Millionen 5-Minutenmittel der Windrichtung bei Windgeschwindigkeiten $> 0,5$ m/s berücksichtigt. „Windstille“ herrsche damit in 8,6 % des Gesamtzeitraumes.

Kontinuierlich werden eingesetzt:

Automatische Filtersammler: 24 Stunden Probe 0:00 bis 24:00 Uhr täglich für PM_{10} und $PM_{2.5}$ und alle 6 Tage täglich für PM_1 (DIGITEL-Filtersammler DHA-80 (Riemer Messtechnik, Deutschland). Es werden auf den Quarzfaserfiltern (Munktell, Schweden) die Partikelmasse, der Gehalt an Ionen (Cl^- , SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+}) sowie des elementaren (EC) und organischen Kohlenstoffs (OC) bestimmt. Die Massebestimmung erfolgt durch Wägung. Der Ionengehalt wird mit Hilfe der Ionenchromatographie und der Kohlenstoffgehalt thermographisch bestimmt (VDI 2465).

TDMPS-System: Dieses System (*T*win *D*ifferential *M*obility *P*article *S*izer, Birmili u.a., 1999) erlaubt die alternierende Messung der wasserfreien (trockenen) Anzahlgrößenverteilung von Aerosolpartikeln, sowie die Messung der Anzahlgrößenverteilung „nichtflüchtiger Kerne“ nach dem Thermodenuder im Bereich 3 bis 800 nm Stokes-Durchmesser. Dieser Thermodenuder besteht aus zwei Teilen, durch die der Aerosolstrom nacheinander geleitet wird. Im Ersten werden die Partikel auf die eingestellte Temperatur erhitzt ($25-300^\circ C$), 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.

Aerodynamischer Partikelzähler: Zur Bestimmung der Anzahlgrößenverteilung im Bereich 0,6 bis $10 \mu m$ wird ein aerodynamischer Partikelzähler (*APS*, *A*erodynamic *P*article *S*izer) aufgebaut. Der APS beruht auf dem Prinzip der Trägheit. Es wird die Partikelgeschwindigkeit hinter einer Beschleunigungsdüse als Funktion des aerodynamischen Partikeldurchmessers registriert.

Der Stokes-Durchmesser und der aerodynamische Durchmesser eines Partikel sind zwei äquivalente Größen. Der Stokes-Durchmesser ist der Durchmesser einer Kugel, die dieselbe Sedimentationsgeschwindigkeit und Dichte wie das Partikel hat. Der aerodynamische Durchmesser ist der einer Kugel mit der Dichte 1 g/cm^3 z.B. Wasser, die dieselbe Sedimentationsgeschwindigkeit wie das Partikel hat.

Nephelometer: Zur Messung des Streukoeffizienten wird ein integrierendes 1-Wellenlängen Nephelometer (550 nm) verwendet. Dieses Instrument misst die Lichtstreuung von PM_{10} im Volumen über einen Winkelbereich von $7-170^\circ$.

TEOM®: Mittels eines TEOM-Systems 1400 der Firma Rupprecht & Patashnick Co., Inc., USA, wird die Partikelmassenkonzentration PM_{10} bestimmt. Die Massebestimmung erfolgt hier durch kontinuierliche Wägung eines mit Partikeln (PM_{10}) beaufschlagten Filters auf einer Mikrowaage. Das Schwingungsverhalten dieser TEOM-Mikrowaage ist eine Funktion der Partikelmasse. Der Lufteinlass wird auf 50 °C geheizt, um den Effekt durch Kondensieren oder Verdampfen von in den Partikeln enthaltenem Wasser zu vermeiden. Durch das Heizen des Einlasses kann es bei hohem Ammoniumnitratgehalt der Partikel in Abhängigkeit von der Außentemperatur zu einem Masseverlust bis 50 % gegenüber der PM_{10} -Massenbestimmung mit einem Filtersammler kommen (Charron u.a., 2004). Das TEOM-System wird zur Registrierung relativer Partikelmassenkonzentrationsänderungen (PM_{10}) mit einer relativ hohen zeitlichen Auflösung verwendet. Der mittlere Masseverlust für 24 Stunden ist durch Vergleich mit der gravimetrisch ermittelten Masse des Filtersammlers für PM_{10} quantifizierbar. Ein möglicher, gegenüber dem TEOM bei Umgebungstemperatur geringerer Masseverlust der Filterprobenahme wird bei diesem Vergleich vernachlässigt.

An Winter- und Sommertagen mit möglichst gut zuordenbaren maritimen bzw. kontinentalen Anströmungen kommen zusätzlich in Messkampagnen zum Einsatz:

BERNER Impaktor: Zeitlich synchron zu den Filtersammlern erfolgt an mindestens 10 Tagen im Sommer und mindestens 10 Tagen im Winter jeweils bei unterschiedlicher Hauptanströmung die größen aufgelöste 24 stündige Partikelprobenahme mit einem fünfstufigen Niederdruck-Kaskaden-Impaktoren nach BERNER. Die Impaktion der Partikel erfolgt auf Aluminium-Folien. Es werden die Masse, der Gehalt an Anionen, Cl^- , SO_4^{2-} , NO_3^- und der Kationen, NH_4^+ , Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , sowie des elementaren (EC) und des organischen Kohlenstoffs (OC) für jede Größenfraktion bestimmt. Die Bestimmung ausgewählter unpolarer semivolatiler organischer Einzelspezies kann direkt von den Impaktorfolien mittels Curiepunkt-Pyrolyse-GC-MS erfolgen. Von zusätzlich aufgelegten Polycarbonatfolien (Nuclepore-Filter) ist die Quantifizierung ausgewählter Schwermetalle mittels PIXE möglich.

