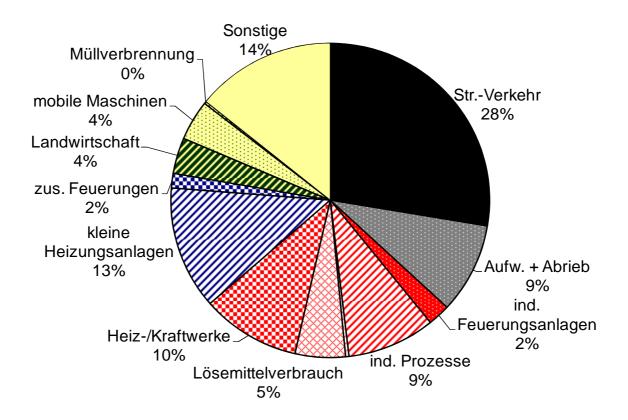
Ursachenanalyse von PM2,5 Feinstaub-Immissionen in Berlin



Abschlussbericht zum Forschungsvorhaben

"Ursachenanalyse von PM2,5 Feinstaub-Immissionen in Berlin auf der Basis von Messungen der Staubinhaltsstoffe am Stadtrand, in der Innenstadt und einer Straßenschlucht"

Markus Pesch, Wolfgang Frenzel und Thomas Kanitz
FG Umweltverfahrenstechnik
Technische Universität Berlin

im Auftrag der



Senatsverwaltung für Gesundheit, Umwelt und Verbraucherschutz Abteilung III, Umweltpolitik

<u>Mitwirkung</u>

An diesem Bericht haben durch fachliche Beiträge und Datenbereitstellung folgende Personen mitgewirkt:

Detlef Lück

Anorganische Umweltanalytik, Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung, Berlin

Rainer Offermann

Referat Luftqualität T4, Landesumweltamt Brandenburg, Potsdam

Henry Hentschel

Fachbereich U1, Landeslabor Brandenburg, Frankfurt (Oder)

Eberhard Reimer

Troposphärische Umweltforschung, Institut für Meteorologie, FU-Berlin

Petra Grasse

Institut für Meteorologie, FU-Berlin

Arnold Kettschau, Rainer Nothard, Michaela Preuß, Albrecht von Stülpnagel, Ernst Ulrich

Senatsverwaltung für Gesundheit, Umwelt und Verbraucherschutz, Abt. II, Integrativer Umweltschutz, Berlin

Martin Wieczorrek

Deutscher Wetterdienst, Stuttgart

Daniel Berking, Roman Finkelnburg, Fränze Freigang, Carmen Gal, Stefan Hartstock, Liane Kapitzki, Daniel Oderbolz, Christina Senge, Christian Utech, Sonja Völger

Fachgebiet Umweltverfahrenstechnik, TU Berlin

Allen Beitragenden einen recht herzlichen Dank.

Inhaltsverzeichnis

1		Einle	eitu	ıng	1
2		Mess	sst	andorte, Feinstaubmesstechnik, Datenmaterial	3
	2.	.1	M	lessstandorte	3
		2.1.1		Sondermessstation Frohnauer Turm	6
	2.	.2	F	einstaubmesstechnik	7
		2.2.1		Filterwechsler SEQ 47/50	7
		2.2.2	2	Sharp5030	8
		2.2.3	3	Lidar CHM 15k	9
	2.	.3	V	erwendetes Datenmaterial	.12
3		PM2	,5-	Feinstaubanalytik	.15
	3.	.1	G	ravimetrische Staubmassenbestimmung	.16
		3.1.1		Auswahl des Filtermaterials	.16
		3.1.2	2	Vorbereitung der Filter	.18
		3.1.3	3	Durchführung der gravimetrischen Messungen	.18
	3.	.2	M	ethoden zur Bestimmung der Inhaltsstoffe	.19
		3.2.1		Erfassungsgrenzen	.19
		3.2.2	2	Gesamtkonzept der Analytik	.20
	3.	.3	В	estimmung des organischen und elementaren Kohlenstoffs	.23
	3.	.4	В	estimmung der wasserlöslichen ionischen Staubinhaltstoffe	.26
	3.	.5	В	estimmung der Spurenmetalle	.27
	3.	.6	В	lindwertproblematik	.29
		3.6.1		Kohlenstoffbestimmung	.30
		3.6.2	2	Wasserlösliche Ionen	.30
		3.6.3	3	Spurenmetalle	.31
4		PM1	0,	PM2,5 und PM2,5-Inhaltsstoffe	.33
	4.	.1	V	ergleich der PM2,5-Konzentrationen an den Messstandorten	.33
	4.	.2		ergleich der PM2,5-Konzentrationen mit PM10-Konzentrationen	
5		Cher		sche Zusammensetzung des PM2,5-Feinstaubes	
	5.			auptbestandteile des PM2,5-Feinstaubes	
		5.1.1		PM2,5-Zusammensetzung bei unterschiedlicher PM2,5-Belastung	
		5.1.2		Spurenmetalle im PM2,5-Feinstaub	
6				nzuordnung für PM2.5-Feinstaub	.51

	6.1	Abschätzung über Immissionsmessungen	51
	6.1.	Abschätzung der Quellbeiträge für die PM2,5-Feinstaubmasse	51
	6.1.	2 Chemischen Staubzusammensetzung der Quellbeiträge	59
	6.2	Abschätzung über Emissionsmessungen	63
7	Ursa	achen hoher regionaler PM2,5-Einträge	71
	7.1	Luftmassenherkunft bei hohem PM2,5-Eintrag	71
	7.1.	Betrachtung der Mischungsschichten	78
	7.2	Bestimmung der Luftmassenherkunft über Trajektoriendichten	79
	7.2.	1 Berechnung der Trajektoriendichte	79
	7.2.	2 Auswahl der Trajektorien zur Trajektoriendichteberechnung	79
8	Lida	rmessungen am Frohnauer Turm	83
	8.1	Methodik der Lidarkalibrierung	84
	8.2	Kalibrierung des Lidar	85
	8.2.	Bestimmung der Kalibrierfunktion	88
	8.3	Auswertungen der Lidarmessungen einzelner Tage	89
	8.3.	Lidarauswertungen vom 20. zum 21. Februar 2007	89
	8.3.	2 Lidarauswertungen für den 24. März 2007	90
	8.3.	B Lidarauswertungen des Feinstaubanstiegs für den 1.April 2007	91
	8.3.	Lidarauswertungen vom 14. zum 15. Januar 2008	93
9	Zus	ammenfassung	96
1() L	iteratur	101

Anhang

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 2.1: Geographische Lage der verwendeten Messstellen
Abbildung 2.2: Lage und Bild der Station MC042
Abbildung 2.3: Lage und Bild der Stationen MC045 Turm oben und MC145 Turm unten 5
Abbildung 2.4: Lage und Bild der Station MC077 5
Abbildung 2.5: Lage und Bild der Station MC174 5
Abbildung 2.6: Feinstaubgeräte in der Turm Kanzel
Abbildung 2.7: Probenahme in 325 m Höhe durch Whitby-Köpfe 6
Abbildung 2.8 Lidarsystem unten am Frohnauer Turm 6
Abbildung 2.9 : Staubsammelgerät SEQ 47/50 (Leckel 2006)
Abbildung 2.10: Staubmessgerät Sharp5030 (MLU, 2006)
Abbildung 2.11: Prinzipieller Aufbau eines Lidar (Weitkamp, 2005)10
Abbildung 2.12: Außen- und Innenansicht des CHM 15k11
Abbildung 3.1: Fließdiagramm zum Gesamtkonzept der Analytik22
Abbildung 3.2: Thermographie zur Kohlenstoffbestimmung24
Abbildung 4.1: Jahresmittel der PM2,5-Konzentrationen [µg/m³], 200734
Abbildung 4.2: PM2,5-Anteile am PM10-Feinstaub [%], 2007
Abbildung 4.3: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Konzentrationen an den Messstandorten37
Abbildung 4.4: Zeitlicher Verlauf der PM10-Konzentrationen an verschiedenen
Messstandorten (01.12.2006 bis 29.02.2008)37
Abbildung 4.5: (a-d) Zeitlicher Verlauf der PM2,5- und PM10-Konzentrationen sowie der (e)
Windrichtung (01.01.2006 bis 29.02.2008)
Abbildung 4.6 a und b: Anteile der PM-Fraktionen an der PM10-Belastung in der Frankfurter
Allee in Abhängigkeit der Jahreszeit und der Windrichtung39
Abbildung 5.1: Vergleich der mittleren Staubzusammensetzung [$\mu g/m^3$], 200743
Abbildung 5.2: Vergleich der mittleren Staubzusammensetzung [%], 200743
Abbildung 5.3: Vergleich der Staubzusammensetzung am MC045-Frohnauer Turm45
Abbildung 5.4: Vergleich der Staubzusammensetzung am MC077-Buch [%], 200745
Abbildung 5.5: Vergleich der Staubzusammensetzung am MC042-Nansenstraße[%], 2007 46
Abbildung 5.6: Vergleich der Staubzusammensetzung am MC174-FF Allee [%], 200746
Abbildung 5.7: Mittlere PM2,5-Zusammensetzung MC045-Frohnauer Turm [$\mu g/m^3$], 200747
Abbildung 5.8: Mittlere PM2,5-Zusammensetzung MC077-Buch [μ g/m³], 200747
Abbildung 5.9: Mittlere PM2,5-Zusammensetzung MC042-Nansenstraße [$\mu g/m^3$], 200747
Abbildung 5.10: Mittlere PM2,5-Zusammensetzung MC174-Frankfurter Allee [$\mu g/m^3$], 200747
Abbildung 5.11: Mittlere PM2,5-Zusammensetzung MC045-Frohnauer Turm [%], 200748
Abbildung 5.12: Mittlere PM2,5-Zusammensetzung MC077-Buch [%], 200748
Abbildung 5.13: Mittlere PM2,5-Zusammensetzung MC042-Nansenstraße [%], 200748
Abbildung 5.14: Mittlere PM2,5-Zusammensetzung MC174-Frankfurter Allee [%], 200748
Abbildung 5.15: Spurenmetallzusammensetzung MC045-Frohnauer Turm [%], 200750
Abbildung 5.16: Spurenmetallzusammensetzung MC077-Buch [%], 200750
Abbildung 5.17: Spurenmetallzusammensetzung MC042-Nansenstraße [%], 200750
Abbildung 5.18: Spurenmetallzusammensetzung MC174-Frankfurter Allee [%], 200750

Abbildung 6.1: Darstellung der mittleren Beiträge zur PM2,5-Feinstaubbelastung an der
Messstation MC174-Frankfurter [μg/m³], 200752
Abbildung 6.2: Mittlere Beiträge der PM2,5-Feinstaubbelastung an der Messstation MC174-
Frankfurter Allee [%], 200753
Abbildung 6.3: Anteile des Verkehrsbeitrags (links) und der Summe aus Verkehrs- und
Innenstadtbeitrag (rechts) an der Verkehrsstation MC174-Frankfurter Allee
[%] (01.12.2006 bis 29.02.2008)
Abbildung 6.4: Tägliche Beiträge der PM2,5-Feinstaubbelastung bei Tagen mit
Überschreitungen des PM10-Tagesmittelwertes von 50 μg/m³ an der
Verkehrsstation MC174-Frankfurter Allee [μg/m³] (01.12.2006 bis
29.02.2008)55
Abbildung 6.5: Verteilung der Windrichtung an der Verkehrsstation MC174-Frankfurter Allee
(blau) und der Eintragsstation MC045-Frohnauer Turm (gelb) [μg/m³]
(01.12.2006 bis 29.02.2008)55
Abbildung 6.6: Räumliche Quellbeiträge der PM2,5-Feinstaubbelastung [μg/m³], 200756
Abbildung 6.7: Räumliche Quellbeiträge der PM2,5-Feinstaubbelastung [%], 200757
Abbildung 6.8: Windverteilung in Berlin Grunewald [%], 200758
Abbildung 6.9: Räumliche Beiträge der PM2,5-Feinstaubdosis [(μg/m³)*h], 200758
Abbildung 6.10: Mittlere Staubzusammensetzung der Quellbeiträge [%], 200759
Abbildung 6.11: Mittlere Spurenmetallzusammensetzung der Quellbeiträge [%], 200761
Abbildung 6.12: Mittlere Staubzusammensetzung der verschiedenen Quellbeiträge [%], 2007
Abbildung 6.12: Mittlere Zugemmengetzung der DM2 5. Feinsteubheiträge en der
Abbildung 6.13: Mittlere Zusammensetzung der PM2,5-Feinstaubbeiträge an der Messstation MC174-Frankfurter Allee (UBA-Hintergrund) [%], 200765
Abbildung 6.14: Mittlere Zusammensetzung der PM2,5-Feinstaubzusammensetzung nach
Emissionsgruppen gegliedert an der Messstation MC174-Frankfurter Allee
[%], 2007 (UBA-Hintergrund)67
Abbildung 6.15: Mittlere PM2,5-Feinstaubbeiträge an der Messstation MC174-Frankfurter
Allee [%], 2007 (Brandenburg-Hintergrund)
Abbildung 6.16: Mittlere PM2,5-Feinstaubbeiträge an der Messstation MC174-Frankfurter
Allee [%], 2007 (Brandenburg-Hintergrund)
Abbildungen 7.1: Windfelder und Rückwärtstrajektorien für den a) 11.02.2007, b)
23.02.2007, c) 24.02.2007
Abbildungen 7.2: Windfelder und Rückwärtstrajektorien für den a) 24.03.2007, b)
31.03.2007, c) 01.04.2007
Abbildungen 7.3: Windfelder und Rückwärtstrajektorien für den a) 02.04.2007, b)
19.11.2007, c) 21.02.2008
Abbildung 7.4: Mischungsschicht am 21.02.200878
Abbildung 7.5: Luftmassenherkunft bei hohem PM2,5-Eintrag80
Abbildung 7.6: Luftmassenherkunft bei geringem PM2,5-Eintrag80
Abbildung 7.7: Luftmassenherkunft bei hohem EC-Eintrag81
Abbildung 7.8: Luftmassenherkunft bei hohem OM-Eintrag81
Abbildung 7.9: Luftmassenherkunft bei hohem Sulfat-Eintrag

Abbildung 7.10:	Luftmassenherkunft bei hohem Vanadium-Eintrag	81
Abbildung 7.11:	Luftmassenherkunft bei hohem Natrium-Eintrag	81
Abbildung 7.12:	Luftmassenherkunft bei hohem Nickel-Eintrag	81
Abbildung 7.13:	Luftmassenherkunft bei unterschiedlich hohen PM2,5-Einträgen	82
Abbildung 8.1:	Prinzipskizze der Lidarkalibrierung	85
Abbildung 8.2: A	Ablauf der Lidarkalibrierung (Oderbolz, 2007)	86
Abbildung 8.3: L	Lidarmessungen am 20. und 21.02.2007, Frohnauer Turm (MC045)	87
Abbildung 8.4: k	Korrelation von Lidar-Rückstreusignal (PR²) mit PM2,5 in Abhängigkeit der	
	relativen Feuchte (01.12.2006 bis 29.02.2008)	87
•	Korrelation von PM2,5 [µg/m³] und Lidarsignal (PR²) bei einer relativen	
	Feuchte von unter 50 %	
· ·	-b: a) Korrelation von PM2,5 [μg/m³] und Lidarsignal (PR²) bei einer relative	
	Feuchte von unter 40 %, b) Häufigkeitsverteilung der relativen Feuchte am	
	Frohnauer Turm	
· ·	Lidarmessungen vom 20 21. Februar 2007 am Frohnauer Turm	90
•	/ertikale Lidarmessungen der atmosphärischen Rückstreuung (23. bis 25.	
	März 2007)	
•	Lidarsignal am 1. April 2007	
•	Tagesgang der PM2,5-Konzentration und des Lidarsignals (1. April 2007)	92
•	Korrelation von 3-Minutenwerten der PM2,5-Konzentration und des	^^
	Lidarsignals (1. April 2007)	93
•	Korrelation von 3-Minutenwerten der PM2,5-Konzentration und des Lidarsignals (14. bis 15. Januar 2008)	Ω4
	Lidarsignal vom 14. bis 15. Januar 2008	
_	Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentratio	
•	der Kohlenstoffgruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC174-Frankfurter	
	Allee)1	
	Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der	0 1
, toblidarig , til.2.	Kohlenstoffgruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC174-Frankfurter	
	Allee)1	04
	Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration	
· ·	der Kohlenstoffgruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC042-	
	Nansenstraße)1	05
Abbildung AII.4:	Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der	
	Kohlenstoffgruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC042-Nansenstraße))
	1	05
Abbildung AII.5:	Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentratio	n
	der Kohlenstoffgruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC077-Buch)1	05
Abbildung AII.6:	Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der	
	Kohlenstoffgruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC077-Buch)1	05
_	Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentratio	
	der Kohlenstoffgruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC045-Frohnauer	
	Turm)1	06

Abbildung Ali.8	: Zeitlicher Verlauf der PMZ,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der
	Kohlenstoffgruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC045-Frohnauer Turm)
Abbildung All.9	: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration
· ·	der Sekundären Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC174-Frankfurter
	Allee)
Abbildung All.1	0: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der
J	Sekundären Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC174-Frankfurter
	Allee)
Abbildung All.1	1: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration
	der Sekundären Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC042-
	Nansenstraße)107
Abbildung All.1	2: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der
	Sekundären Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC042-Nansenstraße)
	107
Abbildung All.1	3: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration
	der Sekundären Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC077-Buch)107
Abbildung All.1	4: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der
	Sekundären Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC077-Buch)107
Abbildung All.1	5: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration
	der Sekundären Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC045-Frohnauer
	Turm)
Abbildung All.1	6: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der
	Sekundären Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC045-Frohnauer
	Turm)
Abbildung All.1	7: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration
	der Natürlichen Gruppe vom 01.1.2.2006 bis 29.02.2008 (MC174-Frankfurter
	Allee)
Abbildung All.1	8: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der
	Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC174-Frankfurter
	Allee)
Abbildung All.1	9: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der relativen
	Konzentrationen der Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008
	(MC174-Frankfurter Allee)
Abbildung All.2	0: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration
	der Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC042-
	Nansenstraße)
Abbildung All.2	1: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der
	Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC042-Nansenstraße)
Abbildung All.2	2: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der relativen
	Konzentration der Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008
	(MC042-Nansenstraße)109

Abbildung All.23: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentratio	
der Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC077-Buch11	0
Abbildung 10.24: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der	
Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC077-Buch11	0
Abbildung AII.25: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der relativen	
Konzentration der Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008	
(MC077-Buch)11	0
Abbildung AII.26: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentratio	n
der Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC045-Frohnauer	
Turm)11	0
Abbildung AII.27: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der	
Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC045-Frohnauer	
Turm)11	1
Abbildung AII.28: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der relativen	
Konzentration der Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008	
(MC045-Frohnauer Turm)11	1
Abbildung AII.29: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentratio	n
der Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC174-	
Frankfurter Allee)11	1
Abbildung AII.30: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der	
Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC174-Frankfurte	r
Allee)11	
Abbildung All.31: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der relativen	
Konzentration der Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008	
(MC174-Frankfurter Allee)11	2
Abbildung All.32: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentratio	
der Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC042-	
Nansenstraße)11	2
Abbildung All.33: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der	
Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC042-	
Nansenstraße)11	2
Abbildung AII.34: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der relativen	
Konzentration der Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008	
(MC042-Nansenstraße)11	2
Abbildung AII.35: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentratio	
der Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC077-Buch).	
11	
Abbildung AII.36: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der	•
Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC077-Buch)11	3
Abbildung All.37: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der relativen	-
Konzentration der Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008	
(MC077-Buch)11	3

Abbildung All.38: Ze	eitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konz	entration
der	Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC045	, –
Fro	hnauer Turm)	113
Abbildung All.39: Ze	eitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteil	le der
Ant	hropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC045-Fro	hnauer
Tur	m)	114
Abbildung All.40: Ze	eitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der relativ	√en
Kor	nzentration der Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02	2.2008
(MC	C045-Frohnauer Turm)	114

Tabellenverzeichnis

Tabelle 2.1: Übersicht über die Messstellen	4
Tabelle 2.2: Technische Daten des SEQ 47/50 (Leckel 2006)	8
Tabelle 2.3: Spezifikationen des Sharp 5030 (MLU, 2006)	9
Tabelle 2.4: Technische Daten des Lidar CHM 15k-C (Jenoptik, 2006)	12
Tabelle 2.5: Datenmaterial	13
Tabelle 3.1: Untersuchung zu Schwermetallblindwerten in Filtermaterialien	18
Tabelle 3.2: Staubinhaltsstoffkonzentrationen	20
Tabelle 3.3: Element- und Molekülstörungen der ICP-MS	29
Tabelle 3.4: Blindwerte der Bestimmung wasserlöslicher Ionen	31
Tabelle 3.5: Experimentell ermittelte Blindwerte	32
Tabelle 4.1: Übersicht der mittleren PM2,5-Zusammensetzung (01.01.2007 -31.12.2007).	34
Tabelle 4.2: Mittlere PM-Konzentrationen für Tage mit PM10 am MC174 > 50 μg/m³	40
Tabelle 7.1: Tage mit PM10 an der Frankfurter Allee über 50 μg/m³ [1.12.06 – 29.02.200	8]
	72

Einleitung 1

1 Einleitung

Dieser Bericht ist der <u>Abschlussbericht</u> zum Projekt "Ursachenanalyse der PM2,5-Immissionen in Berlin". Der Auftrag für die Durchführung des Projektes wurde von der Berliner Senatsverwaltung für Gesundheit, Umwelt und Verbraucherschutz, Abteilung 3, Umweltpolitik dem Fachgebiet Umweltverfahrenstechnik des Instituts für Technischen Umweltschutzes der TU-Berlin erteilt.

Diesem Bericht vorausgegangen sind der 1. Zwischenbericht (Methodenbeschreibung und erste Ergebnisse) vom März 2007 ((Pesch, 2007a)) und der 2. Zwischenbericht (Messergebnisse und Datenauswertung) vom November 2007 (Pesch, 2007b).

Seit dem 1. Januar 2005 gelten neue Grenzwerte für Feinstäube (PM10) in der EU nach der EU-Richtlinie von 1996 mit der Einzelrichtlinie (EU-RL 99/30/EG) von 1999 ohne jede Einschränkung. Demnach darf der Tagesmittelwert (24-Stunden-Grenzwert) von $50~\mu g/m^3$ nur an 35 Tagen im Jahr überschritten werden. Als Jahresmittelwert ist eine Konzentration von $40~\mu g/m^3$ zulässig (Jahresgrenzwert). In Berlin wurde der 24-Stunden-Grenzwert 2005 und 2006 überschritten und in 2007 aufgrund eines sehr feuchten und milden Winters eingehalten. Der Jahresgrenzwert für PM10 konnte an allen Messstationen des Berliner Luftgütemessnetzes eingehalten werden. Der Tagesgrenzwert entspricht statistisch in etwa einem Jahresgrenzwert von $30~\mu g/m^3$, wodurch deutlich wird, dass der derzeit gültige Jahresgrenzwert eine deutlich geringere Schärfe als des Tagesgrenzwert aufweist.

Kommt es in Ballungsräumen zu Überschreitungen, muss der betreffende Mitgliedsstaat gemäß der EU-Gesetzgebung Pläne und Programme aufstellen und umsetzten, um die Luftverschmutzung zu begrenzen und zum festgelegten Zeitpunkt einzuhalten. In Berlin ist von der Senatsverwaltung für Stadtentwicklung in diesem Zusammenhang ein detaillierter Luftreinhalte- und Aktionsplan 2005-2010 erstellt worden (Senatsverwaltung, 2005).

In der neuen EU-Luftqualitätsrichtlinie, die am 11. Juni 2008 in Kraft getreten ist, wurden jetzt erstmals auch Grenz- und Zielwerte für PM2,5 festgelegt sowie die Verpflichtung PM2,5 durch Messungen zu bestimmen (EU-2008/50/EG, 2008).

Da die Partikelfraktion < 2,5 μ m zum größten Teil aus anderen Quellen stammt als die Partikelfraktion zwischen 2,5 und 10 μ m, ist die Ursachenanalyse für PM2,5 ein wichtiger Beitrag zur Bestimmung wirkungsvoller Maßnahmen zur Reduzierung der allgemeinen Feinstaubbelastung. Ein wichtiges Ziel des Projekts bestand deshalb darin, eine belastbare Informations- und Datenbasis zu den Ursachen der Belastung durch PM2,5 zur Verfügung zu stellen.

Im Rahmen dieses Projektes wurden die Ursachen für PM2,5-Belastungen in Berlin untersucht. Dazu wurden die bedeutenden Verursacher identifiziert und deren Beitrag zur PM2,5-Belastung bestimmt. Die für die PM2,5-Immission in Berlin verantwortlichen Quellen wurden räumlich in einen lokalen, städtischen und (über)regionalen Beitrag aufgeschlüsselt.

Einleitung 2

In bisherigen Studien zeigte sich, dass insbesondere bei hohen Feinstaubbelastungen in Berlin der durch Ferntransport in die Stadt advehierte Staub (überregionaler Anteil) besonders hoch ist (Israël, 1992; John, 2004). Daher wurde im Rahmen dieses Projektes die räumliche Zuordnung zusätzlich in Abhängigkeit der Belastung bestimmt.

Im Rahmen des Messprogramms wurden 15 Monate (1. Dezember 2006 bis 29. Februar 2008) tägliche Proben (Tagesmittelwerte von 0-24 Uhr) an vier Messstationen im Stadtgebiet Berlin gesammelt und auf Inhaltsstoffe analysiert. Die Messstationen befinden sich am Stadtrand (MC077 in Buch und MC045 am Frohnauer Turm) in der Innenstadt (MC042, Nansenstraße in Neukölln) und an einer stark befahrenen Straße (MC174, Frankfurter Allee). Die Auswahl der Inhaltsstoffe wurde dabei so gewählt, dass sowohl die Komponenten, die maßgeblich zur Staubmasse beitragen, als auch die, die sich als Leitparameter für bestimmte Quellen eignen, bestimmt wurden.

Um die Messungen der vier Stationen vergleichen zu können, kam an allen Stationen die gleiche Messtechnik zum Einsatz. Es wurden Filterwechsler des Typs SEQ47/50 der Fa. Leckel verwendet, die mit einem PM2,5 Kopf ausgestattet sind. Die Messungen in Berlin wurden durch Feinstaubmessungen an der Station Hasenholz in Brandenburg ergänzt.

Zusätzlich zur PM2,5-Bestimmung wurden durch kontinuierliche Lidar-Messungen am Frohnauer Turm über den gleichen Messzeitraum von 15 Monaten vertikale Profile der Aerosol-Konzentrationen in der Atmosphäre bestimmt. Das eingesetzte Lidarsystem ist ein kompaktes Rückstreu-Lidar für den *stand-alone*-Betrieb, welches die Streueigenschaften der Aerosole in der Atmosphäre bis zu einer Höhe von 15 km bestimmt. Über eine zeitgleiche Messung der Feinstaubkonzentration auf dem Frohnauer Turm mit einem kontinuierlichen PM2,5-Staubmessgerät (Sharp5030 der Fa. Thermo) wurde das Lidar kalibriert, so dass aus den Lidarmessungen Feinstaubkonzentrationen abgeschätzt werden konnten. Um auch kurzzeitige Transport- und Mischungsvorgänge untersuchen zu können, wurden die Lidarmessungen und PM2,5-Messungen auf dem Turm mit einer zeitlichen Auflösung von 3 min durchgeführt. Mit Hilfe dieser vertikalen Messungen wurden die atmosphärischen Transport- und Mischungsprozesse, die zu erhöhten Feinstaubbelastungen in der Stadt führen, näher untersucht. Insbesondere der Einfluss der Mischungsschicht auf die innerstädtische Feinstaubbelastung wurde mithilfe der Lidarmessungen bestimmt.

Die Modellierung der Herkunft der in Berlin eintreffenden Luftmassen erfolgte mit einem am Fachgebiet Luftreinhaltung der TU-Berlin entwickelten zweidimensionalen Trajektorienmodells, sowie mit drei-dimensionalen Rückwärtstrajektorien der AG Troposphärische Umweltforschung (TrUmF) des Meteorlogischen Instituts der FU-Berlin.

2 Messstandorte, Feinstaubmesstechnik, Datenmaterial

2.1 Messstandorte

Die Auswahl der Messstandorte für dieses Projekt erfolgte unter der Berücksichtigung einer möglichst repräsentativen Bestimmung der Feinstaubbelastung an einem Verkehrsschwerpunkt, im städtischen Hintergrund und der Bestimmung des (über)regionalen Ferntransportes. Es wurden 4 Messstationen ausgewählt, um mit einer möglichst geringen Anzahl an Stationen (wegen der damit verbundenen Kosten) ein repräsentatives Abbild der Feinstaubsituation in Berlin zu erhalten.

Als Messstandorte, die relativ unbeeinflusst von lokalen Einflüssen sind und damit den Beitrag des Ferntransports aufzeigen, wurden die Stationen in Buch (MC077) und in Frohnau am Frohnauer Turm (MC045) ausgewählt. Die Messstation auf dem Turm Frohnau nimmt dabei eine Sonderrolle ein, da sie sich in einer Höhe von 325 m über Grund befindet und somit nur äußerst gering durch städtische Emissionen beeinflusst wird.

Der Beitrag des städtischen Hintergrunds wird durch die Messstation in Neukölln (MC042) an der Nansenstraße erfasst. Die Messstation an der Frankfurter Allee (MC174) stellt eine repräsentative Messstation für einen stark belasteten Verkehrsschwerpunkt dar. Zusätzlich zu den Messungen in Berlin werden Messungen an der Messstation Hasenholz in Brandenburg in die Auswertungen integriert. Abbildung 2.1 verdeutlicht die Lage der Messstellen, Tabelle 2.1 zeigt die genauen Standorte und beschreibt die Stationscharakteristika (v. Stuelpnagel, 2006).



Abbildung 2.1: Geographische Lage der verwendeten Messstellen

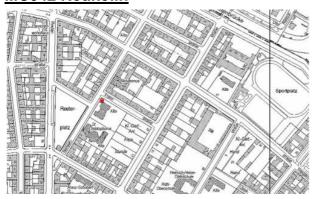
Tabelle 2.1: Übersicht über die Messstellen

Messstelle	Standort	Stationscharakteristik
MC042	Nansenstr. 10 Neukölln	Städtischer Hintergrund, Wohngebiet in der Innenstadt, mittleres Verkehrsaufkommen (35'000 – 60'000 KFZ/24 h)
MC045	Funkturm, Jägerstieg 1 Frohnau	Stadtrand, Höhenstation, Stadtrand, sehr geringes Verkehrsaufkommen (0 – 15'000 KFZ/24 h)
MC077	Wiltbergstr. 50 Buch	Stadtrand, Geschäftsbezirk, sehr geringes Verkehrsaufkommen (0 – 15'000 KFZ/24 h)
MC174	Frankfurter Allee 86 b Friedrichshain	Straßenschlucht, Innenstadt, Geschäfts- und Wohnbezirk, hohes Verkehrsaufkommen (> 60'000 KFZ/24h)

In den Abbildungen 2.2 bis 2.5 sind detailliertere Informationen zur Lage der ausgewählten Messstationen gegeben.

Die Messstelle MC045 befindet sich am nördlichen Stadtrand Berlins auf einem etwa 350 m hohen Gittermast-Antennenträger, der bis vor kurzem noch von der Telekom betrieben wird. Die Turmkanzel mit den Messgeräten befindet sich in einer Höhe von 325 m über Grund. An diesem Standort ist die Messstation relativ unbeeinflusst von der lokalen Feinstaubbelastung.

MC042 Neukölln



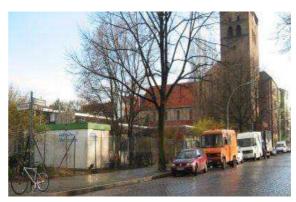


Abbildung 2.2: Lage und Bild der Station MC042

MC045 Frohnau

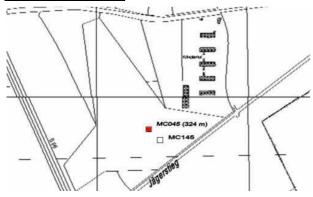




Abbildung 2.3: Lage und Bild der Stationen MC045 Turm oben und MC145 Turm unten

MC077 Buch

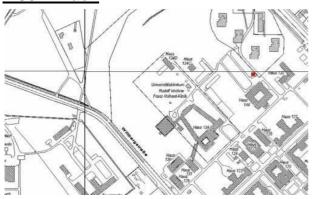




Abbildung 2.4: Lage und Bild der Station MC077

MC174 Friedrichshain

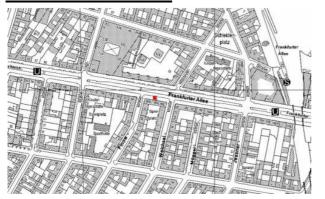




Abbildung 2.5: Lage und Bild der Station MC174

2.1.1 Sondermessstation Frohnauer Turm

Als eine Sondermessstation im Rahmen dieses Projektes wurde der Frohnauer Turm ausgewählt. Auf diesem Turm steht in 325 m Höhe eine klimatisierte Kanzel zur Verfügung, in der Messgeräte installiert werden können. Die Berliner Senatsverwaltung nutzt den Turm in ihrem Messnetz (BLUME) als Messstation MC045. Abbildung 2.6 zeigt die Anordnung der Staubmessgeräte Sharp5030 und SEQ 47/50 in der Turmkanzel. Aus der Kanzel führen Edelstahlleitungen nach außen, die mit TSP-Whitby-Köpfen versehen sind (Abbildung 2.7). Die Selektion des PM2,5-Anteils geschieht durch Impaktion, wobei die Impaktorköpfe direkt am Anfang der Edelstahlleitungen in der Kanzel direkt über den Messgeräten installierte sind. Diese Anordnung hat den Vorteil, dass die Impaktorköpfe innerhalb der Turmkanzel gereinigt und gefettet werden können. Das Lidarsystem wurde auf dem Dach des Berliner Luftgüte Messcontainers MC145 direkt unten am Frohnauer Turm installiert (Abbildung 2.8).



Abbildung 2.6: Feinstaubgeräte in der Turm Kanzel



Abbildung 2.7: Probenahme in 325 m Höhe durch Whitby-Köpfe



Abbildung 2.8 Lidarsystem unten am Frohnauer Turm

2.2 Feinstaubmesstechnik

2.2.1 Filterwechsler SEQ 47/50

Der Filterwechsler SEQ 47/50 (Abbildung 2.9) dient der Bestimmung der Schwebstaubmassenkonzentration. Der Filterwechsler SEQ 47/50 ist für den Außeneinsatz unter allen Temperatur- und Umgebungsbedingungen konzipiert. Er wird durch ein integriertes Kleinfiltergerät betrieben.

Die Probeluft wird von einer Drehschieber-Vakuumpumpe über den Probenahmekopf angesaugt. Der Probeluft-Volumenstrom wird zwischen dem Filter und der Vakuumpumpe mittels einer Messblende gemessen. Die angesaugte Luft strömt von der Pumpe über einen Abscheider für den Abrieb der Drehschieber zum Luftauslass (Leckel, 2006).

Das Vorrats- und das Ablagemagazin sind zur Aufnahme von jeweils 15 Filterhaltern ausgelegt. Durch Kapselung des oberen Filters im Ablagemagazin und die Übereinanderstapelung der Filter ist das Luftvolumen über jedem bestaubten Filter so klein, dass flüchtige Staubbestandteile nicht in die Luft entweichen können. Zusätzlich wird das gesamte Probenahmesystem durch einen Luftmantel gekühlt. Dadurch ist auch nach einem gesamten Probenahmezeitraum von maximal 17 Tagen eine zuverlässige Bestimmung der auf den Einzelfiltern gesammelten Staubmasse gewährleistet. Abbildung 2.9 zeigt den geöffneten Filterwechsler SEQ47/50, Tabelle 2.2 enthält die technischen Spezifikationen.



Abbildung 2.9 : Staubsammelgerät SEQ 47/50 (Leckel 2006)

Tabelle 2.2: Technische Daten des SEQ 47/50 (Leckel 2006)

Luftdurchsatz LVS3	ungeregelt ca. 3,5 m³/h
	geregelt 1,0-1,6-2,0-2,3 m³/h
	und Standard-m³/h
Probenahmedauer	minimal 1 h – maximal 168 h pro Filter
Hilfsenergie	230 V, 50/60 Hz
Leistungsbedarf	ca. 250 VA (LVS3-Version)
Filterdurchmesser	47 – 50 mm
Bestaubungsdurchmesser	40 mm
Abmessungen	Breite 477 mm
	Tiefe 295 mm
	Höhe mit Probenahmekopf 1,5 m
Gewicht	ca. 40 kg
Geräuschpegel nach DIN 2058 in 8 m Abstand	<< 35 dBA

2.2.2 Sharp5030

Das Staubmessgerät Sharp5030 (Abbildung 2.10) ist ein Feinstaubmessgerät, das das Nephelometerprinzip mit einer radiometrischen Messung kombiniert. Die radiometrische Messung wird zur Online-Kalibrierung des Nephelometers verwendet. Als Strahler kommt ein C14–Strahler zum Einsatz, der keiner Genehmigung durch die Strahlenschutzbehörde bedarf (MLU, 2006).

Ein Feuchte-Überwachungssystem regelt die Feuchte mit Hilfe eines Sensors und eines Heizsystems. Es schließt Feuchtigkeitseffekte aus und stellt somit sicher, dass die flüchtigen Aerosole zur richtigen Messung aller Partikel erhalten bleiben. Das Ergebnis ist ein präziser und kontinuierlich in Echtzeit messender Partikelmonitor mit geringer Nachweisgrenze. Dies ermöglicht zeitlich hoch aufgelöste Messungen mit einer unteren Grenze von 1 min. Das Gerät besitzt die Eignungsprüfung gemäß der europäischen PM-10 Richtlinie EN 12341. Tabelle 2.3 enthält die technischen Spezifikationen des Sharp5030.



Abbildung 2.10: Staubmessgerät Sharp5030 (MLU, 2006)

Tabelle 2.3: Spezifikationen des Sharp 5030 (MLU, 2006)

Messbereich	0-1000 μg/m³ und 0-10000 μg/m³
Nachweisgrenze	< 0,2 μg/m³ (2-sigma; 24-h-Mittel) < 0,5 μg/m³ (2-sigma; 1-h-Mittel)
Genauigkeit (stündlich)	± 2 μg/m³ < 80 μg/m³, ± 5μg/m³ > 80 μg/m³
Zeitliche Auflösung	1 Minute (Update im 4-Sekunden-Rhythmus)
Genauigkeit zwischen zwei Monitoren	± 2 μg/m³ (2-sigma, 24-StdZeitauflösung)
Spandrift	< 0,02 % pro Tag
Displayauflösung	0,1 % (intern gespeicherte und angezeigte Daten
Genauigkeit	± 5 % (bezogen auf 24-StdFRM)
Quellen	Optisch IRLED, 6 mW, 880 nm Beta C-14, 3,7 MBq, 5700 Jahre Halbwertzeit
Detektoren	Optisch Silizium-Hybrid-Verstärker Beta Proportionalzähler
Durchfluss	1 m³/h (16,67 lpm), gemessen über einer internen Unterschalldüse, anwender-definierbar von 0-20 lpm
Ausgänge	Zwei serielle RS-232 Schnittstellen Analogausgang 4-20 mA oder 0-10 V (μg/m³)
Temperatur	-30°C bis 60°C
Abmessungen	483 mm B x 311 mm H x 330 mm T
Netzspannung	Monitor 100-240 V, 50/60 Hz, 330 W max., 15 W ohne Pumpe oder Heizung Pumpe 100-110/100-120 V, 50/60 Hz, oder 220/240 V, 50/60 Hz, 100 W

2.2.3 Lidar CHM 15k

Lidarmessungen von atmosphärischen Spurenstoffen tragen seit vielen Jahren dazu bei, ein besseres Verständnis über Bildungs-, Transport- und Mischungsprozesse zu erhalten. Lidar bedeutet <u>Light Detection and Ranging</u>. Ein LIDAR–System ermöglicht es, ein räumlich aufgelöstes Signal einer Schadstoffkonzentration zu erhalten (Weitkamp, 2005).

Das Grundprinzip aller Lidarsysteme besteht darin, dass Laser sehr kurze Lichtpulse (im Bereich weniger ns) in die Atomsphäre aussenden, um dann zeitlich zwischen den Pulsen die zurückgestreuten Photonen zu detektieren. Die ausgesendeten Photonen können auf ihrem Weg in die Atmosphäre durch Partikel oder Moleküle gestreut werden. Trifft ein Photon auf einen Stoßpartner kann es prinzipiell in alle Richtung gestreut werden. Mit einer Empfangsoptik werden jedoch nur die Photonen gezählt, die genau in die entgegengesetzte Richtung des ausgesandten Laserstrahls gestreut werden (Rückstreudetektion).

Das Detektieren der Photonen erfolgt in Abhängigkeit der Zeit. Mit der konstanten Lichtgeschwindigkeit erhält man eine räumliche Auflösung über die Höhe, da Photonen, die in größerer Entfernung gestreut werden, länger brauchen, um in die Empfangsoptik zu gelangen. Durch die Anzahl der Photonen pro Zeitabschnitt erhält man die Intensität und

damit ein Maß für die Anzahl der streuenden Moleküle und Partikel in der Atmosphäre. Abbildung 2.11 verdeutlicht die Funktionsweise des Lidar.

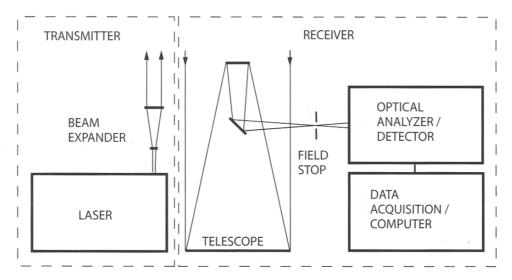


Abbildung 2.11: Prinzipieller Aufbau eines Lidar (Weitkamp, 2005)

Es gibt zwei unterschiedliche Arten der Rückstreuung, die elastische Streuung und die inelastische Streuung. Elastische Rückstreuung findet statt, wenn die Wellenlänge des Photons bei der Streuung nicht geändert wird. Die elastische Streuung durch Moleküle wird Rayleigh-Streuung genannt, die Streuung an festen oder flüssigen Partikeln als Miebezeichnet. Bei der inelastischen Streuung führen Streuung physikalische Wechselwirkungen zwischen Photon und Stoßpartner zu einer Änderung der Wellenlänge des Photons. Dies passiert z.B. bei Absorption, Fluoreszenz oder Phosphoreszenz. Das in diesem Projekt eingesetzte Lidar misst nur die elastische Rückstreuung, da das verwendete Laserlicht mit einer Wellenlänge von 1064 nm im niedrigen Infrarotbereich liegt und damit keine Elektronenübergänge im Stoßpartner angeregt werden, die zu einer Änderung der Wellenlänge führen könnten (Jenoptik, 2006).

Die Wellenlänge von 1064 nm führt zu keiner signifikanten Absorption durch Ozon oder Wasserdampf in der Atmosphäre. Daher können große Entfernungen von bis zu 15 km Höhe erreicht werden.

Der Einfluss der Rayleighstreuung durch Luftmoleküle ist bei der verwendeten Wellenlänge von 1064 nm sehr gering, so dass die Rückstreuung fast ausschließlich durch feste und flüssige Aerosole in der Atmosphäre hervorgerufen wird.

Die Lidarmessungen erfolgen mit einem Lidargerät des Typs CHM 15k der Firma Jenoptik, Laser, Optik, Systeme GmbH (Jenoptik, 2006). Dieses Gerät wurde im Jahr 2006 zur Serienreife geführt. Es wurde zur automatischen und kontinuierlichen Wolkenerkennung und Sichtweitenbestimmung entwickelt. Mit dem CHM 15k steht ein kleines, kompaktes und sehr leistungsfähiges Lidargerät zur Verfügung, das neben oben aufgeführten meteorologischen

Parametern auch eine kontinuierliche, nahezu wartungsfreie Beobachtung der atmosphärischen Aerosole ermöglicht.

Das Lidarsystem arbeitet mit einem diodengepumpten Festkörperlaser mit einem Nd:Yag-Kristall als Lasermaterial, das als fundamentale Wellenlänge 1064 nm aussendet. Im Gegensatz zum Seriengerät ist das Lidarsystem des FG Umweltverfahrenstechnik mit einem besonders starken Laser der Fa. Crylas ausgerüstet. Dieser Laser hat eine Repetitionsrate von 7 kHz bei einer Laserleistung von 93 mW. Die Pulsenergie dieses besonders leistungsfähigen Lidarsystems des Typs CHM 15k beträgt 13,5 µJ.

Das Gerät besitzt eine Reichweite in vertikaler Richtung von 15 km bei einer Höhenauflösung von 15 m. Die geringste zeitliche Auflösung der Messsignale beträgt 10 s, das bedeutet, dass alle 10 s 1000 Messwerte (alle 15 m ein Rückstreuwert für die Höhe von 0-15000 m) generiert werden.

Sender und Empfänger des Lidarsystems sind in einem Bauteil zusammengefügt, wodurch eine Verschiebung von Sende- und Empfangsoptik zueinander verhindert und die Parallelität des Sendestrahls zur Achse des Sichtfeldes der Empfangsoptik sichergestellt wird (Abbildung 2.12). Der Laserstrahl wird durch Linsen auf 90 mm aufgeweitet. Die Laserdivergenz beträgt 100 µrad, was zur Folge hat, dass der Durchmesser des kreisförmigen Lichtquerschnitts in 325 m Höhe (Turmkanzel) 3,5 cm und am Ende des Messbereiches in 15 km Höhe ca. 1,5 m beträgt.

Der Laser wird gekühlt und die gesamte Messeinheit beheizt, um eine gleichmäßige Arbeitstemperatur bei verschiedenen klimatischen Bedingungen sicherzustellen. Die zurück gestreuten Photonen werden durch zwei Linsen gebündelt und dann gefiltert. Die Photonen werden von einem Photonenzähler (APD) gezählt und gespeichert. Tabelle 2.4 fasst wichtige Daten des CHM 15k zusammen.

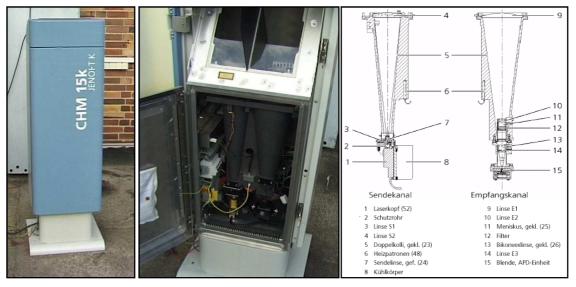


Abbildung 2.12: Außen- und Innenansicht sowie Sende- und Empfangskanal des CHM 15k

Tabelle 2.4: Technische Daten des Lidar CHM 15k-C (Jenoptik, 2006)

Laser				
Wellenlänge	1064 nm			
Bandbreite	0.1 nm			
Pulsdauer	ca. 1 ns			
Pulswiederholrate	7 kHz			
Strahldurchmesser nach Aufweitung	90 mm			
Laserdivergenz	100 µrad			
Energie pro Puls	ca. 13,5 µJ			
Langzeitstabilität über 12 Monate	< 10 %			
Puls zu Puls Schwankung der	. 2.0/			
Laserenergie	< 3 %			
Optiken				
freie Apertur Empfänger	135 mm			
freie Apertur Sender	92 mm			
Abstand	130 mm			
Teleskopdivergenz	ca. 450 urad			
Detektordurchmesser	200 µm			

2.3 Verwendetes Datenmaterial

Innerhalb dieses Forschungsprojektes wird die PM2,5-Feinstaubbelastung an vier Berliner Messstandorten täglich vom 01.12.06 bis zum 29.02.08 gravimetrisch erfasst. Für diesen Zeitraum wurden Daten des Berliner Luftgütemessnetzes BLUME, des Landesumweltamtes Brandenburg, Referat Luftqualität T4, der Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung, Abteilung Anorganische Umweltanalytik, des Instituts für Meteorologie, Arbeitsgemeinschaft Troposphärische Umweltforschung der FU-Berlin und des Fachgebiets Umweltverfahrenstechnik der TU Berlin verwendet.

Mithilfe dieser Messungen und einer weiterführenden chemischen Bestimmung der PM2,5-Inhaltsstoffe soll im Folgenden eine detailierte PM2,5-Feinstaubursachenanalyse durchgeführt werden. Die Auswertrungen der Inhaltsstoffe ermöglichen eine Quellenzuordnung nach chemischen Aspekten, sowie eine räumliche Quellzuordnung, aufgeteilt in einen (über-)regionalen, städtischen und lokalen Beitrag.

Tabelle 2.5 gibt eine Übersicht über die Daten und deren zeitliche Auflösung.

Tabelle 2.5: Datenmaterial

Art	Messstation	Auflösung
PM2,5-Messungen (gravimetrisch)	MC042, MC045, MC077, MC174, Hasenholz	24 h
PM2,5 Inhaltsstoffbestimmungen (EC, OCI, OCII, OC, CI, NO ₃ , SO ₄ , Na, NH4, K, Mg, AI, Ca, Ti, V, Cr, Fe, Ni, Zn, As, Sb, Pb)	MC042, MC045, MC077, MC174, Hasenholz (z.T.)	24 h
PM2,5-Messungen (radiometrisch)	MC045	3 min
Lidarmessungen	MC045	3 min
Meteorologie Stadtgebiet	MC314, MC318, MC432	1 h
Meteorologie Turm Frohnau	MC045	5 min
Niederschlagsmessungen	Tegel-Forstamt	10 min
PM10-Messungen (radiometrisch)	MC010, MC018, MC027, MC032, MC077, MC085, MC117, MC143, MC174, MC220	30 min
PM10-Messungen (gravimetrisch)	MC077, MC085	24 h
zweidimensionale Rückwärts- trajektorien,FG Umwelt- verfahrenstechnik, TU-Berlin	Ort beliebig	1 h
dreidimensionale Rückwärtstrajektorien Institut für Meteorologie, AG Troposphärische Umweltforschung, FU-Berlin	Ort beliebig	1 h

Für eine bessere Vergleichbarkeit der Ergebnisse werden integrale Auswertungen innerhalb dieser Arbeit meist nur für das Kalenderjahr 2007 berechnet, da eine Betrachtung des gesamten Messzeitraumes zwei gesamte Winterperioden beinhalten würde und somit zu einer Verzerrung der Ergebnisse führen könnte. Zudem ist so eine direkte Interpretation auf den designierten Jahresgrenzwert von 25 μ g/m³ möglich der 2010 rechtswirksam wird.

Das Forschungsprojekt umfasst 456 Messtage, so dass durch die tägliche Ermittlung der PM2,5-Feinstaubbelastung und die zusätzliche Bestimmung von 21 PM2,5-Inhaltsstoffen der gesammelten Proben an den Berliner Messstellen ein Datenvolumen von über 40000 Werten zur Verfügung steht. Zusätzlich zu den Berliner Messwerten wurden für 2007 die PM-Messwerte von der brandenburgischen Messstation Hasenholz sowie für ausgewählte Tage auch Inhaltsstoffe des PM2,5 bestimmt und verwendet.

Die Datenverfügbarkeit der gravimetrischen Auswertung für PM2,5 ist bis auf die Messungen an der Station MC045-Frohnauer Turm (87 %) mit über 97 % für alle Stationen sehr gut. Die relativ geringe Datenverfügbarkeit am MC045 ist auf die besondere Lage und den dadurch erschwerten Zugang zum gravimetrischen Staubsammelgerät zurückzuführen. Die an allen Messstationen eingesetzten Filterwechsler vom Typ SEQ 47/50 (Fa. Leckel) erforderten

einen 14-tägigen Filterwechsel (Pesch, 2007a). Dieser Wechsel war bei starkem Wind auf dem Frohnauer Turm nicht möglich, da dieser dann vom Turmbetreiber aus Sicherheitsgründen gesperrt wird. Zusätzlich wurden während des Projektes die Sicherheitsanforderungen verschärft, was kurzfristig zu einer zusätzlichen Unterbrechung der Messungen führte. Die Auswertungen zeigen jedoch, dass die Datenverfügbarkeit der Messungen auf dem Frohnauer Turm ausreichend hoch ist, um diese für alle folgenden Betrachtungen zu verwenden (Pesch, 2007b).

Ein weiteres Problem trat bei den gravimetrischen PM2,5-Staubbestimmungen an der Messstation in Buch (MC077) auf. Ein Vergleich zwischen den von der Senatsverwaltung für Gesundheit, Umwelt und Verbraucherschutz und der TU-Berlin durchgeführten gravimetrischen PM10-Messungen an der selben Station ergab, dass die von der TU-Berlin durchgeführten PM2,5-Messungen in bestimmten Zeitintervallen zu hoch, teilweise sogar über den vom Senat gemessenen PM10-Konzentrationen lagen. Die Ursache hierfür konnte nicht vollständig geklärt werden. Sehr wahrscheinlich traten die Fehler beim Wägevorgang an der TU-Berlin auf.

Die als zu hoch identifizierten PM2,5-Werte der TU-Berlin für Buch wurden daher auf der Basis der parallelen PM2,5-Messungen der Senatsverwaltung korrigiert.

Um den für die Auswertungen im Rahmen dieses Projektes unerwünschten Einfluss der Silvesternacht zu vermeiden, wurden die Messungen vom 31.12.06 und vom 01.01.07, sowie vom 31.12.07 und vom 01.01.08 bei den folgenden Auswertungen nicht berücksichtigt.

Das Datenvolumen wird des Weiteren durch die meteorologischen Messungen an der Messstation in Grunewald ergänzt. Die meteorologischen 1h-Messwerte müssen dabei unter Berücksichtigung der herrschenden Windgeschwindigkeit zu Tageswerten aggregiert werden. Die Datenverfügbarkeit der meteorologischen Messungen an der Station Grunewald betrug 98,7 %.

Der nicht analysierte Rest, der standortunabhängig zwischen 30 % und 40 % liegt, wird zum einen durch chemisch gebundenes Wasser, zum anderen durch den Sauerstoffanteil der Metalloxide bestimmt. Da als Filtermaterial Quarz verwendet wird, konnte Silizium als wichtiger Indikator für Dispersionsaerosole aus der Erdkruste nicht analysiert werden. Daher sind auch die Silikate im unbestimmten Rest enthalten. Frühere Untersuchungen ergaben, dass Silizium in der gleichen Größenordnung wie das Eisen im PM2,5-Feinstaub enthalten ist (Israël, 1992).

Für die Auswertungen werden nur die Massen der reinen Elemente und Ionen betrachtet, nicht aber deren Oxidform oder andere chemische Verbindungen. Das organische Material OMI und OMII wurde aus den thermographisch bestimmten Kohlenstoffverbindungen OCI und OCII mit dem Faktor 1,2 berechnet (Ulrich, 1994) (Pesch, 2007b).

3 PM2,5-Feinstaubanalytik

Die Bestimmung der Staubmassenkonzentration und der Staubzusammensetzung ist die Basis für die Ermittlung der Quellen und deren quantitativer Beiträge zur Staubelastung an einem gegebenen Messort. Um eine möglichst hohe Informationsdichte zu erreichen, sollte die Sammelzeit möglichst kurz sein und eine große Anzahl von Staubinhaltsstoffen bestimmt werden. Besondere Bedeutung kommt dabei Leitparametern zu, die mit spezifischen Quellen verbunden werden können. Grenzen bezüglich der zeitlichen Auflösung und der Anzahl der Komponenten, die tatsächlich bestimmt werden, ergeben sich einerseits aus rein ökonomischen Erwägungen, andererseits aber auch aus messtechnischen bedingten Gründen. Die Herabsetzung der Sammelzeit ist unmittelbar mit einer Verringerung der im Zeitintervall gesammelten Staubmasse verbunden. Bei zu geringen Staubmassen wird die Wägung der Staubfilter zunehmend problematischer und führt letztlich zu einer Abnahme der Präzision und damit auch einer Abnahme der Aussagekraft der gewonnenen Daten. Gleiches gilt sinngemäß für die Bestimmung der Staubinhaltsstoffe.

Sinnvolle und häufig verwendete Sammelintervalle für die Staub-Ursachenanalyse und Quellzuordnungen sind 12 oder 24 Stunden Sammelzeit, was als ein Kompromiss der verschiedenen Gesichtspunkte betrachtet werden kann. Im Projekt wurde für alle Messstellen einheitlich eine Sammelzeit von 24 Stunden festgelegt. Dies hängt unter anderem damit zusammen, dass im Untersuchungsprogramm zwei Messstellen des Berliner Luftgütemessnetzes einbezogen sind, an denen kontinuierlich Tageswerte ermittelt werden.

Bezüglich der Auswahl der Staubsammelgeräte für das Projekt war das entscheidende Kriterium die Verfügbarkeit eines Probenahmekopfes, der eine PM2,5-Sammlung zulässt. Die Festlegung auf die Kleinfiltergeräte der Fa. Leckel resultierte letztlich aus den guten Erfahrungen, die mit diesen Staubsammlern im BLUME-Messnetz der Berliner Senatsverwaltung gemacht wurden. Aus den für die Probenahme festgelegten Bedingungen resultiert ein Gesamtluftvolumen von ca. 55 m³. Die analytischen Möglichkeiten der Inhaltsstoffbestimmung sind durch diese Vorgabe in gewisser Hinsicht eingeschränkt, da sie sich unmittelbar auf die erzielbaren atmosphärischen Bestimmungsgrenzen auswirkt und damit u.U. auch das Spektrum der nachweisbaren Komponenten limitieren.

Im Rahmen des Projektes wurden neben der Staubmassenkonzentration folgende Komponenten des PM2,5-Staubes bestimmt:

Elementarer Kohlenstoff (EC), organischer Kohlenstoff (OCI/OCII), organisches Material (OM), Chlorid (CI), Nitrat (NO₃), Sulfat (SO₄), Natrium (Na), Ammonium (NH₄), Kalium (K), Magnesium (Mg), Aluminium (AI), Calcium (Ca), Titan (Ti), Vanadium (V), Chrom (Cr), Eisen (Fe), Nickel (Ni), Zink (Zn), Arsen (As), Antimon (Sb) und Blei (Pb).

Die Auswahl der Komponenten orientierte sich einerseits an den erwartungsgemäß hohen Beiträgen zur Gesamtstaubmasse (Hauptkomponenten) andererseits wurden Leitkomponenten einbezogen, die für bestimmte Emittenten oder Emittentengruppen charakteristisch sind und daher für eine Quellzuordnung geeignet erschienen.

In diesem und dem folgenden Abschnitt werden die einzelnen Analysemethoden und die gerätetechnischen Aspekte beschrieben und die analytischen Spezifikationen erörtert.

3.1 Gravimetrische Staubmassenbestimmung

Die gravimetrische Staubmassenbestimmung der filtergesammelten Proben ist die Grundlage für die Berechnung der Staubmassenkonzentration in der Atmosphäre. Wichtige analytische Kriterien für die Festlegung der Sammel- und Wägebedingungen sind die geforderten Bestimmungsgrenzen und die Präzision. Beide Größen sind mit der auf den Filtern nach der Probenahme vorliegenden Staubmasse und der Schwankungsbreite der Wägung der Leerfilter verknüpft.

Vorversuche haben gezeigt, dass bei gegebener Masse der Leerfilter von ca. 140 mg die Mindeststaubmasse auf dem Filter ca. 100 μ g betragen muss, um noch hinreichend zuverlässige Gravimetriedaten zu erhalten. Bei einer festgelegten Sammelzeit von 24 Stunden und einem Probevolumen von etwa 55 m³ entspricht dies einer Staubmassenkonzentration in der Atmosphäre von ca. 1,8 μ g/m³. Es kann davon ausgegangen werden, dass dieser Wert für PM2,5 in der unteren Atmosphäre in der Region Berlin nicht unterschritten wird.

3.1.1 Auswahl des Filtermaterials

Das Filtermaterial für die Staubsammlung und für die gravimetrische Staubmassenbestimmung sowie die Inhaltsstoffanalyse unterliegt grundsätzlich folgenden Auswahlkriterien:

- Gute Handhabbarkeit bezüglich Sammlerbestückung und -entnahme
- Gute Wägeeigenschaften. Hier sind neben der mechanischen Stabilität insbesondere die hygroskopischen und elektrostatischen Eigenschaften von Bedeutung
- Hohe Staubabscheidung
- Kompatibilität mit den anzuwendenden Analysemethoden

 Geringe und, wenn vorhanden, möglichst reproduzierbare Blindwerte der zu bestimmenden Staubinhaltsstoffe

In Hinblick auf diese Anforderungen ist die Auswahl eines bestimmten Filtermaterials generell ein Kompromis. Die langjährigen Erfahrungen der Senatsverwaltung mit der Staubsammlung, der gravimetrischen Bestimmung und der Inhaltstoffanalyse haben gezeigt, dass Quarzfaserfilter prinzipiell geeignet sind. Sie können sowohl für die thermographische Kohlenstoffbestimmung, als auch für die Bestimmung der wasserlöslichen Ionen und der Spurenelemente verwendet werden.

Um die Vergleichbarkeit der Probenahme und der Staubanalyse zwischen dem Labor der Senatsverwaltung, das einen Teil der Analysen selber durchführt, und dem Labor des Auftragnehmers zu gewährleisten, wurde vereinbart, dass alle Staubsammler mit dem gleichen Filtermaterial bestückt werden. Zu Beginn der Messkampagne wurde dazu das Quarzfasermaterial der Fa. Whatman (Typ QF20) verwendet. Wegen einer Umstellung des Sortimentes war dieses Material nicht mehr in ausreichender Menge verfügbar, um es für den gesamten Messzeitraum zu verwenden. Es wurde daher lediglich für die Probenahme von Dezember 2006 bis Mitte Januar 2007 eingesetzt.

Seitens der Senatsverwaltung wurde daher nach Alternativmaterial gesucht. In von uns in Zusammenarbeit mit der BAM durchgeführten Voruntersuchungen wurden die Blindwerte verschiedener Filtermaterialien hinsichtlich einer großen Anzahl von Spurenelementen ermittelt. Da von den Filtermaterialien nur jeweils 1-2 Filterstücke verfügbar waren, können die angegebenen Daten allerdings nur als orientierend angesehen werden.

Tabelle 3.1: Untersuchung zu Schwermetallblindwerten in Filtermaterialien

Alle Angaben sind in μ g/l. Das Volumen der Aufschlusslösung betrug in allen Fällen 10 ml Säure. Die angegebenen Blindwerte für die Filter sind unkorrigiert, d.h. die Blindwerte des Säureaufschlusses sind bei der Angabe der Werte nicht berücksichtigt.

	Säure- blindwert	Pall	What	tman	What	man	Whatman		Munktell
Тур		QAO	QMA	QMA	QF20	QF20	QF20	QF20	
gestanzt		nein	nein	ja	groß	groß	15 mm	15 mm	nein
Al	60,0	170,0	140,0	140,0	100,0	96,0	47,0	41,0	400,0
As	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
Ca	50,0	82,0	320,0	83,0	90,0	55,0	49,0	44,0	180,0
Cr	2,5	8,1	5,4	8,5	10,0	9,1	1,7	2,1	16,0
Fe	100,0	200,0	160,0	230,0	200,0	230,0	60,0	96,0	270,0
Mg	18,0	83,0	100,0	83,0	23,0	22,0	14,0	17,0	150,0
Ni	1,3	2,0	9,1	2,7	3,3	3,2	1,1	1,2	5,7
Pb	1,2	2,5	7,8	2,7	3,7	2,7	3,3	1,1	0,3
Sb	0,1	3,2	0,4	0,2	0,4	0,4	0,3	0,2	6,1
Ti	2,0	23,0	4,4	2,9	3,3	2,3	1,2	0,1	9,8
V	0,2	0,2	0,2	1,3	0,1	0,1	0,0	0,0	0,2
Zn	3,0	15,0	20,0	14,0	7,2	6,1	2,9	2,1	130,0
Na	15-40	130,0	610,0	110,0	34,0	29,0	19,0	26,0	110,0
K	14-26	170,0	67,0	180,0	15,0	24,0	12,0	12,0	27,0

Ein Vergleich der Ergebnisse zeigt, dass die verschiedenen Filtermaterialien durchaus Unterschiede in der Höhe der Blindwerte für die diversen Komponenten aufweisen. Die Entscheidung der Senatsverwaltung entfiel letztendlich auf das Quarzfasermaterial der Fa. Pall (Typ Tissuequartz 2500 QAO), das für die Probenahme ab Mitte Januar 2007 ausschließlich verwendet wurde.

3.1.2 Vorbereitung der Filter

Alle Quarzfaserfilter wurden vor der Verwendung mindestens vier Stunden lang bei 800°C in einem Muffelofen geglüht, um an der Oberfläche anhaftende organische Verbindungen zu beseitigen. Die geglühten Filter werden anschließend bis zur Ermittlung des Leergewichtes und der Bestückung der Staubsammler in geschlossenen Petrischalen im Wägeraum aufbewahrt. Zum Äquilibrieren der Filter vor der Wägung werden diese mindestens 48 Stunden lang einer Luftfeuchtigkeit von ca. 50 % und einer Temperatur von ca. 22 °C ausgesetzt (DIN/EN-12341, 1999). Hierbei werden zur besseren Ventilation die Petrischalen leicht geöffnet gelagert.

3.1.3 Durchführung der gravimetrischen Messungen

Zur Wägung der Filter wird eine Waage der Fa. Satorius (Typ micro M3P) eingesetzt. Die gravimetrische Auflösung der Waage beträgt 1 µg bei einer Gesamtlast von 3000 mg. Die Waage ist in einem klimatisierten Wägeraum aufgestellt, dessen Atmosphäre auch das Konditionierungsmedium für das Filtermaterial darstellt.

Unmittelbar nach Ermittlung des Leergewichtes werden die Filter in die Filterhalter für die Staubsammler (Typ SEQ47/50) gelegt. Die bestückten Filterhalter werden bis zum Transport in einem geschlossenen Transportbehälter aus Aluminium aufbewahrt. Zur Ermittlung der Staubmassenkonzentration in der Atmosphäre werden nach kontrollierter Probenahme die auf den Filtern angereicherten Staubmassen gravimetrisch bestimmt. Dies erfolgt nach Rücktransport der Filter in das Untersuchungslabor und ebenfalls mindestens 48-stündigem Äquilibrieren im Wägeraum.

3.2 Methoden zur Bestimmung der Inhaltsstoffe

Für die quantitative Bestimmung der zu Beginn des Kapitels aufgeführten Komponenten werden verschiedene Analysemethoden herangezogen. Die Auswahl geeigneter Methoden richtet sich dabei grundsätzlich nach folgenden Kriterien:

- Ausreichende Erfassungsgrenze und geeigneter Messbereich,
- hohe Präzision und Richtigkeit,
- gute Selektivität gegenüber anderen Staubkomponenten und Filtermatrix,
- hohe Analysenfrequenz,
- vertretbarer instrumenteller Aufwand und Verfügbarkeit der Methode.

3.2.1 Erfassungsgrenzen

Bezüglich der erforderlichen Erfassungsgrenzen sind durch die Auswahl der Staubsammelgeräte und der Sammelzeit schon Randbedingungen vorgegeben. Der Luftdurchsatz der Staubmessgeräte SEQ 47/50 der Fa. Leckel beträgt 2,3 m³*h⁻¹, was bei einer Sammelzeit von 24 Stunden einem Gesamtluftvolumen von 55,2 m³ entspricht. Die resultierende Staubmasse hängt von der Staubmassenkonzentration der untersuchten Atmosphäre ab. Die typischen Werte im Untersuchungsgebiet liegen standort-, witterungs- und jahreszeitabhängig im Bereich 5-100 μ g/m³. Daraus ergeben sich rechnerisch erwartete Gesamtstaubmassen im Bereich 0,25-5,5 mg. Die maximale zu erwartende Spannweite der PM2,5-Staubkonzentration dürfte bei etwa 3-300 μ g/m³ liegen, was zu Gesamtstaubmassen auf den Filtern von 0,17-17 mg führt.

Für die Auswertung der Daten bezüglich der Quellzuordnung ist eine möglichst hohe Informationsdichte der Analysenergebnisse gefordert. Es sollten daher möglichst alle Proben analysiert und möglichst auch die Konzentrationen aller relevanten Staubinhaltstoffe ermittelt werden. Letzteres ist möglich, wenn die Bestimmungsgrenzen der eingesetzten Analysenmethoden niedriger sind als die Analytkonzentrationen im filtergesammelten Staub, bzw. in den Extrakten und Aufschlusslösungen, die nach der Behandlung der Filter vorliegen. Die sinnvolle und wünschenswerte Erfassungsgrenze sollte für alle Komponenten so gering sein, dass die quantitative Bestimmung der Inhaltsstoffe bei einer angenommenen Mindeststaubmassenkonzentration von 3 μg/m³ noch möglich ist. Die respektiven Daten sind in der Tabelle 3.2 zusammengestellt. Die Angaben der instrumentellen Bestimmungsgrenzen entstammen der Literatur bzw. von Herstellern, der im Projekt eingesetzten Messgeräte

(siehe Abschnitt 2). Die aus diesen Werten rein rechnerisch ermittelten absoluten Bestimmungsgrenzen pro Filter und die atmosphärischen Bestimmungsgrenzen für die einzelnen Komponenten resultieren aus den Bedingungen der Probenahme sowie der spezifischen Arbeitsvorschrift und der darin festgelegten Volumina an Extraktions- bzw. Aufschlusslösung. Nicht berücksichtigt ist eine Erhöhung der Erfassungsgrenzen aufgrund von Blindwerten.

Die Werte der erwarteten atmosphärischen Mindestkonzentrationen der Inhaltsstoffe im PM2,5-Staub stammen aus einer Abschätzung, der früher erhobene Daten für PM10 und PM2,5 zugrunde liegen (Israël, 1992). Man erkennt deutlich, dass die erwarteten Konzentrationen der verschiedenen Staubinhaltsstoffe in allen Fällen deutlich über denen liegen, die analytisch bestimmt werden können.

Tabelle 3.2: Staubinhaltsstoffkonzentrationen

Inhaltsstoff	Bestimmungsgrenze in Lösung [mg/l]	Bestimmungsgrenze [µg/Filter]	Atmosphärische Bestimmungsgrenze [10 ⁻³ µg/m ³]	Erwartete atmosphärische Mindestkonzentration [µg/m³]
OC		3,000	50,000	1,050
EC		3,000	50,000	0,663
Chlorid	0,010	0,200	3,600	0,050
Nitrat	0,020	0,400	7,200	0,413
Sulfat	0,020	0,400	7,200	0,975
Natrium	0,050	1,000	18,000	0,038
Ammonium	0,050	1,000	18,000	0,488
Kalium	0,050	1,000	18,000	0,038
Magnesium	0,003	0,130	2,400	0,006
Calcium	0,010	0,200	3,600	0,038
Aluminium	0,005	0,100	1,800	0,013
Titan	0,003	0,060	1,100	keine Angabe
Vanadium	<0,0005	<0,01	<0,18	0,001
Chrom	0,003	0,060	1,100	keine Angabe
Eisen	0,001	0,020	0,360	0,038
Nickel	<0,0003	<0,006	<1,1	0,000
Zink	0,002	0,040	0,700	0,010
Arsen	<0,0002	<0,004	<0,01	0,001
Antimon	<0,0002	<0,004	<0,01	keine Angabe
Blei	<0,0002	<0,004	<0,01	0,014

3.2.2 Gesamtkonzept der Analytik

Im vorliegenden Projekt gab es in einigen Fällen Vorgaben bezüglich der zu verwendenden Analysemethoden. Dies war darin begründet, dass ein Teil der im Untersuchungszeitraum gesammelten Filterproben vom Labor der Senatsverwaltung analysiert wird. Um eine möglichst hohe Vergleichbarkeit der Analysenergebnisse der von den beiden Laboratorien gemessenen Proben zu erzielen, wurden im Fall der Kohlenstoffbestimmung und der Bestimmung der wasserextrahierbaren Ionen gleiche Methoden verwendet und auch die respektiven Arbeitsvorschriften weitestgehend abgeglichen. Folgende Methoden wurden angewendet:

• Kohlenstoffbestimmung: Thermographie

• Wasserextrahierbare lonen: Ionenaustauschchromatographie (IC)

• **Spurenmetalle:** Elementmassenspektrometrie mit induktiv

gekoppeltem Plasma als Anregungsquelle (ICP-MS)

Ein besonderes Problem der in diesem Projekt vorgesehenen Staubinhaltstoffbestimmung beruht auf der Tatsache, dass an jedem Probenahmeort nur ein Staubsammler zur Verfügung steht und somit auch nur eine Einzelprobe für ein gegebenes Zeitintervall resultiert. Für die Bestimmung der Inhaltsstoffe sind somit hinsichtlich der Auswahl eines geeigneten Filtermaterials und der Verfügbarkeit des Filters für unterschiedliche Analysemethoden erhebliche Einschränkungen gegeben. Es musste daher ein Analysekonzept erarbeitet werden, das es erlaubt, möglichst alle für das Projekt relevanten Inhaltsstoffe von einem Filter zu bestimmen. Grundsätzlich kann dies durch Teilung der Filter und Analyse der einzelnen Teilstücke mit unterschiedlichen Verfahren erfolgen. Eine andere Möglichkeit besteht in der sequentiellen Analyse des gesamten Filters.

Im Rahmen des Forschungsprojektes wurde eine Kombination dieser beiden Wege gewählt. Dieses Konzept hatte sich in einem vorausgegangenen Projekt zur Staubursachenanalyse bewährt (Frenzel, 1991). Ein Fließschema der Verfahrensweise ist schematisch in Abbildung 3.1 dargestellt.

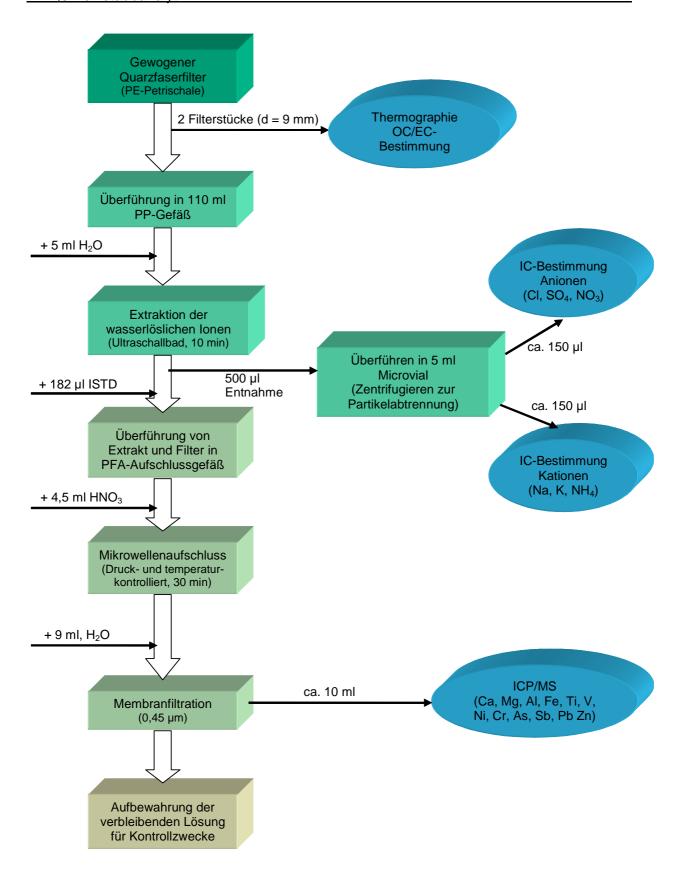


Abbildung 3.1: Fließdiagramm zum Gesamtkonzept der Analytik

Aus den gewogenen Filtern werden zwei kleine Teilstücke ausgestanzt, die für die thermographische Bestimmung der Kohlenstofffraktion verwendet werden. Die verbleibenden Filter werden mit 5 ml destilliertem Wasser versetzt und im Ultraschallbad behandelt. Von der Extraktionslösung werden exakt 500 µl entnommen und durch Zentrifugieren die Fasern der Staubfilter abgetrennt. Von der klaren Lösung werden ca. 300 µl mit einer Injektionsspritze entnommen und diese zum Befüllen der beiden ionenchromatographischen Systeme für die Anionen- bzw. Kationenbestimmung verwendet.

Die verbleibende Probelösung wird mit einem definierten Volumen einer internen Standardlösung mit den Elementen Ge, In, Rh und Ho versetzt, um unterschiedliche Ionisierungseffizienzen im Plasma des ICP-MS - verursacht durch Matrixzusammensetzungen der Probelösungen - zu kompensieren. Gleichzeitig wird mit Verwendung des internen Standards die Drift des Messsignals korrigiert. Im Anschluss daran wird der gesamte Inhalt des Extraktionsgefäßes (Extraktionslösung und Filter) in einen Aufschlussbecher überführt. Nach Zugabe von exakt 4,5 ml konzentrierter Salpetersäure wird ein Druckaufschluss in der Mikrowelle durchgeführt. Die resultierende Aufschlusslösung wird definiert mit Wasser verdünnt und nach Abtrennen der festen Rückstände das Filtrat für die Elementbestimmung mittels ICP-MS abgefüllt.

In den folgenden Abschnitten werden die verschiedenen Methoden der Inhaltsstoffbestimmung kurz beschrieben und deren analytische Spezifikationen angeführt.

3.3 Bestimmung des organischen und elementaren Kohlenstoffs

Kohlenstoff liegt in der Atmosphäre im Wesentlichen in drei Gruppen vor. Man unterscheidet hierbei zwischen organischem Kohlenstoff (im weiteren OC benannt), elementarem Kohlenstoff (im weiteren EC benannt) und Carbonaten. Aufgrund der geringen lufthygienischen Bedeutung und der typischerweise sehr geringen Massenkonzentration wird die letzte Gruppe nicht weiter berücksichtigt. Bei der Einteilung der beiden erstgenannten Gruppen ist zu beachten, dass hier Verbindungen mit zum Teil sehr unterschiedlichen chemischen und physikalischen Eigenschaften zu jeweils einer Gruppe zusammengefasst werden.