MOUDI-Impaktor: Der MOUDI (Micro Orifice Uniform Deposit Impaktor) erlaubt in diesem Vorhaben die am feinsten größen aufgelöste Abscheidung von Partikeln zur Massebestimmung und chemischen Analytik (Ionen und Kohlenstoffgehalt). Dieser Kaskadenimpaktor erlaubt die Sammlung von Partikeln in Abhängigkeit von ihrem aerodynamischen Durchmesser (D_p) auf 10 Stufen. Als Abscheidemedium dienen kreisförmige Aluminiumfolien mit 47 mm Durchmesser. Durch eine zusätzliche Rotation erfolgt die Partikelabscheidung im MOUDI möglichst flächig entlang von Strecken, die die jeweilige Düse überstreicht. Die 10 Stufen des MOUDI umfassen den Größenbereich 0,056 bis 18 μm D_p . Der MOUDI-Impaktor muss bei der zu erwartenden Partikelmassenkonzentration in Melpitz für einen Zeitraum von 5 bis 7 Tagen (jedoch mindestens 100 Stunden) betrieben werden, um genügend Masse für gesicherte Analyseergebnisse zu liefern. Es erfolgt jeweils im Winter und Sommer eine Probenahme.

Die für die Langzeitmessungen verwendeten Filtersammler, für 24 Stundenproben PM_{10} ein High-Volume Sammler (Andersen Samplers Inc., USA) und für Wochenproben PM_{10} , $PM_{2,5}$ und PM_1 der „Partisol 2000“ low-volume Sammler (Rupprecht und Patashnik Co. Inc., USA) sind ausführlich beschrieben und getestet worden (Spindler u.a. 2004c).

An der Melpitzer Station gemessene meteorologische Parameter (Lufttemperatur, Windgeschwindigkeit, Windrichtung, Globalstrahlung, Niederschlagsmenge und Luftdruck) werden zur Interpretation der Ergebnisse verwendet. Mit Hilfe von Rückwärtstrajektorien (Quelle: <http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.htm>) für 96 Stunden in 200, 500 und 1500 m über Grund für täglich 10:00 und 18:00 Uhr MEZ kann die Herkunft der jeweils beprobten Luftmasse Quellgebieten zugeordnet werden. Diese Trajektorien werden für die Zuordnung von Messtagen in die zwei Hauptanströmungen (maritim und kontinental) verwendet.

Beispiele für Langzeitmessungen und Ergebnisse aus dem UBA-Forschungsvorhaben

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).