Die Gruppe des organischen Kohlenstoffs lässt sich weiter unterteilen in Kohlenwasserstoffe mit geringem Dampfdruck (im weiteren OC I benannt) und Kohlenwasserstoffe mit hohem Dampfdruck (im weiteren OC II benannt). Die Verbindungen des organischen Kohlenstoffs können in einem Inertgasstrom verdampfen (für OC I) bzw. pyrolysieren (für OC II) und lassen sich somit vom elementaren Kohlenstoff selektiv abtrennen (Ulrich, 1994).

Es sei an dieser Stelle darauf hingewiesen, dass die Sammlung flüchtiger an der Stauboberfläche anhaftender Verbindungen, die durch die OC I-Fraktion repräsentiert werden, nicht unbedingt als quantitativ angesehen werden kann. Das ständige Durchströmen der Filter mit dem Messgas während der Probenahme führt zu einer dynamischen Einstellung von Adsorptions- und Desorptionsgleichgewichten. Auch kann es bei der

Äquilibrierung der Staubproben vor der gravimetrischen Bestimmung und bei der Handhabung der Filter im Labor zu einer Adsorption bzw. Desorption flüchtiger organischer Verbindungen kommen. In diesem Zusammenhang spielen auch die Bedingungen der Konditionierung und Lagerung im Wägeraum eine entscheidende Rolle.

Die Fraktion des elementaren Kohlenstoffs setzt sich im Wesentlichen aus Ruß zusammen. Ruß entsteht bei der unvollständigen Verbrennung bzw. bei der thermischen Spaltung von kohlenstoffhaltigen Materialien. Im Gegensatz zum genau definierten, industriell hergestellten Ruß ist der aus Verbrennungsprozessen gebildete Ruß nicht eindeutig zu definieren. Im Sinne der thermographischen Bestimmungsmethode wird elementarer Kohlenstoff operativ als die Kohlenstofffraktion festgelegt, die nach Abdampfen der organischen Komponenten im Sauerstoffstrom zu Kohlendioxid verbrannt werden kann (VDI, 1997).

Durchführung der Kohlenstoffbestimmung und analytische Spezifikationen

Die Grundlage für die Bestimmung der Kohlenstofffraktionen ist die VDI-Richtlinie 2465, Teil 2 (VDI, 1997). Die Methode basiert auf einem am Fachgebiet Luftreinhaltung der TU Berlin entwickelten Verfahren (Ulrich, 1994). Danach erfolgt die Bestimmung der Kohlenstofffraktionen im Staub durch so genannte Thermographie, bei der die unterschiedliche Stabilität und Flüchtigkeit der einzelnen Gruppen ausgenutzt wird. Die organischen Kohlenstoffgruppen, OC I und OC II, werden durch Aufheizen der Probe im Heliumgasstrom verdampft und in einem nachgeschalteten Ofen zu Kohlendioxid oxidiert. Das gebildete Kohlendioxid wird in der Gasphase mittels nicht-dispersiver Infrarotspektrometrie (NDIR) detektiert. Der elementare Kohlenstoff wird in einem zweiten Schritt im Sauerstoffstrom zum Kohlendioxid verbrannt, gelangt so in den Trägergasstrom und wird ebenfalls mit NDIR detektiert. Abbildung 3.2 zeigt die im Projekt eingesetzte Thermographieapparatur.



Abbildung 3.2: Thermographie zur Kohlenstoffbestimmung

Die Thermographieanlage besteht im Wesentlichen aus vier Bestandteilen, der geregelten Gaszufuhr, der Probenaufgabe, dem Pyrolyse- und Katalysatorrohr mit jeweils dazugehörigen Ofen und dem NDIR-CO₂-Detektor.

Die Probenaufgabe erfolgt über eine gasdichte Schleuse. Die Probe wird hierbei in ein rohrförmiges Schiffchen aus V4A-Stahl eingebracht und über ein Gestänge in das Analyserohr überführt. Hierbei wird das Schiffchen so positioniert, dass sich die Spitze des NiCr-Ni-Thermoelements oberhalb der Probe befindet. Dadurch wird gewährleistet, dass die Temperatur des Filters von der Regeltemperatur höchstens um 20 K abweicht.

Das Analyserohr aus Quarzglas bildet den Kern der Anlage, wobei es sich in zwei Zonen unterteilt, die durch eine Verjüngung miteinander verbunden sind. Der Pyrolyse- sowie der Verbrennungsvorgang erfolgen in der ersten Zone des Analyserohrs. Die Regelung erfolgt hierbei über ein achtstufiges Temperaturprogramm. Die Heizung erfolgt über einen IR-Ofen mittels einer Halogenlampe mit einer elektrischen Leistung von 1.500 W. Sie ermöglicht einen Temperaturgradienten von 600 K/min, bis auf ein Temperaturniveau von 1.000℃. Zusätzlich zur Wasserkühlung wurde an dem IR-Ofen eine Luftkühlung installiert, welche den konvektiven Wärmestrom zwischen den Kühlflächen und dem Quarzrohr erhöht. Somit konnten die Abkühlphasen auf ein Drittel reduziert werden.

Der zweite Teil des Analyserohrs beinhaltet den Festbettkatalysator und ist von einem Rohrofen umschlossen. Der aus Kupferoxid (CuO) und Ceroxid (CeO₄) bestehende Oxidationskatalysator wird im Rohrofen auf konstant 900℃ gehalten und kontinuierlich im Sauerstoffstrom regeneriert. Der Sauerstoff wird über ein den Katalysator umschließenden Quarzrohrmantel im Gegenstrom eingeführt und dabei vorgewärmt. Die Detektion des in Kohlendioxid umgewandelten Kohlenstoffs erfolgt anschließend mittels eines NDIR-Detektors, der für zwei Messbereiche, 0-500 ppm und 0-2.000 ppm, ausgelegt ist. Die Signale werden von einem 16 Bit Analog-Digital-Wandler aufgezeichnet und mittels Integrationssoftware (Fa. Kontron) die Peakflächen der jeweiligen Fraktionen ausgewertet.

Vor jeder Messserie ist eine Kalibration durchzuführen. Dies erfolgt durch Applikation definierter Volumina reinen Kohlendioxids in den Trägergasstrom und Auswertung der resultierenden Signalflächen. Es werden getrennte Kalibrationsfunktionen für alle drei Fraktionen aufgenommen, indem eine zeitlich gesteuerte Injektion diskreter Volumina in den Inertgasstrom vorgenommen wird. Die Zuordnung der Signale und die Quantifizierung erfolgt anhand des Temperatur-Zeit-Programms.

Für die praktische Durchführung der Kohlenstoffbestimmung werden aus den bestaubten Filterproben jeweils zwei kleine Teilstücke von 9 mm Durchmesser ausgestanzt und getrennt voneinander analysiert (Doppelbestimmung). Die Bestimmung der Kohlenstoffmasse erfolgt anhand der Signalflächen der einzelnen Signale in den vorgegebenen Temperaturbereichen.

Die absoluten Bestimmungsgrenzen des Verfahrens, die auf der Grundlage des Signal-Rauschverhältnisses bei der Injektion von CO₂-Gas ermittelt wurden, betragen in etwa 0,015 μg Kohlenstoff bzw. 0,045 μg CO₂. Die bei der Analyse von realen Staubproben resultierenden Thermogramme weisen für alle drei Fraktionen OCI, OCII und EC meist Mehrfachpeaks auf, die zudem eine sehr unterschiedliche Geometrie haben. Die Flächenintegration der Summe aller Signale, die einer Fraktion zugeordnet werden, ist daher mit einer Erhöhung der Bestimmungsgrenze um etwa den Faktor 5-10 gegenüber der Gaskalibration verbunden. In der Praxis kann eine zuverlässige Integration noch durchgeführt werden, wenn die Kohlenstoffmasse einer Fraktion 0,10 - 0,15 μg Kohlenstoff bzw. 0,03-0,45 μg CO₂ beträgt.

Aufgrund der Tatsache, dass von den belegten Filtern nur ein Teilstück von 9 mm Durchmesser herausgestanzt wird, ergibt sich somit eine praktische Bestimmungsgrenze von 2-3 μ g Kohlenstoff/Filter und unter Berücksichtigung der Probenahmebedingungen (24 h Sammelzeit, 2,3 m³/h Sammelrate) eine Bestimmungsgrenze von etwa 0,036 bis 0,054 μ g/m³ Kohlenstoff in der Atmosphäre.

Die Präzision von Wiederholmessungen ist typischerweise kleiner 5 % bei der Bestimmung von CO_2 -Injektionen und beträgt für hinreichend homogen belegte Staubfilter etwa 5-10 % für die beiden OC-Fraktionen und 3-8 % bei der EC-Fraktion (Ulrich, 1994). Untersuchungen an realen Filtern, die mit den im Projekt verwendeten Staubsammelgeräten durchgeführt wurden, zeigen eine etwas schlechtere Wiederholpräzision für die OC-Bestimmung. Aufgrund des allgemeinen Analysenkonzeptes wird generell eine Doppelbestimmung der Kohlenstofffraktionen durchgeführt. Dabei wurden, insbesondere im unteren Konzentrationsbereich für die OC-Fraktion in Einzelfällen Abweichungen der beiden Einzelwerte von bis zu 30 % gefunden.

3.4 Bestimmung der wasserlöslichen ionischen Staubinhaltstoffe

Für die Bestimmung einer Reihe wasserlöslicher Staubinhaltsstoffe wird die Ionenchromatographie herangezogen. Im Rahmen des Projektes ist die Bestimmung der Anionen Chlorid, Nitrat und Sulfat sowie der Kationen Natrium, Ammonium und Kalium vorgesehen. Auf die Bestimmung von Calcium und Magnesium, die in der Kationenchromatographie ebenfalls getrennt werden und auch quantifiziert werden können, wird verzichtet, da davon auszugehen ist, dass der Gesamtgehalt dieser Elemente höher als der wasserlösliche Anteil ist. Der Gesamtgehalt wird im Zuge der Spurenelementbestimmung mittels ICP-MS (siehe Abschnitt 3.5) mit erfasst.

Die analytischen Spezifikationen der Ionenchromatographie erlauben prinzipiell die Bestimmung der genannten Komponenten bis herab in den unteren µg/l-Bereich. Die Selektivität der Methode ist außerordentlich hoch, so dass keinerlei Interferenzen bei der Auswertung der Signale auftreten. Darüber hinaus bietet die IC das Potential auch andere Ionen (z.B. organische Säuren) zu detektieren und damit ggf. interessante weitere Leitkomponenten für die Staubursachenanalyse und Quellzuordnung auszumachen.

Durchführung der Ionenchromatographie und analytische Spezifikationen

Die hier gewählte Arbeitsvorschrift ist angelehnt an die in der VDI-Richtlinie 3496, Teil 3 beschriebene Prozedur für die Bestimmung von Anionen in filtergesammelten Stäuben sowie die (DIN-30405-Teil19, 1988) für die Bestimmung von Kationen in Wasser. Die Extraktion der nach dem Ausstanzen der Filterstücke für die Kohlenstoffbestimmung verbliebenen Quarzfaserfilter erfolgt durch Ultraschallbehandlung. Nach beendeter Extraktion wird ein geringes Volumen der Probelösung entnommen und nach Abtrennen der Partikel durch Zentrifugation mit der Ionenchromatographie analysiert. Es werden zwei getrennte IC-Systeme parallel betrieben, um auf diese Weise mit einer einzigen Entnahme die Kationen und Anionen quasi gleichzeitig zu bestimmen. Die verbleibenden Filterstücke mit dem Restvolumen an Wasser werden zur weiteren Bearbeitung (Säureaufschluss und ICP-MS-Bestimmung, siehe Abschnitt 3.5) wieder verschlossen und beiseite gestellt.

Mit den von uns verwendeten Analysesystemen zur Anionen-IC wird die Simultanbestimmung der drei Anionen Chlorid, Nitrat und Sulfat innerhalb von 15 Minuten durchgeführt. Es wurden keine Anstrengungen unternommen die Analysenzeit zu verkürzen, da einerseits die Kationentrennung in etwa die gleiche Zeit benötigt, und zum anderen die mit der langen Analysenzeit verbundene hohe chromatographische Auflösung die Bestimmung weiterer Anionen prinzipiell möglich macht.

Untersuchungen zur Festlegung des Arbeitsbereiches und der Ermittlung der Bestimmungsgrenzen für die verschiedenen ionischen Inhaltsstoffe haben ergeben, dass im Falle der Chlorid- und Natriumbestimmung die Begrenzung des Arbeitsbereiches nach unten hin durch Blindwerte gegeben ist (siehe auch Abschnitt 3.6). Eine eindeutige Ursache für die zum Teil auch stark streuenden Blindwerte dieser beiden Komponenten konnte nicht ausgemacht werden. Das ubiquitäre Auftreten von Natrium und Chlorid legt die Vermutung nahe, dass die Handhabung der Filter, der wiederholte Kontakt mit Gefäßen sowie auch ein Eintrag aus der Raumluft gemeinsam für die Blindwerte verantwortlich sind. Bei allen anderen wasserlöslichen Komponenten treten entweder gar keine oder vernachlässigbar kleine Blindwerte auf.

3.5 Bestimmung der Spurenmetalle

Für die Bestimmung der Elemente existieren prinzipiell verschiedene Analysemethoden von denen einige auch zur Analyse von filtergesammelten Stäuben geeignet sind. Die wichtigsten Methoden sind die Röntgenfluoreszenzspektrometrie (XRF), die instrumentelle Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) sowie verschiedene atomspektrometrische Verfahren wie Emissionsspektrometrie mit Anregung durch ein induktiv gekoppeltes Plasma (ICP-OES) oder Atomabsorptionsspektrometrie (AAS). Weiterhin steht mit der Plasma-Massenspektrometrie (ICP-MS) seit einigen Jahren eine sehr leistungsfähige Multielementmethode mit sehr niedrigen Nachweisgrenzen für die Bestimmung fast aller Metalle zur Verfügung.

Die ICP-MS wurde seit ihrer Einführung in vielen Studien für die Bestimmung von Spurenelementen in Luftstaubproben eingesetzt (Connell, 2006; Goforth, 2006). Die dabei gemachten guten Erfahrungen favorisieren diese Methode gegenüber den anderen oben genannten Analyseverfahren. Die Anteile der diversen Spurenmetalle im Gesamtstaub sind voraussichtlich sehr unterschiedlich und stark abhängig vom Sammelort und der Herkunft des Staubes. Mit der ICP-MS wird eine Analysenmethode für die Spurenelementbestimmung eingesetzt, die die geringsten Nachweisgrenzen aller zur Verfügung stehenden atomspektrometrischen Methoden aufweist. Der rein rechnerisch aus den instrumentellen Bestimmungsgrenzen der ICP-MS ableitbare Messbereich für die verschiedene Elemente ist in allen Fällen ausreichend, um die relevanten Spurenmetalle zu quantifizieren. Bei der Analyse der realen Proben muss allerdings generell damit gerechnet werden, dass die Bestimmungsgrenzen nicht durch die Detektion sondern durch mögliche Blindwerte (Filtermaterial, Transport, Säuren) limitiert werden (siehe auch Abschnitt 3.6).

Durchführung der Spurenmetallbestimmung

Die Bestimmung der Elemente in Staubproben mittels ICP-MS erfordert eine vorangehende Mineralisierung des Staubes und die Überführung in die flüssige Phase. Der übliche Weg ist ein Säureaufschluss, der je nach verwendeter Säure bzw. Säuremischung und angewandter Prozedur zu einer vollständigen Lösung oder einer Extraktion der säurelöslichen Bestandteile des Staubes führt. Der bei unseren Untersuchungen eingesetzte mikrowellenunterstützte Säureaufschluss hat sich in zahlreichen Untersuchungen als sehr geeignet für die Staubanalyse erwiesen. Als Extraktionsmittel wurde im vorliegenden Fall halbkonzentrierte Salpetersäure verwendet. Auf der Basis zahlreicher in der Literatur beschriebener Untersuchungen kann davon ausgegangen werden, dass für eine größere Anzahl der im Rahmen des Projektes zu bestimmenden Elemente die Heißextraktion mit Salpetersäure vergleichbare Werte zu einer Gesamtbestimmung liefert.

Entsprechend des allgemeinen Analysenkonzeptes (siehe Abbildung 3.1) werden die verbleibenden wässrigen Extrakte zusammen mit dem Staubfilter einem mikrowellenunterstützten Druckaufschluss unterzogen. Dabei kommt es durch die Zugabe der Säure und dem nach dem Aufschluss notwendigen Zusatz von Wasser zu einer Verdünnung der Probe. Anschließend werden die Proben zur Abtrennung der Quarzfasern filtriert und die Extrakte für die ICP-MS-Bestimmung an den Projektpartner BAM weitergeleitet.

Zur ICP-MS Bestimmung von elf Elementen wird ein Agilent 7500cs ICP-MS Hochleistungsmassenspektrometer mit Kollisionszelle eingesetzt. Es handelt sich dabei um ein QuadrupolMassenspektrometer mit einer Massenauflösung von etwa 1 amu. Die ausgewählten
Analytmassen können durch Bildung von Molekülionen oder zweifach geladenen Kationen,
die auf der gleichen Masse (m/z⁺) detektiert werden, gestört sein. Um die Störungen zu
verhindern sind optimale Plasmabedingungen mit einer Oxidbildungsrate von CeO⁺/Ce⁺
unter 2 % sowie doppelt geladener Kationen Ce²⁺/Ce unter 3 % einzustellen. Zur
Eliminierung der Molekülstörungen wird eine Kollisionszelle mit Helium oder Wasserstoff als
Kollisionsgas eingesetzt, die in Verbindung mit einer energie-diskriminierenden Einstellung

der Linsenspannungen betrieben wird. In Tabelle 3.3 sind die möglichen Molekülstörungen auf den Analytmassen sowie die jeweilige Auswahl des Kollisionszellengases aufgeführt.

Tabelle 3.3: Element- und Mo	olekülstörungen der ICP-MS

Analyt	Masse	Potentielle Störungen	Kollisionszellengas
Mg	24	Ti ²⁺ , Ca ²⁺ NaH	He
Al	27	⁹ Be ¹⁸ O, ¹¹ B ¹⁶ O, ¹³ C ¹⁴ N, ¹ H ¹² C ¹⁴ N	He
Ca	40	⁴⁰ Ar	H ₂
Ti	47	³¹ P ¹⁶ O, ⁴⁰ Ar ⁷ Li, ⁹⁴ Zr ²⁺	He
V	51	³⁵ Cl ¹⁶ O, CIN, ArB	He
Cr	52	⁴⁰ Ar ¹² C, CIOH	He
Fe	56	⁴⁰ Ar ¹⁶ O, ⁴⁰ Ca ¹⁶ O	H ₂
Ni	60	⁴⁴ Ca ¹⁶ O, ²³ Na ³⁷ Cl	He
Zn	66	⁵⁰ Ti ¹⁶ O, ³⁴ S ¹⁶ O ₂	He
As	75	⁴⁰ Ar ³⁵ Cl	He
Sb	121	¹⁰⁵ Pd ¹⁶ O, ⁴⁰ Ar ⁸¹ Br	He
Pb	208	¹⁹² Os ¹⁶ O, ¹⁹² Pt ¹⁶ O	He

Die Messungen der Probenlösungen erfolgten auf der Basis der Norm DIN ISO 17294-2 nach externer Kalibrierung unter Verwendung von ⁷⁴Ge (als internem Standard) bis zur Masse 75 und für die Elemente Antimon und Blei mit ¹⁶⁵Ho (als internem Standard). Für Blei wurde die Summe der Massen 206, 207 und 208 gebildet, um eventuelle Abweichungen vom natürlichen Isotopenverhältnis des Elementes Blei auszugleichen. Korrekturgleichungen zur Berechnung von Masseninterferenzen wurden nicht angewendet, da die Kollisionszelle bei einem Gasfluss von 4,5 ml/min und Wasserstoff von 4 ml/min die Molekülinterferenzen vollständig unterbindet.

Die Linearität der ICP-MS ist über mindestens sechs Größenordnungen gegeben. Der festgelegte Arbeitsbereich der Methode beträgt für alle untersuchten Elemente $0.5 \,\mu\text{g/l} - 100 \,\text{mg/l}$. Die Kalibrierkurven für alle elf Elemente wiesen einen Regressionskoeffizienten r > 0.9995 auf. Die Nachweisgrenzen betragen je nach Element ca. $0.01 - 0.1 \,\mu\text{g/l}$ (berechnet als dreifache Standardabweichung des Blindwerts). Die Bestimmungsgrenze ist unter Berücksichtigung des Matrixeinflusses der Proben um den Faktor 5 bis 10 höher.

Die typische Wiederholpräzision der Probenlösungen bei fünf Integrationen, ausgedrückt als relative Standardabweichung RSD, beträgt im Konzentrationsbereich 0,1 - 1 μ g/l ca. 5 %, im Bereich 1 - 10 μ g/l ca. 2 % und im Bereich 10 μ g/l - 100 mg/l ca. 1 %.

3.6 Blindwertproblematik

Die Ermittlung der Analysen-Blindwerte und deren Ursachen gehören zu den wichtigen Schritten bei der Optimierung der Analysenprozedur. Es wird dabei unterschieden zwischen zufälligen Blindwerten, die durch Kontamination (z.B. Staubeintrag aus der Laborluft) von außen oder auch bei der Handhabung der Proben entstehen, sowie systematischen

Blindwerten, die beispielsweise durch die Auswahl des Filtermaterials (siehe Abschnitt 3.1.1) oder durch Chemikalienverunreinigungen hervorgerufen werden. Die Ursachen für zufällige Kontaminationen sind bei der Methodenoptimierung ermittelt und weitgehend ausgeschaltet worden. So werden alle Gefäße und Materialien, mit denen die Probe in Berührung kommt vor Gebrauch mehrfach gründlich mit Reinstwasser gespült und wenn erforderlich bis zum Gebrauch in staubfreien Containern gelagert.

Das entwickelte Analysenkonzept (siehe Abbildung 3.1) sieht zudem eine minimale Manipulation der Probe bzw. der Probenlösungen vor, so dass auch hier der mögliche Eintrag von Verunreinigungen gering gehalten werden kann.

Die systematischen Blindwerte können in die durch das Filtermaterial verursachten und die von der Extraktions- bzw. Aufschlusslösung herrührenden unterschieden werden. Durch Vorversuche sind diese Daten experimentell ermittelt worden.

3.6.1 Kohlenstoffbestimmung

Es konnte gezeigt werden, dass die Kohlenstoffbestimmung blindwertfrei durchgeführt werden kann. Messungen ohne und mit eingelegtem Leerfilter in den Verbrennungsofen zeigen weder bei den beiden OC-Fraktionen noch bei der EC-Fraktion Signale, die statistisch signifikant über dem Nullsignal liegen. Dies gilt auch für Leerfilter, die über längeren Zeitraum im Wägeraum gelagert wurden.

3.6.2 Wasserlösliche Ionen

Untersuchungen zur Bestimmung der wasserlöslichen Ionen mit der Ionenchromatographie haben gezeigt, dass auch bei sehr sorgfältiger Ausführung aller Arbeitschritte mit mehrfachem Zwischenspülen aller Gefäße und auch des Injektionssystems der beiden IC-Geräte mit Reinstwasser immer Bildwerte für Chlorid und Natrium und manchmal auch für Nitrat auftraten. Die auf der Grundlage der Basiskalibration ermittelten Konzentrationen der Blindwerte der wässrigen Lösung streuen für Natrium und Chlorid im Bereich von etwa 0,03 bis 0,1 mg/l, für alle anderen wasserlöslichen Komponenten liegen die Blindwerte unterhalb von 0,05 mg/l.

Die Simulation der gesamten Extraktionsprozedur ohne Verwendung von Filtermaterial liefert Hinweise über eine mögliche Kontamination durch den Kontakt mit den diversen Gefäßmaterialien sowie durch Eintrag aus der Luft. Eine weitere Quelle ist die mögliche Verschleppung von Verunreinigungen bei der Probeninjektion, insbesondere bei der sequentiellen Analyse von Staubproben mit sehr unterschiedlichen Konzentrationen (crosscontamination). Die in Vorversuchen ermittelten Ergebnisse zeigen nur eine leichte Erhöhung der Blindwerte für Chlorid und Natrium. Weitergehende Untersuchungen zu den durch das Filtermaterial verursachten Beiträgen zum Gesamtblindwert haben gezeigt, dass bei entsprechend sorgfältiger Handhabung der Filter im Zuge der vorangehenden Arbeitsschritte, die resultierenden Analytkonzentration nur im Falle von Chlorid, Natrium und

Ammonium statistisch signifikant ansteigen. Unter Berücksichtigung der Schwankungsbreite der Analysenergebnisse für die Blindwerte ergeben sich die in Tabelle 3.4 aufgeführten praktischen Bestimmungsgrenzen für die gesamte Analysenprozedur. Die unter gegebenen Sammelbedingungen auf die atmosphärische Konzentration bezogenen Bestimmungsgrenzen sind ebenfalls angegeben.

Tabelle 3.4: Blindwerte der Bestimmung wasserlöslicher Ionen

Die angegebenen Werte berücksichtigen alle vor der IC-Messung durchgeführten Verfahrensschritte

Analytion	Schwankungsbreite	Absolute	Atmosphärische
	der Blindwerte und	Bestimmungsgrenze	Bestimmungsgrenze
	Mittelwerte (mg/l)	des Filters (µg/Filter)	(μg/m³) / 5σ
Chlorid	0,10~0,8 (0,35)	0,18	0,017
Nitrat	0,05~0,2 (0,125)	0,63	0,058
Sulfat	0,05~0,2 (0,125)	0,63	0,058
Natrium	0,20~0,8 (0,4)	0,20	0,018
Ammonium	0,20~0,5 (0,35)	0,18	0,017
Kalium	0,10~0,3 (0,2)	0,10	0,009

3.6.3 Spurenmetalle

Untersuchungen zu den Blindwerten bei der Spurenmetallbestimmung sind hinsichtlich der Beiträge der Analysenprozedur und des verwendeten Filtermaterials durchgeführt worden. Zusätzlich wurden die allein beim Aufschluss auftretenden Blindwerte ermittelt. Eine Zusammenstellung der Ergebnisse ist in Tabelle 3.5 gegeben.

Die Daten lassen erkennen, dass für viele der zu bestimmenden Elemente die Filterblindwerte deutlich über denen durch Handhabung und Chemikalien bedingten Blindwerten liegen. Ausnahmen sind bei Magnesium und Calcium gegeben, wo die Filter kaum einen Beitrag zum Gesamtblindwert liefern.

Eine weitergehende Auswertung der Daten zeigt, dass in vielen Fällen die Streuung der Blindwerte relativ gering ist, so dass eine Korrektur der Analysenergebnisse der Filterproben durch Subtraktion vorgenommen werden kann. Probleme bereiten diesbezüglich allerdings die Elemente Calcium, Aluminium und Eisen, wo stark schwankende Blindwerte aufgetreten sind.

Tabelle 3.5: Experimentell ermittelte Blindwerte

Alle Angaben in μ g/l. Das Volumen der Aufschlusslösung betrug in allen Fällen 18,3 ml Säure. Die angegebenen Blindwerte für die Filter sind unkorrigiert, d.h. die Blindwerte des Säureaufschlusses sind bei der Angabe der Werte nicht berücksichtigt.

Sample	Mittelwert	Standard-	Mittelwert	Standard-	Differenz	Faktor
	Filter, Gefäß	abweichung	Gefäß	abweichung		
Mg	15,56	1,12	13,92	3,94	1,64	1,12
Al	76,53	10,47	6,12	1,28	70,41	12,50
Ca	218,28	55,4	165,66	30,80	52,62	1,32
Ti	0,85	0,5	0,27	0,15	0,58	3,15
V	0,12	0,05	0,01	0,00	0,11	12,00
Cr	10,09	2,17	0,21	0,07	9,88	48,05
Fe	31,72	4,17	5,11	1,33	26,61	6,21
Ni	0,96	0,56	0,30	0,08	0,66	3,20
Zn	12,15	2,64	0,23	0,22	11,92	52,83
As	0,01	0,01	0,00	0,00	0,01	1,10
Sb	0,05	0,01	0,03	0,00	0,02	1,67
Pb	0,88	0,17	0,16	0,05	0,72	5,50

4 PM10, PM2,5 und PM2,5-Inhaltsstoffe

4.1 Vergleich der PM2,5-Konzentrationen an den Messstandorten

Im folgenden Abschnitt werden die Ergebnisse der Untersuchungen zu den PM2,5-Konzentrationen an den unterschiedlichen Standorten sowie die Ergebnisse der chemischen Zusammensetzung der Staubproben zusammengefasst.

In Tabelle 4.1 sind die mittleren Staubkonzentrationen (Mean) sowie die Standardabweichungen der Einzelwerte (Sd) und der Mittelwerte (Sd Mean) zusammengestellt. Die Tabelle zeigt, dass es deutliche Unterschiede zwischen der mittleren PM2,5-Konzentration auf dem Frohnauer Turm und an der Station in Hasenholz gibt. Eine Ursache hierfür ist die unterschiedliche Lage der beiden Stationen: während die Bodenmessstation Hasenholz, östlich von Berlin gelegen, bei westlicher Luftströmung durch urbane Luftverunreinigungen beeinflusst werden kann, wird die Messstation in 325 m Höhe auf dem Frohnauer Turm anders, und offenbar im Mittel deutlich geringer von Emissionen der Stadt beeinflusst. Für die folgenden Betrachtungen werden die Feinstaubmessungen an der Station in Hasenholz als repräsentativ für die regionale Hintergrundbelastung und die Messungen auf dem Turm als repräsentativ für die großräumige, überregionale Feinstaubbelastung angesehen.

Zu beachten ist, dass es Situationen gibt, in denen die oben beschriebene Eignung der Stationen eingeschränkt ist. Dazu zählen z.B. vertikale Mischungsprozesse, durch die auch oben auf dem Turm der in der Stadt emittierte Feinstaub zumindest teilweise mit erfasst wird. Die relativ geringe mittlere PM2,5-Feinstaubbelastung von $12,2\,\mu\text{g/m}^3$ gegenüber der mittleren PM2,5-Feinstaubkonzentration in Hasenholz von $14,4\,\mu\text{g/m}^3$ lässt darauf schließen, dass der Frohnauer Turm allerdings nur selten von PM2,5-Emissionen der Stadt beeinflusst wurde.

Die höchste im Zeitraum 01.12.2006 bis 29.02.2007 gemessene PM2,5-Konzentration betrug 70,7 μg/m³ an der Frankfurter Allee und trat am 21. Februar 2008 auf.

Die wichtigen statistischen Parameter der PM2,5-Feinstaubmessungen und der Inhaltsstoffbestimmungen sowie die Boxplots der Verteilungen sind getrennt nach den verschiedenen Standorten im Anhang aufgeführt.

Abbildung 4.1 verdeutlicht die Unterschiede der mittleren PM2,5-Konzentrationen an den verschiedenen Standorten. Die an den Balken zusätzlich angegebene Standardabweichung der Mittelwerte zeigt, dass die Konzentrationsunterschiede im arithmetischen Mittel signifikant sind. Die mittleren PM2,5-Werte für Hasenholz und Frohnauer Turm unterscheiden sich um 2,2 μ g/m³. Eine Erklärung für den relativ hohen Unterschied ist, dass Hasenholz bei westlicher Strömung offensichtlich durch urbane Emissionen aus Berlin beeinträchtigt wird.

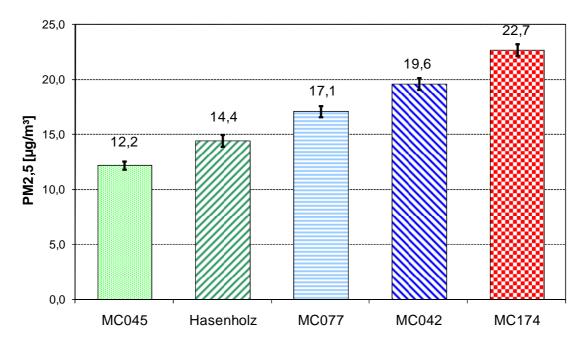


Abbildung 4.1: Jahresmittel der PM2,5-Konzentrationen [µg/m³], 2007

4.2 Vergleich der PM2,5-Konzentrationen mit PM10-Konzentrationen

An den Stationen Hasenholz, MC077-Buch, MC042-Nansenstraße und MC174-Frankfurter Allee werden routinemäßig von den Landesmessnetzen auch PM10-Konzentrationen mit gravimetrischen Staubsammelgeräten (Typ SEQ 47/50) gemessen. Interessant ist daher auch eine vergleichende Betrachtung des Anteils vom PM2,5-Feinstaub am PM10-Feinstaub (siehe Tabelle 4.1 und Abbildung 4.2)

Tabelle 4.1: Übersicht der mittleren PM2,5-Zusammensetzung, 2007

[µg/m³]	PM2,5	PM10	PM10-PM2,5	PM2,5/PM10
Hasenholz	14,4	19,7	5,3	0,73
MC077*	17,1	24,6	7,5	0,70
MC042	19,6	26,0	6,4	0,75
MC174	22,7	32,6	9,9	0,70

*Hinweis: unplausible PM2,5-Werte der TUB-Messungen am MC077 in Buch wurden über parallele PM10-Messungen korrigiert, siehe Abschnitt 3. Die für den MC077 angegebenen Werte sind daher in ihrer Aussagekraft eingeschränkt. Hasenholz bis 30.11.07 gravimetrisch, für 12/2007 PM2,5 Bestimmung mit Aerosolspektrometer (EDM 180).

Die PM2,5-Anteile am PM10-Staub variieren zwischen den Standorten nur maximal um 5 %. An den Stationen MC077-Buch und MC174-Frankfurter Allee betragen die PM2,5-Anteile am PM10 70 %, in Hasenholz 73 % und am MC042-Nansenstraße 75 %.

Es wäre zu erwarten, dass an der Frankfurter Allee der PM2,5-Anteil am PM10-Feinstaub eigentlich am höchsten ist, da an dieser Station durch den Kfz-Verkehr besonders viele Verbrennungsaerosole emittiert werden. Es muss allerdings zusätzlich berücksichtigt

werden, dass der Kfz-Verkehr neben den durch Abgas bedingten Emissionen auch Feinstaub durch Bremsen- und Straßenabrieb sowie durch Staubaufwirbelung in bedeutendem Umfang emittiert. Frühere Untersuchungen in Berlin hierzu ergaben, dass der nicht durch Verbrennung entstandene Anteil des vom Kfz-Verkehr emittierten Staubes in etwa die gleiche Immissionskonzentration an PM10 bewirkt, wie der durch Verbrennung entstandene Anteil (Senatsverwaltung, 2005). Offenbar deutet auch der hohe PM2,5 Anteil am PM10 in der Nansenstraße auf einen hohen Anteil von verkehrsbedingten Staubemissionen hin, die nicht aus dem Auspuff stammen. Die durch Aufwirbelung und mechanische Prozesse entstandenen Partikel sind jedoch deutlich größer als Verbrennungsaerosole und liegen überwiegend im Bereich zwischen PM2,5 und PM10.

Das an der Straßenstation auch der nicht durch Verbrennung entstandene Staub zur PM2,5-Belastung beiträgt, zeigen zudem die erhöhten Eisenanteile an der Station MC174 (siehe Abschnitt 5). Eisen ist ein Bestandteil der Erdkruste, und kann als Leitkomponente für mechanisch erzeugten Staub aus Bodenerosionen (Dispersionsaerosole) betrachtet werden. Absolut gesehen nehmen sowohl die PM2,5- als auch die PM10-Konzentrationen entsprechend der Stationscharakteristika mit zunehmendem städtischen und lokalen Einfluss signifikant zu (siehe Abbildung 4.2).

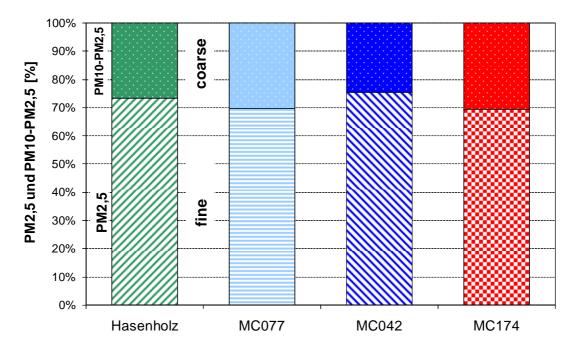


Abbildung 4.2: PM2,5-Anteile am PM10-Feinstaub [%], 2007

Den zeitlichen Verlauf der PM2,5-Konzentrationen an den Messstellen zeigt Abbildung 4.3. Das Auftreten hoher und niedriger PM Konzentrationen korreliert zeitlich an allen Stationen recht gut, was auf eine hohe Qualität der gravimetrischen Staubbestimmung hinweist. Zum anderen zeigt diese gute zeitliche Übereinstimmung, dass es an allen Messstandorten einen dominierenden Einfluss des überregionalen Feinstaubeintrages auf die PM2,5-Konzentrationen gab.

Der Einfluss des regionalen Hintergrundes und des Stadtrandes scheint im Mittel geringer zu sein. Die Ursache hierfür ist in den unterschiedlichen Anteilen des Anreicherungsbereiches beim PM2,5- und PM10-Feinstaub zu sehen. Partikel im Anreicherungsbereich mit einem aerodynamischen Durchmesser von 0,1 µm bis maximal 1 µm verfügen über sehr hohe atmosphärische Verweilzeiten, so dass sie Strecken von mehreren 100 bis 1000 km zurücklegen können und daher besonders im Eintrag des PM2,5-Feinstaubes zu finden sind. Die grobe Fraktion des PM10 zwischen PM2,5 und PM10 wird hingegen schneller aus der Atmosphäre ausgeschieden und ist damit im überregionalen Eintrag auch geringer.

Abbildung 4.4 zeigt zum Vergleich den Verlauf der PM10-Feinstaubbelastung an den verschiedenen Messstandorten. Auch für PM10 ergibt sich eine gute zeitliche Korrelation aller Messungen. Am MC045-Frohnauer Turm wurde kein PM10 gemessen, so dass für diesen Standort auch kein Vergleich möglich ist. Am MC077-Buch wurde ab 11. Mai 2007 bis zum Ende der Messkampagne die PM10-Messung durch eine weitere PM2,5-Messung ersetzt, um im Rahmen dieses Projektes die PM2,5-Feinstaubmessungen der TU-Berlin u.a. bei der Qualitätssicherung zu unterstützen.

Der Tagesmittelwert für PM10 von 50 μ g/m³ wurde an der Frankfurter Allee im Zeitraum vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 insgesamt 48 mal überschritten. Betrachtet man dagegen nur das Kalenderjahr 2007 wurde am MC174-Frankfurter Allee und am MC143-Silbersteinstraße insgesamt an je 29 Tagen der Tagesmittelwert von 50 μ g/m³ überschritten. Der Tagesmittelgrenzwert der EU von 35 zulässigen Überschreitungen wurde 2007 in Berlin eingehalten.