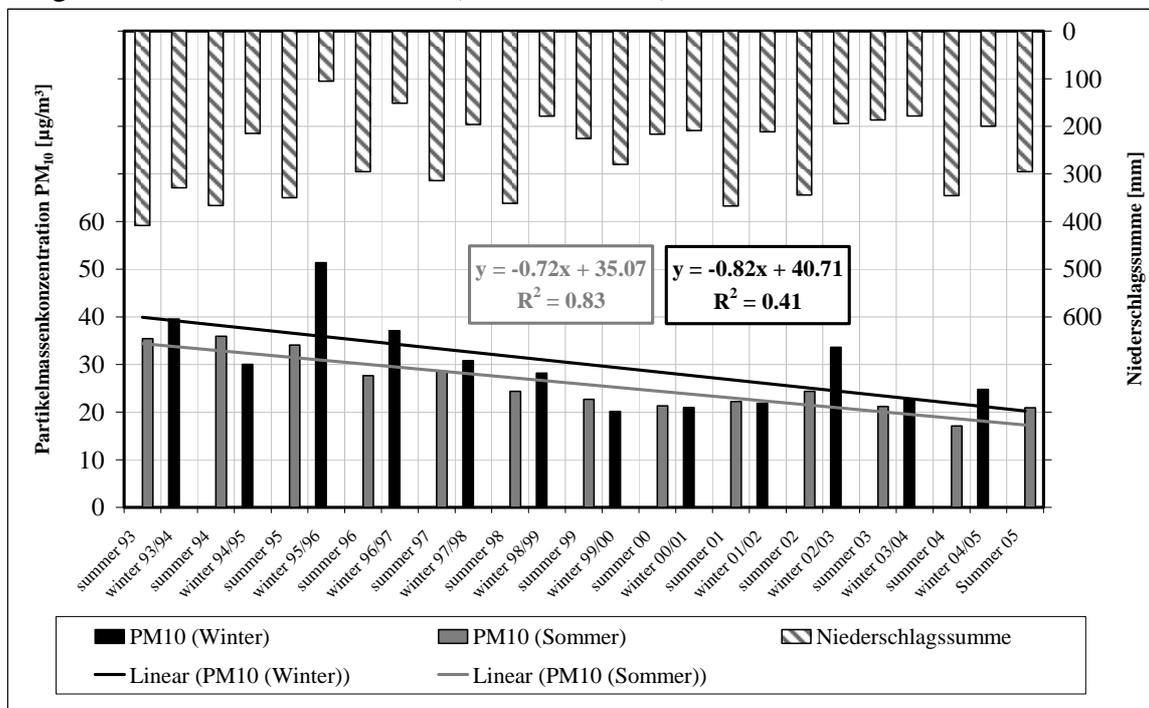


Abbildung 2: Verlauf der Winter- und Sommermittel der PM₁₀-Massenkonzentration und der Niederschlagssumme in Melpitz für den Zeitraum 1993 bis 2005. Der Niederschlag ist invers dargestellt. Das Wintermittel beinhaltet die Monate November bis April.

Abbildung 2 zeigt die Winter und Sommermittelwerte der PM₁₀-Partikelmassenkonzentration an der Station Melpitz über mehr als 12 Jahre. Es sind bei einem allgemein bis 1999 fallenden Trend ausgeprägte saisonale Variationen zu beobachten. 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 geringer Mischungsschichthöhe, andererseits wurden zu dieser Zeit auch noch mehr individuelle Kohleheizungen betrieben. Insgesamt ist die interannulare Variationen in den Wintern höher ($R^2=0.41$ gegenüber Sommer $R^2 = 0,83$ bei linearem Ausgleich). Eine direkte Korrelation mit dem Niederschlag ist nicht erkennbar, sehr trockene Winter bedingen wohl aber höhere PM₁₀-Konzentrationen. Die erhöhte interannulare Variabilität im Winter wird bedingt durch eine geringere turbulente Vermischung in einem im Mittel geringeren Mischungsvolumen, verursacht durch eine niedrigere Grenzschicht im Winter. Deshalb kommt es, nachdem die mittleren PM₁₀-Konzentrationen ab 2003 mit etwa 23 µg/m³ konstant bleiben, besonders im Winter bei Ferntransport vom Kontinent auch außerhalb der Ballungsräume immer wieder großflächig zu Überschreitungen des Tagesgrenzwertes von 50 µg/m³. Auch im letzten Winter trat Ende Januar bis Anfang Februar eine solche Episode auf. Abbildung 3 zeigt die großflächige Überschreitung des Tagesgrenzwertes der PM₁₀-Konzentration über Deutschland am 28. und 29. Januar 2006 (vgl. dazu auch Abbildung 5).

Abbildung 4 zeigt Messungen, die von 1995 bis 1998 für PM₁₀ und PM_{2,5} und ab 1999 auch zusätzlich für PM₁ mit dem „Partisol 2000“ low-volume Sammler (Rupprecht und Patashnik)

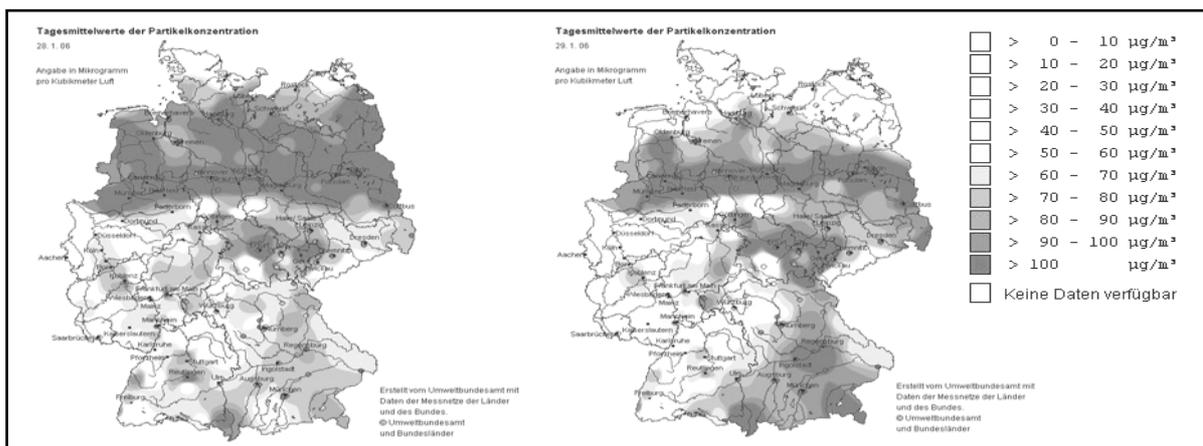


Abbildung 3: Partikelmassenkonzentration PM₁₀ über Deutschland, 28. (links) und 29. (rechts) Januar 2006 (Quelle: Umweltbundesamt)

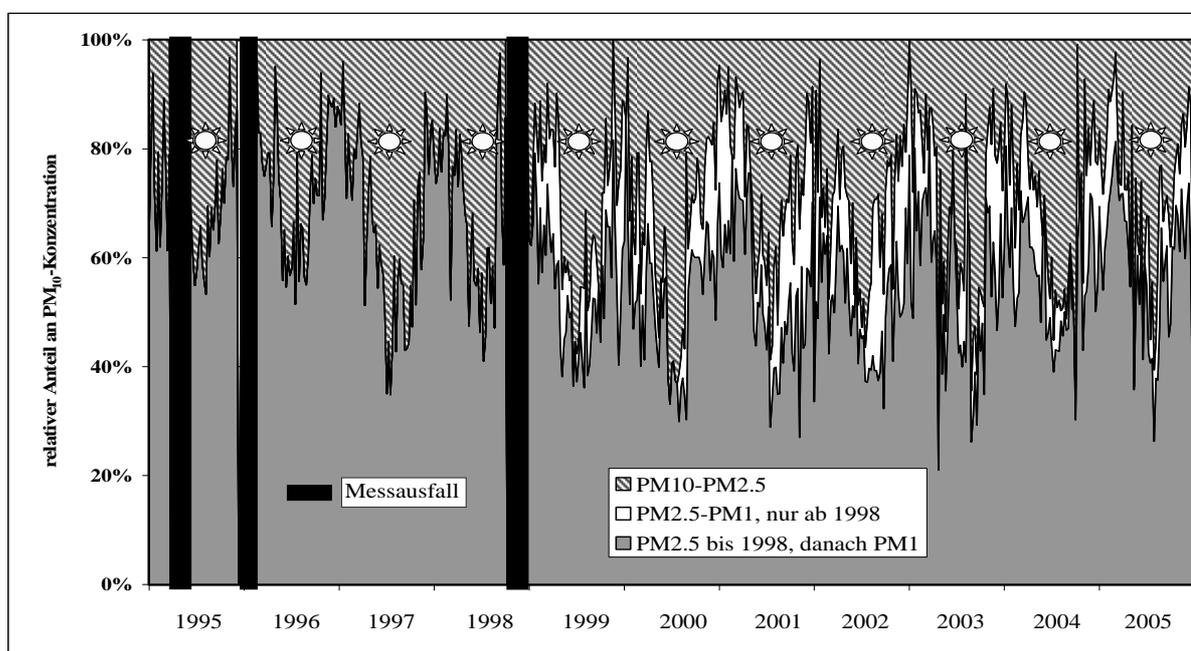


Abbildung 4: Relativer Anteil der Partikelmassenkonzentration PM_{2,5} (1995 bis 1998) und ab 1999 von PM₁ und PM_{2,5}-PM₁ an PM₁₀ (Wochenmittel).

Erfolgt. Dargestellt ist in dieser Abbildung der prozentuale Anteil von PM₁₀-PM_{2,5} bzw. ab 1999 auch von PM₁ und PM_{2,5}-PM₁ an der Fraktion PM₁₀. Es zeigt sich jeweils für die Sommer ein erhöhter relativer Anteil der Grobstaubfraktion PM₁₀-PM_{2,5}. Von 1995 bis etwa 1997 scheint dieser Anteil etwas angestiegen zu sein. Eine Ursache kann im Rückgang der großräumigen Grobstaubbelastung gesehen werden, wodurch Effekte, die besonders im Sommer auftreten, wie Resuspension von umliegenden Feldern und zusätzliche Aufwirbelungen durch landwirtschaftliche Aktivitäten sich stärker als lokal bedingtes Ereignis abbilden. Mit den einsetzenden PM₁ Messungen ab 1999 wird deutlich, dass der relative Anteil der Fraktion PM_{2,5}-PM₁, u.a. verursacht durch Verbrennungsprozesse, im Winter höher ist. Im Winter wird PM₁₀ zeitweise nahezu von PM_{2,5} bestimmt (vgl. dazu auch Abbildung 5). Die Schwankungen zwischen den Jahren resultieren aus unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen. So tragen trockene Hitzeperioden im Sommer zur Erhöhung des Grobstaubanteils bei.