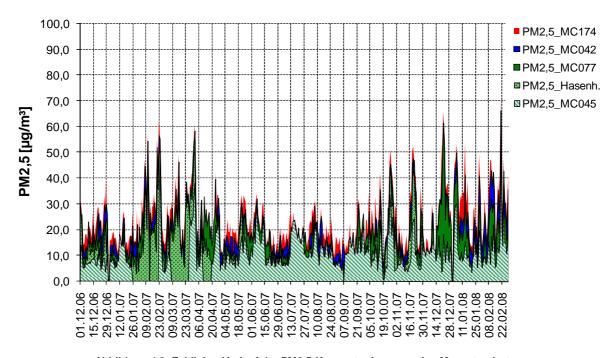


Abbildung 4.3: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Konzentrationen an den Messstandorten (01.12.2006 bis 29.02.2008)

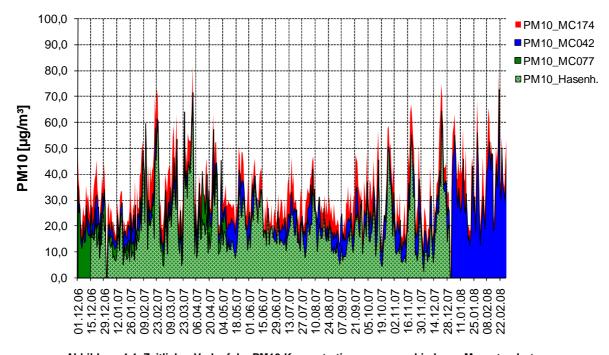


Abbildung 4.4: Zeitlicher Verlauf der PM10-Konzentrationen an verschiedenen Messstandorten (01.12.2006 bis 29.02.2008)

Den zeitlichen Verlauf der PM2,5-Anteile am PM10-Feinstaub zeigt Abbildung 4.5. Die Graphik verdeutlicht, dass an allen Messstandorten der zeitliche Verlauf der PM2,5- und PM10-Konzentrationen gut übereinstimmt. Die mittleren Anteile des PM2,5 am PM10 liegen zwischen 70 % an der Station MC174-Frankfurter Allee und 75 % an der Station MC042-Nansenstraße. Im unteren Teil der Abbildung 4.5 ist die Windrichtung in Grad aufgetragen, gemessen an der Station MC432-Grunewald.

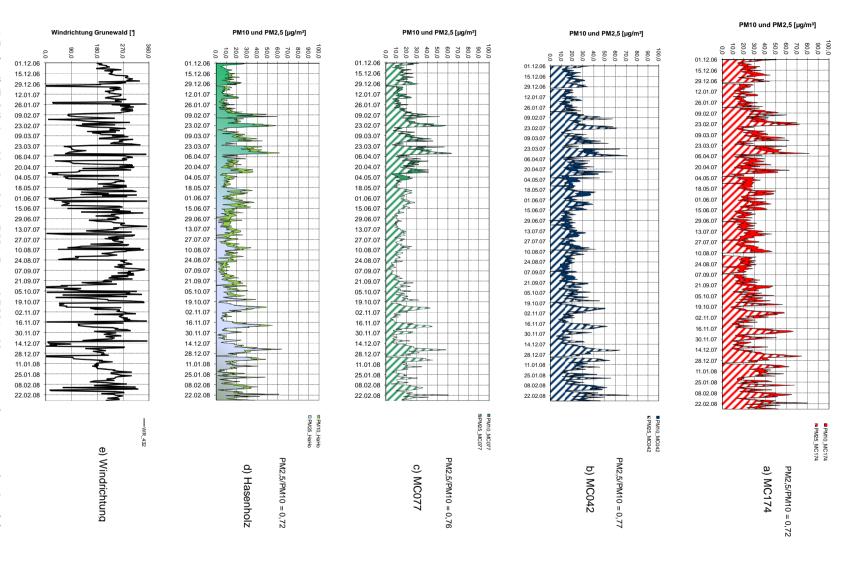


Abbildung 4.5: (a-d) Zeitlicher Verlauf der PM2,5- und Windrichtung (01.01.2006 bis bis PM10-Konzentrationen sowie der (e) ; 29.02.2008)

Die Windrichtungsmessungen (Abbildung 4.5-e) verdeutlicht, dass im Messzeitraum überwiegend westliche Strömung vorlag. Hohe PM-Belastungen traten hingegen überwiegend bei östlicher Luftmassenströmung auf. Eine detaillierte Ursachenanalyse der hohen PM-Belastungen ist Gegenstand von Abschnitt 7.

Abbildung 4.6 zeigt die Anteile der PM-Fraktionen (PM10 minus PM2,5, PM2,5 minus PM1, sowie PM1) an der Frankfurter Allee getrennt nach Sommermonaten (April bis September) und Wintermonaten (Oktober bis März) für den gesamten Messzeitraum 01.12.2006 bis zum 29.02.2008. Erwartungsgemäß zeigt sich, dass im Winter (Abbildung 4.6 b) der PM2,5-Anteil am PM10 mit 70 % bis 80 % höher ist als im Sommer, wo er je nach Windrichtung bei 60 bis 70 % (Abbildung 4.6 a). Dies ist auf den höheren Anteil von Verbrennungsaerosolen (verursacht z.B. durch Heizaktivitäten) in den Wintermonaten zurückzuführen. Im Sommer ist dagegen der Anteil von Sekundäraerosolen erhöht, verursacht durch Aufwirbelung sowie Dispersion von Erdkrustenmaterialien, die überwiegend größer als 2,5 μm sind und daher in der groben Fraktion des PM10 auftreten.

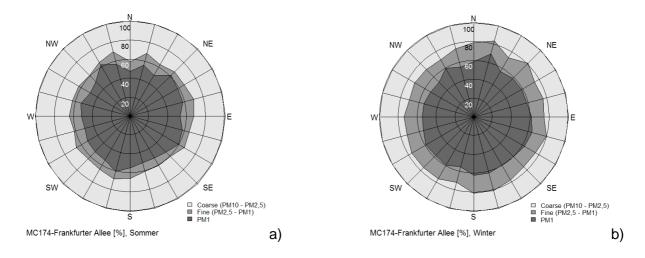


Abbildung 4.6 a und b: Anteile der PM-Fraktionen an der PM10-Belastung in der Frankfurter Allee in Abhängigkeit der Jahreszeit und der Windrichtung

(a Sommermonate April bis September, b Wintermonate (Oktober bis März) (01.12.2006 bis 29.02.2008)

Werden nur die Tage betrachtet, an denen an der Station MC174-Frankfurter Allee die PM10-Belastung über 50 μg/m³ lag, ergeben sich deutlich höhere PM2,5 zu PM10-Verhältnisse an allen Messstandorten gegenüber der Betrachtung aller Tage in 2007 (vgl. Tabelle 4.1 mit Tabelle 4.2): An der Nansenstraße (MC042) beträgt das Verhältnis beispielsweise bei hohen PM10-Belastungen 0,83 gegenüber 0,75. Hohe PM10-Belastungen in Berlin werden daher zu etwa 80 % durch den PM2,5-Feinstaub bestimmt. An der Frankfurter Allee ist der Anteil bei hohen Belastungen mit 75 % etwas geringer als an den anderen Messstationen (Tabelle 4.2), was sehr wahrscheinlich auf den höheren Anteil des durch den lokalen Kfz-Verkehr mechanisch produzierten Staubes (Aufwirbelung und Abrieb) zurückzuführen ist.

Tabelle 4.2: Mittlere PM-Konzentrationen für Tage mit PM10 am MC174 > 50 μg/m³

[μg/m³]	PM2,5	PM10	PM10-PM2,5	PM2,5/PM10
Hasenholz	35,8	44,8	9,0	0,80
MC077*	38,3	47,4	9,1	0,81
MC042	41,7	50,4	8,7	0,83
MC174	45,9	60,1	14,3	0,76

^{*}Hinweis: unplausible PM2,5-Werte der TUB-Messungen am MC077 in Buch wurden über parallele PM10-Messungen korrigiert, siehe Abschnitt 3. Die für den MC077 angegebenen Werte sind daher in ihrer Aussagekraft eingeschränkt. Hasenholz bis 30.11.07 gravimetrisch, für 12/2007 PM2,5 Bestimmung mit Aerosolspektrometer (EDM 180).

Die zeitlichen Verläufe der Sekundäraerosole und der OMI-, OMII- und EC-Bestandteile des PM2,5-Feinstaubes sind im Anhang II aufgeführt. Interessanterweise ist der Anteil der Kohlenstoffverbindungen und Sekundäraerosole unabhängig von der absoluten PM2,5-Konzentration. Interessant ist auch, dass der Anteil des Nitrats am PM2,5-Feinstaub mit zunehmender Lufttemperatur geringer wird. Die Ursache hierfür sind sehr wahrscheinlich leichtflüchtige Nitratverbindungen, die bei höheren Temperaturen partiell in die Gasphase übergehen. Diese Ergebnisse waren an allen Messstandorten gleichermaßen zu beobachten.

5 Chemische Zusammensetzung des PM2,5-Feinstaubes

Eine zentrale Intention des Projektes ist die Bestimmung der chemischen Bestandteile des PM2,5-Feinstaubes. Informationen über die Zusammensetzung sind zum einen wichtig für die Ursachenanalyse des Feinstaubes, da bestimmte Inhaltsstoffe Rückschlüsse auf Quellen ermöglichen können. Typische chemische Indikatoren zur Quellidentifizierung sind zum Beispiel:

- Na, Mg und Cl für Seesalz und daher maritime Luft
- Elementarer Kohlenstoff und Sulfat für Emissionen aus Kohlekraftwerken
- Sb und Zink für Emissionen des Kfz-Verkehrs
- V und Ni für Emissionen aus petrochemischen Anlagen
- Fe und Al für Dispersionsaerosole (Erosion der Erdkruste und Staubaufwirbelung)

Zum anderen ist es von Interesse, ob sich die chemischen Zusammensetzungen des PM2,5-Feinstaubes und des PM10-Feinstaubes signifikant voneinander unterscheiden. Zu erwarten ist, dass die groben Bestandteile des Feinstaubes, wie mechanisch entstandene Dispersionsaerosole, deutlich geringer im PM2,5-Feinstaub als im PM10-Feinstaub enthalten sind; die Frage ist nur in welchem Umfang.

Im folgenden Abschnitt werden die Ergebnisse der Untersuchungen zu den PM2,5-Konzentrationen an den unterschiedlichen Standorten sowie deren chemischen Bestandteile zusammengefasst.

Für die folgenden Betrachtungen werden die Feinstaubmessungen an der Station in Hasenholz als repräsentativ für die regionale Hintergrundbelastung und die Messungen auf dem Frohnauer Turm als repräsentativ für die großräumige, überregionale Feinstaubbelastung angesehen (Pesch, 2007b).

5.1 Hauptbestandteile des PM2,5-Feinstaubes

In diesem Abschnitt werden zunächst die wesentlichen Bestandteile des PM2,5-Feinstaubes an den unterschiedlichen Messstandorten miteinander verglichen. Im darauf folgenden Kapitel wird dann die Zusammensetzung bezüglich der Spurenmetalle gegeben.

Der nicht analysierte Rest, der standortabhängig bei etwa 30 - 40 % liegt, wird zum einen durch chemisch gebundenes Wasser, zum anderen durch den Sauerstoff der Oxide bestimmt. Da als Filtermaterial Quarz verwendet wird, konnte Silizium als wichtiger Indikator für Dispersionsaerosole aus der Erdkruste nicht analysiert werden. Daher sind auch die Silikate im unbestimmten Rest enthalten. Frühere Untersuchungen ergaben, dass Silizium in der gleichen Größenordnung wie das Eisen im PM2,5-Feinstaub enthalten ist (Israël, 1992).

In den folgenden Auswertungen werden nur die Massen der reinen Elemente und Ionen betrachtet, nicht aber deren Oxidform oder andere chemische Verbindungen. Das organische Material OMI und OMII wurde aus den thermographisch bestimmten Kohlenstofffraktionen OCI und OCII mit dem Faktor 1,2 berechnet (Ulrich, 1994). Einen Vergleich der mittleren Zusammensetzung des PM2,5-Feinstaubes an den vier Messstationen zeigen die Abbildungen 5.1 und 5.2.

Verkehr

An der Straßenstation ist der elementare Kohlenstoff (EC) erwartungsgemäß deutlich erhöht, was auf die Verbrennungsaerosole des Kfz-Verkehrs und Reifenabrieb zurückzuführen ist. Interessant ist, dass das Eisen an der Frankfurter Allee ebenfalls einen deutlich erhöhten Anteil am PM2,5-Feinstaub aufweist. Eisen ist Bestandteil der Erdkruste und ist daher ein Indiz für Abriebsprozesse an der Erdoberfläche, bedingt durch atmosphärische Strömungen und deren Scherung am Boden (Dispersionsaerosole). Sehr wahrscheinlich ist die durch den Kfz-Verkehr bedingte Aufwirbelung des auf der Fahrbahn abgelagerten Staubes ursächlich für den erhöhten Eisenanteil an der Straßenmessstelle. Eisen wird vermutlich zusätzlich durch Abriebsprozesse der Bremsscheiben von Kraftfahrzeugen emittiert.

Innenstadt

Bei der Betrachtung der urbanen Belastung am Messstandort MC042-Nansenstraße fällt auf, dass die Sekundäraerosole Sulfat, Nitrat und Ammonium in vergleichbaren Konzentrationen auftreten wie an der Straßenmessstelle MC174-Frankfurter Allee. Offenbar sind für diese Bestandteile besonders die urbanen Emissionen und Einträge von außerhalb bedeutsam.

Nitrat, das durch photochemische Prozesse aus Stickoxiden in der Atmosphäre gebildet wird, stammt zum einen aus photochemisch umgewandelten NO_x -Emissionen des innerstädtischen Kfz-Verkehrs. Zum anderen stammt Nitrat auch aus Umwandlungen von NO_x emittierenden Quellen im regionalen und überregionalen Raum, besonders aus Kraft- und Fernheizwerken sowie aus NO_x -Emissionen des Kfz-Verkehrs.

Es kann davon ausgegangen werden, dass an den Straßen emittierte Stickoxide auf dem relativ kurzen Transportweg zur Straßenmessstation noch nicht photochemisch umgewandelt wurden und daher nicht wesentlich zur lokalen Nitratbelastung beitragen.

Stadtrand

Die Betrachtung der chemischen Zusammensetzung am Stadtrand (MC077-Buch) zeigt, dass auch hier der prozentuale Anteil der Sekundäraerosole vergleichbar mit denen der Innenstadt und der Verkehrsstation ist. Dafür gibt es zwei Erklärungen:

Einerseits erhält die Station am Stadtrand in Buch bei westlichen und besonders bei südwestlichen Strömungen urban belastete Luft, was zu einer vergleichbaren Zusammensetzung der Sekundäraerosole mit der Messstation MC042-Nansenstraße führte.

Andererseits war offenbar der PM2,5-Eintrag am Stadtrand bezüglich der Sekundäraerosole ähnlich zusammengesetzt wie der städtisch erzeugte PM2,5-Feinstaub.

Hintergrund

Am MC045-Frohnauer Turm ist besonders der Anteil des leicht flüchtigen organischen Materials (OMI) erhöht. Auch das sekundär gebildete Sulfat ist anteilmäßig im Hintergrund erhöht, was sehr wahrscheinlich mit der photochemischen Umwandlung der SO₂-Emissionen großer Kohlekraftwerke in Polen und Tschechische Republik zusammenhängt. Während des Transportweges wurde das gasförmige SO₂ über die Oxidation mit OH*-Radikalen zur Schwefelsäure und nach einer weiteren Reaktion mit Ammoniak zum Ammoniumsulfat umgewandelt.

Natrium, als Leitkomponente für maritime Luft (Seesalz), trat erwartungsgemäß an allen Messstandorten in vergleichbarer Konzentration auf.

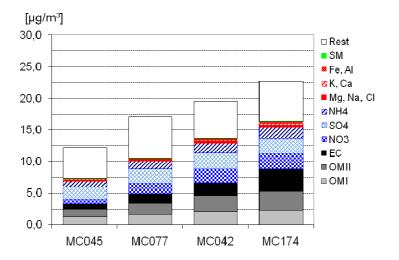


Abbildung 5.1: Vergleich der mittleren Staubzusammensetzung [µg/m³], 2007

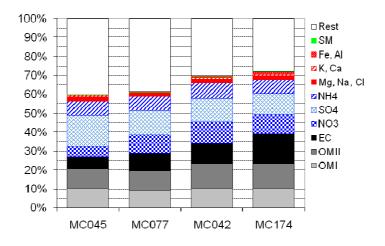


Abbildung 5.2: Vergleich der mittleren Staubzusammensetzung [%], 2007

5.1.1 PM2,5-Zusammensetzung bei unterschiedlicher PM2,5-Belastung

Interessant ist die Untersuchung der Frage, ob sich die chemische Zusammensetzung des PM2,5-Feinstaubes bei hohen und niedrigen Belastungssituationen signifikant unterscheidet und wenn ja, ob hieraus möglicherweise zusätzliche Informationen über die ursächlichen Quellen gewonnen werden können.

Daher werden im folgenden Abschnitt die Zusammensetzungen für die 25 %- und 75 %-Perzentile der PM2,5-Feinstaubkonzentrationen untersucht. Für jede Messstation wurden die Perzentile gesondert berechnet und die Messtage in drei Kategorien eingeteilt (siehe Abbildungen 5.3 bis 5.6). Die Abbildungen verdeutlichen, dass sowohl an der Station MC045-Frohnauer Turm, als auch an der Station MC174-Frankfurter Allee die Anteile der Leitkomponenten (Tracer) sekundär entstandener Partikel mit zunehmender PM2,5-Konzentration ansteigen und die Anteile der durch Seesalz-Emissionen bedingten Inhaltsstoffe (Na, Cl, Mg) sinken. Beide Leitkomponentengruppen liefern Informationen zur großräumigen Herkunft der Luftmassen.

Während bei niedrigen PM2,5-Feinstaubkonzentrationen die Tracer für Seesalz-Emissionen einen hohen Anteil aufweisen und somit vermutet werden kann, dass die Luftmassen aus westlicher Richtung vom Atlantik kommen, kann deren geringer Anteil bei hohen PM2,5-Feinstaubkonzentrationen einerseits mit zusätzlich auftretenden Quellen im Westen Berlins begründet werden, andererseits aber auch damit, dass dann die Luftströmung aus nicht maritimen Regionen kommt, was für Berlin hauptsächlich östliche und südöstliche Richtungen sind (siehe Windrose für den Natrium-Eintrag im Anhang III).

Während die Summe der Anteile der sekundären Aerosolen einen einheitlichen Trend an den vier Berliner Messstationen zeigt, ist den Abbildungen 5.3 bis 5.6 zu entnehmen, dass die Anteile der einzelnen Komponenten nur an den Messstation MC042-Nansenstraße und MC174-Frankfurter Allee einheitlich steigen. An der Messstation MC077-Buch besitzt der Anteil des Sulfats ein Maximum bei durchschnittlichen PM2,5-Feinstaubbelastungen und an der Messstation MC045-Frohnauer Turm hat Nitrat den höchsten Anteil bei geringen PM2,5-Feinstaubbelastungen, wobei keine signifikanten Änderungen zwischen durchschnittlichen und hohen Belastungen festgestellt werden. Das Verhalten der Anteile des Nitrats in Abhängigkeit der PM2,5-Feinstaubbelastung verdeutlicht die Lage des Messcontainers, der in 325 m Höhe kaum von Emissionen der Stadt beeinflusst wird. Die Windrose des Nitrats (siehe Anhang III) unterstreicht jedoch die Bedeutung urbaner Quellen auf die Nitratkonzentration, da einerseits keine Luftströmung zu erkennen ist, bei der die Konzentration besonders hoch ist, andererseits ist der Anstieg der Nitratkonzentration vom überregionalen Hintergrund zum Verkehr deutlich erkennbar.

Bezüglich der Verbrennungsaerosole im PM2,5-Feinstaub ist zusätzlich interessant, dass die EC-Anteile in der Frankfurter Allee keine Zunahme bei hohen PM2,5-Konzentrationen zeigen. Es ist gut vorstellbar, dass sich die relativ konstanten Verkehrsverhältnisse quasi puffernd auf den EC-Anteil auswirken, so dass der durch Ferntransport limitierte elementare

Kohlenstoff zu keiner anteiligen Erhöhung der Gesamtbelastung führt. Unabhängig davon nimmt die EC-Konzentration absolut betrachtet ebenfalls bei östlicher bis südöstlicher Windrichtung deutlich zu (siehe auch EC-Windrose im Anhang III).

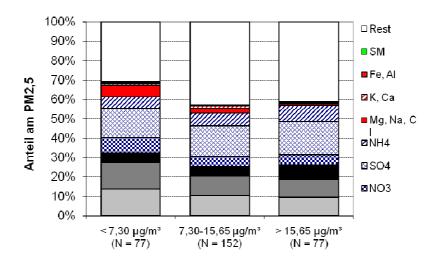


Abbildung 5.3: Vergleich der Staubzusammensetzung am MC045-Frohnauer Turm [%], 2007

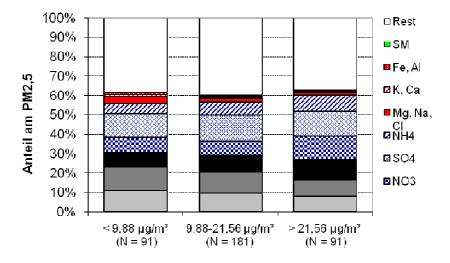


Abbildung 5.4: Vergleich der Staubzusammensetzung am MC077-Buch [%], 2007

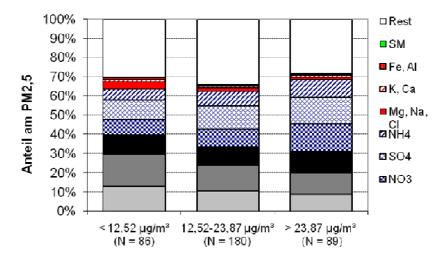


Abbildung 5.5: Vergleich der Staubzusammensetzung am MC042-Nansenstraße[%], 2007

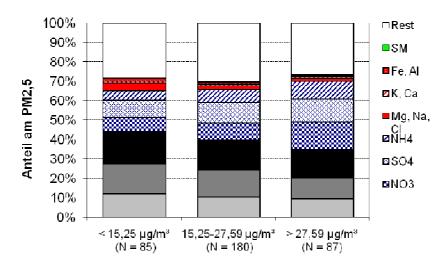


Abbildung 5.6: Vergleich der Staubzusammensetzung am MC174-FF Allee [%], 2007

Die Abbildungen 5.7 bis 5.14 verdeutlichen die mittlere PM2,5-Zusammensetzung an den Messstandorten für das Kalenderjahr 2007. Deutlich zu erkennen ist der hohe Anteil an elementarem Kohlenstoff an der Frankfurter Allee mit über 15 % (Abbildung 5.14). In der Innenstadt an der Nansenstraße ist besonders Nitrat mit über 11 % erhöht (Abbildung 5.13). Im Eintrag am Frohnauer Turm ist Sulfat mit über 16 % anteilsmäßig am stärksten vertreten (Abbildung 5.11).

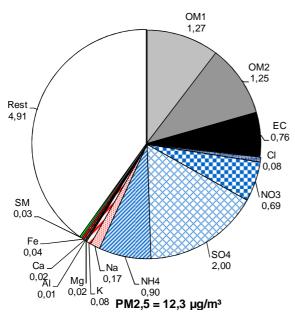


Abbildung 5.7: Mittlere PM2,5-Zusammensetzung MC045-Frohnauer Turm [µg/m³], 2007

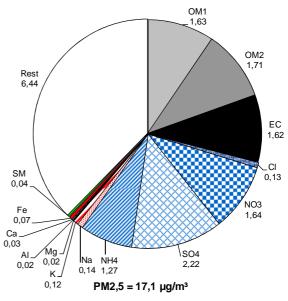


Abbildung 5.8: Mittlere PM2,5-Zusammensetzung MC077-Buch [µg/m³], 2007

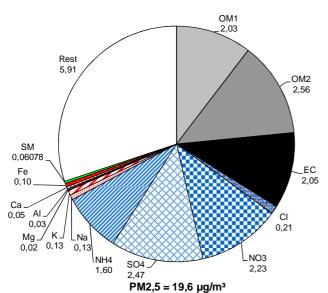
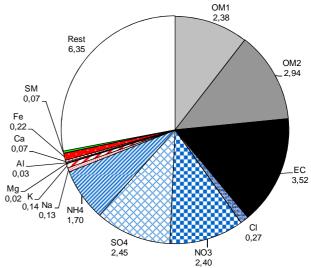


Abbildung 5.9: Mittlere PM2,5-Zusammensetzung MC042-Nansenstraße [µg/m³], 2007



PM2,5 = 22,7 μg/m³
Abbildung 5.10: Mittlere PM2,5-Zusammensetzung MC174-Frankfurter Allee [μg/m³], 2007

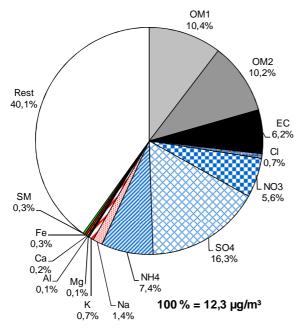


Abbildung 5.11: Mittlere PM2,5-Zusammensetzung MC045-Frohnauer Turm [%], 2007

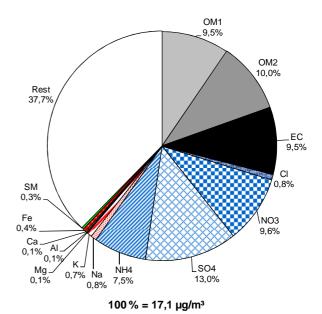


Abbildung 5.12: Mittlere PM2,5-Zusammensetzung MC077-Buch [%], 2007

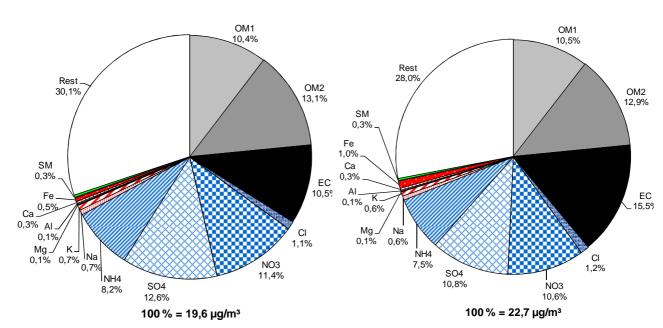


Abbildung 5.13: Mittlere PM2,5-Zusammensetzung MC042-Nansenstraße [%], 2007

Abbildung 5.14: Mittlere PM2,5-Zusammensetzung MC174-Frankfurter Allee [%], 2007

5.1.2 Spurenmetalle im PM2,5-Feinstaub

Obwohl die Massenkonzentration der Spurenmetalle am PM2,5-Feinstaub deutlich unter einem Prozent liegt, ist die Bestimmung der Spurenmetallbestandteile von hoher Bedeutung. Spurenmetalle sind lufthygienisch zum Teil sehr problematisch, wie beispielsweise Blei, Arsen und Nickel und sollten daher auf ein Minimum in der Aussenluft reduziert werden. Zum anderen kann die analytische Bestimmung der Spurenmetalle im PM2,5-Feinstaub wichtige Informationen über dessen Verursacher ermöglichen. Im folgenden Abschnitt wird die Zusammensetzung des PM2,5-Staubes bezüglich der in diesem Projekt bestimmten Spurenmetalle Titan (Ti), Vanadium (V), Chrom (Cr), Nickel (Ni), Zink (Zn), Arsen (As), Antimon (Sb) und Blei (Pb) näher untersucht.

Die Abbildungen 5.15 bis 5.18 zeigen die mittlere Zusammensetzung der Spurenmetalle an den vier Berliner Messstandorten. Die Gesamtmasse der Spurenmetalle steigt mit zunehmendem Verkehrseinfluss. Die mittlere Differenz zwischen dem Hintergrund (Frohnauer Turm) und dem Stadtrand (Buch) beträgt etwa 11 ng/m³, vom Stadtrand zur Innenstadt steigt die Konzentration um weitere 17 ng/m³ von 44 ng/m³ auf 61 ng/m³. An der stark befahrenen Frankfurter Allee (MC174) steigt die Spurenmetallkonzentration noch um weitere etwa 10 % auf 65 ng/m³. Damit wurde an der stark befahrenen Straße Frankfurter Allee etwa die doppelte Schwermetallkonzentration wie im regionalen Hintergrund am Frohnauer Turm gemessen.

Über die Hälfte der Masse der untersuchten Spurenmetalle (zwischen 54 % in der Innenstadt, 58 % an der Frankfurter Allee, 70 % am Stadtrand und 76 % am Frohnauer Turm wird durch **Zink (Zn)** bestimmt. Zink ist unter anderem in Autoreifen enthalten und wird daher bei Reifenabriebsprozessen freigesetzt. Auffallend ist allerdings, dass der höchste Anteil an Zn im Eintrag ist.

Für **Chrom (Cr)** zeigen sich, nicht unerwartet, deutlich höhere Konzentrationen an den beiden Stadtstationen (MC042-Nansenstraße und MC174-Frankfurter Allee). Dies ist gut mit den verkehrsbedingten Emissionen von Chrom zu erklären, die unmittelbar von Kfz-Verkehr und durch Wiederaufwirbelung des Staubes hervorgerufen werden.

Antimon (Sb) ist besonders an der Straßenmessstation deutlich erhöht. Dies ist mit den bekanntermaßen durch Bremsenabrieb verursachten Emissionen zu erklären. Es ist ein weiterer Beleg dafür, dass Antimon sich in besonderem Maße als Indikator für Emissionen des Kfz-Verkehrs eignet.

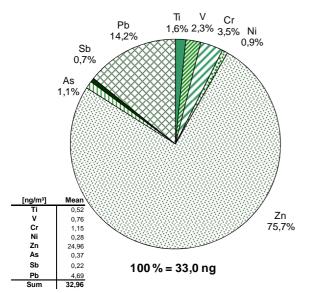


Abbildung 5.15: Spurenmetallzusammensetzung MC045-Frohnauer Turm [%], 2007

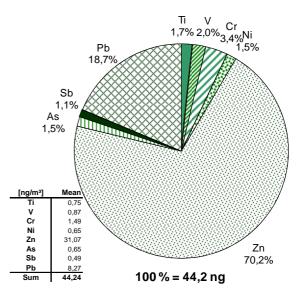


Abbildung 5.16: Spurenmetallzusammensetzung MC077-Buch [%], 2007

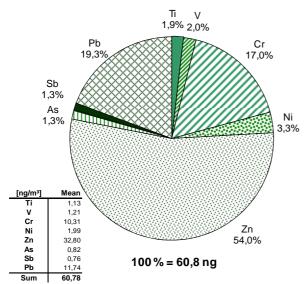


Abbildung 5.17: Spurenmetallzusammensetzung MC042-Nansenstraße [%], 2007

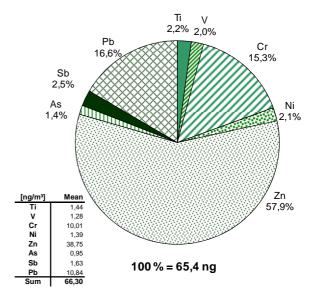


Abbildung 5.18: Spurenmetallzusammensetzung MC174-Frankfurter Allee [%], 2007

6 Quellenzuordnung für PM2,5-Feinstaub

6.1 Abschätzung über Immissionsmessungen

Nach dem Ansatz von Lenschow (Lenschow, 2001) kann eine Quellenzuordnung der PM2,5-Feinstaubbelastung einer Stadt durchgeführt werden, indem die PM2,5-Feinstaubbelastung nach Quellregionen differenziert wird. So geht das Modell davon aus, dass zur überregionalen PM2,5-Feinstaubbelastung im Eintrag mit zunehmender Urbanisierung unterscheidbare PM2,5-Feinstaubbeiträge hinzukommen, so dass sich letztlich an einer lokal besonders belasteten Messstelle innerhalb der Innenstadt die Summe der PM2,5-Feinstaubbeiträge aus dem überregionalen Hintergrund, dem regionalen Hintergrund, der Randgebiete der Stadt, der Innenstadt und der PM2,5-Feinstaubbeitrag der lokalen PM2,5-Feinstaubbemissionsquelle ergibt.

Für die Abschätzung der Quellbeiträge wurden folgende Annahmen getroffen:

MC045 repräsentativ für den überregionalen Hintergrund
 Hasenholz minus MC045 repräsentativ für den regionalen Hintergrund
 MC077 minus Hasenholz repräsentativ für den Stadtrand
 MC042 minus MC077 repräsentativ für die Stadtmitte und
 MC174 minus MC042 repräsentativ für den Verkehr

Um die Beiträge optisch besser unterscheiden zu können, wurden die Quellbeiträge in allen folgenden Abbildungen farblich einheitlich gekennzeichnet:

- o helles Grün für den überregionalen Hintergrund
- o dunkles Grün für den regionalen Hintergrund
- o helles Blau für den Stadtrand
- o dunkles Blau für die Innenstadt und
- o rot für den Verkehrsbeitrag

6.1.1 Abschätzung der Quellbeiträge für die PM2,5-Feinstaubmasse

Entsprechend dieses Vorgehens wurden die einzelnen mittleren Beiträge für das Kalenderjahr 2007 berechnet und in Abbildung 6.1 dargestellt. Aus der Abbildung 6.1 geht hervor, dass die Summe der Beiträge von regionalem und überregionalem Hintergrund ungefähr eine durchschnittliche PM2,5-Feinstaubbelastung von 14,1 μ g/m³ ausmacht. Die maximale PM2,5-Feinstaubbelastung an der lokalen Quelle Verkehr beträgt dabei im Durchschnitt etwa 22,1 μ g/m³, so dass die Beiträge der Peripherie, der Innenstadt und des Verkehrs zusammen kleiner sind, als die PM2,5-Feinstaubbelastung durch den Eintrag.

Unterlegt wird diese Erkenntnis zusätzlich durch die prozentualen Anteile der einzelnen Beiträge, die in Abbildung 6.2 zu sehen sind. In dieser Abbildung entsprechen 100 % der an der Straßenmessstelle MC174-Frankfurter Allee bestimmten mittleren PM2,5-Konzentration einer Konzentration von 22,1 µg/m³. Diese mittlere PM2,5-Konzentration unterscheidet sich

von Tabelle 4.1 (siehe Abschnitt 4), da für die Beitragsabschätzungen stets nur Tage verwendet wurden, an denen alle PM2,5-Messungen vorhanden waren.

Über die Hälfte (56 %) der PM2,5-Belastung an der stark befahrenen Frankfurter Allee kommt aus dem überregionalen Hintergrund für deren Bestimmung die Messungen auf dem Frohnauer Turm (MC045) herangezogen wurden. Wird der regionale Beitrag hinzugenommen, (Messungen in Hasenholz abzüglich Messungen auf dem Turm) stammen fast zwei Drittel (64 %) des PM2,5-Feinstaubes von Quellen außerhalb der Stadt.

Der Stadtrand trägt mit etwa 11 % erwartungsgemäß relativ wenig zur PM2,5-Belastung an der stark befahrenen Straße (MC174-Frankfurter Allee) bei. Gleiches gilt für den Anteil der PM2,5-Konzentration an der Straße, der aus dem Stadtgebiet kommt (11 %). Der lokale Verkehr trägt zur PM2,5-Belastung an der Straßenmessstelle mit etwa 13 % im Jahr 2007 bei.

An dieser Stelle müsste für eine exakte Quantifizierung der Quellbeiträge eigentlich berücksichtigt werden, dass die Messstation in Buch, wie bereits aufgeführt, bei westlichen und südwestlichen Luftströmungen von städtischen PM2,5-Emissionen beeinflusst wird und damit in diesen Fällen eine zu hohe PM2,5-Belastung im Eintrag abgeschätzt wird. Daher würde der Quellbeitrag der Innenstadt bei Betrachtung einer anderen Stadtrandstation (z.B. MC027-Marienfelde) vermutlich höher ausfallen.

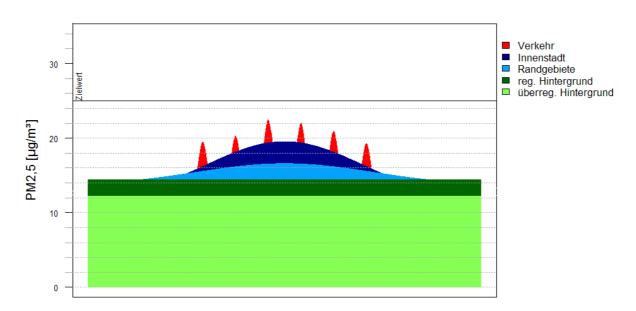


Abbildung 6.1: Darstellung der mittleren Beiträge zur PM2,5-Feinstaubbelastung an der Messstation MC174-Frankfurter [µg/m³], 2007

Aus einer näheren Betrachtung der PM2,5-Feinstaubbeiträge für das Jahr 2007 wird ersichtlich, dass die PM2,5-Feinstaubbeiträge der Stadt Berlin bzw. des Straßenverkehrs in der Stadt geringer sind als der überregionale Ferntransport. Werden die prozentualen Anteile der Beiträge an der PM2,5-Feinstaubbelastung während des ganzen Kalenderjahres 2007

mit den PM2,5-Feinstaubbeiträgen an Tagen mit PM2,5-Belastungen über dem Zielwert von $25 \,\mu g/m^3$ (2008/50/EG, 2008) im Jahr 2007 verglichen, ist zu sehen, dass der Beitrag des Verkehrs von etwa 14 % auf ungefähr 11 % sinkt. Der Innenstadtbeitrag zeigt die gleiche Tendenz und fällt von 11 % auf 9 %. Offenbar nimmt die Bedeutung der PM2,5-Emissionen der Stadt mit zunehmender PM2,5-Belastung ab.

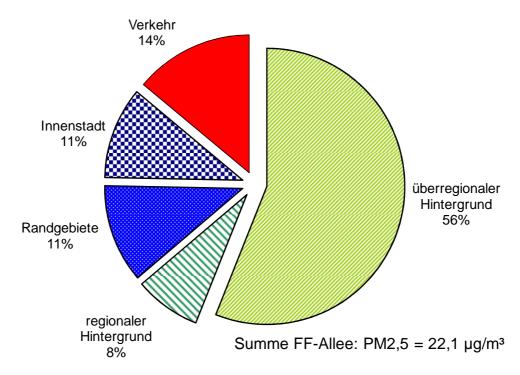


Abbildung 6.2: Mittlere Beiträge der PM2,5-Feinstaubbelastung an der Messstation MC174-Frankfurter Allee [%], 2007

Abbildung 6.3 zeigt auf der linken Seite den Anteil des Verkehrs (Tageswerte) an der PM2,5-Feinstaubbelastung und auf der rechten Seite den Anteil der Summe aus Verkehr- und Innenstadtbeitrag an der PM2,5-Feinstaubbelastung für den gesamten Messzeitraum vom 01.12.2006 bis zum 29.02.2008. Die Abbildung verdeutlicht, dass bei steigender PM2,5-Feinstaubbelastung an der Messstation MC174-Frankfurter Allee die Anteile von Verkehr und Innenstadt abnehmen. Dabei zeigt die Abbildung 6.3 zusätzlich, dass bei besonders hohen PM2,5-Feinstaubbelastungen (ab etwa 35 μg/m³ orangene Linie) der Verkehrsanteil unterhalb von 20 %, sowie die Summe aus Verkehrs- und Innenstadtanteil unterhalb von 40 % liegt.