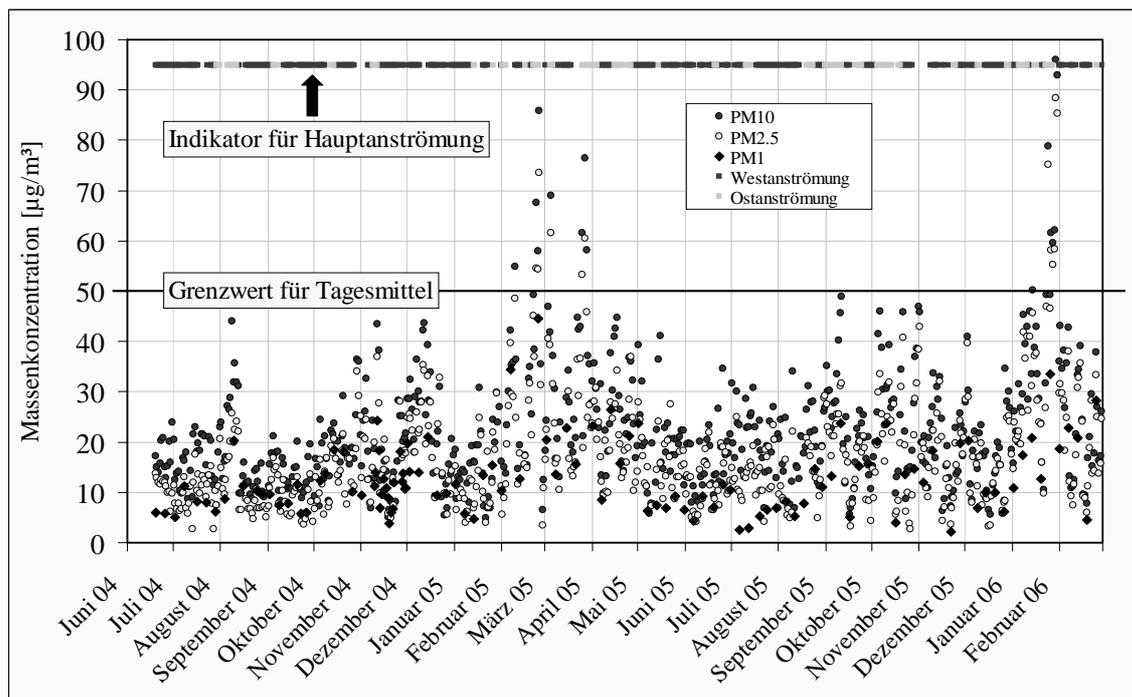


Abbildung 5: Tägliche Partikelmassenkonzentrationen PM_{10} und $PM_{2.5}$ (PM_1 jeden 6. Tag) mit Indikator für östliche bzw. westliche Anströmung

Abbildung 5 zeigt die täglichen Messungen mit dem DIGITEL-Filtersammler für PM_{10} und $PM_{2.5}$. PM_1 wurde alle 6 Tage gemessen. Mit angegeben ist ein Indikator für östliche (kontinentale Luftmassen) und westliche Anströmung (maritime Luftmassen und maritime Luftmassen über westeuropäisches Festland). Die Zuordnung erfolgte über 96-Stundenrückwärtstrajektorien. Der Indikator ist nur bei eindeutiger Zuordnung angegeben. Es zeigen sich innerhalb des Bearbeitungszeitraums (Juni 2004 bis Februar 2006) zwei Perioden mit deutlich erhöhten PM_{10} -Werten (März und April 2005 und Ende Januar 2006). Typisch für diese Episoden erhöhter PM_{10} -Partikelmassenkonzentration ist zum einen das Auftreten in Verbindung mit östlicher Anströmung (kontinentale Luftmassen, ohne Niederschlag bei winterlichen Hochdruckwetterlagen) und zum anderen gleichzeitig eine deutliche Erhöhung der Partikelmassenkonzentration $PM_{2.5}$. Dies bedeutet, es ist in diesen Luftmassen kaum Grobstaub ($PM_{10}-PM_{2.5}$) enthalten und Partikel mit kleinem aerodynamischen Durchmesser und geringerer Masse, die länger in der Troposphäre verweilen können, werden ferntransportiert. Im Gegensatz dazu kann man im August 2004 und im Herbst 2004 und 2005 jeweils Episoden erkennen, wo PM_{10} die $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ Konzentration überschreitet, aber $PM_{2.5}$ deutlich kleinere Konzentrationen aufweist. Damit ist der relative Anteil der lokal bedingten Grobstaubkonzentration ($PM_{10}-PM_{2.5}$) hoch (vgl. auch Abbildung 4) und hier wahrscheinlich landwirtschaftlichen Aktivitäten zuzuschreiben.

Abbildung 6 zeigt Mittelwerte für die Halbjahre Sommer 2004 und 2005 und Winter 2004/05 für Partikel PM_{10} , $PM_{2.5}$ und PM_1 für eindeutig zuordenbare Hauptanströmung Ost (kontinentale Luftmassen) und West (maritime Luftmassen und maritime Luftmassen über westeuropäisches Festland). Prinzipiell sind die Partikelmassenkonzentrationen bei östlicher Anströmung absolut größer als bei westlicher Anströmung. Die Ursachen dafür sind meteorologisch bedingt und auf die Quellgebiete zurückzuführen. Bei westlicher Anströmung sind die Windgeschwindigkeiten höher und Regenschauer sind der Luftmasse eingelagert. Bei kontinentaler Anströmung existieren oft Hochdruckwetterlagen und trockene Luftmassen werden mit moderaten Windgeschwindigkeiten über Landmassen transportiert. Die Hauptquellgebiete bei westlicher Anströmung sind Deutschland, die Benelux Staaten, Frankreich und Meeresoberflächen, bei östlicher Anströmung kommen die Luftmassen aus