Aus Abbildung 6.3 ist aber auch ersichtlich, dass bei PM2,5-Feinstaubbelastungen zwischen dem Zielwert für PM2,5-Feinstaub von 25 μ g/m³ und einer ungefähren Schwelle von 35 μ g/m³ (orangene Linie) sowohl der Verkehrsanteil mit 30 %, als auch die Summe aus Verkehrs- und Innenstadtanteil mit 50 % einen deutlichen Anteil an der PM2,5-Feinstaubbelastung an der Frankfurter Allee haben kann.

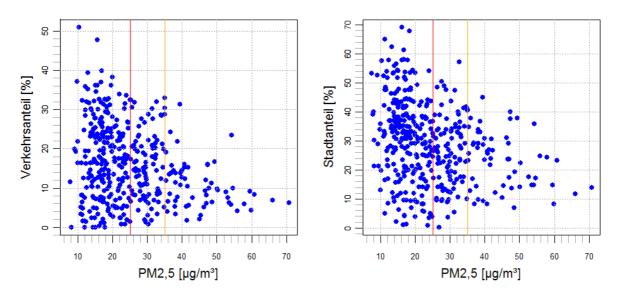


Abbildung 6.3: Anteile des Verkehrsbeitrags (links) und der Summe aus Verkehrs- und Innenstadtbeitrag (rechts) an der Verkehrsstation MC174-Frankfurter Allee [%] (01.12.2006 bis 29.02.2008)

Diese Beobachtungen werden unterstützt durch die in Abbildung 6.4 gezeigten Ergebnisse, in der die einzelnen PM2,5-Feinstaubbeiträge an Tagen dargestellt sind, an denen der PM2,5-Zielwert an der Messstation MC174-Frankfurter Allee überschritten wird. Dabei sind die Tage nach der Höhe der an der Eintragsstation gemessenen PM2,5-Feinstaubkonzentration sortiert. Aus der Abbildung geht deutlich hervor, dass etwa 10 % aller Tage mit PM2,5-Feinstaubbelastungen über 25 µg/m³ allein durch innerstädtische Maßnahmen, z.B im Verkehrssektor, reduziert werden könnten, um den Zielwert der EU-Richtlinie 25 µg/m³ einzuhalten. Dabei sollte angemerkt werden, dass im gesamten Messzeitraum vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 immer ein deutlicher Beitrag des Verkehrs zu erkennen ist, so dass unter lufthygienischen Gesichtspunkten die Reduzierung des innerstädtischen Kfz-Verkehrs unabhängig vom Zielwert eine lufthygienisch sehr positive Auswirkung für die Bevölkerung hätte.

In Abbildung 6.4 fallen zudem die teilweise geringen bis fehlenden Beiträge des Verkehrs auf, sowie die ebenfalls fehlenden Beiträge der Berliner Randgebiete. Die fehlenden Beiträge der Berliner Randgebiete basieren jedoch nicht auf fehlenden Messwerten, sondern es ist viel mehr davon auszugehen, dass bei östlichen Windrichtungen der Unterschied zwischen den Messwerten der brandenburgischen Messstation Hasenholz und der Messstation MC077-Buch aufgrund ihrer Lage marginal ist.

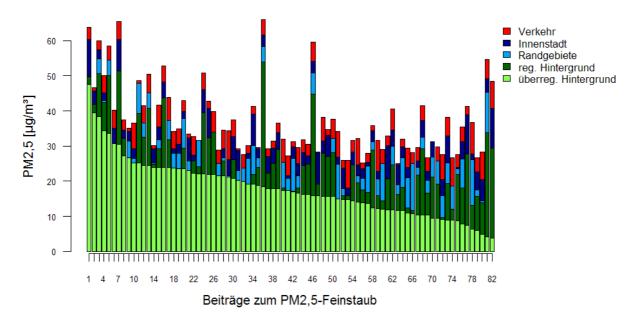


Abbildung 6.4: Tägliche Beiträge der PM2,5-Feinstaubbelastung bei Tagen mit Überschreitungen des PM10-Tagesmittelwertes von 50 μg/m³ an der Verkehrsstation MC174-Frankfurter Allee [μg/m³] (01.12.2006 bis 29.02.2008)

Diese These wird gestützt durch die Verwendung der Winddaten der meteorologischen Messstation 432 in Berlin-Grunewald (Abbildung 6.5), in der zu sehen ist, dass die meisten Überschreitungen bei östlichen Luftströmungen auftraten, obwohl während des Messzeitraumes am häufigsten westliche Luftströmungen in Berlin herrschten. Anhand der gelb markierten Messtage ist zudem zu erkennen, dass Tage, an denen der PM2,5-Jahreszielwert von 25 μ g/m³ bereits an der Messstation MC045-Frohnauer Turm überschritten wird, ebenfalls hauptsächlich bei östlichen Luftströmungen zustande kam.

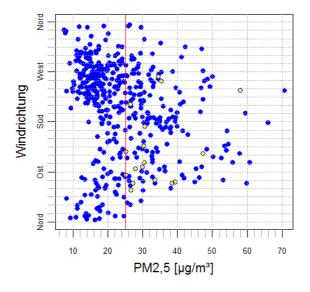


Abbildung 6.5: Verteilung der Windrichtung an der Verkehrsstation MC174-Frankfurter Allee (blau) und der Eintragsstation MC045-Frohnauer Turm (gelb) [μg/m³] (01.12.2006 bis 29.02.2008)

Infolge dessen wurde ein Weg gesucht, die PM2,5-Beitragsabschätzung in Abhängigkeit der herrschenden Luftströmungen durchzuführen. Dafür erfolgte eine Einteilung der einzelnen Messtage entsprechend der Herkunft der Luftströmung in einer Auflösung von 15 Grad-Sektoren, so dass durch Mittelwertbildung über die einzelnen Sektoren die durchschnittlichen PM2,5-Feinstaubkonzentrationen und Beiträge für jeden Sektor bestimmt werden konnten.

Das Ergebnis der Berechnungen ist in Abbildung 6.6 zu sehen, die die Verteilung der einzelnen Quellbeiträge [µg/m³] bei unterschiedlichen Luftströmungen zeigt. Die Abbildung verdeutlicht die Bedeutung des PM2,5-Ferntransportes für Berlin, insbesondere des überregionalen Transportes, der bei östlichen Luftströmungen schon allein zu einer PM2,5-Feinstaubbelastung von 20 µg/m³ führt. Kommt der regionale Hintergrund hinzu, wird der Jahreszielwert bei östlichen und südöstlichen Luftströmungen bereits überschritten. Folglich erreichen die PM2,5-Feinstaubbelastungen im Mittel bei östlichen bis südöstlichen Luftströmungen die durchschnittlich höchsten Konzentrationen. Westliche Luftströmungen treten zwar häufiger auf (siehe Abbildung 6.8), die PM2,5-Feinstaubbelastung ist im Mittel jedoch um etwa die Hälfte geringer, was hauptsächlich auf den geringeren PM2,5-Feinstaubeintrag zurückzuführen ist.

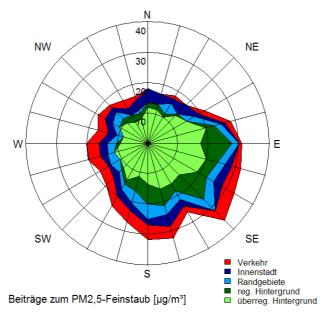


Abbildung 6.6: Räumliche Quellbeiträge der PM2,5-Feinstaubbelastung [µg/m³], 2007

Werden die prozentualen Quellbeiträge in Abhängigkeit der Windrichtung dargestellt ergibt sich für das Kalenderjahr 2007 eine Verteilung, die in Abbildung 6.7 dargestellt ist. Hierbei fällt deutlich der PM2,5-Beitrag des Verkehrs bei allen Windrichtungen auf (rote Fläche). Dieser kann bis zu zwanzig Prozent bei westlichen Luftströmungen annehmen. Aufgrund des steigenden Anteils des Hintergrundes bei östlichen Luftströmungen sinkt der Anteil des Verkehrsbeitrags in dieser Richtung. Die geringen Anteile bei nördlichen Luftströmungen sind jedoch vermutlich auf die Wirkung der Straßenschlucht an der Messstelle MC174-Frankfurter Allee zurückzuführen, die dazu führt, dass die belasteten Luftmassen aufgrund entstehender Turbulenzen nicht zum Messcontainer gelangen.

Der Beitrag der Innenstadt scheint im Wesentlichen dem Anteil des Verkehrsbeitrags zu gleichen, wobei sich die hohen Anteile bei nördlichen Luftströmungen durch das Problem der Straßenschlucht an der Messstation MC174-Frankfurter Allee ergeben, bei der dann die Emissionen des Verkehrs nicht mehr hinreichend repräsentiert werden.

Den mit Abstand größten PM2,5-Feinstaubbeitrag besitzt der überregionale Hintergrund, der unabhängig von der Windrichtung zwischen 40 - 60 % liegt. Bei östlichen Luftströmungen erreicht er sogar einen Anteil von über 70 %.

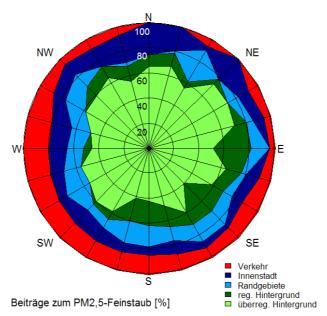


Abbildung 6.7: Räumliche Quellbeiträge der PM2,5-Feinstaubbelastung [%], 2007

Zusammenfassend kann mithilfe der gravimetrischen Messungen des PM2,5-Feinstaubs an vier Berliner Messstationen und einer brandenburgischen Messstation in Hasenholz hinsichtlich der Quellenzuordnung gesagt werden, dass der **überregionale Hintergrund etwa die Hälfte der PM2,5-Feinstaubbelastung an einer stark lokal belasteten Messstation in Berlin (wie der Frankfurter Allee) ausmacht und somit den größten Anteil unabhängig von der herrschenden Luftströmung verursacht. Die durchschnittlich höchsten PM2,5-Feinstaubimmission in Berlin treten bei südöstlichen und östlichen Luftströmungen auf, zu deren Zeitpunkt der PM2,5-Feinstaubeintrag durch den über- und regionalen Hintergrund auf bis zu 80** % anteigen kann.

Da jedoch **westliche Luftströmungen** deutlich häufiger in Berlin auftreten, ist es vom hohen Interesse die Divergenz zwischen der Windrichtung mit der höchsten Häufigkeit und der höchsten mittleren PM2,5-Feinstaubbelastung zu kombinieren. Dafür werden die gemittelten PM2,5-Feinstaubkonzentration mit den 1-h-Messwerten der herrschenden Luftströmung (432-Grunewald, Abbildung 6.8) multipliziert, so dass eine Dosis in Abhängigkeit der Windrichtung berechnet wird. Das Ergebnis dieser Berechnungen zeigt Abbildung 6.9.

Die Betrachtung der PM2,5-Dosis besitzt im Hinblick auf die lufthygienische Bedeutung von Feinstaub eine erhebliche Bedeutung. Nach derzeitigem Wissensstand gibt es keine Konzentrationsschwelle für PM10 (und daher vermutlich auch für PM2,5), unterhalb derer Feinstaub nicht als gesundheitsgefährdend einzustufen ist. Daher führen auch geringere aber zeitlich häufige PM2,5-Belastungen (z.B. bei westlichen Luftströmungen in Berlin) zu einer gesundheitlichen Belastung durch PM2,5.

Abbildung 6.9 verdeutlicht, dass die größte PM2,5-Feinstaubdosis bei westlichen Windrichtungen auftrat. **Der lokale Verkehr und Quellen in der Stadt haben bei dieser Windrichtung einen Anteil von etwa 35 % an der PM2,5-Feinstaubdosis**. Innerstädtische Maßnahmen, wie die Reduktion des Straßenverkehrs würden daher zu einer wesentlichen Senkung der innerstädtischen PM2,5-Belastung (Dosis) führen.

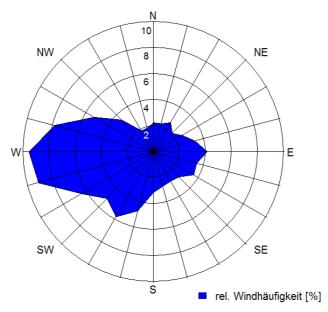


Abbildung 6.8: Windverteilung in Berlin Grunewald [%], 2007

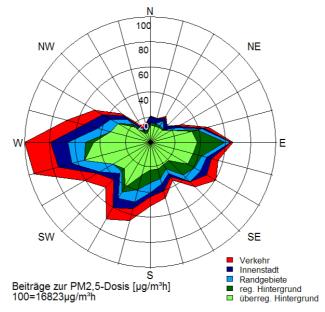


Abbildung 6.9: Räumliche Beiträge der PM2,5-Feinstaubdosis [(µg/m³)*h], 2007

6.1.2 Chemischen Staubzusammensetzung der Quellbeiträge

Interessant ist neben einer Abschätzung der PM2,5-Quellbeiträge auch die chemische Zusammensetzung des PM2,5-Feinstaubes, aufgelöst für die einzelnen Beiträge. Diese Abschätzungen sind Gegenstand des folgenden Abschnitts. Entsprechend des oben aufgeführten Ansatzes wurden auch für die Inhaltsstoffe Differenzen zwischen den Messungen an den unterschiedlichen Standorten gebildet.

Die chemische Zusammensetzung der Hauptbestanteile des PM2,5-Feinstaubes für die einzelnen Quellen zeigt Abbildung 6.10. Erwartungsgemäß ist der Feinstaub, der vom Verkehr emittiert wird, besonders reich an elementarem Kohlenstoff (55 %). Dieser ist sowohl eine Leitkomponente für Verbrennungsprozesse, als auch für Abriebsprozesse der Reifen. Zudem ist Eisen in dem vom Kfz-Verkehr emittierten PM2,5-Feinstaub signifikant erhöht, was sehr wahrscheinlich auf Staubaufwirbelungen und Bremsenabrieb zurückzuführen ist.

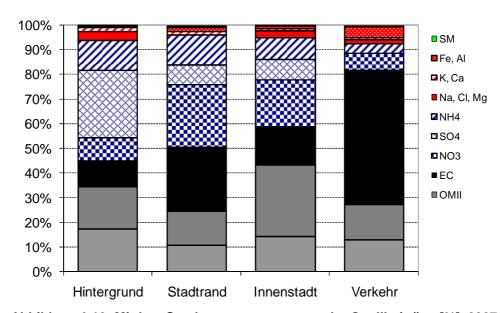


Abbildung 6.10: Mittlere Staubzusammensetzung der Quellbeiträge [%], 2007

Vom Hintergrund am Frohnauer Turm zum Stadtrand in Buch nimmt der Anteil des Nitrats ähnlich stark zu wie der Anteil des elementaren Kohlenstoffs. Da in dem betrachteten Zeitraum die Luft überwiegend aus West und Südwest kam (vergleiche Abbildung 6.8), ist anzunehmen, dass die Messstation in Buch dann auch PM2,5-Emissionen der Stadt erfasst und somit das Nitrat sehr wahrscheinlich zu einem gewissen Anteil aus der Umwandlung des in der Innenstadt emittierten NO_x stammt.

Interessant ist der sich aus der Bilanz ergebende "negative Beitrag" des Verkehrs zum Sulfat. In der Innenstadt in Neukölln an der Messstation MC042-Nansenstraße wurde im Mittel mit 2,47 μ g/m³ mehr Sulfat gemessen als an der Frankfurter Allee mit 2,45 μ g/m³ (siehe auch Tabellen im Anhang I). Der Unterschied ist mit 0,013 μ g/m³ allerdings sehr gering. Eine Erklärung hierfür könnten die höheren SO₂-Emissionen in Neukölln, bedingt

durch einen höheren Anteil an Hausbrand im Vergleich zur Frankfurter Allee, sein. Da Sulfat durch eine Reaktion von SO₂ und OH*-Radikalen entsteht und diese Radikale durch photolytische Prozesse aus Ozon gebildet werden, kann eine weitere Ursache für den Unterschied auch das Ozon sein, dass an der Straße in deutlich geringeren Konzentrationen auftritt - bedingt durch den chemischen Abbau aufgrund von NO-Emissionen des Kfz-Verkehrs - als in der Innenstadt. Festzuhalten ist, dass der Kraftfahrzeugverkehr nicht unmittelbar zur Sulfatkonzentration im lokal bedingten Feinstaub beiträgt.

Bei der Untersuchung der Sulfate ergab sich, dass besonders hohe Konzentrationen bei östlichen Luftströmungen auftraten. Im Anhang III ist zu sehen, dass dies hauptsächlich auf den Ferntransport zurückzuführen ist, da der Anteil im Hintergrund viermal so groß ist, wie in der Stadt. Eine Quelle der gemessenen Sulfatkonzentration könnte die erhöhte Schwefeldioxidemission osteuropäischer Kraftwerke sein, die keine oder ungenügende primäre oder sekundäre Maßnahmen zur Reduzierung der SO₂-Emissionen verfolgen.

Die Anteile der Schwermetalle bei verschiedenen PM2,5-Feinstaubbeiträgen ändern sich zwischen dem Hintergrund und der Stadt kaum (0,4%-0,5%); lediglich beim Verkehr halbiert sich ihr Anteil. Eine genauere Abschätzung der Spurenmetallzusammensetzung für die verschiedenen Quellen zeigt Abbildung 6.11. Es ist zu erkennen, dass an der Straße besonders Antimon, Titan und Zink erhöht sind, wobei das Antimon auf die Bremsvorgänge an der Straße zurückzuführen ist und Titan möglicherweise aufgrund der Wiederaufwirbelung in erhöhtem Maße an der Verkehrsstation gemessen wird. Gleiches gilt für Zink, wobei Zink zu ubiquitär ist um es einer definierten Quelle zuzuordnen.

Gemäß dem Vorgehen wäre der Verkehr eine "Senke" für die Elemente Nickel, Chrom und Blei. Hierbei muss jedoch darauf verwiesen werden, dass bei Nickel und Chrom die Differenz im Bereich von einigen Zehntel Nanogramm pro Kubikmeter liegt (Blei 1 ng/m³). Zudem besitzen Chrom und Nickel einen besonders hohen Anteil in der Innenstadt, der möglicherweise durch eine lokale Quelle verursacht wird. In Hinblick auf die geringe Differenz zur Verkehrsmessstation könnten die Chrom- und Nickel-Quellen in der Stadt liegen und nicht in der Nähe der Nansenstraße.

Auffallend ist zudem der relativ hohe Anteil von Blei am Stadtrand in Buch. Ein Grund hierfür ist möglicherweise der vermehrte Gebrauch von Zweitaktmotoren im Bereich der Grünanlagenpflege.

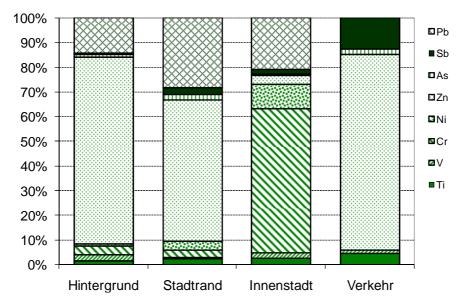


Abbildung 6.11: Mittlere Spurenmetallzusammensetzung der Quellbeiträge [%], 2007

Um im Folgenden einen Überblick über die Zusammensetzung der einzelnen PM2,5-Beiträge an der Frankfurter Allee zu bekommen, werden die Anteile der einzelnen Inhaltsstoffbeiträge bezogen auf die mittlere PM2,5-Konzentration von 22,1 µg/m³ (100 %) an der Straßenmessstelle MC174-Frankfurter Allee dargestellt (Abbildung 6.12).

Der überregionale Hintergrund, gemessen auf dem Frohnauer Turm, macht über die Hälfte (56 %) der PM2,5-Feinstaubkonzentration an der Frankfurter Allee aus. Am Stadtrand in Buch (MC077) kommen 19 % hinzu, die durch den regionalen Eintrag und Emissionen am Stadtrand verursacht werden. In der Innenstadt (MC042-Nansenstraße) kommen weitere 11 % zur PM2,5-Feinstaubbelastung dazu. Der lokale Beitrag an der Frankfurter Allee beträgt 14 %.

Im Beitrag des Hintergrunds befinden sich nennenswerte Konzentrationen von Aluminium, welches die Hauptleitkomponente von Dispersionsaerosolen aus Erdkrustenmaterialien in diesem Forschungsprojekt ist, weil die Messung der Silikate wegen den verwendeten Quarzfaserfiltern nicht möglich ist und Eisen ebenfalls durch den Verkehr emittiert wird.

Die angesprochene Gruppe der Silikate ist Teil des Summenparameters Rest. Unter diesem Sammelbegriff befinden sich alle chemisch nicht analysierten Inhaltsstoffe des PM2,5-Feinstaubs.

Zweidrittel des Rests an der Verkehrsmessstation MC174-Frankfurter Allee kommt aus dem Hintergrund, was in Kombination mit dem Aluminium einerseits vermutlich auf die Silikate zurückzuführen ist, zum anderen jedoch auch auf den nicht bestimmten Wasseranteil des PM2,5-Feinstaubs. Eben dieser wird eng mit dem organischen Material und mit den sekundär gebildeten Aerosolen verknüpft, deren Leitkomponenten Sulfat, Nitrat und Ammonium zusammen ihren größten Anteil im Hintergrund besitzen. Hierbei unterscheiden

sich jedoch Sulfat und Nitrat erheblich. Während Sulfat im Beitrag des Hintergrunds einen deutlich höheren Anteil gegenüber der Stadt und dem Verkehr zeigt, sind die Anteile des Nitrats in der Stadt, den Randgebieten und dem Hintergrund mit ungefähr drei Prozent sehr ähnlich. Aus den Verteilungen der Konzentration in Abhängigkeit der Luftströmungen (Anhang XX) geht hervor, dass die Verteilung des Sulfats an der überregionalen Hintergrundstation die Verteilungen an allen anderen Messstationen dominiert, so dass Sulfat dem großräumigen Ferntransport zugeordnet wird. Die Verteilung des Nitrats zeigt zum einen keine Hauptwindrichtung, zum anderen wächst die Konzentration mit steigendem urbanem Umfeld an den Messstationen an. Daraus resultierend entsteht Nitrat hauptsächlich im urbanen Umfeld.

Die Inhaltsstoffe, deren Quellen ebenfalls hauptsächlich dem überregionalen Hintergrund zugeordnet werden können, sind die Seesalz-Komponenten Mg, Na, Cl und das organische Material. Die Seesalze können innerhalb der Stadt auch anthropogen durch witterungsbedingten Streusalzeinsatz emittiert werden. Aufgrund der sehr milden Winter 2006/2007 und 2007/2008 ist dieser Quellbeitrag aber eher vernachlässigbar gering.

Für den PM2,5-Feinstaub ergibt sich zusammengefasst, dass etwa ein Drittel der PM2,5-Feinstaubbelastung an der Straßenmessstelle durch Quellen in der Stadt und etwa zwei Drittel durch Quellen außerhalb der Stadt verursacht werden.

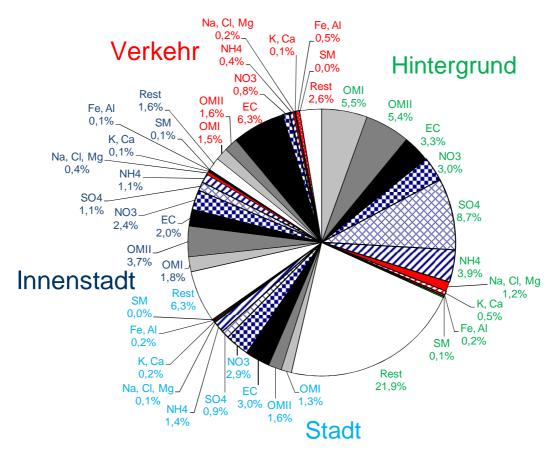


Abbildung 6.12: Mittlere Staubzusammensetzung der verschiedenen Quellbeiträge [%], 2007

6.2 Abschätzung über Emissionsmessungen

Neben der Betrachtung der Immissionsmessungen des PM2,5-Feinstaubs und seiner Inhaltsstoffe ist für die Emissionsquellenzuordnung eine Verknüpfung der PM2,5-Feinstaubimmissionswerte mit Emissionsmessungen notwendig. Durch diese Verknüpfung kann ermittelt werden, welche Emittentengruppe, welchen Anteil an der PM2,5-Feinstaubbelastung besitzt.

Dafür werden die vom Umweltbundesamt, sowie die von der Stadt Berlin ermittelten Emissionsmassenströme in Kilotonnen pro Jahr verwendet (Lenschow 2001). Innerhalb dieses Forschungsprojektes wurden zusätzlich Emissionsmassenströme des Landes Brandenburg verwendet, da davon ausgegangen wird, dass Emissionen im direkten Umland Berlins eine größere Bedeutung für Immissionsmessungen in Berlin besitzen. Somit wurden einerseits die Emissionsdaten Deutschlands und andererseits des Land Brandenburgs für die Abschätzung der Emissionen des regionalen Hintergrunds genutzt.

Die Emissionsangaben wurden für insgesamt **elf Emissionsgruppen** abgeschätzt, wobei zum einen die gesamten natürlichen Quellen durch nur eine Emissionsgruppe repräsentiert werden und zum anderen die Quelle Verkehr unterteilt wird in die Auspuffemission des Straßenverkehrs und die mechanischen Quellen der Aufwirbelung und des Reifenabriebs.

Bei dieser Auswertung wird zusätzlich die Gruppe der kleinen Heizungsanlagen um zusätzliche Feuerungsanlagen in der Stadt Berlin erweitert, die Holzfeuerungen im Freien, sowie Grillen beinhalten. Zuvor waren diese Quellen im Bereich der sonstigen Quellen berücksichtigt, was immer noch auf die Auswertungen für Brandenburg und Deutschland zutrifft.

Bezüglich der verwendeten Emissionsangaben von Brandenburg und Deutschland kommt hinzu, dass bei der Aufteilung für Deutschland die Gruppe der Heiz- und Kraftwerke die Emissionen der Müllverbrennungsanlagen und die Gruppe des Straßenverkehrs die mobilen Maschinen enthält.

Die Vereinfachungen für Brandenburg betreffen die Emissionen der Gruppen industrielle Feuerungsanlagen und Prozesse, die Mineralölproduktion und -verteilung, sowie die Müllverbrennung, die sich alle in der Gruppe der Heiz- und Kraftwerke befinden.

Um die Anteile der einzelnen Emissionsgruppen je PM2,5-Feinstaubbeitragsregion zu berechnen, wurde in einem ersten Schritt der Emissionsmassenstrom des PM2,5-Feinstaubs über den berechneten Emissionsmassenstrom der Total Suspended Particles (TSP) abgeschätzt. Das Verhältnis des PM2,5-Feinstaubs am TSP bzw. des PM10-Feinstaubs wurde mithilfe der Kenntnis von Entstehungsprozessen und Quellen abgeschätzt.

Die Emissionsmengenströme (PM2,5, SO₂, NOx und NH₃) wurden mit dem Gewichtungsfaktor des PM2,5-Feinstaubs multipliziert, der beurteilt, welchen Einfluss die

einzelnen Emissionsgruppen auf die PM2,5-Feinstaubbelastung haben. Dabei werden die räumlichen Verteilungen der Quellen und ihre Eigenschaften berücksichtigt.

Anhand des gewichteten PM2,5-Feinstaubemissionsmassenstroms wurden die gewichteten Massenströme der PM2,5-Feinstaubbestandteile elementarer Kohlenstoff, primär emittiertes organisches Material und des Restes abgeschätzt. Hierbei repräsentiert der Rest nicht nur die chemisch nicht analysierten PM2,5-Feinstaubinhaltsstoffe, sondern auch die hier nicht aufgeführten, jedoch chemisch analysierten PM2,5-Feinstaubbestandteile. Ebenfalls abgeschätzt wurden die sekundär emittierten organischen Materialien über den extra gewichteten Emissionsmassenstrom der leichtflüchtigen organischen Kohlenstoffe (NMVOC), die mit dem gewichteten Emissionsmassenstrom der primär emittierten organischen Materialien zur Summe der organischen Materialien addiert werden.

Im folgenden Schritt wurden die gewichteten Emissionsmassenströme der einzelnen Emittentengruppen in die Anteile der gesamten Emissionen des betreffenden PM2,5-Feinstaubbestandteils umgerechnet. Für die Verkehrsstation wurden dabei die Daten der Stadt Berlin verwendet, wobei zuvor die Annahme getroffen wird, dass durch die dortigen Messungen lediglich die Emittentengruppen Straßenverkehr, sowie Aufwirbelung und Reifenabrieb erfasst werden.

Die erhaltenen Anteile wurden schließlich mit den entsprechenden mittleren Beiträgen der PM2,5-Feinstaubbestandteile multipliziert und prozentual auf die gesamte durchschnittliche PM2,5-Feinstaubbelastung bezogen umgerechnet. Mithilfe dieser Prozedur lässt sich die Belastung an der Messstation MC174-Frankfurter Allee verschiedenen Emittentengruppen selektiert nach den Beitragsregionen Verkehr, Stadt und Hintergrund zuordnen.

Die oben beschriebene Methodik wurde zum einen für die Emissionsdaten Deutschlands, zum anderen für Brandenburg als regionaler Hintergrund jeweils für das gesamte Kalenderjahr 2007, sowie für Sommer und Winter getrennt durchgeführt.

Abbildung 6.13 zeigt, dass zwar etwa 70 % des PM2,5-Verkehrsbeitrags den Verbrennungsaerosolen zugeordnet werden, diese jedoch nur einen Anteil von ungefähr neun Prozent an der Gesamtbelastung an der Frankfurter Allee ausmachen. Wie sich bei der ausschließlichen Analyse der PM2,5-Feinstaubimmissionen gezeigt hat, kann jedoch genau dieser Anteil dazu führen, dass PM2,5-Konzentration oberhalb des Zielwertes erreicht werden.

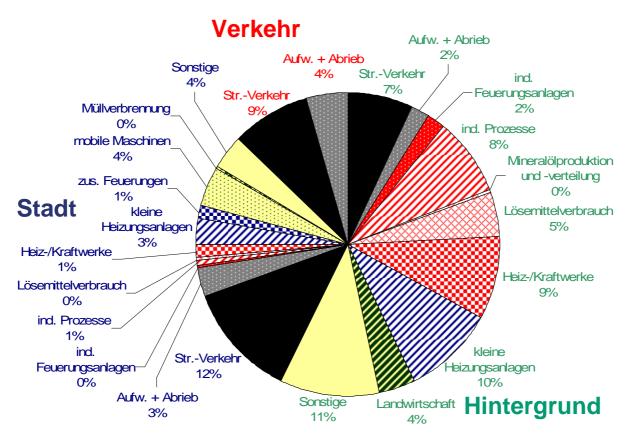


Abbildung 6.13: Mittlere Zusammensetzung der PM2,5-Feinstaubbeiträge an der Messstation MC174-Frankfurter Allee (UBA-Hintergrund) [%], 2007

Infolge der verschiedenen Entstehungsprozesse von Verbrennungsaerosolen und mechanisch entstandenen Aerosolen geht aus einem Vergleich mit vorherigen Auswertungen bezüglich PM10-Feinstaub (John 2004) hervor, dass der Anteil der Verbrennungsaerosole am Verkehrsbeitrag sich nicht signifikant ändert. Der Anteil der mechanisch entstehenden Aerosole beim Verkehr durch Aufwirbelung und Abrieb ist jedoch beim PM2,5-Feinstaub nur etwa ein Drittel so groß wie der Anteil am PM10-Feinstaub an der Messstation MC174-Frankfurter Allee.

Die Emissionen in der Stadt Berlin tragen zu etwa einem Drittel zu der PM2,5-Feinstaubbelastung an der Frankfurter Allee bei, wobei die Verbrennungsaerosole des Straßenverkehrs auch am PM2,5-Feinstaubbeitrag der Stadt den höchsten Anteil mit rund 12 % an der Gesamtbelastung besitzen.

Eine Maßnahme bezüglich der Fahrzeugflottenzusammensetzung in Berlin hat somit nicht nur Auswirkungen auf den PM2,5-Feinstaubbeitrag des Verkehrs an einer lokal hochbelasteten Verkehrsmessstelle, sondern zusätzlich auch auf die innerstädtische PM2,5-Feinstaubbelastung.

Ein geringes Minderungspotenzial in der Stadt Berlin zeichnet sich dagegen für die Müllverbrennung (0,2 %), industrielle Feuerungsanlagen (0,4 %), sowie den Sektor mit Lösemittelverbrauch (0,01 %) ab. Im Vergleich zu anderen europäischen Ballungsräumen

besitzt Berlin nur eine geringe Industriedichte. Zudem sorgen sehr wirksame Rauchgasreinigungen für vergleichsweise geringe Emissionen.

Anhand der Verknüpfung der Emissionsmassenströme des Umweltbundesamtes, der abgeschätzten Gewichtungsfaktoren und der ermittelten Immissionswerte zeigt sich, dass die Emissionen des Verkehrs inklusive der Aufwirbelung und des Abriebs aus dem Hintergrund im Vergleich zu den Beiträgen des Verkehrs und der Stadt zwar die geringsten Anteile aufweisen, jedoch die Emissionsquellen Industrie, kleine Heizungsanlagen, sowie Heizund Kraftwerke circa ein Drittel der PM2,5-Feinstaubbelastung an der Messstation MC174-Frankfurter Allee ausmachen.

Die Hälfte des Anteils der Heiz- und Kraftwerke ist dabei auf die Emissionen von Schwefeldioxid zurückzuführen, das durch Gas-Partikel-Konversion zu Sekundäraerosolen reagiert. Des Weiteren ist in Abbildung 6.13 zu sehen, dass der Anteil der Industrie im Hintergrund hauptsächlich aus der Gruppe der industriellen Prozesse resultiert (etwa 53 % des gesamten Bereiches der Industrie), die wiederum zum größten Teil (ungefähr 57 %) PM2,5-Feinstaub in Form der chemisch nicht analysierten PM2,5-Feinstaubinhaltsstoffe emittieren, wobei diese in Bezug auf die Analyse der Emissionsmengenströme auch Erdkrustenmaterialien sein können.

Einen ähnlich hohen Anteil des chemisch nicht analysierten Restes ist ebenfalls bei den kleinen Heizungsanlagen zu finden. Hierbei ist jedoch davon auszugehen, dass dies durch Kristallwasser im Feinstaub verursacht wird.

Die sonstigen Quellen besitzen insgesamt einen Anteil von vierzehn Prozent, wobei elf Prozent bereits aus dem Hintergrund entstammen (Abbildung 6.13). In Anbetracht dessen, dass diese Gruppe (SNAP 11) auch die natürlichen Quellen erfasst, die im Wesentlichen aufgrund ihres diffusen Charakters nur mithilfe von Stoffbilanzen quantifiziert werden können, scheint dieser Anteil etwas zu gering abgeschätzt zu sein. Hierbei kann eine Rolle spielen, dass dieser Gruppe hauptsächlich mechanisch entstandene und biogene Aerosolpartikel zugeordnet werden, wie z.B. Bodenerosion, Baustellentätigkeit und Pollen, die hauptsächlich einen aerodynamischen Durchmesser von größer 2,5 µm besitzen.

Um generelle Ansätze zur Minderung der PM2,5-Feinstaubbelastung zu verfolgen, ist die ausschließliche Betrachtung der Verteilung der Anteile der Emittentengruppen an der PM2,5-Feinstaubkonzentration von Interesse. An der lokal hochbelasteten Messstation MC174-Frankfurter Allee besitzt die Emittentengruppe Verkehr einen Anteil von etwa 38 % und somit den höchsten Anteil (Abbildung 6.14). Dieser Sektor hat daher ein großes Potential für Minderungsmaßnahmen zur Senkung der PM2,5-Belastung.

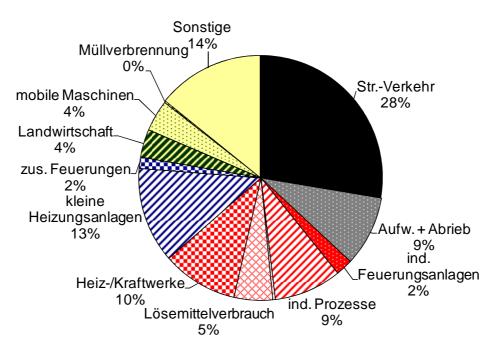


Abbildung 6.14: Mittlere Zusammensetzung der PM2,5-Feinstaubzusammensetzung nach Emissionsgruppen gegliedert an der Messstation MC174-Frankfurter Allee [%], 2007 (UBA-Hintergrund)

Die Betrachtung der PM2,5-Feinstaubmessungen zeigt zudem, dass es eine Vielzahl von Tagen gab, an denen der PM2,5-Zielwert von 25 μg/m³ an der Verkehrsmessstation MC174-Frankfurter Allee aufgrund des PM2,5-Verkehrsbeitrages überschritten wurde. Bei der am häufigsten auftretenden Luftströmung besitzt er einen Anteil von rund zwanzig Prozent an der PM2,5-Feinstaubbelastung im Gebiet einer lokal hochbelasteten Verkehrsstation, so dass lokale Maßnahmen im nationalen Umfang oder im Bereich einzelner Bundesländer und Kommunen in diesem Bereich anzusetzen sind.

Dabei ist jedoch festzuhalten, dass der PM2,5-Feinstaubeintrag eine noch größere Bedeutung für die PM2,5-Feinstaubbelastung in der Stadt Berlin besitzt, da es sogar einzelne Tage gibt, an denen bereits an der Eintragsstation der PM2,5-Zielwerte überschritten wurde. Eine Regulierung und Limitierung der Feinstaubquellen im überregionalen Hintergrund ist somit maßgeblich für eine zukünftige signifikante Minderung der PM2,5-Feinstaubbelastung. Hierbei zeigt sich, dass insbesondere bei östlichen Luftströmungen die Luftqualität der Stadt Berlin unter den Emissionen der osteuropäischen Nachbarstaaten leidet. Da östliche Luftströmungen jedoch nur selten auftreten, sollten für Berlin zusätzlich Maßnahmen zur Limitierung der Emissionen des Verkehrs ergriffen werden.

Werden die Emissionsdaten Brandenburgs für den regionalen Hintergrund angewendet, so ist zu sehen, dass die Emissionen des Verkehrs und der Landwirtschaft im Hintergrund den gleichen Anteil an der Gesamtbelastung besitzen (Abbildung 6.15). Die Gruppe der Heizund Kraftwerke beinhaltet bei den Emissionsdaten Brandenburgs ebenfalls die Emissionen der industriellen Feuerungsanlagen und Prozesse, sowie die Mineralölproduktion. Bei der Verwendung der Emissionsdaten von Deutschland ergibt sich für diese Gruppen insgesamt

ein Anteil von 21 % (Abbildung 6.14), somit ein Drittel weniger als bei den Daten Brandenburgs (Abbildung 6.16).

Ein Grund hierfür könnte die ausschließliche Energiegewinnung mithilfe von Kohle in Brandenburg sein. Die Emissionen von Schwefeldioxid spielen dabei in der zusammengefassten Gruppe die größte Rolle, wobei aus den Emissionsdaten Deutschlands hervorgeht, dass dies insbesondere auf die Gruppen der Heiz- und Kraftwerke, sowie der industriellen Feuerungsanlagen zurückzuführen ist.

Im Gegensatz dazu besitzen die kleinen Heizungsanlagen und die Gruppe des Lösemittelverbrauchs deutlich geringere Anteile bei der Verwendung der Emissionsdaten Brandenburgs. Dabei ist möglicherweise das Fehlen entsprechender Industrien Grund für die geringeren Emissionen durch Lösemittelverbrauch.

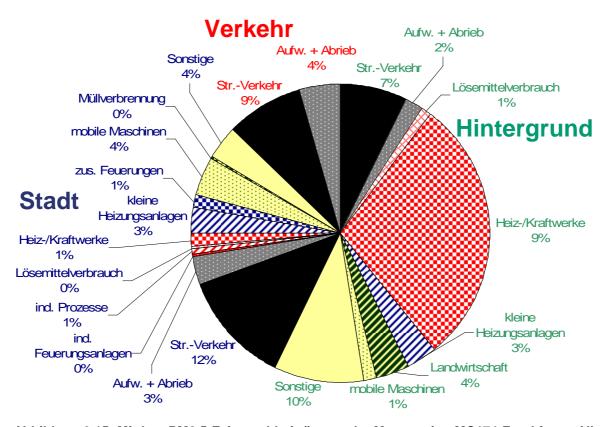


Abbildung 6.15: Mittlere PM2,5-Feinstaubbeiträge an der Messstation MC174-Frankfurter Allee [%], 2007 (Brandenburg-Hintergrund)

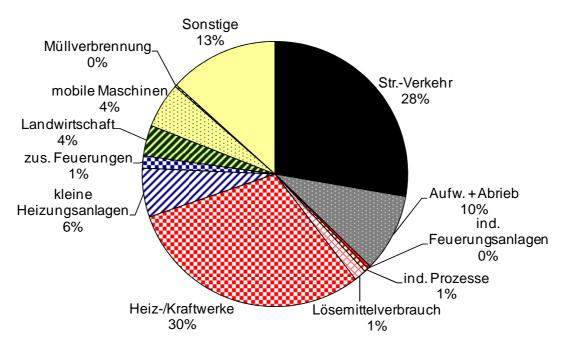


Abbildung 6.16: Mittlere PM2,5-Feinstaubbeiträge an der Messstation MC174-Frankfurter Allee [%], 2007 (Brandenburg-Hintergrund)

Aufgrund der beschriebenen Differenzen zwischen den Ergebnissen des Modells mithilfe der Emissionsdaten Deutschlands und Brandenburgs verschieben sich ebenfalls die mittleren Anteile der Emissionsgruppen an der PM2,5-Feinstaubbelastung in der Frankfurter Allee:

Die Gruppen des Verkehrs, der Landwirtschaft, der mobilen Maschinen, der zusätzlichen Feuerungsanlagen und die sonstigen Gruppen zeigen eine gute Übereinstimmung, bei den restlichen Gruppen sind jedoch signifikante Unterschiede zu beobachten (Abbildungen 6.14 und 6.16). Hierbei lässt sich jedoch nicht genau sagen, ob die Gruppen der industriellen Feuerungsanlagen und Prozesse, die Gruppe der Mineralölproduktion, oder die Heiz- und Kraftwerke bedeutungsvolle Differenzen zeigen, da sie bei den Emissionsdaten Brandenburgs zusammengefasst werden. Somit ist lediglich die Aussage zu treffen, dass sich ihre Summe erheblich unterscheidet.

Beim Vergleich der Sommermonate (April, Mai, Juni, Juli, August, September) mit den Wintermonaten (Oktober, November, Dezember, Januar, Februar, März) können aufgrund des Messzeitraumes von 15 Monaten die Monate Dezember, Januar und Februar von zwei Kalenderjahren betrachtet werden.

Bei beiden Varianten des regionalen Hintergrunds (Emissionsdaten vom UBA und Brandenburg) fällt zunächst auf, dass der Anteil der sonstigen Quellen im regionalen Hintergrund im Sommer um ungefähr drei Prozent höher ist als im Winter. Mögliche Ursache dafür können zum einen die vermehrten Bioaerosole im Sommer sein und zum anderen die geringeren Niederschläge, wodurch die Böden trockener sind und die Bildung von Dispersionsaerosolen verstärkt wird. Diese verstärkte Bildung von Dispersionsaerosolen

müsste jedoch auch dazu führen, dass die Aufwirbelung an Straßen im Sommer zunimmt, egal ob in der Stadt oder an einer Hauptverkehrsstraße, was nicht beobachtet wird.

Eine weitere Gemeinsamkeit beider Varianten ist die Zunahme der Anteile der Gruppen Heiz- und Kraftwerke, der kleinen Heizungsanlagen, sowie der industriellen Prozesse zum Sommer. Bezüglich der ersten beiden genannten Gruppen wiederspricht dies zunächst der Vermutung, dass der Energiebedarf im Winter und somit auch die Emissionen bei der Energiegewinnung zunehmen. Möglicherweise wird dieser Effekt nur in Jahren mit stärkeren Wintern beobachtet.

Hinzukommend muss die besondere Rolle der Exposition der Messstelle MC045-Frohnauer Turm beachtet werden. Einerseits ist es möglich, dass die Messtechnik in der Turmkanzel bei sehr tiefen Mischungsschichthöhen im Winter die Schadstoffe nur unzureichend erfasst, zum anderen ist es denkbar, dass aufgrund atmosphärischer Schichtungen auf dem Frohnauer Turm andere Luftmassen gemessen werden als am Boden.

Der Vergleich Sommer und Winter zeigt zudem, dass der Anteil der Verbrennungsaerosole des Verkehrs in der Stadt im Sommer nur fast die Hälfte gegenüber den Wintermonaten beträgt. Würde dies an der Flüchtigkeit des Nitrates liegen, dessen Konzentration die NOx-Emissionen des Verkehrs widerspiegelt, würde auch an der Verkehrsmessstelle die gleiche Beobachtung gemacht werden können. Dies ist jedoch nicht der Fall, so dass die Resultate diesbezüglich keine gemeinsamen Schlüsse ziehen lassen.

Unabhängig von der Jahreszeit beträgt der Anteil des Verkehrs jeweils über ein Drittel an der PM2,5-Feinstaubbelastung. Werden ausschließlich die Verbrennungsaerosole des Verkehrs in der Großraum Berlin betrachtet, besitzen diese einen Anteil von 21 % im Jahr 2007. Die Reduktion dieser Verbrennungsaerosole ist nicht nur ein Mittel um mögliche Überschreitungen des Zielwertes zu vermeiden, sondern auch unter lufthygienischer Betrachtung zwingend notwendig, da Verbrennungsaerosole in zweierlei Hinsicht gefährlich sind. Zum einen sind sie besonders klein, so dass sie tief in das Lungengewebe eindringen und es schädigen können. Zum anderen werden sie aufgrund ihrer Größe bei der Betrachtung von Massenkonzentration nicht ausreichend gewichtet, da die Masse von der dritten Potenz des Radius abhängt. Umso bedeutungsvoller ist ihr hoher Anteil an der PM2,5-Feinstaubkonzentration, da er aus einer besonders hohen Anzahl an Partikeln resultiert.

7 Ursachen hoher regionaler PM2,5-Einträge

Im folgenden Abschnitt wird der (über)regionale PM2,5-Staubeintrag mithilfe von Trajektorien untersucht. Ziel ist es, Quellen außerhalb des Stadtgebietes, die zur PM2,5-Belastung in Berlin beitragen, zu identifizieren und deren quantitative Beiträge abzuschätzen.

Diese Untersuchungen erfolgten zum einen für die Gesamtmasse des PM2,5-Staubes sowie für wichtige Inhaltsstoffe, insbesondere für Bestandteile der Verbrennungsaerosole EC und OM sowie für die Sekundäraerosole Sulfat und Nitrat. Darüber hinaus wurde die Herkunft ausgewählter Spurenmetalle modelliert, die in Abhängigkeit ihres Anteils im Feinstaub auf bestimmte Quellregionen schließen lassen.

Die räumliche Herkunft der Luftmassen wurde über die Berechnung von Rückwärtstrajektorien für Europa untersucht. Dabei kam ein am FG Umweltverfahrenstechnik der TU-Berlin entwickeltes zweidimensionales Trajektorienmodell zum Einsatz (Finkelnburg, 2007). Der Vergleich mit einem dreidimensionalen Modell (Reimer, 2005) zeigte gute Übereinstimmungen beider Modelle (Pesch, 2007b).

Zusätzlich zu der Betrachtung einzelner Trajektorien wurden auch Trajektoriendichten berechnet, die geographische Häufigkeiten bestimmter Luftmassenherkünfte verdeutlichen können. Die Modelle sind im 1. Zwischenbericht (Pesch, 2007b) und in (Finkelnburg, 2007; Mottschall, 2007) beschrieben.

7.1 Luftmassenherkunft bei hohem PM2,5-Eintrag

Tabelle 7.1 zeigt alle Tage im Messzeitraum 01.12.2006 bis 29.02.2008, an denen an der Frankfurter Allee der PM10-Tageswert über 50 µg/m³ lag. An diesen Tagen traten in ganz Berlin erwartungsgemäß auch hohe PM2,5-Belastungen auf.

Exemplarisch werden der 11. Februar 2007, der 21. bis 24. Februar 2007, der 24. März 2007 die Episode vom 31. März bis 2. April 2007 sowie der 19.11.2007 und der 21.02.2008 vorgestellt. Der 21.02.2008 ist dabei besonders interessant, da an diesem Tag die Luftmassen aus Südwest kamen und trotzdem die höchste PM2,5-Konzentration des gesamten Messzeitraumes (01.12.2006 bis 29.02.2008) von 70,7 µg/m³ an der Frankfurter Allee gemessen wurde.

Tabelle 7.1: Tage mit PM10 an der Frankfurter Allee über 50 μg/m³ vom 01.12.06 bis 29.02.2008

	PM10 (MC174)	PM2,5 (MC174)	PM2,5 (MC042)	PM2,5 (MC077)	PM2,5 (HaHo)	PM2,5 (MC045)
	[µg/m³]	[µg/m³]	[µg/m³]	[µg/m³]	[µg/m³]	[µg/m³]
08.02.07	52,6	46,3	43,9	31,9	36,3	
11.02.07	60,3	55,9	53,5	42,0	49,3	
21.02.07	70,2	54,1	51,0	46,1	37,7	
22.02.07	60,4	46,8	41,2	33,2	35,9	
23.02.07	72,6	60,8	55,7	46,7	51,3	30,4
24.02.07	70,1	57,9	54,5	43,8	49,7	47,4
12.03.07	53,9	32,3	25,8	28,9	21,6	
13.03.07	58,8	39,6	34,1	35,9	29,5	
16.03.07	62,8	48,6	45,6	39,2	34,6	
24.03.07	60,6	32,9	34,5	38,6	29,7	
28.03.07	55,5	36,3	31,4	36,5	32,4	24,6
29.03.07	53,2	37,0	31,2	34,0	34,1	21,9
30.03.07	52,6	40,7	34,1	37,3	31,7	23,9
31.03.07	52,8	41,4	40,7	47,9	39,3	25,2
01.04.07	64,8	53,2	49,2	54,5	50,0	33,7
02.04.07	81,9	59,9	57,4	54,9	50,5	38,4
24.04.07	63,0	41,2	39,0	30,1	22,0	19,1
26.04.07	51,9	32,7	28,0	21,4	26,1	20,9
27.04.07	52,3	32,9	31,8	25,1	22,3	22,9
16.10.07	56,6	41,7	35,4	31,8	29,2	23,9
26.10.07	57,4	45,0	44,1	40,3	41,9	39,4
27.10.07	58,6	50,1	45,2	43,0	42,4	34,4
29.10.07	52,1	39,9	34,9	30,5	30,6	30,7
19.11.07	63,5	50,3	45,6	39,1	39,5	22,1
20.11.07	66,8	52,6	47,9	43,4	43,6	23,9
21.11.07	61,3	48,5	43,0	45,1	40,7	24,5
22.11.07	53,4	41,6	37,2	32,6	29,2	10,3
28.11.07	51,0	36,7	27,8	26,2	13,2	6,4
20.12.07	56,8	47,4	39,8	28,5	29,5	3,8
21.12.07	63,3	54,6	49,2	45,3	33,8	4,3
22.12.07	74,8	66,1	61,5	·	53,9	18,4
23.12.07	68,6	59,5	54,1	58,3 50,7	44,8	15,9
03.01.08	55,5	45,3	43,9	38,8	34,7	28,0
04.01.08						
05.01.08	58,3	47,0 52.5	44,1 50,1	38,8 45,6	34,3	30,0
	62,8	53,5			40,0	30,3
06.01.08 14.01.08	52,8	46,6	42,3	35,6 34.7	30,9	12,3
29.01.08	57,5	54,3	41,5	34,7	34,7 30,1	15,6
	68,4 51.2	49,4	41,2	30,7	· ·	19,9
30.01.08	51,3	39,5	35,3	28,2	21,6	16,7
10.02.08	65,4	47,4	39,9	29,5	25,8	6,8
11.02.08	61,4	47,0	43,2	35,9	31,1	17,6
13.02.08	52,2	42,3	42,6	31,0	26,9	22,1
21.02.08	80,1	70,7	66,3	60,8	47,5	58,0
24.02.08	54,4	47,8	43,0	41,2	31,7	35,4
29.02.08	53,1	40,9	35,8	30,4	26,6	26,5

Am 11. Februar 2007 (Abbildung 7.1 a) wurde die in Berlin advehierte Luft vorwiegend aus nordöstlicher Richtung über die Baltischen Staaten und über Polen nach Berlin transportiert. Im Laufe des Tages drehen die Luftmassen nach Westen. Sehr wahrscheinlich ist die hohe Feinstaubbelastung durch Emissionsquellen in Polen hervorgerufen worden. Die Abbildung verdeutlicht, dass große Kohlekraftwerke von den Luftmassen überquert wurden.

Am 23. und 24. Februar 2007 war ein Hochdruckgebiet über Finnland für den Transportweg der Luftmassen bestimmend, das sich während der beiden Tage mit seinem Zentrum südwärts verlagerte (Abbildungen 7.1 b und c). Die in Berlin ankommende Luft wurde mit der antizyklonalen Bodenströmung über Polen transportiert. Mit der Verlagerung des Hochdruckgebietes verschob sich der Transportweg am 24. Februar ebenfalls südwärts. Die hohen PM2,5-Konzentrationen am 23. und 24. Februar 2007 traten an Tagen auf, an denen die Luft vorwiegend von Osten und Südosten über Polen nach Berlin transportiert wurde.

Der 24. März 2007 war eine besonders interessante Situation, an der es in großen Teilen Europas zu einer sehr hohen Feinstaubbelastung kam. Ursache hierfür waren extrem starke Staubaufwirbelungen in der Ukraine, die mit östlichen Luftströmungen nach Europa transportiert wurden. Eine ausführliche Analyse der Situation ist vor kurzen publiziert worden (Birmili, 2007). Die Trajektorienrechnungen zeigen, dass an diesem Tag die Luft mit hoher Strömungsgeschwindigkeit von Osten nach Berlin strömte (Abbildungen 7.2 a). Die Luftströmung entstand unter dem Einfluss eines Hochdruckgebietes über Finnland und eines Tiefdruckgebietes über Italien. Berlin lag hierdurch in einer Zone hoher Windgeschwindigkeiten.

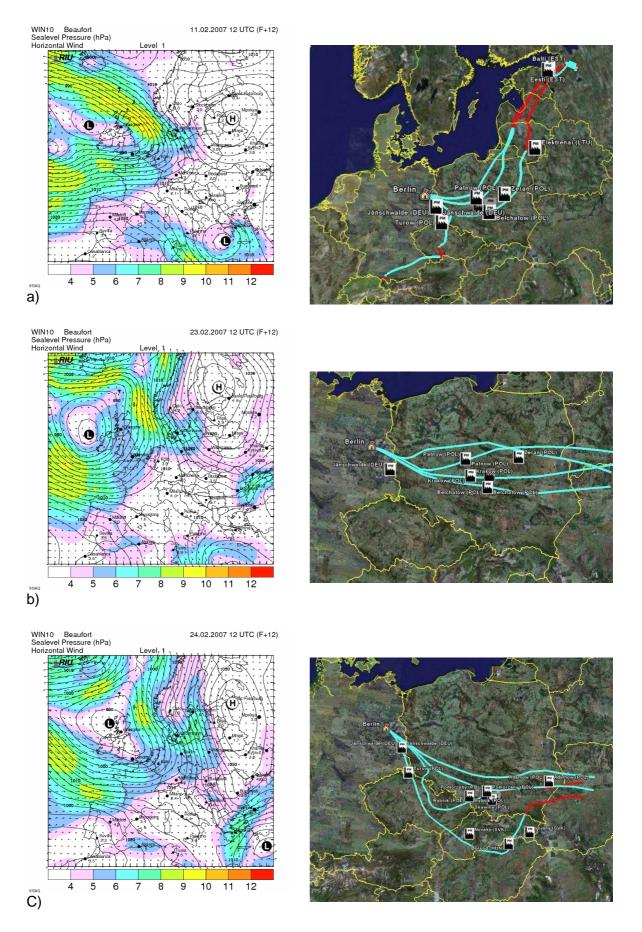
Vom 31. März bis zum 2. April 2007 wurden die Luftströmungen durch ein Hochdruckgebiet über Großbritannien beeinflusst, welches sich nach Nordwesten verschob (Abbildungen 7.2 b und c und 7.3 a). Die antizyklonale Strömung führte über Berlin zu einem Lufttransport aus östlicher Richtung mit geringen Geschwindigkeiten. An diesen Tagen wurde die Luft von Osten kommend mit geringen Geschwindigkeiten über Polen nach Berlin transportiert. Hierbei passierte die Luft einige starke Emittenten. Die Luft wurde jeweils über weite Strecken in sehr geringen Höhen (weit unter 500 m) transportiert. Diese Luftmassenherkunft wirkt sich in Kombination mit geringen Transporthöhen begünstigend auf die Anreicherung von Emissionen in der Luft aus.

Die Abbildungen 7.3 b und 7.3 c zeigen die Luftmassenherkunft für den 19. November 2007 und den 21. Februar 2008. Am 19.11.2007 betrug der PM2,5-Eintrag am Turm 22,1 μg/m³, in der Nansenstraße 45,6 μg/m³ und an der Frankfurter Allee 50,2 μg/m³. An diesem Tag trug das Stadtgebiet Berlin daher mit über 23 μg/m³ wesentlich zur PM2,5-Feinstaubbelastung bei. Die chemische Analyse des PM2,5 für diesen Tag ergab sehr hohe EC-Anteile in der Staubprobe von der Nansenstraße, was auf Verbrennungsaerosole des innerstädtischen Kfz-Verkehrs schließen lässt. An der Frankfurter Allee betrug der EC-Anteil an diesem Tag sogar 20 %.

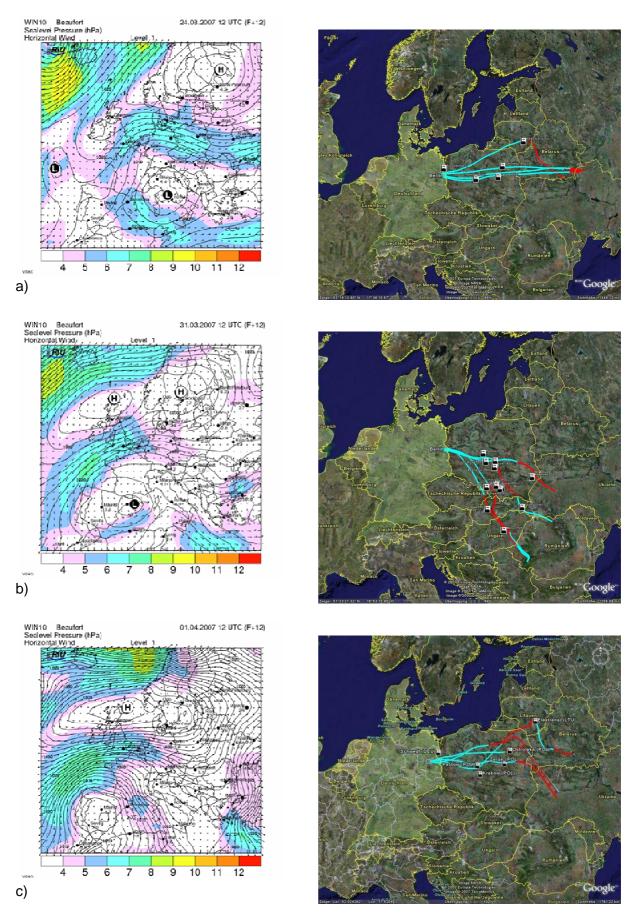
Am **21.02.2008** betrug der PM2,5-Eintrag am Turm 58,0 μ g/m³, an der Nansenstraße wurden 66,3 μ g/m³ gemessen und an der Frankfurter Allee wurde die hohe PM2,5-Feinstaubbelastung von 70,7 μ g/m³ erreicht. Dieser Wert war die höchste PM2,5-Konzentration des gesamten Messzeitraumes.

Die Auswertungen der Luftmassenherkunft mit Trajektorien zeigt, dass an beiden Tagen sehr unterschiedliche Luftströmungen herrschten: Während am 19.11.2007 die Luftmassen aus Südost nach Berlin kamen, gab es am 21.02.2008 eine für hohe Feinstaubbelastung in Berlin sehr untypische Luftmassenherkunft aus Südwest.

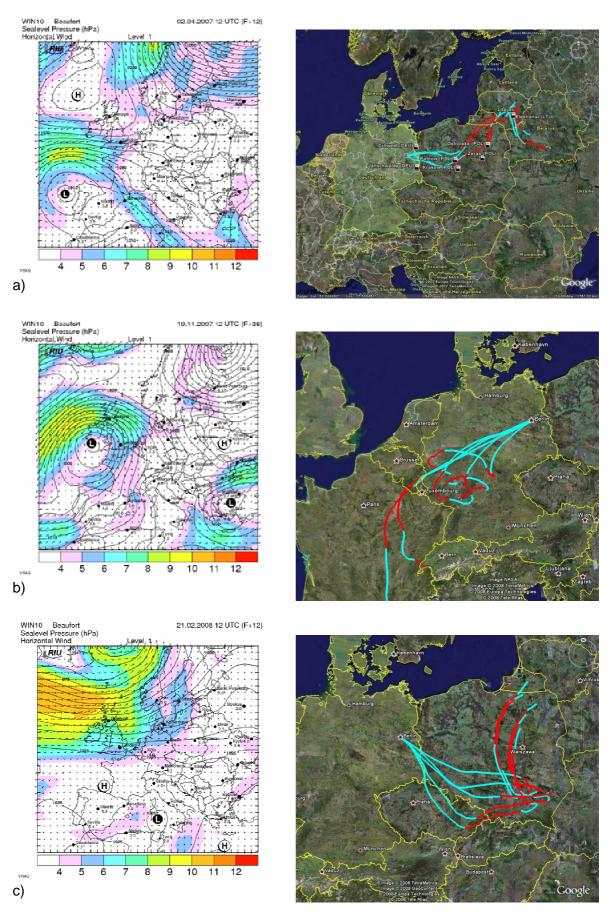
Am 21.02.2008 war besonders der Eisenanteil im Feinstaub erhöht. Dies lässt auf einen großen Anteil an Dispersionsaerosolen im Feinstaub für diesen Tag schließen.



Abbildungen 7.1: Windfelder und Rückwärtstrajektorien für den a) 11.02.2007, b) 23.02.2007, c) 24.02.2007



Abbildungen 7.2: Windfelder und Rückwärtstrajektorien für den a) 24.03.2007, b) 31.03.2007, c) 01.04.2007



Abbildungen 7.3: Windfelder und Rückwärtstrajektorien für den a) 02.04.2007, b) 19.11.2007, c) 21.02.2008

7.1.1 Betrachtung der Mischungsschichten

Interessant ist neben der Luftmassenherkunft auch eine Betrachtung der Mischungsschicht, da geringe Mischungsschichthöhen häufig die Belastung von Feinstaub zusätzlich verstärken (Lentz, 2008). Im Rahmen dieses Projektes wurden zur Auswertung Mischungsschichten hinzugezogen, die von der Arbeitsgruppe Troposphärische Umweltforschung (TrUmF) des Meteorologischen Instituts der Freien Universität Berlins für den gesamten Messzeitraum (01.12.2006 bis 29.02.2008) berechnet wurden.

Die Mischungsschicht für den 21.02.2008 zeigt Abbildung 7.4. An diesem Tag, an dem mit 70,7 μg/m³ die höchste PM2,5-Belastung im Messzeitraum (01.12.2006 bis 29.02.2008) auftrat, herrschte um 12 Uhr MEZ eine sehr geringe vertikale Ausdehnung von etwa 500 m. Offenbar verstärkte die geringe vertikale Verdünnung der Luftschadstoffe an diesem Tag die hohe PM2,5-Belastung.

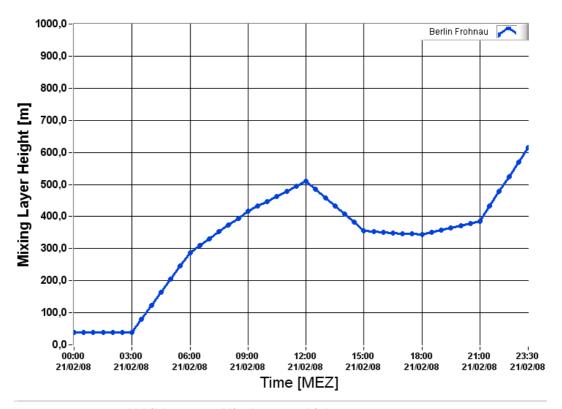


Abbildung 7.4: Mischungsschicht am 21.02.2008

Modellrechnungen der Arbeitsgruppe Troposphärische Umweltforschung (TrUmF) des Instituts für Meteorologie der Freien Universität Berlin

7.2 Bestimmung der Luftmassenherkunft über Trajektoriendichten

Im folgenden Abschnitt werden die Quellregionen, die zu einem hohen (über)regionalen Eintrag führen, durch eine Berechnung der Trajektoriendichte hervorgehoben. Die Häufigkeitsverteilung der Trajektorien - dargestellt als Trajektoriendichte - kann Aufschluss darüber geben, wie häufig Luftmassen bestimmte Gebiete überstrichen haben. Unter Berücksichtigung anderer Einflussfaktoren, wie beispielsweise die Lage und Art der Emissionsquelle sowie meteorologische Faktoren, können Regionen, die zur Hintergrundbelastung durch Ferntransport beitragen, identifiziert werden.

7.2.1 Berechnung der Trajektoriendichte

Die Trajektoriendichte wird aus einzelnen Trajektorien berechnet, in dem die relative Häufigkeit mit der Trajektorien ein bestimmtes Gebiet überquerten ermittelt wird (Finkelnburg, 2007). Die Häufigkeit wird durch eine Farbskala dargestellt. Blau verdeutlicht eine geringe relative Häufigkeit und rot eine sehr hohe Häufigkeit. Grüne und gelbe Farbbereiche verdeutlichen mittlere Konzentrationsbereiche.

Um die Trajektoriendichten abzubilden wird ein Berechnungsnetz gleichgroßer Netzelemente generiert. Die Größe der Netzelemente wurde für die folgenden Auswertungen auf 25 mal 25 km festgelegt. Die Trajektoriendichte ist die Anzahl verschiedener Trajektorien, die ein Netzelement durchlaufen. Eine Trajektorie erhöht die Dichte eines Netzelements nur einmalig, auch wenn sie in ihrem Verlauf mehrmals über das gleiche Netzelement läuft (Finkelnburg, 2007). Zwischen zwei Trajektorienpunkten einer Trajektorie wird ihr Verlauf linear interpoliert und mit der so erhaltenen Geradengleichung der Verlauf durch die dazwischen liegenden Netzelemente dargestellt.

Da die Trajektorien einer Darstellung meist denselben Startpunkt besitzen, führen die geometrischen Randbedingungen zu hohen Werten nahe des Startpunktes. Um die Häufigkeit, die auf die geometrischen Randbedingungen zurückzuführen ist, herauszurechnen, kann der Abstand des jeweiligen Berechnungspunktes zum Startpunkt berücksichtigt werden. Daher wurde eine Wichtung über die Wurzel des Abstandes zum Trajektorienstartpunkt vorgenommen.

7.2.2 Auswahl der Trajektorien zur Trajektoriendichteberechnung

Die Auswahl der Trajektorien, die zur Berechnung der Trajektoriendichte hinzugezogen werden, erfolgte über die Messungen am Frohnauer Turm (MC045). Diese Messungen repräsentieren den überregionalen Hintergrund und sind daher für großräumige Analysen der Feinstaubherkunft besonders geeignet.

Für die Berechnung der Trajektoriendichte wurden die Situationen ausgewählt, an denen die PM2,5-Feinstaubbelastungen am Frohnauer Turm über dem 90-Perzentilwert lagen.

Auch für die Auswertung der Inhaltsstoffe des PM2,5-Feinstaubes wurden nur die 90 %-Perzentilwerte des jeweiligen Stoffes betrachtet.

Abbildung 7.5 zeigt die Auswertungen für PM2,5. Deutlich wird, dass hohe Feinstaubeinträge fast ausschließlich aus östlichen bis südöstlichen Richtungen kamen. Polen und die Tschechische Republik wurden von den Luftmassen häufig überschritten.

Abbildung 7.6 zeigt die Ergebnisse für die geringsten Staubeinträge, d.h. alle PM2,5-Feinstaubeinträge unter dem 10 % Perzentilwert. In diesen Situationen kamen erwartungsgemäß die Luftmassen aus westlichen und nördlichen Richtungen.

Betrachtet man die Trajektoriendichten für den elementaren Kohlenstoff (EC), organisches Material OM und Sulfat (Abbildungen 7.7 bis 7.12), wird deutlich, dass die hohen Einträge dieser Staubbestandteile mit der PM2,5-Feinstaubkonzentration korrelieren. Da Sulfat (als Sekundäraerosol aus der SO₂-Umwandlung) und EC Leitkomponenten für Verbrennungsaerosole sind, ist es sehr wahrscheinlich, dass die hohen PM2,5-Einträge überwiegend durch große Kohlekraftwerke verursacht wurden.

Vanadium (V) ist eine Leitkomponente für petrochemische Anlagen. Abbildung 7.10 zeigt, dass hohe Vanadium-Einträge daher besonders häufig aus den Niederlanden (Amsterdam), dem Hamburger Raum sowie von der Nordsee (Ölförderung) kommen.

Natrium, Magnesium und Chlorid als Bestandteile des Feinstaubes sind gute Leitkomponenten für maritime Luft und Seesalzaerosole. Hohe Konzentrationen kommen daher vom Atlantik und der Nordsee. Abbildung 7.11 zeigt exemplarisch die Trajektoriendichte für Natrium. Interessant ist auch die Trajektoriendichte von Nickel, wo es offenbar eine starke Quelle in Frankreich gibt (Abbildung 7.12).



Abbildung 7.5: Luftmassenherkunft bei hohem PM2,5-Eintrag



Abbildung 7.6: Luftmassenherkunft bei geringem PM2,5-Eintrag

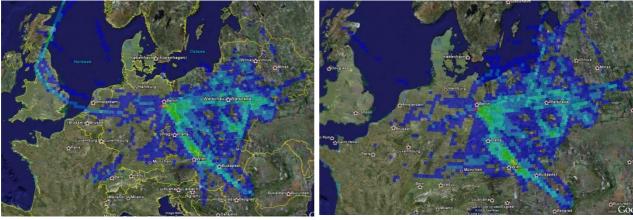


Abbildung 7.7: Luftmassenherkunft bei hohem EC-Eintrag

Abbildung 7.8: Luftmassenherkunft bei hohem OM-Eintrag

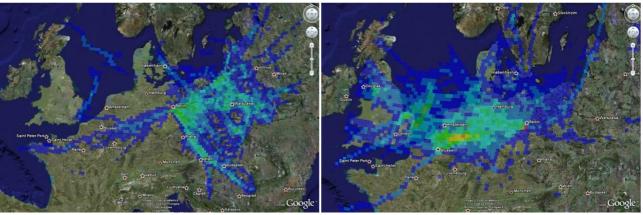


Abbildung 7.9: Luftmassenherkunft bei hohem Sulfat-Eintrag

Abbildung 7.10: Luftmassenherkunft bei hohem Vanadium-Eintrag

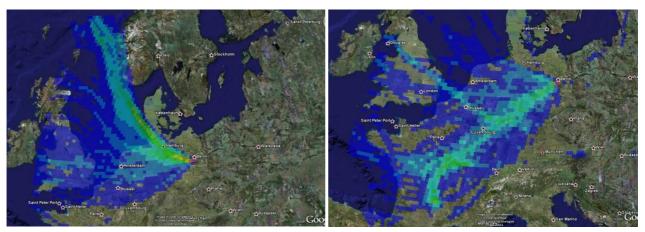


Abbildung 7.11: Luftmassenherkunft bei hohem Natrium-Eintrag

Abbildung 7.12: Luftmassenherkunft bei hohem Nickel-Eintrag

Abbildung 7.30 zeigt die Trajektoriendichten für unterschiedliche Feinstaubkonzentrationen (Finkelnburg, 2007). Die Luftmassen wurden über 48 h zurückverfolgt. Hohe PM2,5-Einträge sind rot und orange dargestellt, geringe Einträge blau und mittlere Einträge gelb bis grün. Auch diese Ergebnisse zeigen, dass hohe Unterschiede in den Feinstaubeinträgen zwischen westlicher und östlicher Luftmassenherkunft bestehen. Die unterschiedliche Strömungsgeschwindigkeit spiegelt sich in der unterschiedlichen Entfernung zu Berlin wieder. Luftmassentransporte aus Osten und Südosten verlaufen deutlich langsamer, so dass sich zum einen die Emissionen stärker in den Luftmassen über der Quelle anreichern können, zum anderen die durch mechanische Turbulenz hervorgerufene Verdünnung deutlich geringer ist.

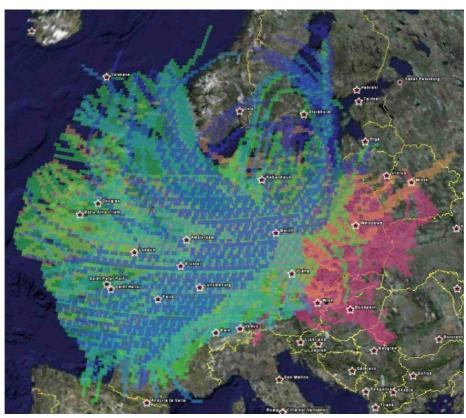


Abbildung 7.13: Luftmassenherkunft bei unterschiedlich hohen PM2,5-Einträgen

8 Lidarmessungen am Frohnauer Turm

Da die Quellen von Feinstaub sehr vielfältig sind und Bildungs-, Transport- sowie Mischungsprozesse in der Atmosphäre einen wesentlichen Einfluss auf die innerstädtische Feinstaubbelastung in Berlin haben, erfordert das Einleiten wirksamer Maßnahmen detaillierte Ursachenanalysen dieser Prozesse.

Ursachenanalysen zum Feinstaub waren bisher (fast) ausschließlich auf bodennahe Messungen gestützt. Bildungs-, Transport- und Mischungsvorgänge der feinen Stäube in der Atmosphäre erfolgen jedoch nicht nur in Bodennähe sondern im Bereich der planetarischen Grenzschicht, in bestimmten Situationen auch in der freien Atmosphäre (z.B. Saharastaub).

Im Rahmen dieses Projektes wurden daher mit einem Mikro-Puls-Lidar kontinuierlich Transport- und Mischungsvorgänge von Feinstäuben über Berlin untersucht. Ziel war es, aus Messungen der vertikalen Streueigenschaften der Atmosphäre Informationen über die Ursachen der innerstädtischen Feinstaubbelastungen durch PM2,5 zu gewinnen.

Der Einsatz des Lidarverfahrens hat den großen Vorteil gegenüber bodennahen Messungen, dass prinzipiell die vertikale Verteilung von Feinstaub über die gesamte Grenzschicht detektiert werden kann. Zusätzlich erhält man über die vertikale Verteilung der Aerosole Informationen über Mischungsschichthöhen, die die bodennahe Feinstaubelastung wesentlich bestimmen.

Ziel war es, aus Messungen der vertikalen Streueigenschaften der Atmosphäre Informationen über die Ursachen der innerstädtischen Feinstaubbelastungen durch die PM2,5-Fraktion zu gewinnen.

Das in diesem Projekt eingesetzte Lidarsystem CHM 15k der Firma Jenoptik ist ein kompaktes und sehr robustes Rückstreulidar, das für einen stand-alone-Betrieb geeignet ist (Jenoptik, 2006). Es sendet kurze Laserpulse einer Wellenlänge im Infrarotbereich (λ = 1064 nm) in die Atmosphäre und empfängt das gestreute Licht bis aus einer vertikalen Entfernung von 15.000 m. Die Lidarmessungen haben eine sehr hohe räumliche Auflösung von 15 m. Ausreichend starke Signale werden ab etwa 150 m Höhe gewonnen, bei geringerer Höhe ist die geometrische Kompression noch zu stark. Dadurch ist die Überlappung von Sende- und Empfangsbereich nicht vorhanden (bis etwa 60 m) oder zu gering (60 – 150 m). Da beide Bereiche durch eine konische Aufweitung von 1 mrad mit der Höhe zunehmen, wird die Überlappung größer und das Signal stärker. Der Höhenbereich, in dem die Lidarsignale ausgewertet werden, umfasst deshalb 150 m bis 15000 m.

Die minimale zeitliche Auflösung der Signale beträgt 10 s. Für die folgenden Untersuchungen wurden daraus 3-Minutenmittelwerte erzeugt, da auch das auf dem Frohnauer Turm installierte Feinstaubgerät (Sharp5030) mit dieser zeitlichen Auflösung kontinuierlich PM2,5-Feinstaub misst. Eine ausführliche Beschreibung des Lidasystems und

des Feinstaubmessgerätes Sharp 5030 sowie deren Anordnung am Frohnauer Turm sind im 1. Zwischenbericht (Pesch, 2007a) gegeben.

In den folgenden Abschnitten wird zunächst kurz auf die Kalibrierung des Lidar eingegangen, die notwendig ist, da das eingesetzte Lidarsystem prinzipiell nur Streueigenschaften der Partikel in der Atmosphäre ermittelt, für die Ursachenanalyse des PM2,5-Feinstaubes jedoch eher die Partikelmasse von Bedeutung ist. Zudem kann das Lidarsystem nicht zwischen flüssigen und festen Aerosolen unterscheiden, da nur deren Streueigenschaft nicht aber deren chemische Zusammensetzung gemessen wird. Flüssige Partikel, z.B. in Wolken, im Nebel oder in Niederschlägen, können bei der eingesetzten Wellenlänge von 1064 nm sehr stark streuen und die Streuung der Staubpartikel völlig überlagern.

Die Auswertungen der Lidardaten für den Messzeitraum (01.12.2006 bis 29.02.2008) ergaben, dass eine zufriedenstellende Korrelation zwischen Lidarrückstreusignal und PM2,5-Feinstaub bestand, wenn die relative Feuchte unter 50 % lag. Die relative Feuchte wurde kontinuierlich auf dem Frohnauer Turm gemessen und zusätzlich wurden Niederschlagsmengen (10 min) der Station Tegel-Forstamt in die Auswertung der Lidardaten einbezogen.