Polen, Weißrussland, der Ukraine und der Tschechischen Republik. In diesen Gebieten existieren im Gegensatz zu Westeuropa, Kohlekraftwerke mit wenig effizienter Abgasreinigung, veraltete Industrieanlagen und hauptsächlich Kraftfahrzeuge älteren Baujahres. Bei maritimer Anströmung ist die Differenz zwischen Winter- und Sommerhalbjahr gering, es ist aber deutlich zu sehen, dass im Sommer mehr Grobstaubpartikel (PM_{10} - $PM_{2.5}$) existieren (vgl. Abbildung 4), diese entstehen hauptsächlich durch Resuspension an trockenen Oberflächen und durch landwirtschaftliche Aktivitäten. Im Sommer 2005 sind die Partikelmassenkonzentrationen etwas höher als im Sommer 2004, eine Ursache dafür ist weniger Niederschlag im Sommer 2005 (vgl. auch Abbildung 2). Im Winter werden deutlich höhere Massenkonzentrationen für Sulfat, Nitrat und Ammonium gemessen, da einige dieser Salze im Sommer thermisch flüchtig sind. Die höchsten Massenkonzentrationen für PM_{10} und $PM_{2.5}$ werden im Winter in kontinentalen Luftmassen gemessen, dann sind auch die anthropogen bedingten Emissionen am höchsten. Im Winter ist der Grobstaubanteil gering und kleinere Partikel können länger in der Troposphäre verweilen (Ferntransport, vgl. Abbildung 4 und 5). Typisch ist dann auch das flächenhafte Auftreten von hohen Partikelmassekonzentrationen PM_{10} (vgl. Abbildung 3). Diese Situation führt zur Überschreitung von PM_{10} Tagesgrenzwerten auch in den Ballungszentren. Lokale administrative Maßnahmen zur Senkung der Feinstaubbelastung zeigen dann keine Wirkung.

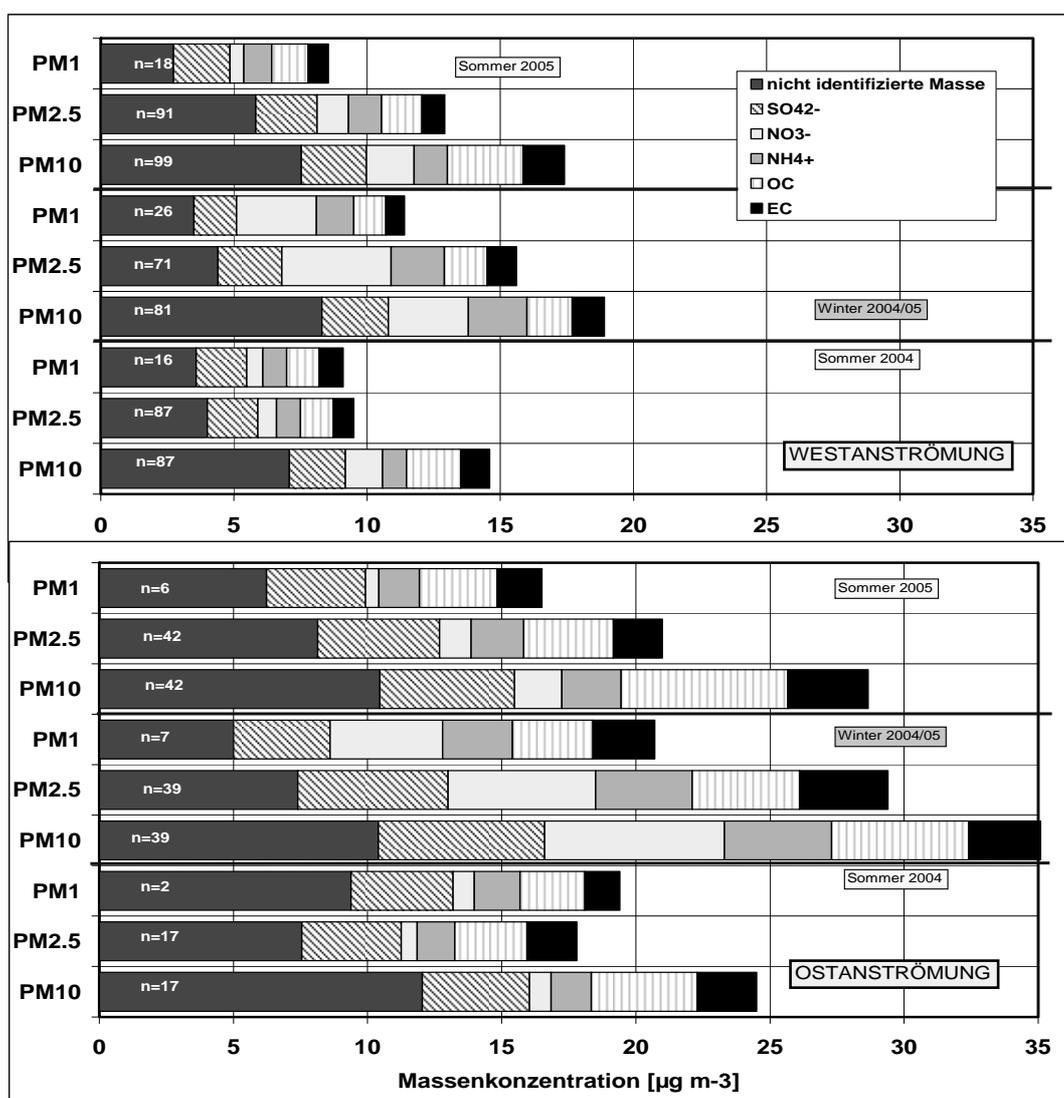


Abbildung 6: Mittelwerte für Tage mit eindeutiger West- oder Ostanströmung für Partikelmassenkonzentrationen PM_{10} , $PM_{2.5}$ und PM_1 und die Inhaltsstoffe wasserlösliche Ionen und Kohlenstoff (Sommer: Mai bis Oktober, Winter: November bis April).