8.1 Methodik der Lidarkalibrierung

Die mit dem Lidar am Frohnauer Turm ermittelten Streueigenschaften der Aerosole in der Atmosphäre (feste und flüssige Teilchen) wurden mit zeitgleichen Messungen von PM2,5 auf dem Frohnauer Turm in einer Höhe von 325 m verglichen. Das Lidarsystem wurde durch den Vergleich mit einem PM2,5-Feinstaubmessgerät kalibriert, in dem Regressionsrechnungen zwischen den Lidarsignalen (Streueigenschaft der Aerosole) und zeitgleichen PM2,5-Messungen (Massenkonzentration der Aerosole) durchgeführt wurden.

Um das Lidar zu kalibrieren, wurde ein zeitlich hochaufgelöstes PM2,5-Messverfahren benötigt. Im Projekt wurde das Sharp5030 der Firma Thermo Electron Inc. eingesetzt, welches als Messprinzip die Nephelometrie verwendet und intern mit Hilfe eines eingebauten ß-Staubmeters kalibriert wird (vgl. Abschnitt 2). Das Gerät wurde so konfiguriert, dass Messdaten mit einer zeitlichen Auflösung von 3 Minuten vorlagen. Aus den 3 min-Messungen wurden zusätzlich Tagesmittelwerte bestimmt, die mit einem auf dem Turm parallel laufenden Gerät des Typs SEQ 47/50 (vgl. Abschnitt 2) verglichen wurden. Das gravimetrisch arbeitende Messgerät wurde dabei als Referenz für die Partikelmasse PM2,5 verwendet. Abbildung 8.1 verdeutlicht die Lidarkalibration.

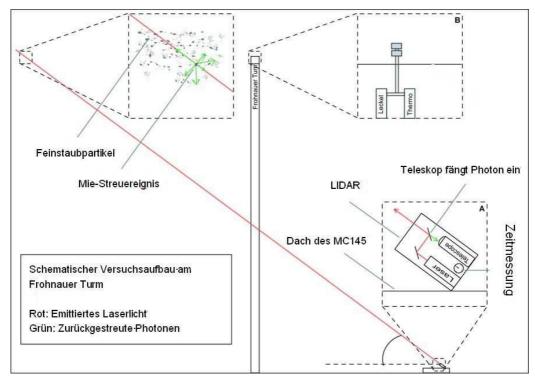


Abbildung 8.1: Prinzipskizze der Lidarkalibrierung

8.2 Kalibrierung des Lidar

Für die Lidarkalibrierung wurden die gravimetrischen und radiometrischen PM2,5-Feinstaubmessungen auf dem Frohnauer Turm sowie die Lidarmessungen vom 01.12.2006 bis zum 29.02.2008 ausgewertet. Abbildung 8.2 zeigt schematisch den Ablauf der Kalibrierung (Oderbolz, 2007; Pesch, 2007).

Basis der Kalibrierung ist das gravimetrische Staubsammelgerät SEQ 47/50 (*Gravimetrie*), das die Bestimmung von Tagesmittelwerten der PM2,5-Konzentration ermöglicht. Diese Tageswerte wurden dazu verwendet, dass Staubsammelgerät Sharp5030 (*Nephelometrie*) zu überprüfen, welches 3 min-Mittelwerte für PM2,5-Feinstaub mittels Nephelometer und einer parallelen radiometrischen Staubmessung bestimmt. Das Nephelometer des Sharp5030 wird über die radiometrische Messung des Sharp5030 automatisch kalibriert. Aus den 3-Minutenmittelwerten des Sharp5030 wurden Tagesmittelwerte berechnet, die dann mit den gravimetrischen Messungen verglichen werden. Die Auswertungen ergaben, dass das Sharp5030 und das gravimetrische Staubsammelgerät bei den Tageswerten gut übereinstimmten. Bei Nebel allerdings wurde auf dem Turm mit dem Sharp5030 deutlich mehr Feinstaub als mit dem gravimetrischen Staubsammelgerät bestimmt. Eine Erklärung hierfür ist sehr wahrscheinlich die fehlende zusätzliche Beheizung der Probenahmerohre in der klimatisierten Turmkanzel, die aus technischen Gründen nicht möglich war.

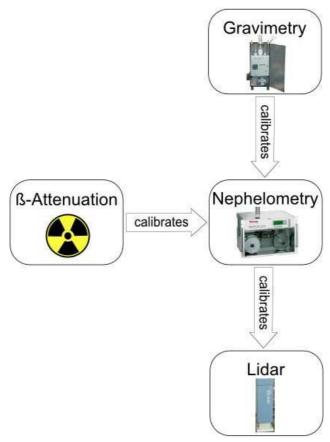


Abbildung 8.2: Ablauf der Lidarkalibrierung (Oderbolz, 2007)

Die zeitlich hochaufgelösten PM2,5-Messwerte des Sharp5030 wurden herangezogen, um über den Vergleich mit den Lidarmesswerten das Lidarsystem zu kalibrieren. Aus den vertikalen Lidarmessungen wurden dazu die Rückstreusignale aus 320 m extrahiert, da sich die Turmkanzel mit den Feinstaubmessgeräten in etwa dieser Höhe befindet. Für die Kalibrierung des Lidar wurden die entfernungskorrigierten Lidarsignale (PR²) verwendet (Pesch, 2007a). Abbildung 8.3 zeigt exemplarisch die Lidarsignale (PR²) mit einer zeitlichen Auflösung von 3 Minuten und einer räumlichen Auflösung von 15 m für den 20. und 21. Februar 2007. Die Intensität der Streuung ist durch unterschiedliche Farben (rot-starke Streuung, blau geringe Streuung dargestellt). Gut zu erkennen sind Wolken und Niederschläge (rot). Die hohen PM2,5-Belastungen am 21.02.2007 werden an den grünen und gelben Farben in Abbildung 8.3 deutlich.

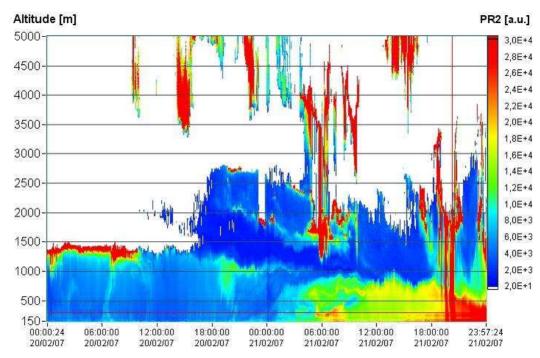


Abbildung 8.3: Lidarmessungen am 20. und 21.02.2007, Frohnauer Turm (MC045)

Da das Lidarsystem nicht zwischen festen und flüssigen Aerosolen unterscheiden kann, zeigen die Auswertungen erwartungsgemäß einen signifikanten Einfluss der Feuchte auf die Lidarsignale. Mit abnehmender Feuchte steigt die Korrelation zwischen PM2,5 [μg/m³] und dem Lidarsignal (PR²) deutlich an (Abbildung 8.4).

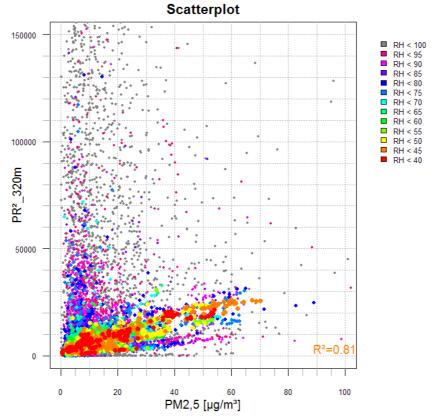


Abbildung 8.4: Korrelation von Lidar-Rückstreusignal (PR²) mit PM2,5 in Abhängigkeit der relativen Feuchte (01.12.2006 bis 29.02.2008)

Eie gute Korrelation wurde ab einer relativen Feuchte von unter 50 % erreicht (Abbildung 8.5).

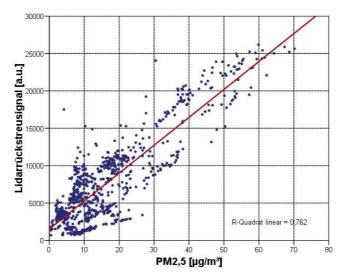


Abbildung 8.5: Korrelation von PM2,5 [μg/m³] und Lidarsignal (PR²) bei einer relativen Feuchte von unter 50 %

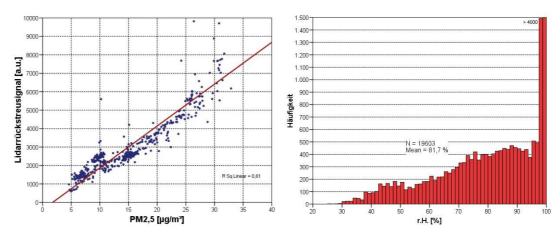


Abbildung 8.6 a-b: a) Korrelation von PM2,5 [µg/m³] und Lidarsignal (PR²) bei einer relativen Feuchte von unter 40 %, b) Häufigkeitsverteilung der relativen Feuchte am Frohnauer Turm

8.2.1 Bestimmung der Kalibrierfunktion

Aus den Lidardaten und den PM2,5-Messungen wurde für 30-Minuten-Werte mit einer relativen Luftfeuchte von unter 50 % folgende Kalibrationskurve ermittelt:

$$Lidar signal = PM 2,5 \ [\mu g \ / \ m^3] \bullet 437 \ (\pm 8,3) + 1294 \ (\pm 156)$$

Daraus ergibt sich für die Abschätzung der PM2,5-Konzentration aus dem Lidarsignal (PR²):

$$PM 2,5 [\mu g / m^3] = \frac{Lidarsignal(PR^2) - 1294}{437}$$

Mit obiger Gleichung kann somit aus einem Lidarsignal eine PM2,5-Feinstaubkonzentration in $\mu g/m^3$ abgeschätzt werden. Der signifikante Achsenabschnitt von 1294 Signaleinheiten kommt dadurch zustande, dass auch Luftmoleküle in der Atmosphäre das Laserlicht der (Wellenlänge λ = 1064 nm) streuen (Rayleigh-Streuung) und daher auch bei theoretisch vollständig aerosolfreier Luft noch ein signifikantes Rückstreusignal detektiert wird.

8.3 Auswertungen der Lidarmessungen einzelner Tage

8.3.1 Lidarauswertungen vom 20. zum 21. Februar 2007

Innerhalb von zwei Tagen (20. – 21. Februar) stieg die mittlere PM2,5-Feinstaubkonzentration am Frohnauer Turm von 9 μ g/m³ auf etwa 45 μ g/m³. Die Auswertungen der Lidarmessungen für diese beiden Tage zeigt Abbildung 8.11.

Die Abbildung zeigt die Rückstreuung der ersten 5000 m der Atmosphäre mit einer zeitlichen Auflösung von 180 s und einer vertikalen Auflösung von 15 m. Die rote Färbung in der Abbildung bedeutet eine starke Rückstreuung, verursacht durch hohe Konzentrationen an festen und flüssigen Aerosolen, die blaue Färbung bedeutet, dass keine signifikante Streuung auftritt. Die Grenzschicht sowie Wolken und Niederschläge sind zu erkennen.

Am 20. Februar lag die Mischungsschicht noch bei etwa 1000 bis 1500 m, es fielen keine Niederschläge und in der Zeit von 0 bis 9 Uhr UTC bestand eine dichte Wolkendecke in 1500 m Höhe. Am 21. Februar nahm die Mischungsschicht deutlich ab und die Aerosolkonzentration stieg extrem an, in der Abbildung zu erkennen am Farbwechsel von blau über grün nach rot.

Vertikale rote Streifen verdeutlichen Niederschläge, deren Tropfen zu einer starken Rückstreuung führten. Es kommt in der Atmosphäre vor, dass in großen Höhen gebildete Niederschläge den Erdboden nicht erreichen, da sich die Eiskristalle und flüssigen Aerosole während des Weges nach unten schon wieder aufgelöst haben. Dieses Phänomen trat zum Beispiel am 20. Februar gegen 15 Uhr in 3000 m bis 5000 m Höhe auf.

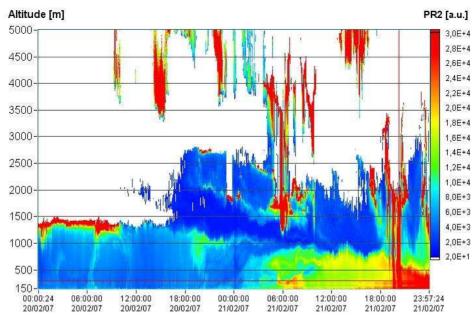


Abbildung 8.7: Lidarmessungen vom 20. - 21. Februar 2007 am Frohnauer Turm

8.3.2 Lidarauswertungen für den 24. März 2007

Am 24. März gab es eine extreme Feinstaubsituation in Europa, die durch massive Staubemissionen in der Ukraine ausgelöst wurde. Diese Staubemissionen kamen aus einer sehr trockenen Region und entstanden durch starke Staubaufwirbelung von Bodenmaterial. Eine detaillierte Auswertung dieser Episode findet sich bei (Birmili W., 2007).

In Berlin wurde am 24. März an fast allen Messstationen des Luftgütemessnetzes BLUME der Tagesmittelwert von 50 μ g/m³ überschritten. An der Frankfurter Allee wurde eine PM10-Belastung von 61 μ g/m³ und bereits an der Eintragsstation in Buch eine PM10-Konzentration von 57 μ g/m³ gemessen. Die PM2,5-Feinstaubbelastung war jedoch im Gegensatz zur PM10-Belastung relativ gering, an der Frankfurter Allee (MC174) wurden nur 33 μ g/m³ und in Buch (MC077) 30 μ g/m³ gemessen. Die PM2,5-Anteile am PM10 betrugen daher etwa 50 % und damit deutlich weniger als das Mittel für den Messzeitraum (01.12.2006 bis 29.02.2007) von 70 %-75 % (siehe Abschnitt 5). Dieser relativ geringe Anteil von PM2,5 am PM10 kam durch die gewaltige Staubaufwirbelung zustande, bei der durch mechanische Prozesse überwiegend die grobe Fraktion des Feinstaubes zwischen PM2,5 und PM10 freigesetzt wurde.

Abbildung 8.10 zeigt die Lidarmessungen der atmosphärischen Streuung der Atmosphäre für den 24. März 2007. Das Bild zeigt mit einer hohen zeitlichen und räumlichen Ausdehnung deutlich die Staubwolke (rot), die durch Staubaufwirbelungen in der Ukraine erzeugt wurde. Die höchsten Konzentrationen traten zwischen 1 Uhr nachts und 12 Uhr mittags in einer Höhe von 500 bis 1500 m auf. Zu dieser Zeit ist aber auch die Belastung in 150 m Höhe stark erhöht, was an der grünen Färbung deutlich wird. Die Abbildung zeigt, dass es nur kurzzeitig zwischen 11 und 12 Uhr einen nach unten gerichteten Mischungsprozess sehr staubreicher Luft gab, der an dem schmalen roten Kanal zu erkennen ist. Ab 14 Uhr verschwindet die Staubwolke und die Qualität der Luft wird deutlich besser. Eine

Umrechnung der Lidardaten in PM2,5-Feinstaub gemäß Gleichung 8.2 ergab, dass die höchsten PM2,5-Konzentrationen gegen 9 Uhr in etwa 1200 m Höhe auftraten und ca. $300 \,\mu\text{g/m}^3$ betrugen. Ab 15 Uhr sank die PM2,5-Konzentration in der unteren Atmosphäre deutlich ab und lag am Abend unter $20 \,\mu\text{g/m}^3$.

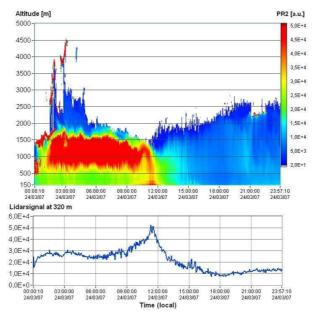


Abbildung 8.8: Vertikale Lidarmessungen der atmosphärischen Rückstreuung (23. bis 25. März 2007)

8.3.3 Lidarauswertungen des Feinstaubanstiegs für den 1. April 2007

Am 1. April traten hohe PM-Belastungen auf (vgl. Tabelle 7.1). Abbildung 8.7 zeigt die vertikalen Lidarmessungen von 150 m bis ca. 2500 m. Ab ca. 2500 m Höhe wird kein Rückstreusignal mehr detektiert, was bedeutet, dass die Atmosphäre nahezu frei von Staub ist oder das Lidarsignal bereits zu stark abgenommen hat. Die Farbskala ist so gewählt, dass sehr hohe Rückstreuung rot, starke Streuung gelb, mittlere Streuung grün bis hellblau und geringe Streuung dunkelblau dargestellt wird (oberer Teil der Abbildung). Wird kein Streulicht mehr detektiert, wird die entsprechende Höhe weiß dargestellt. Im unteren Teil von Abbildung 8.7 ist der Tagesgang der Lidarsignale für die Höhe von 320 m dargestellt. Hohe Signale bedeuten eine hohe Rückstreuung, verursacht z.B. durch eine hohe Feinstaubkonzentration.

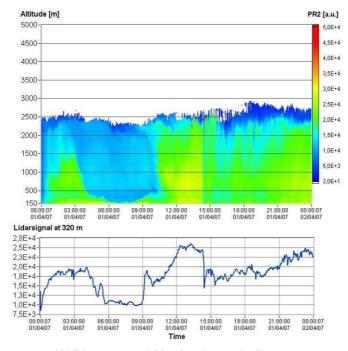


Abbildung 8.9: Lidarsignal am 1. April 2007

Abbildung 8.8 zeigt den Tagesgang der auf dem Turm durchgeführten PM2,5-Messungen und der zeitgleichen Lidarmessungen für den selben Tag. Es ergibt sich eine gute Übereinstimmung beider doch sehr unterschiedlicher Messprinzipien. Interessant ist, dass auch einzelne, sehr kurzzeitige Änderungen der PM2,5-Feinstaubkonzentration zu selben Zeit in den Lidarsignalen widergespiegelt werden. Die Abbildung verdeutlicht zudem, dass innerhalb eines Tages eine sehr hohe Variabilität der PM2,5-Feinstaubkonzentrationen auftreten kann. So variierten die oben auf dem Turm gemessenen PM2,5-Konzentrationen am 1. April 2007 zwischen 20 μ g/m³ und 70 μ g/m³. Am Morgen zwischen 5 und 9 Uhr MEZ war die Feinstaubbelastung für diesen Tag mit etwa 20 μ g/m³ noch relativ gering. Ab etwa 9 Uhr stieg die Feinstaubbelastung dann extrem stark an und erreichte gegen 13 Uhr MEZ ihr Maximum mit über 70 μ g/m³.

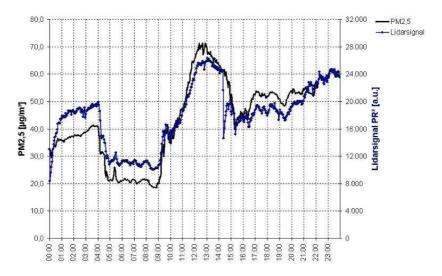


Abbildung 8.10: Tagesgang der PM2,5-Konzentration und des Lidarsignals (1. April 2007)

Die für den 1. April ermittelte Regressionsgerade zwischen PM2,5 und Lidarsignal zeigt Abbildung 8.9. Sie verdeutlicht einen hohen linearen Zusammenhang zwischen den PM2,5-Feinstaubmessungen auf dem Turm und dem Lidarsignal in 320 m Höhe. Die Streuung der einzelnen Werte ist relativ hoch und zeigt, dass die PM2,5-Feinstaubkonzentration über die Lidarmessungen bei einer 3-minütigen Auflösung an diesem Tag mit einer Genauigkeit von \pm 15 µg/m³ abgeschätzt werden können.

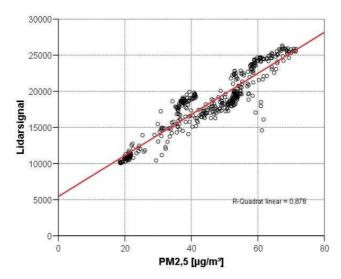


Abbildung 8.11: Korrelation von 3-Minutenwerten der PM2,5-Konzentration und des Lidarsignals (1. April 2007)

8.3.4 Lidarauswertungen vom 14. zum 15. Januar 2008

Am 14. und 15. Januar 2008 werden im Tagesmittel durchschnittliche PM2,5-Feinstaubbelastungen am Frohnauer Turm gemessen. Bei einer zeitlichen Auflösung von drei Minuten stellt sich jedoch heraus, dass die Konzentrationen zwischen 5 und 30 µg/m³ schwanken. Um zu untersuchen, ob eine entsprechende Varianz ebenfalls beim Lidarrückstreusignal auftreten, wird eine Zusammenhangsanalyse für diesen Zeitraum durchgeführt. In Abbilung XX ist zu sehen, dass die gemessenen PM2,5-Konzentrationen einen linearen Zusammenhang zum Lidarrückstreusignal zeigen.

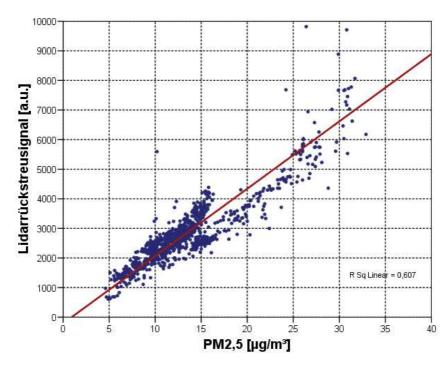


Abbildung 8.12: Korrelation von 3-Minutenwerten der PM2,5-Konzentration und des Lidarsignals (14. bis 15. Januar 2008)

In Abbildung XX sind die vertikalen Lidarmessungen zu sehen. Hierbei ist eine deutliche Schichtung, die Mischungsschichthöhe bei einer Höhe von ungefähr 300 m an dem Farbwechsel von rot zu blau zu erkennen, der trotz des Tag-Nacht-Wechsels vom 14. zum 15.02.2008 bestehen bleibt. Diese beobachtete Mischungsschichthöhe wird dabei durch die modellierten Mischungsschichthöhen der FU Berlin bestätigt.

In dem zeitlichen Verlauf des Lidarsignals in 330m Höhe ist ein deutlicher Peak gegen neun und zehn Uhr zu sehen. Da sich dieser Peak nicht im zeitlichen Verlauf des PM2,5-Feinstaubs wiederspiegelt, ist davon auszugehen, dass dieser Peak Geräte bedingt ist.

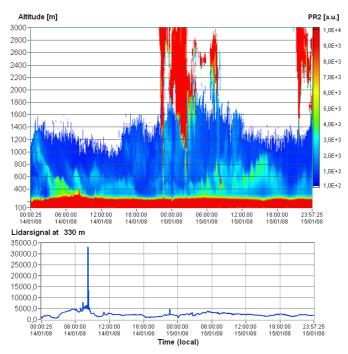


Abbildung 8.13: Lidarsignal vom 14. bis 15. Januar 2008

Zusammenfassung 96

9 Zusammenfassung

In diesem Bericht werden die Ergebnisse einer detaillierten PM2,5-Ursachenanalyse für Berlin zusammengefasst. Vorausgegangen sind diesem Abschlussbericht ein 1. Zwischenbericht mit einer ausführlichen Beschreibung der Methodik (Pesch, 2007a) und ein 2. Zwischenbericht zur Datenauswertung und ersten Messergebnissen (Pesch, 2007b).

Der Messzeitraum des Projektes ging vom 01.12.2006 bis zum 29.02.2008.

Es wurden insgesamt fünf Messstationen ausgewählt, vier Stationen des Berliner Luftgütemessnetzes BLUME und eine Station des Landesumweltamtes Brandenburg in Hasenholz. Der überregionale Feinstaubeintrag wurde durch Messungen an der Station MC045-Frohnauer Turm repräsentiert. Diese Sonderstation des Berliner Luftgütemessnetzes befindet sich in etwa 320 m Höhe auf einem Gittermast am nördlichen Stadtrand Berlins. Der regionale Beitrag wurde durch Messungen an der Station in Hasenholz untersucht, die östlich vom Berliner Stadtgebiet in Brandenburg liegt. PM2,5-Immissionsbelastungen am Stadtrand wurden durch die Messstation MC077-Buch erfasst, die sich am nordöstlichen Stadtrand Berlins befindet. Die innerstädtische Belastung wurde durch Auswertungen der Messungen an der Station MC042-Nansenstraße in Neukölln bestimmt. Lokale PM2,5-Feinstaubbeiträge durch den Kfz-Verkehr wurden durch die stark befahrene Frankfurter Allee (MC174) repräsentiert. Die Quantifizierung der räumlichen Beiträge erfolgte durch geeignete Differenzbildungen nach dem bewährten Ansatz von Lenschow.

An den oben aufgeführten Stationen wurden gravimetrische PM2,5-Messungen mit Filterwechslern des Typs SEQ 47/50 (Fa. Leckel) durchgeführt. An allen Stationen - außer am Frohnauer Turm - wurden auch gravimetrische PM10-Messungen durchgeführt, die in die Auswertungen einbezogen wurden.

Als Inhaltsstoffe des PM2,5-Feinstaubes wurden organisches Material (OM), elementarer Kohlenstoff (EC), die ionischen Inhaltsstoffe Chlorid (CI), Nitrat (NO $_3$), Sulfat (SO $_4$), Ammonium (NH $_4$), Natrium (Na), Kalium (K) sowie die Spurenmetalle Magnesium (Mg), Aluminium (AI), Calcium (Ca), Eisen (Fe), Titan (Ti), Vanadium (V), Chrom (Cr), Nickel (Ni), Zink (Zn), Arsen (As), Antimon (Sb) und Blei (Pb) bestimmt. An der Brandenburger Messstation Hasenholz wurden für ausgewählte Episoden stichprobenartig Inhaltsstoffe bestimmt.

Die Auswertungen der PM2,5-Feinstaubkonzentrationen für das Kalenderjahr 2007 ergaben eine mittlere Konzentration von 12,2 μ g/m³ für den Frohnauer Turm, 14,4 μ g/m³ für die Station Hasenholz, 17,1 μ g/m³ für den Stadtrand in Buch, 19,6 μ g/m³ für die Innenstadt und 22,7 μ g/m³ für die Frankfurter Allee. Diese Werte bestätigten die Erwartung eines zunehmenden städtischen und lokalen Einflusses auf die Immissionsbelastung durch PM2,5-Feinstaub.

Zusammenfassung 97

Die PM2,5-Anteile am PM10-Feinstaub betrugen für die Messungen an den Stationen MC077-Buch und MC174-Frankfurter Allee 70 %, für die Messungen an der Nansenstraße 75 % und für Hasenholz 73 %. In den Wintermonaten (Oktober bis März) war der Anteil von PM2,5 an PM10 mit 70 bis 80 % (je nach Windrichtung) erwartungsgemäß höher als in den Sommermonaten (April bis September) mit 60 % bis 70 %. Die PM10-Belastung wurde daher maßgeblich durch den PM2,5-Anteil bestimmt.

Eine zentrale Intention des Projektes war die Bestimmung der chemischen Bestandteile des PM2,5-Feinstaubes. Bestimmte Inhaltsstoffe ermöglichen eine räumliche Differenzierung der Quellen. Die Auswertungen ergaben, dass sich zur Quellidentifizierung von PM2,5-Feinstaub folgende Inhaltsstoffe besonders eignen: Natrium, Magnesium und Chlorid für Seesalz und daher maritime Luft, Sulfat für Emissionen von Schwefeldioxid aus Kohlekraftwerken aus dem überregionalen Raum, elementarer Kohlenstoff und Antimon für lokale Emissionen des Kfz-Verkehrs, Vanadium für Emissionen aus petrochemischen Anlagen im regionalen und überregionalen Raum sowie Eisen als Indikator für Dispersionsaerosole, verursacht durch Erosionen der Erdkruste und Staubaufwirbelungen, beispielsweise durch starke Winde oder den Kfz-Verkehr.

An der Straßenstation war der elementare Kohlenstoff (EC) als Bestandteil des PM2,5 erwartungsgemäß deutlich erhöht, was überwiegend auf die Verbrennungsaerosole des Kfz-Verkehrs und zum Teil auch auf Reifenabrieb zurückzuführen ist.

Auch der Eisenanteil war an der Verkehrsmessstelle besonders erhöht. Die Ursache liegt sehr wahrscheinlich in der durch den Verkehr hervorgerufenen Staubaufwirbelung sowie mechanische Abriebsprozesse, z.B. der Bremsscheiben. Eisen ist Bestandteil der Erdkruste und ist daher ein Indiz für Abriebsprozesse an der Erdoberfläche, bedingt durch atmosphärische Strömungen und deren Scherung am Boden (Dispersionsaerosole). Sehr wahrscheinlich war die durch den Kfz-Verkehr bedingte Aufwirbelung des auf der Fahrbahn abgelagerten Staubes ursächlich für den erhöhten Eisenanteil an der Straßenmessstelle. Eisen wurde vermutlich zusätzlich durch Abriebsprozesse der Bremsscheiben von Kraftfahrzeugen emittiert.

Bei der Betrachtung der urbanen Belastung am Messstandort Nansenstraße fiel auf, dass die Sekundäraerosole Sulfat, Nitrat und Ammonium in vergleichbaren Konzentrationen auftraten wie an der Straßenmessstelle Frankfurter Allee. Offenbar waren für diese Bestandteile besonders die urbanen Emissionen der Stadt und Einträge von außerhalb bedeutsam.

Nitrat, das überwiegend durch photochemische Prozesse aus Stickoxiden in der Atmosphäre gebildet wird, kam zum einen aus photochemisch umgewandelten NO_x-Emissionen des innerstädtischen Kfz-Verkehrs. Zum anderen entstand Nitrat durch Umwandlungsprozesse des NO_x, das von Kraftwerken und vom Kfz-Verkehr im regionalen und überregionalen Raum emittiert wurde. An den Straßen emittierte Stickoxide wurden offenbar auf dem relativ kurzen

Zusammenfassung 98

Transportweg zur Straßenmessstation nicht oder nur unwesentlich photochemisch umgewandelt und trugen daher nicht signifikant zur lokalen Nitratbelastung bei.

Die Betrachtung der chemischen Zusammensetzung ergab, dass am Stadtrand der prozentuale Anteil der Sekundäraerosole vergleichbar ist mit den Anteilen der Sekundäraerosole am PM2,5-Feinstaub in der Innenstadt und der Verkehrsstation. Eine Ursache hierfür ist sicherlich die Tatsache, dass die Messungen an der Station am nordöstlichen Stadtrand in Buch bei der zeitlich dominierenden westlichen und südwestlichen Strömung durch urban belastete Luft beeinflusst wurden.

Am Frohnauer Turm war besonders der Anteil des leicht flüchtigen organischen Materials (OMI) erhöht. Auch das sekundär gebildete Sulfat war anteilmäßig im überregionalen Hintergrund erhöht, was sehr wahrscheinlich aus der photochemischen Umwandlung der SO₂-Emissionen großer Kohlekraftwerke in Polen und der Tschechischen Republik herrührte. Während des Transportweges wurde das gasförmige SO₂ über die Oxidation mit photochemisch gebildeten Radikalen zur Schwefelsäure oxidiert und nach einer weiteren Reaktion mit Ammoniak zum Ammoniumsulfat umgewandelt.

Natrium, als Leitkomponente für maritime Luft (Seesalz), trat erwartungsgemäß an allen Messstandorten in vergleichbarer Konzentration auf. Ein signifikanter Einfluss von Streusalz, das zur Enteisung der Straßen verwendet wird, auf die Natrium- und Chloridkonzentration an der Frankfurter Allee und in der Innenstadt konnte - sehr wahrscheinlich auch bedingt durch den relativ milden Winter 2006/2007 - nicht festgestellt werden.

Die Gesamtmasse der Spurenmetalle steigt mit zunehmendem Verkehrseinfluss. Die mittlere Differenz zwischen dem Hintergrund (Frohnauer Turm) und dem Stadtrand (Buch) beträgt etwa 11 ng/m³, vom Stadtrand zur Innenstadt steigt die Konzentration um weitere 17 ng/m³ von 44 ng/m³ auf 61 ng/m³. An der stark befahrenen Frankfurter Allee (MC174) steigt die Spurenmetallkonzentration noch um etwa 10 % auf 65 ng/m³. Damit wurde an der stark befahrenen Straße Frankfurter Allee etwa die doppelte Schwermetallkonzentration wie im regionalen Hintergrund am Frohnauer Turm gemessen.

Über die Hälfte der Masse der untersuchten Spurenmetalle (zwischen 54 % in der Innenstadt, 58 % an der Frankfurter Allee, 70 % am Stadtrand und 76 % am Frohnauer Turm wird durch Zink (Zn) bestimmt. Zink ist unter anderem in Autoreifen enthalten und wird daher bei Reifenabriebsprozessen freigesetzt. Auffallend ist allerdings, dass der höchste Anteil an Zn im Eintrag ist. Für Chrom (Cr) zeigen sich, nicht unerwartet, deutlich höhere Konzentrationen an den beiden Stadtstationen (MC042-Nansenstraße und MC174-Frankfurter Allee). Dies ist gut mit den verkehrsbedingten Emissionen von Chrom zu erklären, die unmittelbar von Kfz-Verkehr und durch Wiederaufwirbelung des Staubes hervorgerufen werden. Antimon (Sb) ist besonders an der Straßenmessstation deutlich erhöht. Dies ist mit den bekanntermaßen durch Bremsenabrieb verursachten Emissionen zu

Zusammenfassung 99

erklären. Es ist ein weiterer Beleg dafür, dass Antimon sich in besonderem Maße als Indikator für Emissionen des Kfz-Verkehrs eignet.

Über zwei Drittel (64 %) der PM2,5-Belastung an der stark befahrenen Frankfurter Allee kam aus dem Hintergrund, d.h. von Quellen außerhalb der Stadt. Der lokale Verkehr trug zur PM2,5-Belastung an der Straßenmessstelle mit etwa 14 % bei.

Durch eine Verknüpfung von Emissionsdaten und Immissionsdaten wurde ermittelt, welche Emittentengruppe, welchen Anteil an der PM2,5-Feinstaubbelastung besitzt. Dafür wurden die vom Umweltbundesamt, sowie die von der Stadt Berlin ermittelten Emissionsmassenströme in Kilotonnen pro Jahr verwendet. Zusätzlich wurden Emissionsmassenströme des Landes Brandenburg verwendet. Die Emissionsangaben wurden für insgesamt elf Emissionsgruppen abgeschätzt.

Anhand der Verknüpfung der Emissionsmassenströme des Umweltbundesamtes, der abgeschätzten Gewichtungsfaktoren und der ermittelten Immissionswerte zeigt sich, dass die Emissionen des Verkehrs inklusive der Aufwirbelung und des Abriebs aus dem Hintergrund im Vergleich zu den Beiträgen des Verkehrs und der Stadt zwar die geringsten Anteile aufweisen, jedoch die Emissionsquellen Industrie, kleine Heizungsanlagen, sowie Heizund Kraftwerke circa ein Drittel der PM2,5-Feinstaubbelastung an der Messstation MC174-Frankfurter Allee ausmachen.

Die Emissionen in der Stadt Berlin tragen zu etwa einem Drittel zu der PM2,5-Feinstaubbelastung an der Frankfurter Allee bei, wobei die Verbrennungsaerosole des Straßenverkehrs auch am PM2,5-Feinstaubbeitrag der Stadt den höchsten Anteil mit rund 12 % an der Gesamtbelastung besitzen. Eine Maßnahme bezüglich der Fahrzeugflottenzusammensetzung in Berlin hat somit nicht nur Auswirkungen auf den PM2,5-Feinstaubbeitrag des Verkehrs an einer lokal hochbelasteten Verkehrsmessstelle, sondern zusätzlich auch auf die innerstädtische PM2,5-Feinstaubbelastung. Ein geringes Minderungspotenzial in der Stadt Berlin zeichnet sich dagegen für die Müllverbrennung (0,2 %), industrielle Feuerungsanlagen (0,4 %), sowie den Sektor mit Lösemittelverbrauch (0,01 %) ab.

Die Auswertungen der Luftmassenherkunft mit Trajektorien ergab, dass besonders östliche und südöstliche Luftströmungen zu hohen PM2,5-Belastungen in der Stadt führten. Dafür gibt es zwei Gründe: zum einen sind in östlicher und südöstlicher Richtung besonders starke Emittenten vorhanden (z.B. Kohlekraftwerke in Polen und der Tschechischen Republik) zum anderen ist bei östlicher und südöstlicher Strömung die Wetterlage häufig ungünstig für die Verdünnung und Deposition der Emissionen von Feinstaub und dessen Vorläufersubstanzen wie SO₂ und NO_x. Hinzu kommt, dass kalte Tage in Berlin häufig mit kontinentaler Strömung verbunden sind und daher in diesen Situationen auch die Emissionen der Kraftwerke erhöht sind.

Zusammenfassung 100

Auch für die Inhaltsstoffe des PM2,5-Feinstaubes wurden die Trajektoriendichten für die 90 %-Perzentilwerte berechnet. Dabei stellte sich heraus, dass die hohen Einträge für elementaren Kohlenstoff, organisches Material und Sulfat aus den selben Regionen kamen wie die hohen PM2,5-Einträge. Dagegen kamen Natrium, Magnesium und Chlorid aus westlichen Richtungen vom Atlantik her und aus nordwestlichen Richtungen von der Nordsee.

Im Rahmen dieses Projektes wurden die bodennahen Messungen durch vertikale Lidarmessungen ergänzt. Da das eingesetzte Rückstreulidar prinzipiell nur Streueigenschaften der Partikel in der Atmosphäre ermittelt, für die Ursachenanalyse des PM2,5-Feinstaubes jedoch eher die Partikelmasse von Bedeutung ist, wurde das Lidar durch zeitgleiche Messungen mit einem kontinuierlichen PM2,5-Feinstaubmessgerät (Sharp5030) kalibriert.

Mit den Lidarmessungen wurden die Situationen untersucht, an denen besonders hohe Feinstaubbelastungen in der Stadt auftraten. Die Lidarmessungen zeigten, dass die PM2,5-Konzentrationen eine hohe räumliche und zeitliche Dynamik aufweisen. Die Auswertungen der Lidardaten ergaben, dass eine zufriedenstellende Korrelation zwischen Lidarrückstreusignal und PM2,5-Feinstaub nur dann bestand, wenn die relative Feuchte unter 50 % lag.

.

Literatur 101

10 Literatur

2008/50/EG, EU-RI (2008): RICHTLINIE 2008/50/EG DES EUROPÄISCHEN PARLAMENTS UND DES RATES vom 21. Mai 2008 über Luftqualität und saubere Luft für Europa.

- Birmili, W. at al (2007): An episode of extremely high PM concentrations over Central Europe caused by dust emitted over the southern Ukraine. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions 7: 12231–12288.
- Birmili W., at al (2007): An episode of extremely high PM concentrations over Central Europe caused by dust emitted over the southern Ukraine. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions 7: 12231–12288.
- Connell, Daniel; al, et. (2006): The Steubenville Comprehensive Air Monitoring Program (SCAMP). Journal of the Air & Waste Management 56: 1750-1766.
- DIN-30405-Teil19 (1988): Bestimmung der Anionen Fluorid, Chlorid, Nitrit, Phosphat, Bromid, Nitrat und Sulfat in wenig belasteten Wässern mit der Ionenchromatographie.
- DIN/EN-12341 (1999): Ermittlung der PM10-Fraktion von Schwebstaub.
- EU-2008/50/EG (2008): RICHTLINIE 2008/50/EG DES EUROPÄISCHEN PARLAMENTS UND DES RATES vom 21. Mai 2008 über Luftqualität und saubere Luft für Europa.
- Finkelnburg, Roman (2007): Analyse eines rechnergestützten Trajektoriendmodells zur Darstellung von regionalen Schadstofftransporten. Projektarbeit am FG Umweltverfahrenstechnik der TU-Berlin.
- Finkelnburg, Roman (2007): Entwicklung und Anwendung eines rechnergestützten Modells zur Ursachenanalyse großräumiger Luftschadstofftransporte. Diplomarbeit am FG Umweltverfahrenstechnik der Technischen Universität Berlin.
- Finkelnburg, Roman (2007): Entwicklung und Anwendung eines rechnergestützten Modells zur Ursachenanalyse großräumiger Luftschadstofftransporte. Diplomarbeit am Fachgebiet Luftreinhaltung der Technischen Universität Berlin.
- Frenzel, Wolfgang (1991): Microanalytical concept for multicomponet analysis of airborne particulate matter. Fresenius J. Anal. Chem. 340: 525-533.
- Goforth, Michael; al., et. (2006): Particle size distribution and atmospheric metals measurements in a rural area in the South Eastern USA. Science of the total environment 356: 217-227.
- Israël, G.W., A. Erdmann, J. Shen, W. Frenzel, E. Ulrich (1992): Analyse der Herkunft und Zusammensetzung der Schwebstaubimmission, Abschlussbericht zum F+E-Vorhaben.
- Jenoptik, LOS GmbH (2006): Wolkenhöhenmessgerät CHM 15k Benutzerhandbuch, JENOPTIK Laser, Optik, Systeme GmbH Göschwitzer Straße 25 07745 Jena, Deutschland.
- John, Astrid; Kuhlbusch, Thomas (2004): Ursachenanalyse von Feinstaub(PM 10)-Immissionen in Berlin auf der Basis von Messungen der Staubinhaltsstoffe am Stadtrand, in der Innenstadt und in einer Straßenschlucht. IUTA-Bericht Nr. LP 09/2004 - Abschlussbericht.
- Leckel, Sven; GmbH, INGENIEURBÜRO (2006): Bedienungsanleitung Filterwechsler SEQ 47/50, integriertes LVS3 oder MVS6.

Literatur 102

Lenschow, P.; Abraham, H. J.; Kutzner, K.; Lutz, M.; Preuss, J. D.; Reichenbächer, W. (2001): Some ideas about the sources of PM10. Atmospheric Environment. 35: 23-33. Elsevier Science.

- Lentz, Sebastian (2008): Einfluss verschiedener Parameter auf die PM10-Belastung in Deutschland. Diplomarbeit im Studiengang Technischer Umweltschutz, TU Berlin.
- MLU, Thermo Electron (Erlangen) GmbH (2006): Staubmessgerät SHARP, Produktinformation.
- Mottschall, Moritz (2007): Entwicklung und Anwendung eines Programms zur Darstellung von Trajektorien. Projektarbeit am Fachgebiet Umweltverfahrenstechnik der TU Berlin.
- Oderbolz, Daniel (2007): Calibrating a LIDAR Ceilometer for PM2.5 measurements. Projektarbeit am FG Umweltverfahrenstechnik der TU-Berlin.
- Pesch, Markus (2007a): 1. Zwischenbericht zur Ursachenanalyse der PM 2,5-Immissionen in Berlin, Methodenbeschreibung und erste Ergebnisse
- Pesch, Markus (2007b): 2. Zwischenbericht zur Ursachenanalyse der PM 2,5-Immissionen in Berlin, Messergebnisse und Datenauswertung.
- Pesch, Markus; Oderbolz, Daniel (2007): Calibrating a ground-based backscatter lidar for continuous measurements of PM2.5 (Proceedings Paper). 6750.
- Reimer, Eberhard (2005): Feinstaubanalyse im Berliner Raum und Modellanwendungen zur Beurteilung von Emissionsminderungsmassnahmen. Machen wir unsere Städte dicht? Zur Begründung und Umsetzung der EU-Feinstaubrichtlinie 592. DECHEMA-Kolloquium gemeinsam mit GDCh, IUTA und VDI am 13.10.2005.
- Senatsverwaltung, für Stadtentwicklung (2005): Luftreinhalteplan und Aktionsplan für Berlin 2005-2010.
- Ulrich, Ernst (1994): Entwicklung eines thermographischen Verfahrens zur Analyse von Dieselpartikelemissionen. Dissertation am Fachbereich 6 der Technischen Universität Berlin D 83.
- v. Stuelpnagel, Albrecht Dr (2006): Luftverunreinigungen in Berlin, Monatsbericht Oktober 2006.
- VDI (1997): Messen von Ruß (Immission, Thermographische Bestimmung von elementarem Kohlenstoff nach Thermodesorption des organischen Kohlenstoffs. VDI-Richtlinie 2465 2
- Weitkamp, Claus (2005): Lidar: Range-Resolved Optical Remote Sensing of the Atmosphere (Springer Series in Optical Sciences), Springer.

Anhang I Statistische Kenngrößen von PM2,5-Feinstaub und dessen Inhaltsstoffen

MC045-Frohnauer Turm

MC077-Buch

μg/m³	Mean	Std-dev.	Min	Max	Median	90-Perc.	N	μg/m³	Mean	Std-dev.	Min	Max	Median	90-Perc.	N
PM2.5	12,2	6,6	3,8	47,4	10,6	21,3		PM2.5	17,1	9,7	3,5	58,3	14,5	29,0	363
OMI	1,3	0,6	0,5	4,8	1,1	2,1	299	OMI	1,6	0,9	0,4	5,6	1,4	2,9	355
OMII	1,2	0,7	0,2	5,2	1,1	2,1	299	OMII	1,7	0,9	0,5	4,9	1,4	3,0	355
ОМ	2,5	1,3	0,8	8,8	2,2	4,1	299	OM	3,3	1,8	0,9	10,2	2,9	6,1	355
EC	0,8	0,9	0,0	7,2	0,5	1,4	295	EC	1,6	1,5	0,1	9,0	1,2	3,4	355
CI	0,1	0,2	0,0	1,1	0,0	0,2	303	CI	0,1	0,2	0.0	1,1	0,1	0,3	361
NO3	0,7	0,9	0,0	7,1	0,4	1,4	305	NO3	1,6	2,0	0,0	9,5	0,8	4,7	362
SO4	2,0	1,4	0,3	7,8	1,6	4,1	305	SO4	2,2	1.6	0,3	11,3	1,8	4,5	362
NH4	0,9	0,7	0,1	4,1	0,6	1,9	304	NH4	1,3	1,1	0,0	5,5	0,9	2,9	361
Na	0,2	0,2	0,0	1,6	0,1	0,4			0,1	0.2	0.0	1,3	0,1	0,3	363
ng/m³								ng/m³	- ,	-,	-,-	,-	-,	- , -	
K	81,2	70,1	0,0	480,0	62,0	174,5	304	K	117,5	98,2	0,0	668,0	85,0	240,0	360
Mg	18,2	26,4	0,0	230,0	12,2	51,8	305		17,2	22,1	0,0	158,3	13,0	46,0	363
Al	14,9	26,3	0,0	220,0	0,0	39,9	304		19,9	35,2	0,0	389,0	14,8	47,6	362
Ca	24,1	50,4	0,0	232,5	0,0	102,3	198		25,4	58,2	0,0	404,4	0,0	99,8	251
Ti	0,5	0,7	0,0	5,0	0,4	1,3	305		0,8	1,0	0,0	8,9	0,5	1,9	363
V	0,8	0,5	0,0	4,3	0,6	1,4	305	V	0,9	0,6	0,0	3,7	0,7	1,8	363
Cr	1,2	2,7	0,0	15,2	0,0	4,8	305		1,5	3,2	0,0	30,7	0,0	4,0	363
Fe	35,3	25,1	0,0	161,8	33,3	65,0	305	Fe	71,9	69,3	0,0	500,7	51,3	133,7	363
Ni	0,3	0,8	0,0	8,7	0,0	1,4	305	Ni	0,7	1,6	0,0	23,9	0,0	2,0	361
Zn	25,0	22,6	1,1	213,1	18,8	49,3	305	Zn	31,1	40,0	3,1	619,5	23,0	55,3	361
As	0,4	0,7	0,0	6,8	0,2	0,7	305		0,6	1,2	0,0	12,3	0,3	1,4	363
Sb	0,2	0,2	0,0	1,5	0,2	0,4	305		0,5	0,5	0,0	3,6	0,3	1,1	363
Pb	4,7	5,2	0,0	54,3	3,4	9,0	304	Pb	8,3	8,2	0,5	63,0	5,5	17,5	363

MC042-Nansenstraße

MC174-Frankfurter Allee

μg/m³	Mean	Std-dev.	Min	Max	Median	90-Perc.	N	μg/m³	Mean	Std-dev.	Min	Max	Median	90-Perc.	N
PM2.5	19,6	10,0	5,1	61,5	16,9	32,4	355	PM2.5	22,7	10,5	7,4	66,1	19,7	36,4	352
ОМІ	2,0	0,9	0,7	6,2	1,8	3,3	349	ОМІ	2,4	1,0	0,8	5,8	2,1	3,8	354
OMII	2,6	1,1	0,7	7,5	2,3	3,9	349	OMII	3,0	1,2	1,0	8,0	2,7	4,6	354
ОМ	4,6	1,9	1,3	12,4	4,2	7,1	349	ОМ	5,3	2,0	1,8	11,5	4,8	8,1	354
EC	2,1	1,5	0,4	9,4	1,6	3,7	351	EC	3,5	1,8	0,3	11,8	3,2	5,7	354
CI	0,2	0,2	0,0	1,4	0,1	0,5	350	CI	0,3	0,3	0,0	1.8	0,2	0,7	351
NO3	2,2	2,4	0,0	10,8	1,2	6,1	353	NO3	2,4	2,4	0,1	11,6	1,4	6,2	353
SO4	2,5	1,7	0,3	10,3	2,0	4,9	353	SO4	2,5	1,7	0,4	11,1	2,0	4,7	353
NH4	1,6	1,2	0,1	7,1	1,2	3,6	353	NH4	1.7	1,3	0,2	7.7	1,3	3,7	351
Na	0,1	0,1	0,0	0,8	0,1	0,3	350	Na	0.1	0,2	0,0	1,6	0,1	0,3	350
ng/m³								ng/m³		-,	-,-	,-	-,	-,-	
ĸ	129,2	107,1	4,0	650,0	104,5	274,0	352	K	136,0	112,5	12,0	636,0	105,0	280,4	347
Mg	24,2	50,8	0,0	704,1	14,4	59,8	353	Mg	20,0	24,0	0,0	212,0	15,9	47,3	354
Al	29,0	42,6	0,0	240,1	17,8	83,6	350	ΑĬ	28,8	43,0	0,0	389,0	21,2	62,0	354
Ca	54,7	94,5	0,0	472,6	0,0	192,8	173	Ca	66,4	108,3	0,0	1.004,9	0,0	175,8	176
Ti	1,1	1,3	0,0	8,6	0,7	2,8	353	Ti	1,4	1,7	0,0	16,1	1,0	3,0	354
V	1,2	1,1	0,1	9,0	0,9	2,5	352	v	1,3	1,6	0,0	17,3	1,0	2,5	354
Cr	10,3	6,8	0,0	53,7	9,1	16,9	352	Cr	10,0	4,8	0,0	34,4	9,3	15,8	354
Fe	95,8	78,9	0,0	738,8	74,5	163,8	353	Fe	223,2	121,4	0,0	960,6	204,5	384,4	354
Ni	2,0	11,3	0,0	137,5	0,0	3,4	352	Ni	1,4	6,8	0,0	106,2	0,0	3,0	354
Zn	32,8	28,3	4,3	267,6	24,9	64,6	350	Zn	38,8	45,6	-1,5	619,5	28,5	72,5	354
As	0,8	1,6	0,1	13,1	0,3	1,7	353	As	0,9	2,1	0,0	17,8	0,3	2,0	354
Sb	0,8	0,7	0,1	5,7	0,5	1,6	353	Sb	1,6	1,5	0,0	16,6	1,3	2,9	354
Pb	11,7	13,2	0,7	91,9	7,4	26,5	353	Ph	10.8	11.7	0,0	90.0	7.0	22.7	354

Anhang II

Konzentrationsverläufe der PM2,5-Inhaltsstoffe

Eine detaillierte Veranschaulichung der zeitlichen Verläufe der PM2,5-Massenkonzentration und seiner Inhaltsstoffe wird im Folgenden mithilfe von zwei bzw. drei Darstellungen pro Messstation gegeben. Die erste Abbildung zeigt zunächst den Verlauf der PM2,5-Massenkonzentration und seiner Inhaltsstoffe. Die zweite Abbildung stellt die täglichen prozentualen Anteile der einzelnen Inhaltsstoffe im Verlauf des Messzeitraumes vom 01.12.06 29.02.08 grafisch dar. Die dritte zum Abbildung Zusammenhangsanalyse zwischen dem Verlauf der PM2,5-Massenkonzentration und seiner Spurenstoffe. Dabei werden in der dritten Abbildung die Inhaltsstoffmassenkonzentrationen mit dem jeweiligen arithmetischen Mittelwert normiert dargestellt, wodurch gerade im Bereich der Spurenstoffe Differenzen einzelner Tage besser verdeutlicht werden können.

Insgesamt werden 21 Inhaltsstoffe des PM2,5-Feinstaubs bei der chemischen Analyse bestimmt. Damit die Abbildungen eine gewisse Übersichtlichkeit behalten, werden die Inhaltsstoffe nach Kriterien der Quellgruppen und Entstehungsorten in vier Gruppen geteilt.

Kohlenstoffgruppe EC, OMI, OMII, OM
Sekundäre Gruppe NO3, SO4, NH4
Natürliche Gruppe Na, K, Mg, Al, Ca, Fe
Anthropogene Gruppe Ti, V, Cr, Ni, Zn, As, Sb, Pb

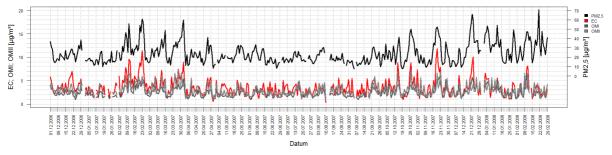


Abbildung All.1: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration der Kohlenstoffgruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC174-Frankfurter Allee)

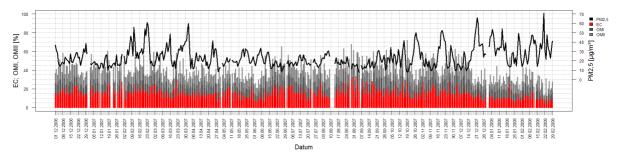


Abbildung All.2: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der Kohlenstoffgruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC174-Frankfurter Allee)

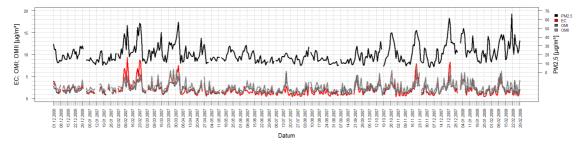


Abbildung All.3: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration der Kohlenstoffgruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC042-Nansenstraße)

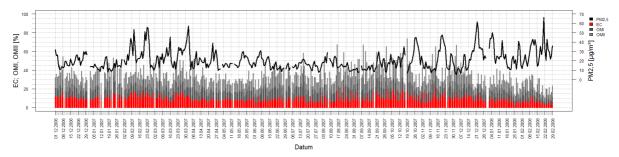


Abbildung All.4: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der Kohlenstoffgruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC042-Nansenstraße)

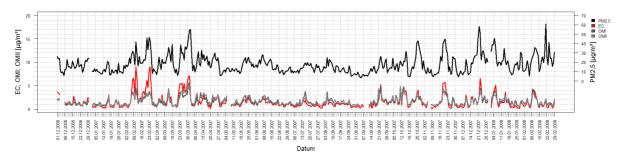


Abbildung All.5: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration der Kohlenstoffgruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC077-Buch)

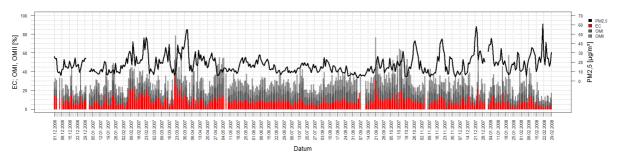


Abbildung All.6: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der Kohlenstoffgruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC077-Buch)

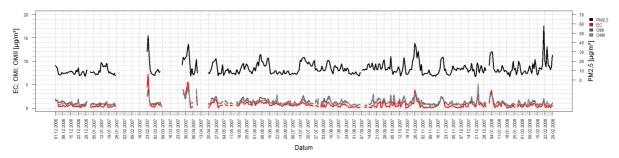


Abbildung All.7: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration der Kohlenstoffgruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC045-Frohnauer Turm)

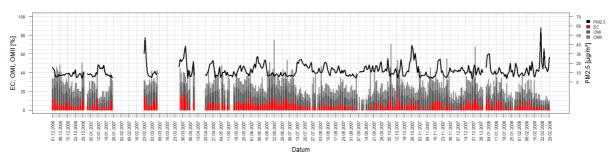


Abbildung All.8: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der Kohlenstoffgruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC045-Frohnauer Turm)

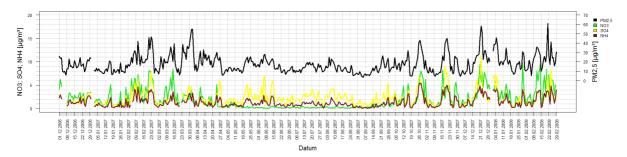


Abbildung All.9: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration der Sekundären Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC174-Frankfurter Allee)

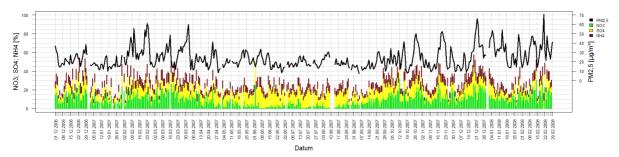


Abbildung All.10: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der Sekundären Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC174-Frankfurter Allee)

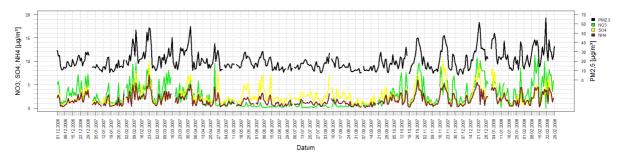


Abbildung All.11: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration der Sekundären Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC042-Nansenstraße)

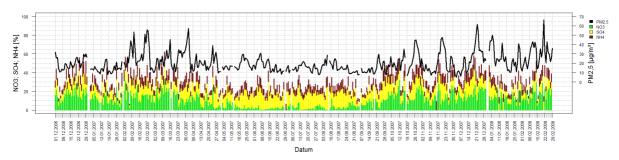


Abbildung All.12: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der Sekundären Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC042-Nansenstraße)

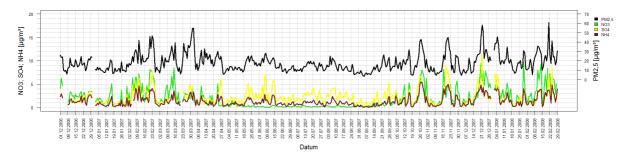


Abbildung All.13: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration der Sekundären Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC077-Buch)

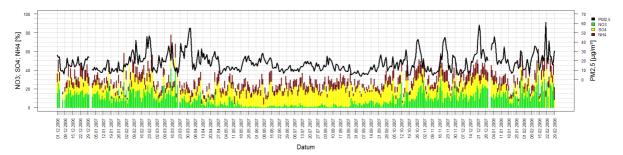


Abbildung All.14: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der Sekundären Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC077-Buch)

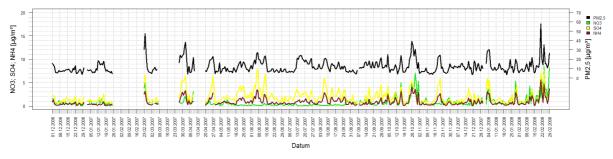


Abbildung All.15: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration der Sekundären Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC045-Frohnauer Turm)

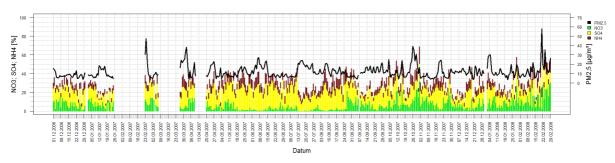


Abbildung All.16: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der Sekundären Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC045-Frohnauer Turm)

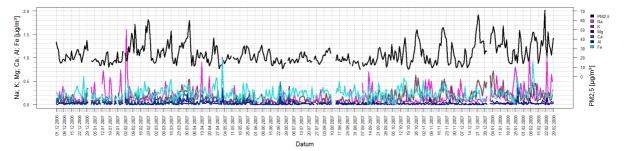


Abbildung All.17: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration der Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC174-Frankfurter Allee)

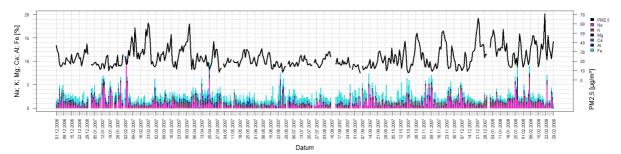


Abbildung All.18: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC174-Frankfurter Allee)

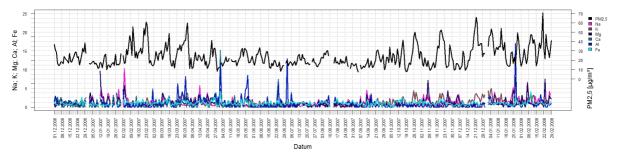


Abbildung All.19: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der relativen Konzentrationen der Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC174-Frankfurter Allee)

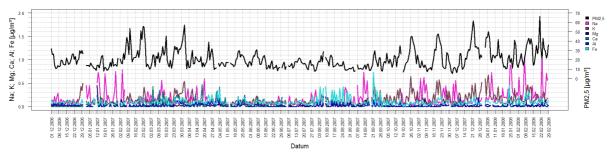


Abbildung All.20: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration der Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC042-Nansenstraße)

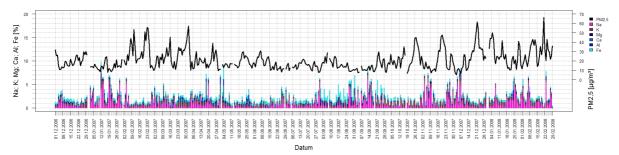


Abbildung All.21: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC042-Nansenstraße)

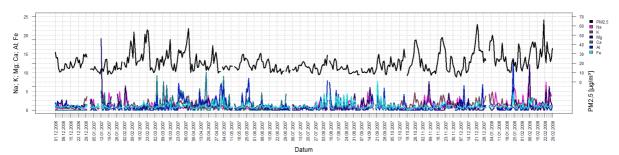


Abbildung All.22: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der relativen Konzentration der Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC042-Nansenstraße)

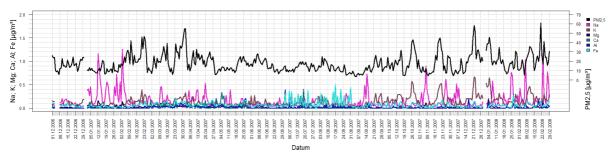


Abbildung All.23: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration der Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC077-Buch

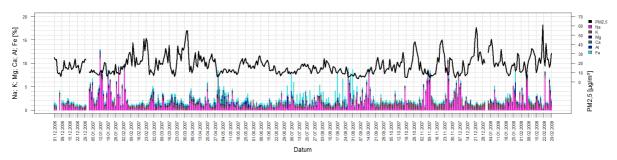


Abbildung 10.24: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC077-Buch

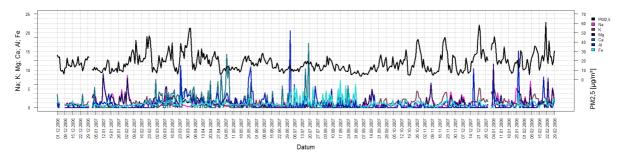


Abbildung All.25: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der relativen Konzentration der Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC077-Buch)

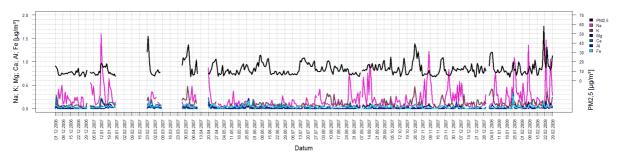


Abbildung All.26: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration der Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC045-Frohnauer Turm)

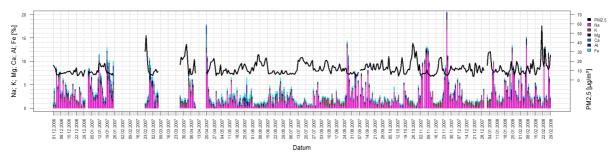


Abbildung All.27: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC045-Frohnauer Turm)

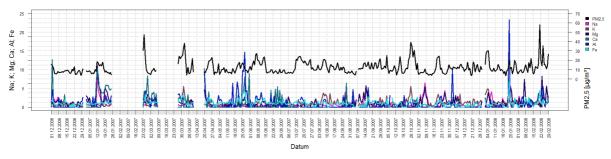


Abbildung All.28: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der relativen Konzentration der Natürlichen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC045-Frohnauer Turm)

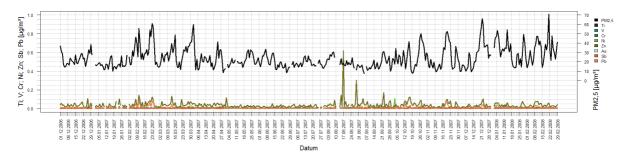


Abbildung All.29: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration der Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC174-Frankfurter Allee)

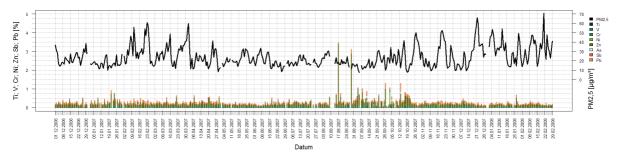


Abbildung All.30: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC174-Frankfurter Allee)

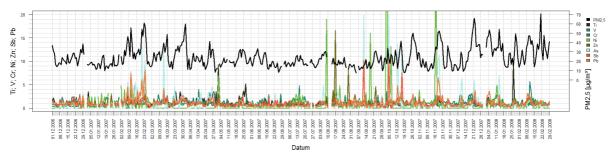


Abbildung All.31: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der relativen Konzentration der Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC174-Frankfurter Allee)

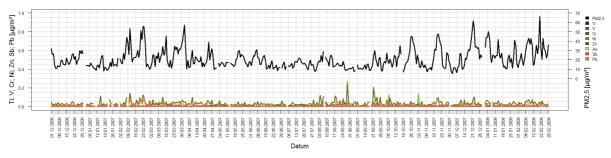


Abbildung All.32: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration der Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC042-Nansenstraße)

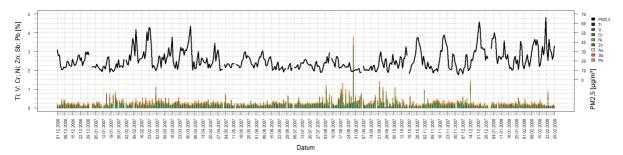


Abbildung All.33: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC042-Nansenstraße)

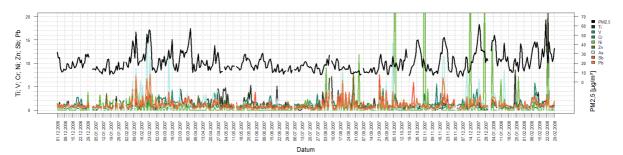


Abbildung All.34: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der relativen Konzentration der Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC042-Nansenstraße)

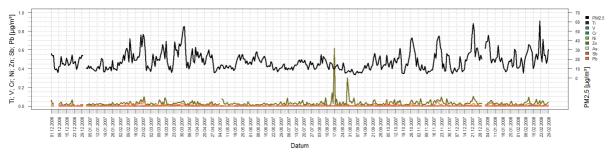


Abbildung All.35: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration der Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC077-Buch)

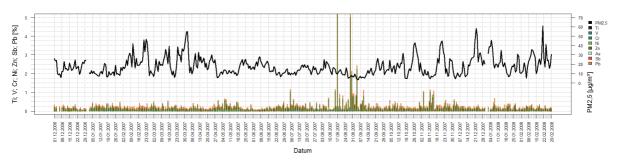


Abbildung All.36: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC077-Buch)

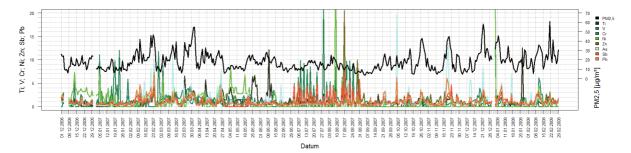


Abbildung All.37: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der relativen Konzentration der Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC077-Buch)

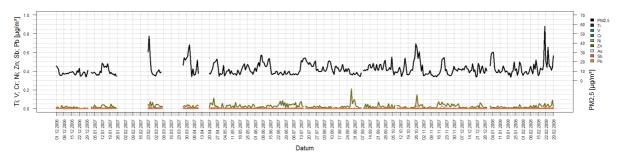


Abbildung All.38: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Konzentration der Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC045-Frohnauer Turm)

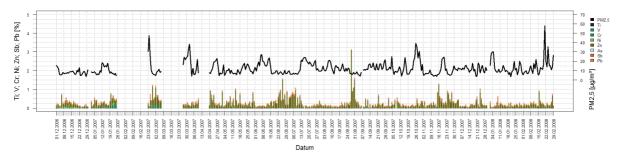


Abbildung All.39: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der Anteile der Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC045-Frohnauer Turm)

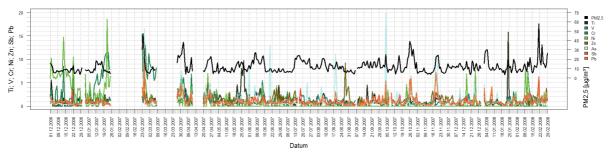
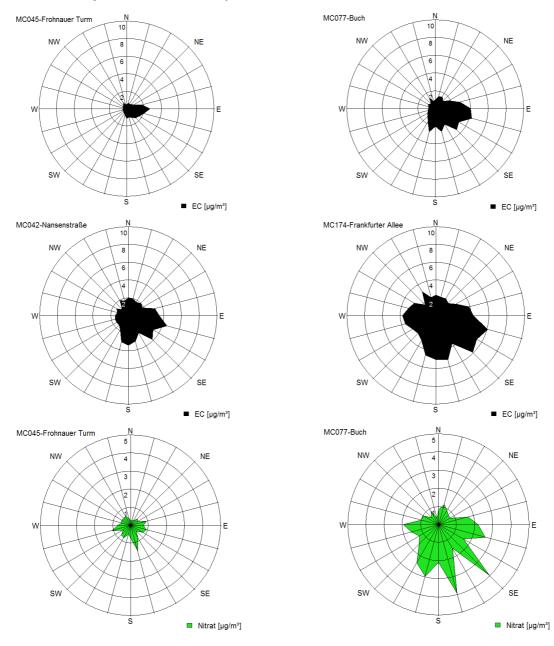
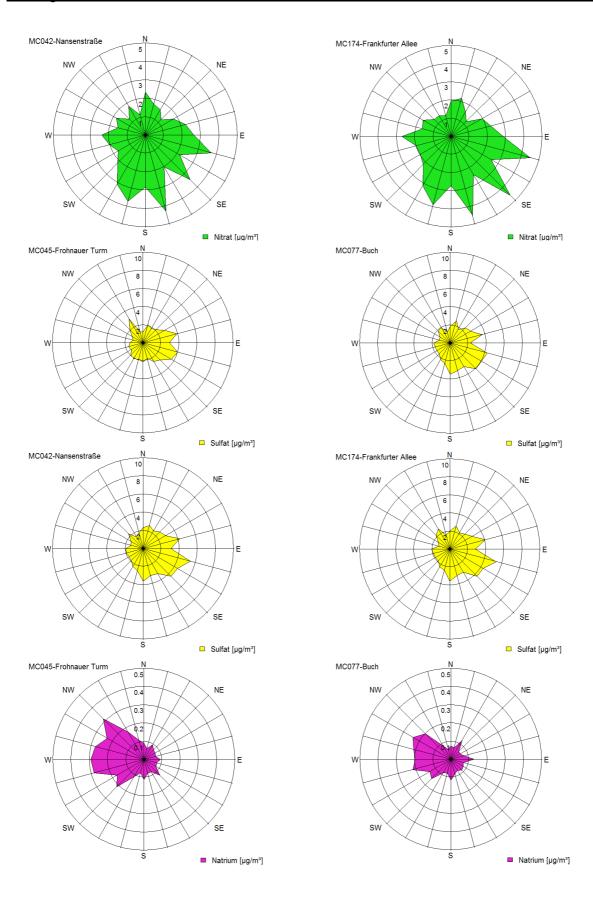


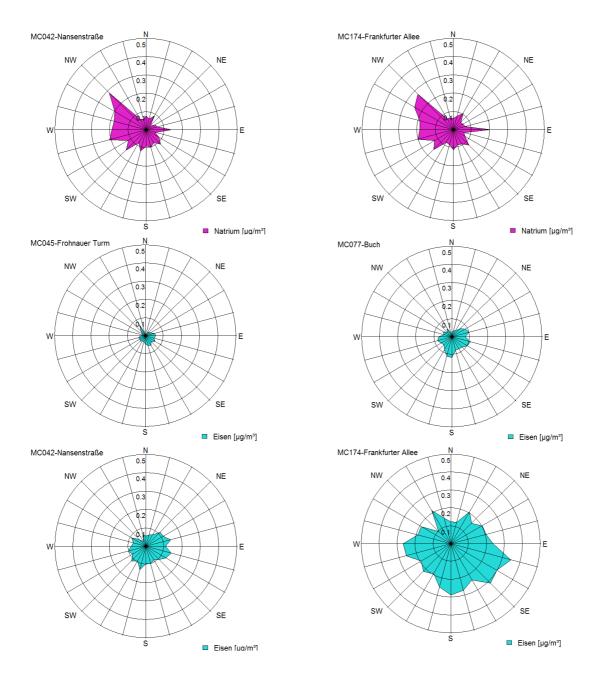
Abbildung All.40: Zeitlicher Verlauf der PM2,5-Feinstaubkonzentration und der relativen Konzentration der Anthropogenen Gruppe vom 01.12.2006 bis 29.02.2008 (MC045-Frohnauer Turm)

Anhang III

Windrosen für EC, NO3 und SO4 (Leitkomponente für Verbrennungsaerosole), Na (Leitkomponente Seesalzemissionen und maritime Luft) und Fe (Leitkomponente für Dispersionsaerosole)



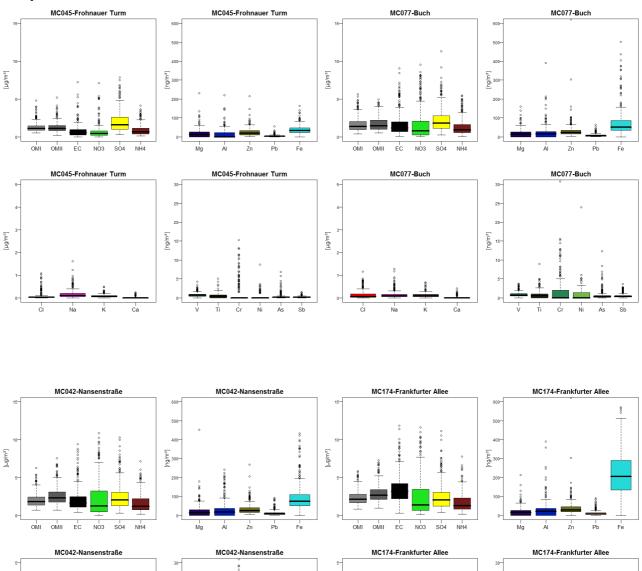




Anhang IV 118

Anhang IV

Boxplots für die chemischen Bestandteile des PM2,5-Feinstaubes, 2007



Anhang V 119

Anhang V

Feinstaubzusammensetzung bei hohen und niedrigen PM2,5-Feinstaubbelastungen

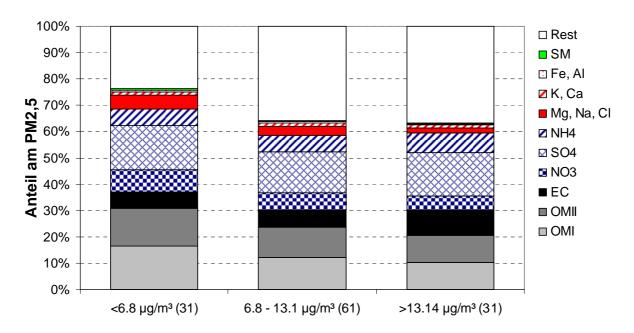


Abbildung AV-1: Zusammensetzungen des PM2,5 am MC045-Frohnau

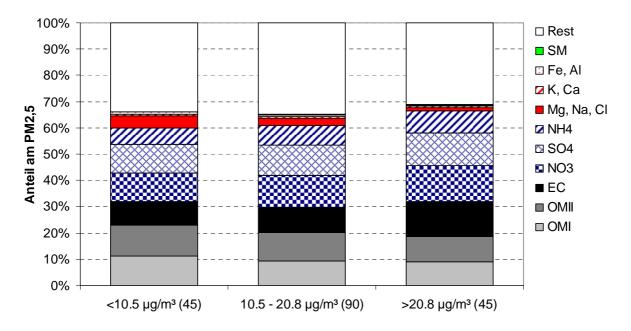


Abbildung AV-2: Zusammensetzungen des PM2,5 am MC042-Nansenstraße

Anhang V 120

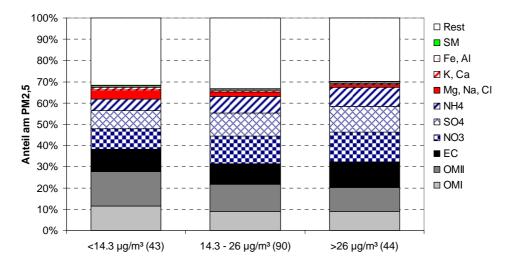


Abbildung AV-3: Zusammensetzungen des PM2,5 am MC077-Buch

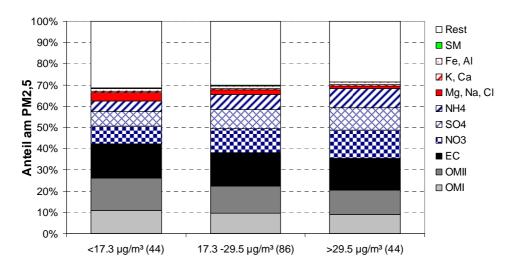


Abbildung AV-IV: Zusammensetzungen des PM2,5 am MC174-Frankfurter Allee