Abbildung 7 zeigt mittlere Verteilungen des Partikeldurchmessers über den Tag für Sommer 2004 und Winter 2004/05 unterschieden nach westlicher (maritim) und östlicher (kontinentaler) Anströmung. Zusätzlich ist noch das Ergebnis nach dem Durchgang durch den Thermodenuder gezeigt (Abdampfen flüchtiger Bestandteile). Deutlich zu erkennen ist Partikelneubildung im Sommer mit Beginn der Auflösung der Mischungsschicht. Dieses Ereignis ist stärker bei östlicher Anströmung (trockene Hochdrucklage). Im Winter treten solche Ereignisse eher nicht auf. Nach Durchgang durch den Thermodenuder sind flüchtige Bestandteile nicht mehr vorhanden und die Verteilung ist zu kleineren Partikeln hin verschoben, auch im Winter zeigt der Thermodenuder Wirkung.

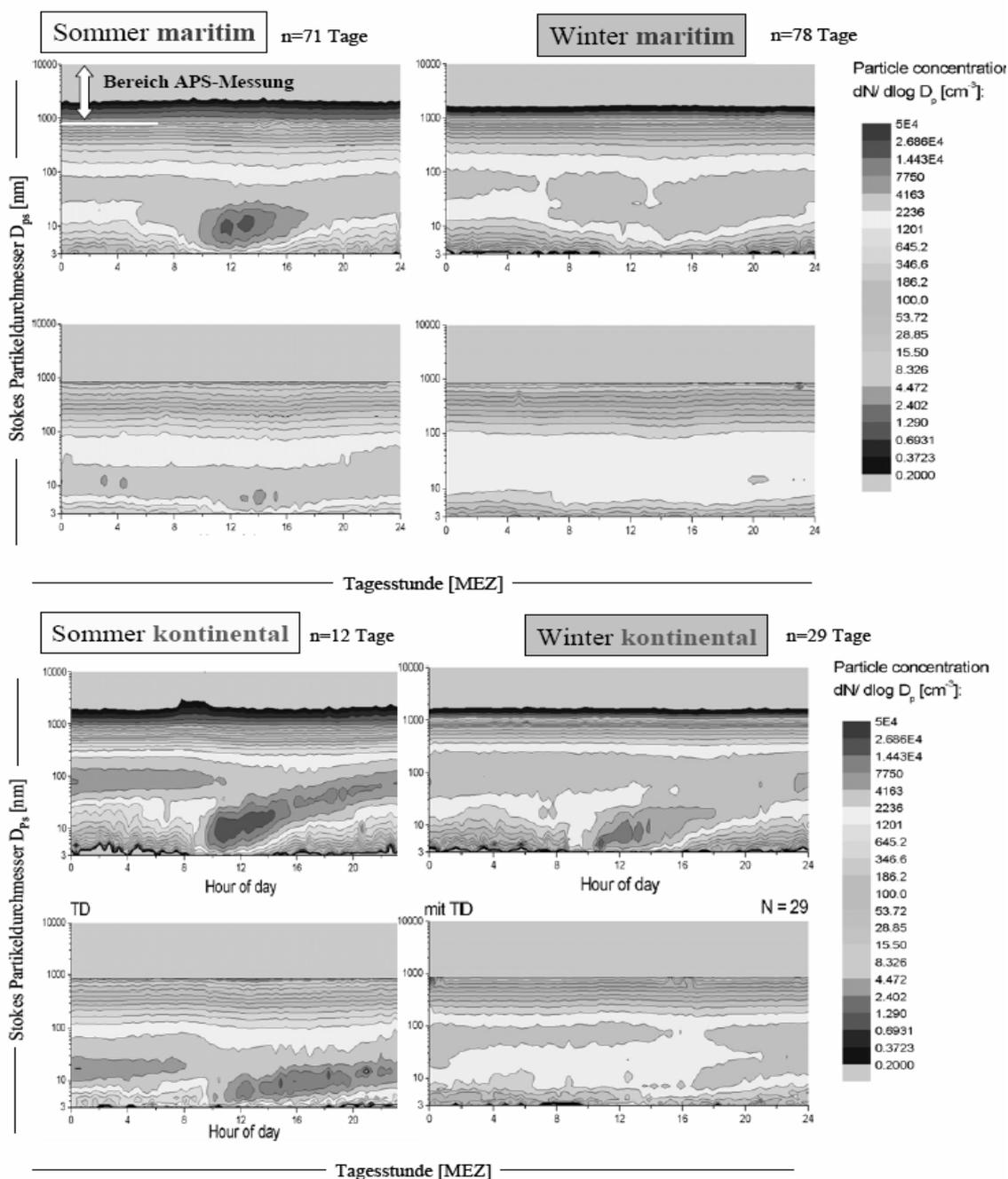


Abbildung 7: Mittelung der Messungen mit dem TDMPS/APS (obere Plots) und dem TDMPS nach Durchgang des Aerosols durch einen Thermodenuder (untere Plots) für Ost- und Westanströmung (Beispiel Sommer 2004 und Winter 2004/05)

Literatur

- 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.
- Bundesrat 2005, Unterrichtung durch die Bundesregierung: Vorschlag für eine Richtlinie des Europäischen Parlaments und des Rates über die Luftqualität und saubere Luft in Europa, KOM(2005) 447 endg.; Ratsdok. 14335/05, Frucksache 829/05 vom 23.11.2005.
- Charron, A., Harrison, R.M., Moorcroft, S., Booker, J. (2004) Quantitative interpretation of divergence between PM10 and PM2.5 mass measurement by TEOM and gravimetric (Partisol) instruments. *Atmos. Environ.* 38, 415-423.
- 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 matter and lead in ambient air. *Official Journal of the European Communities* L163, 41-60.
- 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., Birmili, W., Spindler, G., Wiedensohler, A. (1998) Mass-related aerosol properties over the Leipzig Basin. *J. Geophys. Res.* 103D, 13.125- 13135.
- Herrmann, H., Brüggemann, E., Frank, U., Gnauk, T., Löschau, G., Müller, K., Plewka, A., Spindler, G. (2006) A Source Study of PM in Saxony by size-segregated Characterisation. *Journal of Atmospheric Chemistry* (accepted).
- Jerrett, M., Burnett, R.T., Ma, R., Pope, C.A. (3rd), Krewski, D., Newbold, K.B., Thurston, G., Shi, Y., Finkelstein, N., Calle, E.E., Thun, M.J. (2005) Spatial analysis of air pollution and mortality in Los Angeles. *Epidemiology*, 16, 727-736.
- Kappos, A.D., Bruckmann, P., Eikmann, T., Engler, N., Heinrich, U., Höppe, P., Koch, E., Krause, G.H.M., Krayling, W.G., Rauchfuss, K., Rombout, P., Schulz-KLemp, V., Thiel, W.R., Wichmann, H.-E. (2004) Health effects of particles in ambient air. *Int. J. Hyg. Environ. Health* 207, 399-407.
- Mills, N.L., Törnqvist, H., Robinson, S.D., Gonzalez, M., Darnley, K., MacNee, W., Boons, N.A., Donaldson, K., Blomberg, A., Sandstrom, T., Newby, D.E. (2005) Diesel Exhaust Inhalation Causes Vascular Dysfunction and Impaired Endogenous Fibrinolysis. *Circulation*, 112, 3930-3936.
- Putaud, J.-P., Raes, F., van Dingenen, R., Baltensperger, U., Brüggemann, E., Facchini, M.-C., Decesari, S., Fuzzi, S., Gehrig, R., Hansson, H.-C., 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., Wehner, B., Wiedensohler, A. (2003) A European Aerosol Phenomenology 2: chemical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and background sites in Europe. *Atmospheric Environment* 38: 2579-2595.
- Spindler, G., Brüggemann, E., Gnauk, T., Grüner, A., Herrmann, H., Müller, K., Tuch, Th.M., Wehner, B., Wiedensohler, A. (2004a) Feinstaubmessung; Charakterisierung des Aerosols im Messnetz des Umweltbundesamtes. Abschlussbericht UBA-Forschungsvorhaben Förderkennzeichen 351 01 022, 37 Seiten.
- Spindler, G., Brüggemann, E., Gnauk, T., Grüner, G., Herrmann, H., Müller, K., Tuch, Th.M., Wehner, B., Wiedensohler, A., Werner, H. (2004b) Größenaufgelöste chemisch-physikalische Langzeitcharakterisierung troposphärischer Partikel an der Forschungsstation Melpitz (Sachsen). *Handbuch für Bioklima und Lufthygiene*. Ecomed Verlagsgesellschaft Landsberg, Hrsg. Moriske/Turowski, 13. Ergänzungslieferung (12/2004), Seiten 1-13.
- Spindler, G., Müller, K., Brüggemann, E., Gnauk, T., Herrmann, H. (2004c) Long-term size-segregated characterization of PM₁₀, PM_{2.5} and PM₁ at the IfT research station Melpitz downwind of Leipzig (Germany). *Atmos. Environ.* 38, 5333-5347.
- Spindler, G., Brüggemann, E., Gnauk, T., Grüner, A., Herrmann, H., Müller, K., Tuch, Th.M., Wehner, B., Wiedensohler, A., (2005) Feinstaubmessung; Charakterisierung des Aerosols im Messnetz des Umweltbundesamtes, Zwischenbericht für Umweltbundesamt, Förderkennzeichen 351 01 031, 49 Seiten. VDI-Richtlinie 2465, Blatt 2 (Messen von Ruß [Immission] – Thermographische Bestimmung des elementaren Kohlenstoffs nach Thermodesorption des organischen Kohlenstoffs).
- Wehner, B., Philippin, S., Wiedensohler, A. (2002) Design and calibration of a thermomodulator with an improved heating unit to measure the size-dependent volatile fraction of aerosol particles. *Aerosol Sci.* 33, 1087-1093.
- Wiedensohler, A., Spindler, G., Wehner, B., Birmili, W., Gnauk, T., Brüggemann, E., Heintzenberg, J. (2005) Feinstaub in Deutschland. In *Zwischenruf, Umweltforschung für die politische Praxis* (Ed. Leibniz Gemeinschaft) 2: 36-45.
- 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>).